

**Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение  
высшего профессионального образования «Сибирский государственный  
аэрокосмический университет имени академика М.Ф. Решетнева»**

**Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения  
Российской академии наук**

На правах рукописи



Лященко Сергей Александрович

**Морфология, магнитные и магнитооптические свойства низкоразмерных  
структур Fe-Si**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
кандидат технических наук, доцент  
С. Н. Варнаков

Красноярск – 2015

## Оглавление

Введение.....	4
Глава 1 Применение метода отражательной спектральной магнитоэллипсометрии для исследования оптических и магнитооптических свойств силицидов $Fe_5Si_3$ и $Fe_3Si$ .....	11
1.1 Основное уравнение эллипсометрии, прямая и обратная задачи .....	15
1.2 Традиционные модели отражающей поверхности образца.....	16
1.3 Магнитооптические измерения на отражение .....	26
1.4 Методы оптимизации эллипсометрической модели. Регрессионный анализ .....	35
Глава 2 Экспериментальное оборудование, аппаратура и методы исследования.....	39
2.1 Технологическое оборудование для получения тонких плёнок .....	39
2.2 Экспериментальные методы исследования.....	41
2.3 Методология анализа структурных и магнитооптических свойств с помощью спектральной эллипсометрии.....	58
2.3.1 Модель случайно-распределённых дисков .....	59
2.3.2 Алгоритм расчёта магнитооптических параметров ферромагнетика по данным магнитоэллипсометрии .....	68
2.3.3 Обоснование выбора метода определения экстремумов функции минимизации .....	72
2.4 Выводы к главе .....	75
Глава 3 Исследование влияния технологических условий на формирование метастабильной при комнатной температуре фазы силицида $Fe_5Si_3$ .....	77
3.1 Создание массивных образцов системы $Fe_5Si_3/SiO_2/Si(100)$ . Измерение дисперсий коэффициентов преломления и поглощения $Fe_5Si_3$ .....	77

3.2 Формирование островковых образцов стехиометрического состава $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ методом послойного осаждения Fe и Si на поверхность $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ в различных технологических условиях .....	87
3.3 Анализ морфологии островковых образцов стехиометрического состава $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ методами атомно-силовой микроскопии, растровой электронной микроскопии и спектральной эллипсометрии.....	93
3.4 Выводы к главе .....	114
Глава 4 Анализ магнитных и спектральных магнитооптических характеристик структур $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ и $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$ методами <i>ex situ</i> и <i>in situ</i> отражательной спектральной магнитоэллипсометрии.....	115
4.1 Апробация метода спектральной магнитоэллипсометрии при анализе структуры $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ .....	115
4.2 Анализ магнитных и магнитооптических свойств структуры $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ методами <i>ex situ</i> спектральной магнитоэллипсометрии.....	124
4.3 Анализ магнитных и магнитооптических свойств структуры $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$ методами <i>ex situ</i> спектральной магнитоэллипсометрии .....	130
4.4 Выводы к главе .....	135
Заключение .....	137
Список сокращений и условных обозначений.....	139
Список литературы .....	140

## Введение

### Актуальность темы исследования

В настоящее время наблюдается значительный прикладной интерес к сплошным поликристаллическим и эпитаксиальным плёнкам нанометровых толщин, которые используются в роли проводников и изоляторов в микро- и нанoeлектронике. Особую ценность для таких сплошных плёнок имеют ферромагнитные материалы в связи с потенциалом их применения в различных устройствах спинтроники [1, 2]. Например, многослойные структуры с интерфейсом ферромагнетик/полупроводник могут использоваться для создания спинового вентиля, в котором возможно изменять спиновый ток, управляя состояниями намагниченности ферромагнитных слоёв [3].

Высокий коэффициент спиновой инжекции в таких устройствах наблюдается в случае высокой степени спиновой поляризации ферромагнетика и резкого интерфейса между ферромагнетиком и полупроводником [4], причем такой интерфейс достаточно затруднительно реализовать на практике. Как правило, проблема создания подобного интерфейса решается эпитаксиальным ростом тонких плёнок ферромагнетика на полупроводнике. В роли полупроводника в устройствах спинтроники хорошо зарекомендовал себя кремний в связи с малой величиной его спин-орбитального взаимодействия и большой длиной спиновой диффузии [5]. Учитывая доминирующие позиции в современной микроэлектронике кремниевых технологий, актуальным является как создание ферромагнитных материалов на основе силицидов 3d-металлов, производство которых требует минимальных изменений существующих технологических процессов, так и формирование плёнок этих силицидов на полупроводнике с резкой границей раздела. Особый интерес представляют магнитные системы Fe/Si, в том числе богатые железом ферромагнитные силициды  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Силицид  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , имплантированный в кремний, демонстрирует эффект гигантского магнетосопротивления 2400% [4], но в объёмном состоянии

существует только при температурах от 825 до 1060 °С. Однако известны работы, в которых с помощью высокочастотного распыления сплава Fe-Si на кварцевую подложку при 250 °С удалось сформировать стабильный при комнатной температуре силицид  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в виде поликристаллических плёнок [6] и нанонитей с помощью химического осаждения из газовой фазы [7]. В свою очередь, силицид  $\text{Fe}_3\text{Si}$  обладает высоким коэффициентом спиновой поляризации электронов [8] и может быть выращен эпитаксиально на монокристалле Si(111) [9].

Для данных силицидов проведено большое количество исследований по определению структурных, магнитных, транспортных и оптических свойств на различных типах подложек [4, 6, 10, 11], но по-прежнему невыясненными остаются их спектральные магнитооптические свойства.

Обычно для проведения исследований физико-химических свойств данных силицидов образцы извлекаются на воздух и проходят специальную подготовку, которая может существенно изменить их свойства. Для анализа электронных и магнитных свойств чаще всего применяют оптическую спектроскопию, магнитометрию, ядерный магнитный резонанс и измерение магнитотранспортных свойств. Такой комплекс измерений может занимать много времени и не всегда удобен для тонкоплёночных образцов с развитой поверхностью или малым количеством ферромагнитного материала. Особые трудности появляются при попытке проведения *in situ* анализа электронных свойств перечисленными методами, что крайне важно с точки зрения чистоты эксперимента и повторяемости результатов. В связи с этим важное практическое значение имеют *in situ* методы анализа, которые непосредственно в процессе формирования структуры позволяют получить количественную информацию о строении её поверхности и магнитных свойствах.

В последние десятилетия в роли неразрушающего *in situ* метода анализа поверхности зарекомендовала себя отражательная спектральная эллипсометрия [12], которая обладает такими преимуществами, как быстрдействие и поверхностная чувствительность. При аппаратной доработке и развитии алгоритмов анализа появляется возможность применения данного метода для

измерения спектральных оптических и магнитооптических свойств, контроля морфологии поверхности и магнитного состояния ферромагнитной структуры.

Таким образом, анализ морфологии поверхности, магнитных и спектральных магнитооптических свойств перспективных низкоразмерных систем Fe-Si методом отражательной спектральной магнитоэллипсометрии является достаточно актуальной задачей.

**Целью диссертационной работы** является получение плёнок метастабильной при комнатной температуре фазы силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , исследование оптических и магнитооптических свойств силицидов  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ .

Для достижения указанной цели были поставлены следующие **задачи**:

1. Определить технологические условия формирования метастабильной при комнатной температуре фазы силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и исследовать ее структурные свойства;

2. Установить влияние эффективной толщины исходной композиционной структуры Fe-Si в стехиометрическом соотношении 5:3 на морфологию формирующейся структуры;

3. Измерить дисперсии коэффициентов преломления и поглощения фазы силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в диапазоне длин волн  $250 \div 1000$  нм при комнатной температуре. Определить магнитные характеристики силицидов  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$  методом магнитоэллипсометрии;

4. Измерить дисперсии магнитного кругового дихроизма для силицидов  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$  методом магнитоэллипсометрии в диапазоне длин волн  $250 \div 825$  нм.

### **Научная новизна**

Работа содержит новые экспериментальные и методологические результаты:

1. Методом термического испарения в сверхвысоком вакууме получены сплошные и островковые плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Для поликристаллической плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  исследованы структурные свойства и впервые измерена дисперсия оптических

постоянных в диапазоне длин волн  $250 \div 1000$  нм методом спектральной эллипсометрии.

2. Создана оптическая модель случайно-распределённых дисков на поглощающей подложке, позволяющая методом *in situ* спектральной эллипсометрии контролировать морфологию формирующихся структур.

3. Впервые измерены спектральные зависимости магнитного кругового дихроизма и полевые зависимости эллипсометрических параметров для плёнок  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$  методом спектральной магнитоэллипсометрии.

### **Практическая значимость работы**

Предложенный способ получения сплошной поликристаллической плёнки и островковых структур силицида железа  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  на слое  $\text{SiO}_2$  может быть использован для создания устройств спинтроники.

Показана возможность применения *ex situ* и *in situ* спектральной магнитоэллипсометрии для проведения фундаментальных исследований структурных и магнитных свойств, анализа недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости ферромагнитных материалов.

Впервые определены дисперсии коэффициентов преломления и поглощения поликристаллической пленки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в диапазоне длин волн  $250 \div 1000$  нм и впервые измерены дисперсии магнитного кругового дихроизма для поликристаллической плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  толщиной 27 нм на поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  и эпитаксиальной монокристаллической плёнки  $\text{Fe}_3\text{Si}$  на подложке  $\text{Si}(111)$  в диапазоне длин волн  $250 \div 825$  нм. Полученные данные могут использоваться в дальнейшем для контроля процессов формирования силицидов  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ .

На защиту выносятся следующие **основные положения**:

1. Экспериментальные результаты определения технологических условий сверхвысоковакуумного термического напыления для образования сплошной поликристаллической плёнки метастабильной при комнатной температуре фазы силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

2. Результаты исследования влияния эффективной толщины исходной композиционной структуры Fe-Si в стехиометрическом соотношении 5:3 на морфологию формирующейся структуры с применением методов атомно-силовой микроскопии, растровой электронной микроскопии и спектральной эллипсометрии.

3. Результаты измерения дисперсии коэффициентов преломления и поглощения силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в диапазоне длин волн  $250 \div 1000$  нм при комнатной температуре методом спектральной эллипсометрии.

4. Результаты исследования спектральных зависимостей магнитного кругового дихроизма и полевых зависимостей эллипсометрических параметров плёнок  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  методом магнитоэллипсометрии.

### **Апробация результатов работы**

Основные результаты работы были представлены на всероссийских и международных конференциях: V-м Европейско-азиатском симпозиуме «Trends in magnetism», EASTMAG-2013 (г. Владивосток, Россия, 15-21 сентября 2013 г.); I-й азиатской школе-конференции по физике и технологии наноструктурированных материалов, ASCO-NANOMAT 2011 (г. Владивосток, Россия, 21-27 августа 2011 г.); XIX-м Международном симпозиуме «Нанофизика и нанoeлектроника» (Нижний Новгород, Россия, 10-14 марта 2015 г.); 6-й Байкальской международной конференции «Magnetic Materials. New Technologies», ВИСММ-2014 (д. Большое Голоустное, Иркутская область, Россия, 19-23 августа 2014 г.); II-й Всероссийской научной конференции «Методы исследования состава и структуры функциональных материалов», МИССФМ-2 (г. Новосибирск, Россия, 21-25 октября 2013 г.); X-м Сибирском семинаре по сверхпроводимости и физике наноструктур ОКНО-2014 (г. Новосибирск, 13-14 ноября 2014 г.); Международной научной конференции «Решетневские чтения» (г. Красноярск, Россия, 2009, 2010 и 2011 гг.).



## Публикации

По материалам диссертации опубликованы 4 статьи в журналах из списка ВАК, 1 статья в рецензируемом международном журнале, а также 8 тезисов в сборниках трудов всероссийских и международных конференций. Созданы и зарегистрированы 6 программ ЭВМ, в которых реализованы методы и алгоритмы, представленные в диссертационной работе. Кроме того, опубликовано одно методическое пособие для выполнения лабораторного практикума студентами старших курсов.

**Личный вклад автора** состоит в определении технологических условий формирования сплошной поликристаллической плёнки и островковых структур  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Автором проведены все эллипсометрические и магнитоэллипсометрические измерения, представленные в работе, а также все этапы статистической обработки и моделирования. Автор принимал активное участие на всех этапах получения и анализа экспериментальных данных, создания экспериментальных образцов и написания статей. Вклад соавторов в публикациях по теме диссертационной работы заключается в следующем: д.ф.-м.н. Овчинников С.Г., к.т.н. Варнаков С.Н. и к.ф.-м.н. Косырев Н.Н. принимали участие в постановке задач работы, обсуждении полученных результатов и написании статей; к.ф.-м.н. Заблуда В.Н. проводил консультации по методам проведения магнитоэллипсометрических измерений; д.ф.-м.н. Швец В.А. консультировал по методам проведения эллипсометрических измерений. Плёнки стехиометрического состава  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  были получены Яковлевым И.А. Магнитные структуры системы  $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  получены при участии Д.В. Шевцова. Тарасов И.А. принимал активное участие в процессе обработки результатов одноволновой эллипсометрии, а также проводил измерения толщин Fe и Si методом рентгеноспектрального флуоресцентного анализа. Предварительная химическая подготовка всех подложек проведена Е.В. Яковлевой. Квантово-химический расчёт спектральных зависимостей оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  проводил к.ф.-м.н. Попов З.И. Изображения поверхности образцов методом

атомно-силовой микроскопии были получены к.ф.-м.н. Тарасовым А.С. и Марущенко Д.А. Регистрация данных рентгено-структурного анализа проводилась к.ф.-м.н. Молокеевым М.С. Фотографии поверхности образцов методом растровой электронной микроскопии регистрировались Немцевым И.В.

### **Структура и объем диссертации**

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений и списка используемой литературы. Общий объем диссертации составляет 149 страниц, включая 65 рисунков, 5 таблиц и список литературы из 108 наименований.

## **Глава 1 Применение метода отражательной спектральной магнитоэллипсометрии для исследования оптических и магнитооптических свойств силицидов $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ и $\text{Fe}_3\text{Si}$**

В последние годы значительно возросло количество исследований по силицидам таких металлов как железо Fe, магний Mg, кальций Ca, марганец Mn, хром Cr [13, 14]. Это вызвано несколькими причинами. Во-первых, соединения кремния с данными металлами часто являются высокоэффективными полупроводниками с оптимальным соотношением КПД/стоимость, которые можно применять для генерации и детектирования излучений, создания фотоэлектрических преобразователей [13]. Во-вторых, эти соединения нетоксичны при производстве, эксплуатации и утилизации, химически инертны в нормальных условиях. В-третьих, производство устройств на основе силицидов металлов легко внедрить в уже существующие кремниевые технологии. Кроме того, силициды железа являются перспективными материалами для устройств спинтроники, и в лаборатории физики магнитных явлений ИФ СО РАН имеется значительный опыт по синтезу соединений системы железо-кремний [15-17].

Одним из наименее изученных на сегодняшний день силицидов является метастабильное при нормальных условиях соединение кремния с железом  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , которое не удаётся синтезировать в объёмном монокристаллическом состоянии, так как при температуре ниже  $825\text{ }^\circ\text{C}$  оно термодинамически неустойчиво и превращается в фазовую смесь стабильных  $\text{FeSi}$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Область существования стабильной объёмной фазы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  видна на фазовой диаграмме системы Fe-Si (рисунок 1) [18].

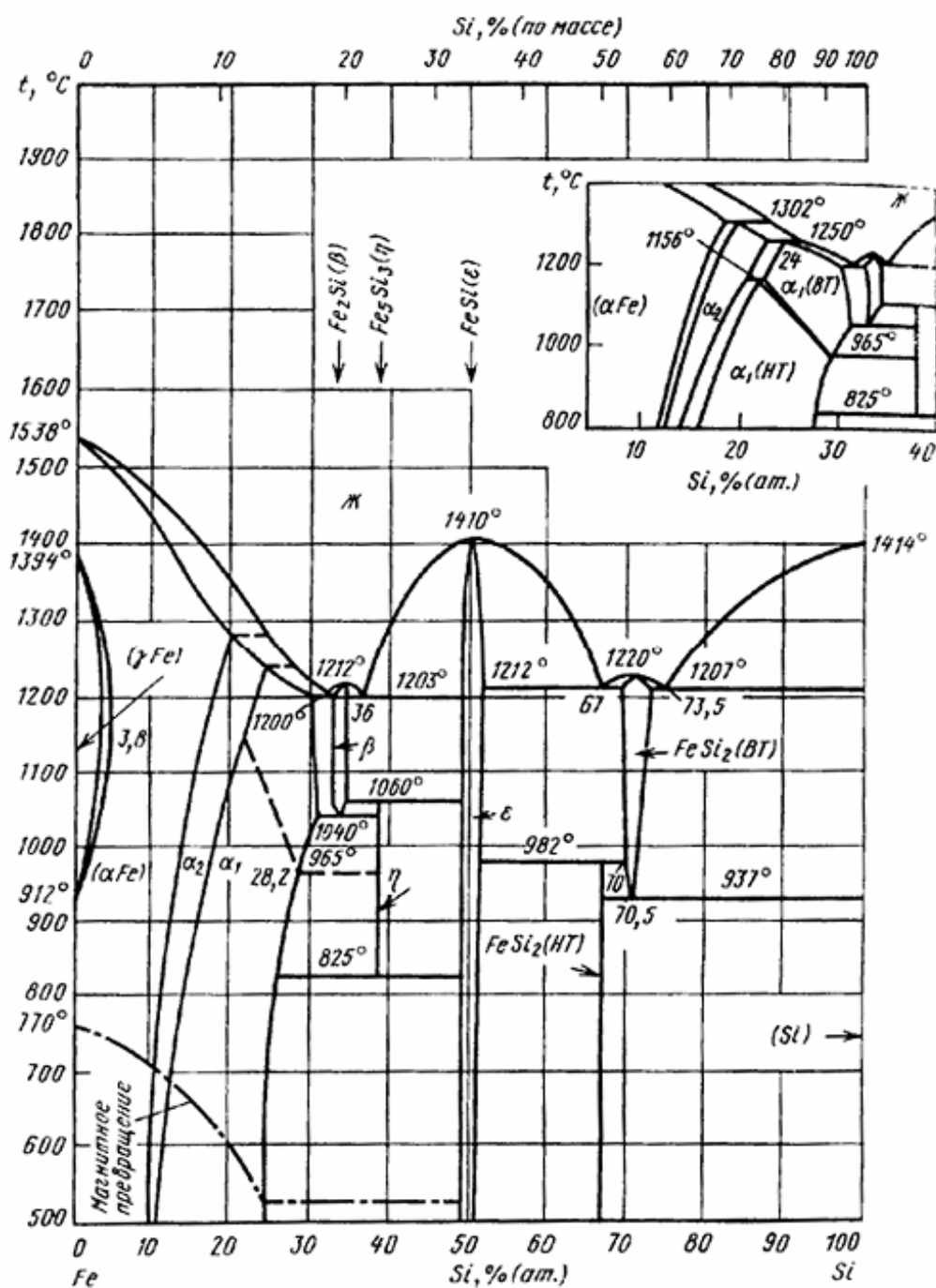


Рисунок 1 – Объемная фазовая диаграмма системы Fe-Si [18]

При исследовании толстых поликристаллических плёнок [6] и монокристаллических нитей на сапфире [19] для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  были измерены спектральные зависимости Фарадеевского вращения и коэффициента оптического поглощения (рисунок 2), а также была определена температура Кюри ( $\sim 110^\circ\text{C}$ ) и коэрцитивная сила ( $\sim 200$  Э) при комнатной температуре.

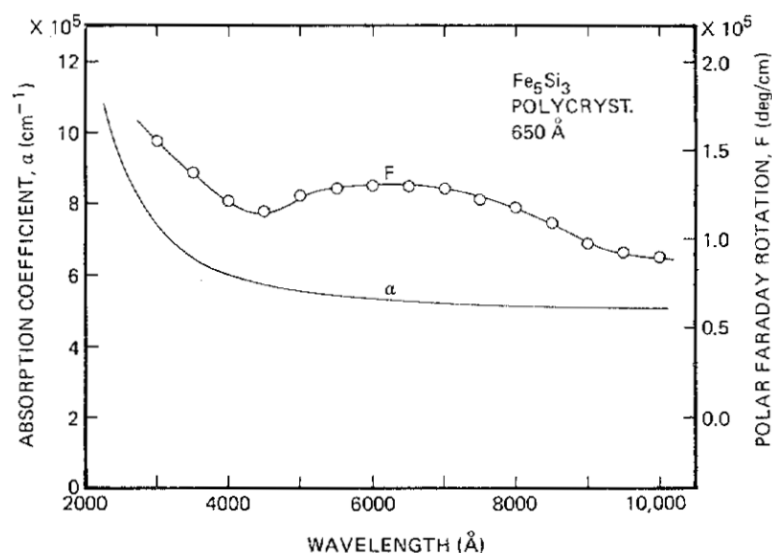


Рисунок 2 – Коэффициент оптического поглощения  $\alpha$  (без поправки на отражение) и полярное вращение Фарадея  $F$  как функции от длины волны для 65 нм поликристаллической плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  на сапфире при комнатной температуре из работы [6]

Более того, было установлено, что силицид  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , полученный методом ионной имплантации железа в кремний, обладает гигантским магнетосопротивлением (порядка 2400 %) [4], что делает это соединение перспективным материалом для спинтроники.

Для создания устройств спинтроники, кроме  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , большой интерес представляет силицид  $\text{Fe}_3\text{Si}$  [20], который по результатам измерений спиновой поляризации при 4.2 К на структуре  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{GaAs}(001)$  показал результат в  $45 \pm 5$  % [21]. Одним из важных достоинств силицида  $\text{Fe}_3\text{Si}$  является малая величина несоответствия его периода решетки с плоскостью (111) монокристаллического кремния, а также стабильность в объёмном состоянии при комнатной температуре, что позволяет осуществлять рост эпитаксиальных ферромагнитных плёнок на поверхности Si(111). Для данного силицида проведено множество исследований его структурных, магнитных, транспортных и оптических свойств на различных типах подложек [10, 11], но по-прежнему невыясненными остаются спектральные магнитооптические свойства. Особенно актуальными такие

измерения представляются для эпитаксиальной структуры  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  в свете технологической совместимости процессов синтеза силицида и подготовки атомарно-чистой поверхности  $\text{Si}(111)$  [9].

На сегодняшний день в полупроводниковой промышленности для контроля процессов синтеза широко используется эллипсометрия как чувствительный бесконтактный метод анализа [22]. Преимущества эллипсометрии заключаются в её высокой поверхностной чувствительности, возникающей благодаря измерению отношения амплитуд и разности фаз коэффициентов Френеля для взаимно-перпендикулярных компонент отражённого света. Ещё одним важным преимуществом является принципиальное быстроедействие измерений, которое ограничено только чувствительностью фотоприёмного устройства и механической инерцией вращающихся элементов оптической схемы эллипсометра, если таковые имеются в конструкции. Также к преимуществам можно отнести возможность полной автоматизации процесса измерений и простого анализа полученных данных, например, при использовании эллипсометрии на производстве.

Особенностью метода эллипсометрии является то, что прямое преобразование результатов эллипсометрических измерений в оптические параметры возможно только в случае изотропного, гомогенного и полубесконечного образца [23]. Как правило, требуется создать модель оптической структуры, которая содержит коэффициенты отражения и некоторые геометрические характеристики исследуемой поверхности. Далее, используя уравнения Френеля, нужно подобрать такие значения параметров, которые наилучшим образом описывают наблюдаемые эллипсометрические углы. Данное обстоятельство является практически единственным недостатком метода.

Если дополнить измерительную схему эллипсометра источником постоянного магнитного поля, то возникает дополнительная возможность исследования магнитооптического эффекта Керра на образце [24].

## 1.1 Основное уравнение эллипсометрии, прямая и обратная задачи

Если рассмотреть плоскую электромагнитную волну, которая распространяется вдоль оси  $x$  по гармоническому закону, то можно записать мгновенную напряжённость электрического поля как функцию [23]:

$$E(y) = E_0 e^{i(\omega t - k_x \cdot x)}, \quad (1)$$

где  $\omega$  – круговая частота и  $k_x$  – компонента волнового вектора  $k$  в направлении оси  $x$ , которые связаны с периодом и длиной волны простыми соотношениями:  $T = 2\pi/\omega$ ,  $\lambda = 2\pi/k_x$ ;  $t$  – время. Величина  $E_0$  является амплитудой колебаний электрического поля. Модуль волнового вектора  $k$  и частота связаны друг с другом дисперсионным соотношением  $k = \omega/c$ . При распространении волны в изотропной однородной поглощающей среде происходит взаимодействие переменного поля со средой, которое приводит к изменению фазовой скорости волны и уменьшению её амплитуды вдоль направления распространения. Указанные явления можно ввести в функцию (1), представив волновой вектор в виде  $k_x = (n - ik)\omega/c$ , где величины  $n$  и  $k$  называются коэффициентами преломления и экстинкции (ослабления света или поглощения) среды соответственно. Величину  $N = n - ik$  называют комплексным показателем преломления среды, а  $\varepsilon = N^2$  – диэлектрической проницаемостью среды.

Отношения амплитуд отражённой и падающей волн для двух компонент эллиптически-поляризованного (в общем случае) света [23]:  $R_p = E_{0rp}/E_{0ip}$ ,  $R_s = E_{0rs}/E_{0is}$ , являются комплексными коэффициентами отражения. Модуль коэффициента отражения соответствует изменению амплитуды волны при отражении, а фаза характеризует фазовый сдвиг между падающей и отражённой волнами.

Дополнительно, если отражающая поверхность состоит из нескольких областей [25, 26] с различными отражающими свойствами и долями покрытия поверхности  $\eta_1, \eta_2, \dots, \eta_i$ , то из принципа суперпозиции волн следует:

$$R_p = \sum_i R_{ip} \cdot \eta_i, \quad R_s = \sum_i R_{is} \cdot \eta_i, \quad (2)$$

где  $R_{ip}$  и  $R_{is}$  - коэффициенты отражения для  $i$ -ой области. При этом сумма всех поверхностных долей равна единице.

При эллипсометрических измерениях определяется отношение коэффициентов отражения для параллельной  $p$  и перпендикулярной  $s$  к плоскости падения компонент света. Такое отношение называют *основным уравнением эллипсометрии* [23] и представляют в виде:

$$\rho \equiv \operatorname{tg} \psi \cdot e^{i\Delta} = \frac{R_p}{R_s}, \quad (3)$$

где  $\Psi$  и  $\Delta$  – это эллипсометрические параметры, являющиеся измеряемыми величинами. А коэффициенты отражения  $R_p$  и  $R_s$  являются результатом построения некоторой модели отражающей поверхности.

При поиске комплексных коэффициентов отражения по заданной модели отражающей поверхности образца производится решение *обратной задачи эллипсометрии*. В случае, когда все параметры исследуемого объекта уже известны и ведется расчёт эллипсометрических углов  $\Psi$  и  $\Delta$ , производится решение *прямой задачи эллипсометрии*.

## 1.2 Традиционные модели отражающей поверхности образца

Наиболее простой оптической моделью поглощающего свет образца является *модель полубесконечной среды*, которая предназначена для измерения псевдо-диэлектрической проницаемости подложки [27]. Процесс отражения света только от границы раздела вакуум-подложка, можно описать через коэффициенты Френеля следующим образом [23]:



$$\rho = \frac{R_p}{R_s} = \left( \frac{N_1 \cos \varphi_0 - N_0 \cos \varphi_1}{N_1 \cos \varphi_0 + N_0 \cos \varphi_1} \right) \bigg/ \left( \frac{N_0 \cos \varphi_0 - N_1 \cos \varphi_1}{N_0 \cos \varphi_0 + N_1 \cos \varphi_1} \right), \quad (4)$$

где  $N_0 = 1$  – комплексный коэффициент преломления вакуума;  $N_1$  – комплексный коэффициент преломления вещества подложки; угол преломления  $\varphi_1$  вычисляется из угла падения света  $\varphi_0$  через закон Снеллиуса. Используя тригонометрические преобразования, для псевдо-диэлектрической функции можно получить:

$$\langle \varepsilon \rangle = \varepsilon_1 = \sin^2(\varphi_0) \cdot \left( \tan^2(\varphi_0) \cdot \left( \frac{1-\rho}{1+\rho} \right)^2 + 1 \right). \quad (5)$$

В случае, когда химический состав подложки не меняется по глубине от поверхности, и поверхность не имеет выраженной шероховатости, диэлектрическая проницаемость вещества подложки будет равна псевдо-диэлектрической функции с погрешностью задания угла падения света и измерения эллипсометрических углов.

Когда на поверхности подложки присутствует некоторый переходный слой или сформирована сплошная плёнка, для описания такой поверхности обычно используется многослойная (в общем случае) оптическая модель.

### *Многослойная модель поверхности*

На рисунке 3 показана схема отражения света от однослойной прозрачной структуры на границе раздела двух полубесконечных сред на основе геометрической оптики [23]. Индексы в левой части изображения 0, 1 и 2 соответствуют внешней среде, слою и подложке.

Пусть внешней средой является воздух с коэффициентом преломления  $n_0 = 1$  и поглощения  $\kappa_0 = 0$ . Падающая волна на каждой границе раздела расщепляется на отражённую волну и преломлённую волну. В результате образуется ряд из  $m$  парциальных волн, амплитуды которых  $E_r$  уменьшаются в геометрической прогрессии.

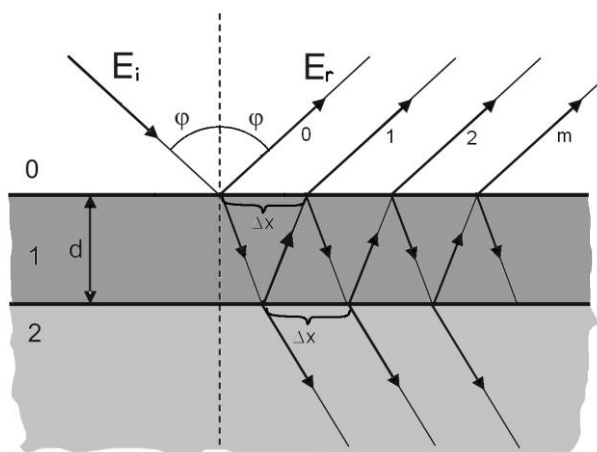


Рисунок 3 – Однослойная оптическая модель

Каждая из парциальных волн сдвинута по фазе относительно предыдущей на величину, которую можно обозначить как  $2\delta$ :  $E_{r+1} = E_r e^{-2i\delta}$ . Из геометрических построений для фазовой толщины слоя получим:

$$\delta = 2\pi \frac{d}{\lambda} \sqrt{N_1^2 - \sin^2 \varphi}, \quad (6)$$

где  $N_1$  - комплексный показатель преломления слоя;  $\lambda$  - длина волны;  $d$  - толщина слоя и  $\varphi$  - угол падения волны на поверхность относительно нормали.

Учитывая, что коэффициенты Френеля для границы раздела двух сред с  $N_1$  и  $N_0$  равны:

$$r_p = \frac{E_{rp}}{E_{ip}} = \frac{N_1^2 \cos \varphi - N_0 \sqrt{N_1^2 - N_0^2 \sin^2 \varphi}}{N_1^2 \cos \varphi + N_0 \sqrt{N_1^2 - N_0^2 \sin^2 \varphi}}, \quad r_s = \frac{E_{rs}}{E_{is}} = \frac{N_0 \cos \varphi - \sqrt{N_1^2 - N_0^2 \sin^2 \varphi}}{N_0 \cos \varphi + \sqrt{N_1^2 - N_0^2 \sin^2 \varphi}}, \quad (7)$$

и предполагая, что полные отражённая и преломлённая волны возникают как результат сложения парциальных волн, то, просуммировав члены геометрической прогрессии до  $m$ -ой отражённой волны (рисунок 3), можно получить для коэффициентов отражения такой оптической модели следующее выражение:

$$R_{p,s} = r_{01p,s} + \frac{(1 - r_{01p,s}^2) \cdot (r_{12p,s} - r_{12p,s}^{m+2} \cdot (-r_{01p,s})^{m+1} \cdot \exp[-2i\delta(m+1)])}{r_{01p,s} \cdot r_{12p,s} + \exp[2i\delta]}. \quad (8a)$$

Если же протяжённость плёнки в плоскости подложки многократно превышает её толщину и материал плёнки не является усиливающим проходящее излучение, то можно принять  $m \rightarrow \infty$ . Тогда из (8а) получаем:

$$R_{p,s} = \frac{r_{01p,s} + r_{12p,s} \cdot \exp[-2i\delta]}{1 + r_{01p,s} \cdot r_{12p,s} \cdot \exp[-2i\delta]}. \quad (8б)$$

Здесь  $r_{12p,s} = \frac{r_{02p,s} - r_{01p,s}}{1 - r_{01p,s} \cdot r_{02p,s}}$ , а  $r_{ijp,s}$  – комплексные коэффициенты отражения Френеля для границы раздела между  $i$ -ой и  $j$ -ой средами для  $p$ - и  $s$ - поляризаций света из (7).

Как видно, для численного расчёта выражения (8а) необходимо знать количество отражённых и преломлённых парциальных волн  $m$ , расчёт которого ведется с учетом  $\Delta x$  (рисунок 3).

В случае, когда для описания исследуемой структуры необходимо вводить в оптическую модель несколько слоёв, удобно использовать рекуррентные соотношения. С учетом уравнения (8б) можно записать [28]:

$$R_{j+1} = \frac{r_{0j} \cdot (1 - r_{0j} \cdot R_j) + (R_j - r_{0j}) \cdot \exp(-2i\delta_{j+1})}{1 - r_{0j} \cdot R_j + r_{0j} \cdot (R_j - r_{0j}) \cdot \exp(-2i\delta_{j+1})}. \quad (9)$$

Выражение (9) позволяет рассчитать комплексные коэффициенты отражения для произвольного количества слоёв, если известны их оптические параметры и толщины.

### *Приближение эффективной среды*

Спектральная эллипсометрия очень чувствительна к состоянию поверхности образца. Если исследуемые слои на подложке имеют атомарно-гладкие границы раздела и не имеют посторонних включений или пористой структуры, то, используя выражения для многослойной модели, можно достоверно определить их оптические постоянные и толщину. Но на практике чаще приходится иметь дело с некоторыми переходными слоями и шероховатой поверхностью образца. В

этом случае в модель необходимо включать приближение эффективной среды таких пористых и переходных слоёв.

Наиболее простое описание эффективной среды можно получить из стандартных уравнений электростатики для диэлектрических кристаллов. В 1878 году Лоренцом было получено выражение для локального поля [29], создаваемого зарядами на внутренней поверхности сферической полости, фиктивно вырезанной в поляризованном диэлектрическом образце. В системе СИ величина этого электрического поля выражается через дипольный момент единицы объема (поляризатора)  $P$ :

$$E_L = \frac{P}{3\varepsilon_0}. \quad (10)$$

С учетом поля Лоренца  $E_L$  и внешнего макроскопического поля  $E$  для полного локального поля в точке с кубическим атомным окружением получена так называемая формула Лоренца [29]:

$$E_{loc} = E + \frac{P}{3\varepsilon_0}, \quad (11)$$

согласно которой, поле, действующее на атом с симметричным окружением, равняется сумме внешнего поля и поля, обусловленного поляризацией всех других атомов диэлектрического образца.

Поскольку, по определению, диэлектрическая проницаемость среды задаётся выражением  $\varepsilon = 1 + P/(\varepsilon_0 E)$ , а электронная поляризация диэлектрика определяется через количество электронов  $N_e$  и их поляризуемость  $\alpha$  [30]:

$$P = N_e \alpha E_{loc}, \quad (12)$$

то, подставив (11) в (12) получим соотношение Клаузиуса-Моссотти для двух фаз  $a$  и  $b$  в составе диэлектрика [30]:

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = \frac{1}{3\varepsilon_0} (N_a \alpha_a + N_b \alpha_b). \quad (13)$$

Полученную формулу удобно переписать через диэлектрические проницаемости обеих фаз  $\varepsilon_a$  и  $\varepsilon_b$  и их объёмные доли в образце  $q_a$  и  $q_b$  [30]:

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = q_a \frac{\varepsilon_a - 1}{\varepsilon_a + 2} + q_b \frac{\varepsilon_b - 1}{\varepsilon_b + 2}. \quad (14)$$

Формула (14) была названа эффективной моделью Лоренц-Лоренца. Данная формула описывает поляризацию диэлектрика находящегося в вакууме ( $\varepsilon = 1$ ), и состоящего из двух случайно-перемешанных фаз в пределах однородного внешнего электрического поля, но с размерами отдельных фракций, в несколько раз превышающих атомный масштаб. Если же диэлектрическое тело, находящееся в пределах однородного внешнего электрического поля, поместить в среду с некоторой диэлектрической проницаемостью, а потом отождествить «внешнюю» среду с фазой  $a$ , то получим формулу эффективной среды Максвелла-Гарнетта [30]:

$$\frac{\varepsilon - \varepsilon_a}{\varepsilon + 2\varepsilon_a} = q_b \frac{\varepsilon_b - \varepsilon_a}{\varepsilon_b + 2\varepsilon_a}, \quad (15)$$

которая хорошо описывает среду, состоящую из случайных сфер фазы  $b$ , окруженных фазой  $a$ .

Однако, поменяв местами обозначения фаз в уравнении (15), получим совершенно другой результат для эффективной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon$ , что является недостатком данной модели при определении  $\varepsilon$  случайно-перемешанной смеси несферических частиц. Для устранения данного недостатка, Бруггеман установил в уравнении (14) в качестве  $\varepsilon$  диэлектрическую проницаемость среды, в которую помещён образец [31]. Полученное выражение для нескольких фаз в составе образца получило название *модели эффективной среды Бруггемана*:

$$\sum_{i=1}^N q_i \frac{\varepsilon_i - \varepsilon}{\varepsilon_i + 2\varepsilon} = 0, \quad (16)$$

где  $q_i$ ,  $\varepsilon_i$  - объёмная доля и диэлектрическая проницаемость для  $i$ -ой фазы в составе среды.

Так как граничные условия требуют повсеместной непрерывности тангенциальной составляющей электрического поля, то в случае параллельных слоёв фаз  $a$  и  $b$  и совпадении направления вектора электрического поля с плоскостью слоёв, эффективная  $\varepsilon = q_a \varepsilon_a + q_b \varepsilon_b$ . Если же параллельные слои фаз расположены перпендикулярно направлению электрического поля, то для  $\varepsilon$  имеем:  $\varepsilon^{-1} = q_a \varepsilon_a^{-1} + q_b \varepsilon_b^{-1}$ .

Полученные выражения для двухфазной системы с параллельными слоями отдельных фаз удобно переписать в одно общее выражение [30]:

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_a \varepsilon_b + \gamma \varepsilon_h (q_a \varepsilon_a + q_b \varepsilon_b)}{\gamma \varepsilon_h + (q_a \varepsilon_b + q_b \varepsilon_a)}, \quad (17)$$

где  $\gamma = (1 - g)/g$  содержит коэффициент экранирования  $g$ . Модели, которые используют сферические частицы (Максвелла-Гарнетта, Бруггемана) содержат  $g = 1/3$ , а также  $\varepsilon_h = \varepsilon_a$  и  $\varepsilon_h = \varepsilon$  соответственно. Для параллельных слоёв, где  $\varepsilon = q_a \varepsilon_a + q_b \varepsilon_b$ , и перпендикулярных, где  $\varepsilon^{-1} = q_a \varepsilon_a^{-1} + q_b \varepsilon_b^{-1}$ ,  $g = 0$  и  $1$  соответственно [30].

Формула (17) и её частный случай (16) достаточно точно описывают свойства такой пористой среды, у которой нет какого-либо выделенного окружения [22].

Ещё одним перспективным в эллипсометрии является метод на основе теории Ми [32] и её более общий случай – *T-матричный метод* для восстановления полной матрицы рассеяния от диэлектрического (или слабо-поглощающего) объекта произвольной формы и ориентации [33], с эффективными размерами, не превышающими длину волны падающего электромагнитного излучения. На сегодняшний день наиболее развит алгоритм Мищенко для расчёта полной матрицы рассеяния сфероидов, цилиндров и усеченных сфер [34] с небольшими улучшениями для случая поглощающих частиц [35].

Но данные алгоритмы, несмотря на высокую эффективность и точность результатов для свободных частиц в пространстве с  $\varepsilon = 1$  (астрономические и атмосферные приложения), на настоящий момент практически не используются для исследований наноразмерных кластеров на подложке в отражательной эллипсометрии, что вызвано большим количеством варьируемых параметров в теории рассеяния, широким разнообразием структур и ориентации реальных кластерных объектов. Для качественного анализа таких объектов требуется сложная конструкция эллипсометров-скаттерометров, что неизбежно приводит к высокой стоимости и длительности измерений.

Поэтому в области эллипсометрических исследований и промышленных приложений остаются популярными такие методы описания исследуемых объектов, которые требуют введения минимального количества искомых параметров и наиболее простой конструкции измерительного оборудования.

#### *Функция неоднородности среды*

Во многих практических задачах приходится анализировать толстые слабо поглощающие свет плёнки, которые имеют неоднородную структуру по высоте. Когда размеры локальных неоднородностей в плоскости подложки во много раз меньше длины волны зондирующего пучка света, то часто применяется функция неоднородности среды для построения оптического профиля плёнки от высоты.

Такие слои можно моделировать как совокупность нескольких однородных слоёв, толщина и показатель преломления каждого из которых выбираются в соответствии с ходом функции  $N_j(z)$ . Так, в неоднородном изотропном  $j$ -ом слое комплексный показатель преломления  $N_j$  есть функция координаты  $z$  – расстояния по нормали от границы подложки в направлении среды, т.е.  $N_j = N_j(z)$ , причем  $0 \leq z \leq d$ ,  $N_j|_{z=0} = N_{j2}$ ,  $N_j|_{z=d} = N_{j1}$ , где  $d$  – полная толщина слоя. Функция  $N_j(z)$  не является константой из-за наличия в слое двух или более неомогенных фаз (в дальнейшем – *компонента*), которые, обладая собственными показателями преломления, находятся в определённых функциональных зависимостях концентрации от  $z$ .

Для примера, рассмотрим структуру, изображённую на рисунке 4. На подложке с коэффициентом преломления  $N_{sub}$  образовано неперiodическое распределение раздельно-стоящих конусообразных зёрен с линейным наклоном боковой грани, состоящих из материала с  $N_c$ . Внешней средой является вакуум.

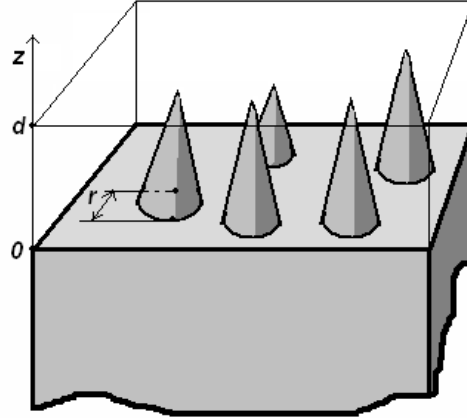


Рисунок 4 – Непериодическое распределение конусообразных зёрен на подложке с линейным наклоном боковой грани

Пусть усредненный радиус основания конусов равен  $r$ , а средняя высота равна  $d$ , при этом соблюдается условие квазистационарности для формулы (10) [36] или, другими словами,  $n^{-1/2} \ll \lambda$ ,  $2r \ll \lambda$ ,  $d \ll \lambda$ , где  $n$  – плотность поверхностного распределения зёрен на подложке. Тогда, используя модель эффективной среды Бруггемана (16) [37], можно записать:

$$N_{eff} = \begin{cases} 1, & z \geq d \\ \sqrt{\frac{1}{2} - \frac{3 \cdot q(z)}{4} + N_c^2 \frac{3 \cdot q(z) - 1}{4} + \frac{1}{4} \sqrt{(2 - 3 \cdot q(z) + N_c^2 (3 \cdot q(z) - 1))^2 + 8N_c^2}}, & 0 \leq z < d, \\ N_{sub}, & z < 0 \end{cases} \quad (18)$$

где объёмная доля компоненты конусов имеет параболическую зависимость:

$$q(z) = (A \cdot z + B)^2. \quad (19)$$

Для рассматриваемой формы зёрен:



$$A = -\frac{r}{d}\sqrt{\pi n}; \quad B = r\sqrt{\pi n}. \quad (20)$$

Из уравнений (20) можно увидеть, что при  $z = 0$  имеет место соотношение:

$$q(z = 0) = r^2 \pi n. \quad (21)$$

Данная взаимосвязь плотности распределения от размеров зёрен вносит неопределённость трактовки результатов расчёта модели и интерпретации экспериментальных данных, что является недостатком данной методики расчёта. Проблема может быть отчасти решена использованием дополнительных методов исследования образца, например, атомно-силовой микроскопии [38].

Вышеуказанный недостаток можно обойти тогда, когда известна взаимосвязь величин  $d$  и  $r$ . В этом случае выражения из (20) составляют систему из двух уравнений с двумя неизвестными. Одним из примеров подобной ситуации может быть случай с  $r = d$ , т.е. полусферическая форма зёрен на поверхности.

Объёмную долю компоненты от высоты для полусфер можно задать функцией:

$$q(z) = A \cdot z^2 + B. \quad (22)$$

По аналогии с (20):

$$\begin{cases} A = -\pi n; \\ B = \pi r^2. \end{cases} \quad (23)$$

Оптимизируя величины  $A$  и  $B$  по экспериментальным данным и решая систему (23), становится возможным получить информацию о поверхности:

$$n = -\frac{A}{\pi}; \quad r = \sqrt{-\frac{B}{A}}. \quad (24)$$

Полусферическая форма частиц для твёрдых тел в нормальных условиях может рассматриваться при субнанометровых размерах этих частиц [39]. При

таком масштабе более приемлемым оказывается рассмотрение однородного по высоте слоя с эффективной толщиной.

### 1.3 Магнитооптические измерения на отражение

Магнитооптический эффект Керра был открыт Джоном Керром в 1877 году во время исследований поляризации отражённого света от образцов, помещенных в магнитное поле. Практическое применение магнитооптического эффекта Керра для анализа поверхностного магнетизма больше ассоциируется с термином поверхностного магнитооптического эффекта Керра, введенного в 1985 году. Первые результаты по применению эффекта получены для структуры сверхтонких эпитаксиальных слоёв железа на золоте в работе [40], где впервые была продемонстрирована зависимость петли перемагничивания как функция толщины плёнки и температуры. С тех пор магнитооптический эффект Керра активно используется при характеристике низкоразмерного магнетизма.

С макроскопического рассмотрения магнитооптические эффекты возникают как вклад в антисимметричные недиагональные элементы тензора диэлектрической проницаемости. С микроскопического рассмотрения связь между амплитудой электрического поля падающего света и спина электронов в магнитном носителе осуществляется через спин-орбитальное взаимодействие.

#### *Микроскопическая теория магнитооптического эффекта [41]*

В связи с тем, что оптические свойства среды задаются тензором диэлектрической проницаемости, которая характеризуется движением электронов в среде, микроскопическое описание магнитооптических эффектов базируется на различном характере движения электронов среды в случаях левой и правой циркулярно-поляризованных электромагнитных волн.

С точки зрения классического движения электронов, при прохождении света через среду переменное электрическое поле заставляет электроны колебаться. При отсутствии внешнего магнитного поля, электрическое поле с левой круговой

поляризацией будет стимулировать электроны с левыми круговыми движениями, а правая круговая поляризация электрического поля будет управлять электронами в правом круговом движении. Радиус движения электронов для левого и правого круговых вращений будут равны. Поскольку электрический дипольный момент пропорционален радиусу круговой орбиты, то не будет разницы между диэлектрической проницаемостью для левой и правой круговых поляризаций электромагнитной волны. При наведении внешнего магнитного поля в направлении распространения электромагнитной волны, появится дополнительная сила Лоренца, действующая на каждый движущийся электрон. При воздействии силы Лоренца, радиус для левого кругового движения будет уменьшаться, а радиус для правого кругового движения увеличится.

Следствием различий в радиусе движения для левой и правой круговых поляризаций будут различные диэлектрические постоянные среды.

Квантовая формулировка магнитооптических эффектов была сосредоточена на объяснении большого магнитооптического эффекта в ферромагнитных материалах [24]. Первыми попытками объяснения сильного магнитооптического эффекта в ферромагнитных материалах было предположение, что существует некоторое эффективное поле, а не приложенное, которое определяет вращение Фарадея в ферромагнитных материалах. Фогт установил, что эффективное поле величиной порядка  $10^6 - 10^7$  Э производит наблюдаемый эффект Фарадея. Эта величина имеет порядок поля Вейсса, которое введено для учета существования ферромагнетизма. Характер поля Вейсса оставался невыясненным пока Гейзенберг не разработал теорию, описывающую происхождение магнетизма через обменное взаимодействие между электронами. Хотя обменное взаимодействие Гейзенберга объясняет происхождение магнетизма как эффективного магнитного поля при вкладах отдельных спинов, оно не может быть использовано для объяснения эффекта Фарадея, потому что не учитывает движение электронов, определяющее диэлектрические свойства материала.

Проблема была решена в 1932 году Халмом [42]. Он показал, что эффект обусловлен спин-орбитальным взаимодействием электрона, которое приводит к

большой величине эффекта Фарадея в ферромагнетиках. Спин-орбитальное взаимодействие связывает магнитный момент электрона с его движением (импульсом), тем самым объединяя магнитные и оптические свойства ферромагнетика. Несмотря на наличие спин-орбитального взаимодействия для немагнитных материалов этот эффект незначителен, и связано это с равным количеством электронов со спином «вверх» и «вниз», которые компенсируют друг друга. В ферромагнетиках эффект проявляется из-за дисбаланса плотности электронных спинов.

Используя модель Гейзенберга для ферромагнетика и дисперсионные выражения Крамерса-Гейзенберга, Халм рассчитал коэффициенты преломления для правой и левой поляризаций [42]. Такой подход позволяет определить показатель преломления с точки зрения собственных энергетических и матричных элементов оператора дипольного момента по отношению к собственным функциям системы. Халм определил разность двух показателей преломления по энергетическому расщеплению вследствие спин-орбитального взаимодействия. Однако он пренебрег изменением волновой функции в результате спин-орбитального взаимодействия.

Эта теория была недостаточной, так как гашение орбитального момента в ферромагнетиках не даёт энергии расщепления. Киттель показал, что учет изменения волновых функций вследствие спин-орбитального взаимодействия приводит к правильному порядку величины разности двух показателей преломления [43]. Впоследствии Аргирес вывел полную теорию магнитооптических эффектов в ферромагнетике с помощью теории возмущений [44]. Дальнейшие работы выполнялись уже с целью расчёта магнитооптического эффекта в различных условиях [45, 46].

#### *Макроскопический формализм магнитооптического эффекта Керра [24]*

Макроскопическое описание магнитооптического эффекта Керра основано на анализе диэлектрических свойств среды. В действительности при распространении электромагнитного излучения в намагниченной среде

наблюдаются два процесса. Во-первых, две различных циркулярно-поляризованных волны имеют разные фазовые сдвиги по причине различий в скорости распространения, благодаря чему возникает вращение плоскости поляризации. Это процесс обычного вращения Фарадея. Во-вторых, разные степени поглощения в средах для двух поляризованных волн влияют на эллиптичность прошедшей волны.

Чтобы увидеть эффект от несимметричных частей тензора диэлектрической проницаемости, вызванных эффектом Фарадея, рассмотрим следующий тензор диэлектрической проницаемости ферромагнетика в случае нулевого гироманнитного вклада [41]:

$$\varepsilon_m = \varepsilon \begin{pmatrix} 1 & iQ_z & -iQ_y \\ -iQ_z & 1 & iQ_x \\ iQ_y & -iQ_x & 1 \end{pmatrix}. \quad (25)$$

Имеются две нормальные моды: для левой круговой поляризации света с показателем преломления  $n_L = n(1 - 0.5\mathbf{Q}\cdot\mathbf{k})$ , и правой круговой поляризации света с показателем преломления  $n_R = n(1 + 0.5\mathbf{Q}\cdot\mathbf{k})$ , где:  $n$  – усредненный коэффициент преломления;  $\mathbf{Q}$  – вектор Фогта и  $\mathbf{k}$  – единичный вектор вдоль направления распространения света. Если комплексную величину Фарадеевского вращения для поляризованного света, прошедшего путь  $L$  в среде, записать в виде:

$$\theta = \frac{\pi L}{\lambda} (n_L - n_R) = -\frac{\pi L n}{\lambda} \vec{Q} \cdot \vec{k}, \quad (26)$$

то реальная часть (26) будет характеризовать угол вращения, а мнимая – эллиптичность или магнитный круговой дихроизм (МКД), который удобен для анализа спин-поляризованных межзонных переходов электронов [47]. Для поликристаллического или изотропного ферромагнетика компоненты  $Q_x$  и  $Q_y$  в (25) равны нулю, а  $Q$  в (26) становится скалярной величиной.

Так как большинство магнитных материалов сильно поглощают свет, то для исследования в них магнитооптического эффекта удобно экспериментально измерять отражённый свет. В таком случае общий макроскопический формализм

эффекта Фарадея может быть расширен для магнитооптического эффекта Керра. В работе [40] найдено общее выражение для сигнала Керра в сверхтонком пределе толщины магнитной плёнки, когда  $nd \ll \lambda$ . Для многослойной магнитной структуры тензор коэффициента преломления для каждого слоя был выражен с помощью  $3 \times 3$  матрицы [40]. Полный коэффициент отражения Френеля  $R$  и коэффициент пропускания  $T$  был представлен в виде матриц  $2 \times 2$  с элементами для двух состояний поляризации:

$$R = \begin{pmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{pmatrix}, T = \begin{pmatrix} t_{ss} & t_{sp} \\ t_{ps} & t_{pp} \end{pmatrix}. \quad (27)$$

Таким образом, Керровское вращение  $\phi'$  и эллиптичность  $\phi''$  для  $s$ - и  $p$ -поляризованного света было представлено в виде:

$$\phi_s = \phi'_s + i\phi''_s = \frac{r_{ps}}{r_{ss}}, \phi_p = \phi'_p + i\phi''_p = \frac{r_{sp}}{r_{pp}}. \quad (28)$$

Для сверхтонких магнитных плёнок полная оптическая толщина много меньше длины волны света, то есть  $\sum n_j d_j \ll \lambda$ . Если окружающая образец среда и подложка немагнитные, то  $2 \times 2$  матрицы  $R$  и  $T$  из (27) дают следующие выражения для коэффициентов отражения:

$$\begin{aligned} r_{ss} &= \frac{n_i \cos \theta_i - n_f \cos \theta_f}{n_i \cos \theta_i + n_f \cos \theta_f}, r_{pp} = \frac{n_f \cos \theta_i - n_i \cos \theta_f}{n_f \cos \theta_i + n_i \cos \theta_f}, \\ r_{ps} &= -\frac{4\pi}{\lambda} \frac{n_i \cos \theta_i \left( \cos \theta_f \sum_j d_j n_j^2 Q_z^{(j)} - n_f n_i \sin \theta_i \sum_j d_j Q_y^{(j)} \right)}{(n_i \cos \theta_i + n_f \cos \theta_f)(n_f \cos \theta_i + n_i \cos \theta_f)}, \\ r_{sp} &= -\frac{4\pi}{\lambda} \frac{n_i \cos \theta_i \left( \cos \theta_f \sum_j d_j n_j^2 Q_z^{(j)} + n_f n_i \sin \theta_i \sum_j d_j Q_y^{(j)} \right)}{(n_i \cos \theta_i + n_f \cos \theta_f)(n_f \cos \theta_i + n_i \cos \theta_f)}, \end{aligned} \quad (29)$$

где  $n_i$ ,  $\theta_i$  и  $n_f$ ,  $\theta_f$  – коэффициенты преломления и углы распространения света в окружающей образец среде и в подложке;  $z$  – направление по нормали к

поверхности;  $y$  – находится в плоскости плёнки и совпадает с плоскостью падения света.

Уравнения (29) являются основой закона аддитивности для многослойных структур в ультратонком пределе. Этот закон гласит, что общий сигнал Керра является суммой сигналов Керра от каждого магнитного слоя, и не зависит от промежуточных немагнитных слоёв в многослойной структуре. Этот закон аддитивности справедлив только в случае, когда общая оптическая толщина слоистой структуры намного меньше длины волны падающего пучка  $\lambda$ . Очевидно, что для толстых плёнок с большим коэффициентом преломления закон аддитивности неприменим, так как свет затухает в плёнке и не проникает в глубокие слои структуры и магнитооптический эффект Керра достаточно описать через формализм матрицы  $2 \times 2$  только для коэффициента отражения  $R$  из (27).

#### *Экспериментальное измерение магнитооптического эффекта Керра*

Существуют всего три (рисунок 5) независимые геометрии измерительной схемы для поверхностного магнитооптического эффекта Керра [48]: полярная, меридиональная и экваториальная. Эти конфигурации соответствуют направлению вектора намагниченности  $M$  по отношению к плоскости падения света.

В полярном эффекте Керра вектор намагниченности перпендикулярен площади плёнки и лежит вдоль нормали к поверхности образца. В меридиональном эффекте Керра вектор намагниченности лежит в плоскости плёнки и одновременно в плоскости падения луча. В экваториальном эффекте Керра вектор намагниченности также лежит в плоскости плёнки, но перпендикулярен плоскости падения света.

В общем случае если вектор намагниченности имеет произвольное направление, будут наблюдаться различные комбинации этих трёх конфигураций. Для упрощения математического аппарата конструктивно реализуется какой-либо один из них. Для создания магнитного поля обычно используются

электромагниты с однородным магнитопроводом из магнитомягких сортов стали для минимизации остаточной намагниченности.

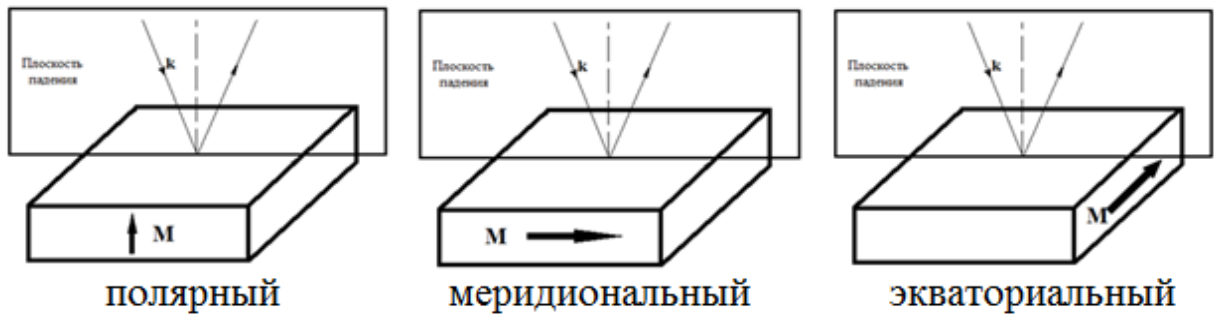


Рисунок 5 – Геометрия магнитооптического эффекта Керра.  $M$  – вектор намагниченности,  $k$  – волновой вектор

Что касается практического применения конкретной геометрической реализации, то полярный и меридиональный эффекты Керра составляют группу продольных магнитооптических эффектов, которые достаточно сложно реализовать на практике, особенно при использовании больших углов падения света на образец по отношению к его нормали. Полярный и меридиональный эффекты Керра проявляются во вращении плоскости поляризации света и в появлении эллиптичности отражённого от намагниченного образца линейно-поляризованного света [41]. Эти эффекты родственны эффекту Фарадея и происхождением, так как обусловлены круговым двупреломлением света.

Экваториальный эффект Керра заключается в изменении интенсивности и сдвиге фазы линейно-поляризованного света, отражённого от поглощающего ферромагнитного образца, причём такие изменения происходят только для случая  $p$ -поляризации. Кроме того, практическая реализация экваториального эффекта Керра значительно проще, чем полярного и меридионального, – она позволяет без существенных ограничений использовать различные углы падения света на образец.



На рисунке 6 представлена распространённая измерительная схема, в которой реализуются измерения экваториального магнитооптического эффекта Керра [49].

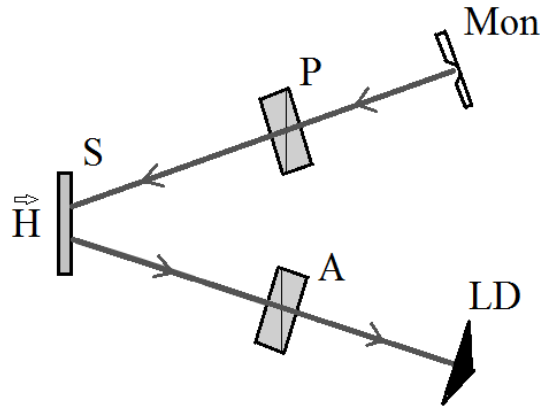


Рисунок 6 – Типичная измерительная схема экваториального магнитооптического эффекта Керра [49]. Обозначения:  $Mon$  – монохроматор;  $P$  – поляризатор;  $S$  – исследуемый образец;  $A$  – анализатор;  $LD$  – фотодетектор;  $H$  – вектор магнитного поля

Основными оптическими элементами являются [50]: источник света (монохроматор), поляризатор, образец, анализатор и детектор света. Принцип работы такой оптической схемы заключается в следующем. После прохождения через поляризатор и приобретения  $p$ -поляризации, монохроматический свет отражается от образца и проходит призму анализатора. При намагничивании образца отражённый от его поверхности свет будет испытывать изменения амплитуды и фазы, и, в зависимости от степени намагниченности образца, на фотодетекторе будет изменяться интенсивность падающего света. Следует отметить, что анализатор в схеме необязателен, так как он установлен с целью фильтрации  $s$ -компоненты падающего света, возникающей в результате деполяризующих свойств образца и неидеальности поляризатора. Для анализа изменений фазы отраженного света применяются дополнительные фазомодулирующие элементы, которые располагают между образцом и анализатором.

В случае применения эллипсометра магнитооптические измерения проводятся по алгоритму, который определяется дальнейшей методикой расчёта магнитооптических параметров. При проведении обычных спектральных эллипсометрических измерений с приложением к образцу внешнего магнитного поля происходит изменение эллипсометрических углов в большую или меньшую сторону (зависит от направления намагниченности образца) на малую величину  $\delta\Psi$  и  $\delta\Delta$ . Причем для каждой длины волны света максимальные величины  $\delta\Psi$  и  $\delta\Delta$  при насыщении образца имеют разные значения, что обуславливается влиянием плотности состояний электронов [47, 51].

Если в оптической схеме эллипсометра применяется статическая схема измерений, то есть, если после отражения от образца свет физически разделяется на  $p$ - и  $s$ -компоненты, то в такой схеме обеспечивается отдельное измерение интенсивности каждой его компоненты. В таком случае установка поляризатора в азимутальном положении, обеспечивающем только  $p$ -поляризацию падающей на образец волны, приводит к необходимости наличия высокой стабильности падающего света для точного измерения амплитуды отраженной волны (имеющей только  $p$ -компоненту). Такое возможно только при быстром перемагничивании образца (на частотах в десятки Гц), что требует создания сложных магнитных систем. Для упрощения эксперимента целесообразнее проводить магнитоэллипсометрические измерения в положении поляризатора  $\pm 45^\circ$  к плоскости падения света. В этом случае при отражении от образца свет принимает эллиптическую поляризацию, и в принимаемом сигнале появляется «опорная»  $s$ -компонента. Полезный магнитооптический сигнал будет определяться в схеме как изменение контраста между  $p$ - и  $s$ -компонентами отраженного света. В такой схеме измерений отпадает потребность в переменных магнитных полях высокой интенсивности, и можно использовать компактные электромагниты постоянного магнитного поля высокой напряженности.

Таким образом, если поляризатор в эллипсометре принимает фиксированные положения  $\pm 45^\circ$  по отношению к плоскости падения света, то анализатор желательно установить в положение  $0^\circ$ , а измерения проводить только для

амплитудного канала  $\Psi$ . В этом случае достигается наивысшая величина сигнал/шум [52]. При положении анализатора  $45^\circ$  на фотоприемниках канала  $\Psi$  будут практически синхронно меняться интенсивности принимаемых сигналов для  $p$ - и  $s$ -компонент света в системе координат анализатора (или  $\pm 45^\circ$  в системе координат образца), что дает минимальное изменение контраста и наихудшее соотношение сигнал/шум.

## 1.4 Методы оптимизации эллипсометрической модели.

### Регрессионный анализ

При анализе морфологии и состава поверхностей сложных многокомпонентных образцов или магнитооптических свойств ферромагнетиков следует учитывать, что:

- слои вещества толщиной более  $5d_p$  (где  $d_p$  – глубина ослабления интенсивности света в  $e$  раз [53]) считаются непрозрачными;
- прозрачные плёнки с обратной стороны относительно падения света допускается покрывать поглощающим свет материалом для ослабления излучения, отражённого от нижней границы образца, и в дальнейшем использовать модель полубесконечной среды;
- толстые прозрачные слои, имеющие высокую шероховатость поверхности, можно обработать полировкой, если допускается изменение морфологии поверхности образца;
- при построении модели можно воспользоваться простейшими физическими соображениями, например тем, что концентрация материала подложки при обычной диффузии чаще всего уменьшается с расстоянием от поверхности подложки.

На рисунке 7 показаны наиболее распространённые методы оптимизации структуры образца. В случае толстого покрывающего слоя мы можем пренебречь влиянием нижележащей структуры на результаты измерений.

Если имеется тонкая (либо слабопоглощающая) подложка, то допускается нанесение на обратную её сторону шероховатого поглотителя (например, чёрной графитовой краски). Если такой метод неприменим, то в коэффициенты Френеля для отражения света вводятся дополнительные параметры, вызванные многократными отражениями света от нижней границы подложки [22].

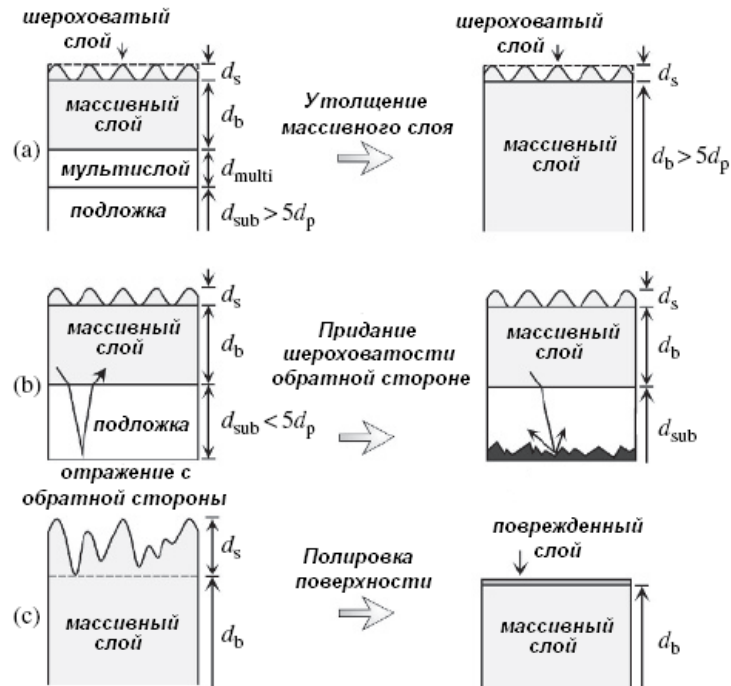


Рисунок 7 – Оптимизация структуры образца: а) – упрощение оптической модели утолщением массивного слоя до превалирования в структуре, б) – ослабление светоотражения от обратной стороны, нанесением шероховатого поглотителя, и с) – разрушение шероховатой поверхности механической полировкой

#### *Функция минимизации для регрессионного анализа*

Во всех многочисленных применениях спектральной эллипсометрии интерпретация непосредственно измеряемых величин ( $\Delta$  и  $\Psi$ ) сводится к поиску характеристик поверхностной структуры, поэтому математическое рассмотрение ведет к решению обратной задачи эллипсометрии.

Поскольку общего решения обратной задачи эллипсометрии не существует, обычно используются приближенные методы поиска параметров образца с помощью подбора параметров прямой задачи для минимизации расхождения с экспериментальной кривой. Эти методы, как правило, относятся к линейному регрессионному анализу.

Для расчёта расхождения найденных коэффициентов отражения  $R_p$  и  $R_s$  теоретической модели структуры с экспериментальными данными применяются функции минимизации. В последнее время большую популярность получила функция минимизации, предложенная Джеллисоном [54]:

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{M - P - 1}} \left\{ \sum_{j=1}^M \left| \frac{\rho_{ex}(\lambda_j) - \rho_{cal}(\lambda_j)}{\delta\rho(\lambda_j)} \right|^2 \right\}^{\frac{1}{2}}, \quad (30)$$

где  $\delta\rho$  показывает инструментальную погрешность эллипсометра;  $M$  и  $P$  – количество экспериментальных точек и аналитических параметров, а индексы  $ex$  и  $cal$  – измеренную и рассчитанную величины соответственно.

Формула (30) даёт хорошее представление о расхождении результатов расчёта с экспериментальными данными.

Однако в некоторых случаях при обработке экспериментальных данных заранее неизвестно значение приборной погрешности, а количество точек при оптимизации может быть близким к количеству аналитических параметров. Например, если задаётся произвольный шаг по длине волны при оптимизации, то это ускоряет процесс регрессионного анализа, но одновременно искажает результат вычисления функции минимизации, что затрудняет выбор результата оптимизации пользователем.

В связи с проблемами применимости функции минимизации (30), целесообразнее использовать традиционную форму функции среднего квадратичного [22]:

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{M}} \left\{ \sum_{j=1}^M |\rho_{ex}(\lambda_j) - \rho_{cal}(\lambda_j)|^2 \right\}^{\frac{1}{2}}. \quad (31)$$

Когда в расчётах отсутствуют точные данные о фазовой составляющей для коэффициентов отражения Френеля, то возможно проведение рекуррентного анализа только по параметру  $\Psi$ . В том случае, когда необходима оптимизация толщины тонких прозрачных слоёв, удобно использовать оптимизацию только по параметру  $\Delta$ . Учитывая эти обстоятельства, аналогичным образом возможно применять функции минимизации следующего вида:

$$\sigma_{\Delta} = \frac{1}{\sqrt{M}} \left\{ \sum_{j=1}^M (\cos(\Delta_{ex}(\lambda_j)) - \cos(\Delta_{cal}(\lambda_j)))^2 \right\}^{\frac{1}{2}}, \sigma_{\Psi} = \frac{1}{\sqrt{M}} \left\{ \sum_{j=1}^M (\tan(\Psi_{ex}(\lambda_j)) - \tan(\Psi_{cal}(\lambda_j)))^2 \right\}^{\frac{1}{2}}. \quad (32)$$

В функциях (32) предполагается, что значения эллипсометрических углов из теории и эксперимента лежат в пределах одной тригонометрической области или достаточно близки между собой изначально.

При расчёте магнитооптических параметров ферромагнетика по данным магнитоэллипсометрических измерений обычно используется некоторая сложная параметрическая функция, которая не позволяет в явном виде выразить одни параметры через другие. Например, для отыскания магнитооптического параметра Фогта через экспериментальные данные для коэффициентов отражения, необходимо численно решать задачу, в которой перебором значений искомого параметра добиваются минимального расхождения с экспериментально измеренными величинами. В таком случае также необходимо задать некоторую вещественную функцию минимизации, устремление которой к нулю будет означать вероятное решение уравнения. В качестве функции минимизации удобнее всего применять формулу (31) в сочетании с различными численными алгоритмами оптимизации.

## Глава 2 Экспериментальное оборудование, аппаратура и методы исследования

### 2.1 Технологическое оборудование для получения тонких плёнок

Все технологические работы по созданию наноразмерных структур системы Fe-Si осуществлялись на сверхвысоковакуумном технологическом оборудовании, расположенном в лаборатории Физики магнитных явлений Института физики им. Л.В. Киренского. В частности, осаждение железа и кремния на подложки монокристаллического кремния производилось на многомодульном сверхвысоковакуумном напылительном комплексе «Ангара» (камера эпитаксии полупроводниковых соединений), при этом базовое давление в камере составляло  $1.3 \cdot 10^{-8}$  Па.

*Комплекс МЛЭ «Ангара»*, разработанный в Институте физики полупроводников СО РАН (ИФП СО РАН) [55], состоит из трёх технологических модулей – модуля анализа и подготовки подложек (ПАП), модуля эпитаксии полупроводниковых соединений (ЭПС) и модуля эпитаксии элементарных полупроводников, металлов и диэлектриков (ЭПМ). Вакуумно-механическая система комплекса состоит из модуля загрузки-выгрузки подложек, системы транспорта подложек, системы предварительной откачки и получения сверхвысокого вакуума. Внешний вид камеры ЭПС представлен на рисунке 8.

В камере ЭПС установлено шесть термических испарителей, которые позволяют одновременно осаждать на подложку различные материалы. С помощью механических манипуляторов возможна шлюзовая подача подложек диаметром до 60 мм без нарушения сверхвысокого вакуума в любую вакуумную камеру и, соответственно, их выгрузка после проведённых технологических операций.

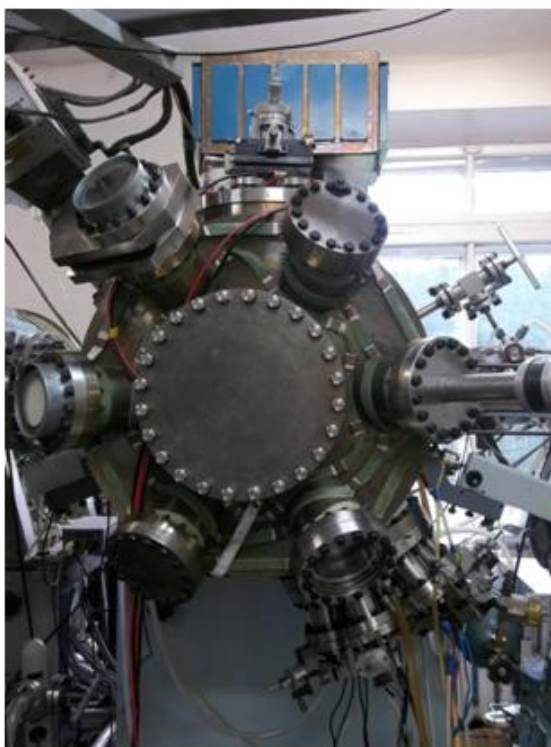


Рисунок 8 – Внешний вид камеры ЭПС многомодульного комплекса молекулярно-лучевой эпитаксии «Ангара» [55]

Напыление материалов из термических испарителей производится резистивным нагревом тигля из нитрида бора, в котором находится испаряемое вещество. Поскольку при напылении температура отдельных элементов испарителя достигает  $1100\text{ }^{\circ}\text{C}$ , во всех сверхвысоковакуумных технологических камерах имеется система водяного охлаждения. Такая конструкция позволяет распылять материалы со скоростью до  $0.5\text{ нм/мин}$  без угрозы разрушения испарителей.

Контроль нагрева испарителей и поддержания заданной температуры осуществляется автоматизированной системой управления, включающей в себя контроллер «Технолог-2» (разработан в ИФП СО РАН) и персональный компьютер с установленным программным обеспечением, осуществляющий управление контроллером по протоколу USB. При этом контроллер «Технолог-2» передаёт команды силовым блокам питания «Импульс» [56] по протоколу RS-232,



для задания мощности нагрева испарителей. Температуры испарителей измеряются с помощью вольфрам-рениевых термопар.

В каждой технологической камере комплекса «Ангара» имеется печь, позволяющая нагревать образец до 1000 °С. Нагрев осуществляется радиационным способом. Печь выполнена в виде спирали-меандра из вольфрама с теплоэкранирующим кожухом. Контроль температуры подложки также осуществляется вольфрам-рениевой термопарой.

Для исследования кристаллической структуры поверхности образца в камерах ЭПМ и ЭПС встроены дифрактометры отражённых быстрых электронов (ДОБЭ), которые позволяют проводить контроль чистоты поверхности подложек и толщин растущих эпитаксиальных плёнок на поверхности непосредственно во время их роста.

Помимо дифрактометров и оже-спектрометра из аналитического оборудования в камерах ЭПС и ЭПМ имеются два модернизированных масс-спектрометра МХ-7304 для контроля остаточных газов и состава молекулярных пучков. Немаловажно наличие двух встроенных лазерных эллипсометров ЛЭФ-71 (производство ИФП СО РАН), позволяющих изучать оптические характеристики растущих структур. В качестве источника света в эллипсометрах используются HeNe лазеры с длиной волны излучения 632.8 нм. Длительность одного эллипсометрического измерения может достигать 1 мс. Совместно с эллипсометрами на управляющем компьютере имеется программа обработки эллипсометрических данных, которая позволяет измерять скорость осаждения и текущую толщину растущей структуры непосредственно в процессе осаждения.

## 2.2 Экспериментальные методы исследования

Для исследования структурных, магнитных и магнитооптических свойств на экспериментальных образцах проводились *ex situ* и *in situ* измерения методами спектральной магнитоэллипсометрии. Для количественного анализа морфологии поверхности проводились *ex situ* рентгеноструктурные, рентгеноспектральные и

микроскопические исследования полученных образцов. Выбор методов определялся необходимостью получения взаимодополняющей информации о синтезированных структурах.

### *Спектральная магнитоэллипсометрия*

Прибор, с помощью которого измеряются эллипсометрические параметры, называется эллипсометром. Существует несколько оптических схем эллипсометров [22], при этом все они содержат одни и те же элементы.

Поляризаторы формируют линейно поляризованный пучок света. Например, призма Глана-Фуко состоит из двух одинаковых призм, вырезанных из оптически одноосного кристалла и соединенных друг с другом так, что между ними остается зазор. В качестве материала призм обычно используется кальцит, либо оптически изотропные кристаллы галогенидов щелочных металлов из-за их прозрачности в ближней ультрафиолетовой области света.

Фазосдвигающее устройство (компенсатор) предназначено для относительного сдвига фаз между двумя волнами, обладающими различной поляризацией. Достаточно эффективным и универсальным является ахроматический компенсатор, например ромб Френеля [57].

Для уменьшения погрешностей измерения, при прохождении луча через оптические компоненты системы эллипсометра, применяются различные схемы измерений.

На рисунке 9 изображена оптическая схема нулевых эллипсометрических измерений (PCSA-схема) [28]. Луч света после прохождения поляризатора  $P$  приобретает линейную поляризацию.

Компенсатор  $C$  трансформирует линейно-поляризованный свет в эллиптически-поляризованный. После отражения от экспериментального образца  $S$  свет, в общем случае, также имеет эллиптическую поляризацию. При установке определённого угла поворота между поляризатором и компенсатором можно добиться линейной поляризации отражённого от образца света. Поместив после образца второй поляризатор в определенном положении, можно обеспечить

полное гашение отражённого света. Второй поляризатор в этом случае выполняет функцию анализирующего устройства и называется анализатором (на схеме указан под буквой А).

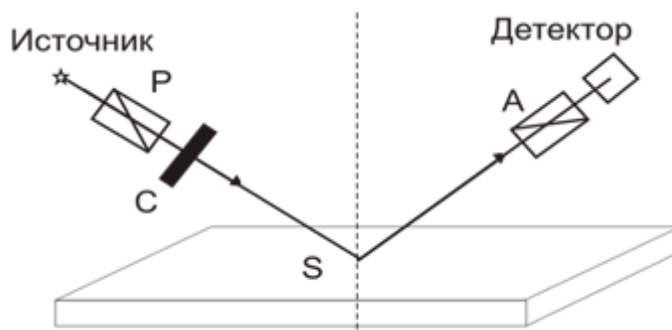


Рисунок 9 – Нулевая схема эллипсометрических измерений

Алгоритм нулевых эллипсометрических измерений состоит в фиксации положения одного из оптических элементов (например, компенсатора). Вращением остальных двух элементов добиваются гашения света на выходе из анализатора. Полученные таким образом положения оптических элементов, позволяют с высокой абсолютной точностью определить эллипс поляризации отражённой волны и, как следствие, эллипсометрические параметры исследуемого образца.

Недостатком нулевой оптической схемы является большое время одиночного измерения, которое необходимо для нахождения углов гашения. Отчасти эта проблема решается благодаря применению магнитооптических ячеек Фарадея [58], в которых поворот плоскости поляризации управляется внешним магнитным полем. Таким образом, время одного измерения уменьшается на несколько порядков.

Оптимальным решением является метод статической нулевой схемы измерений [59], реализованной в конструкции спектрального эллипсометра Эллипс-1891. Быстродействующий спектральный эллипсометр Эллипс-1891, разработанный и изготовленный в ИФП СО РАН (рисунок 10), предназначен для изучения поверхностных физико-химических процессов, определения физических

параметров тонкоплёночных структур и контроля технологии подготовки качества поверхности.

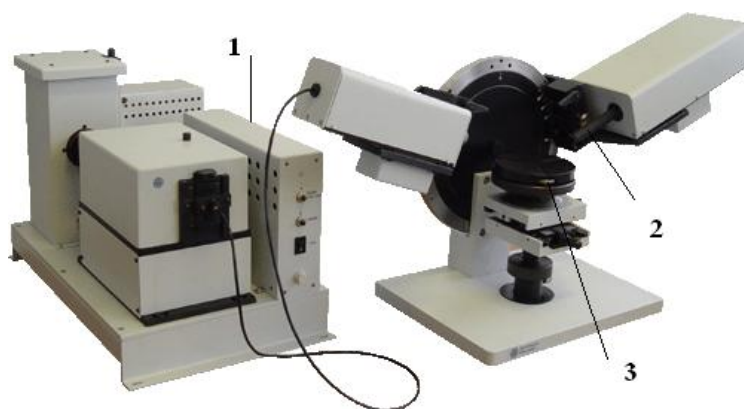


Рисунок 10 – Внешний вид *ex situ* спектрального эллипсометра «Эллипс-1891»

Данный эллипсометр создан на основе статической фотометрической оптической схемы [59], производящей сканирование в спектральном диапазоне от 250 до 1050 нм. Структурно-оптическая схема эллипсометра представлена на рисунке 11.

Эллипсометр Эллипс-1891 в двух видах исполнения применялся как для *ex situ* исследований на воздухе, так и для *in situ* исследований непосредственно в технологической камере в процессе формирования структур.

Основные элементы конструкции эллипсометра представлены на рисунке 10. Устройство источника света включает в себя ксеноновую дуговую лампу высокого давления ДКсШ-120 мощностью 120 Вт (или галогенную на 100 Вт для *in situ* системы), которая размещена в специальном охлаждаемом корпусе. Лампа закреплена на контактах, жестко связанных с устройством запуска лампы 1 (рисунок 10), и вместе с ним имеет возможность вертикального перемещения для настройки. Стабилизированный источник питания предназначен для питания лампы и монохроматора [60]. Малогабаритный монохроматор управляется с компьютера через контроллер.

От источника света к плечу поляризатора свет передаётся по гибкому световоду. Плечо поляризатора включает в себя коллимационную линзу и поляризатор P (призма Глана с воздушным зазором). Функции поляризатора заключаются в формировании линейно-поляризованного пучка света. После поляризатора линейно-поляризованный пучок света отражается от поверхности образца S (позиция 3 на рисунке 10) и попадает в приёмное плечо анализатора 2 (рисунок 10).

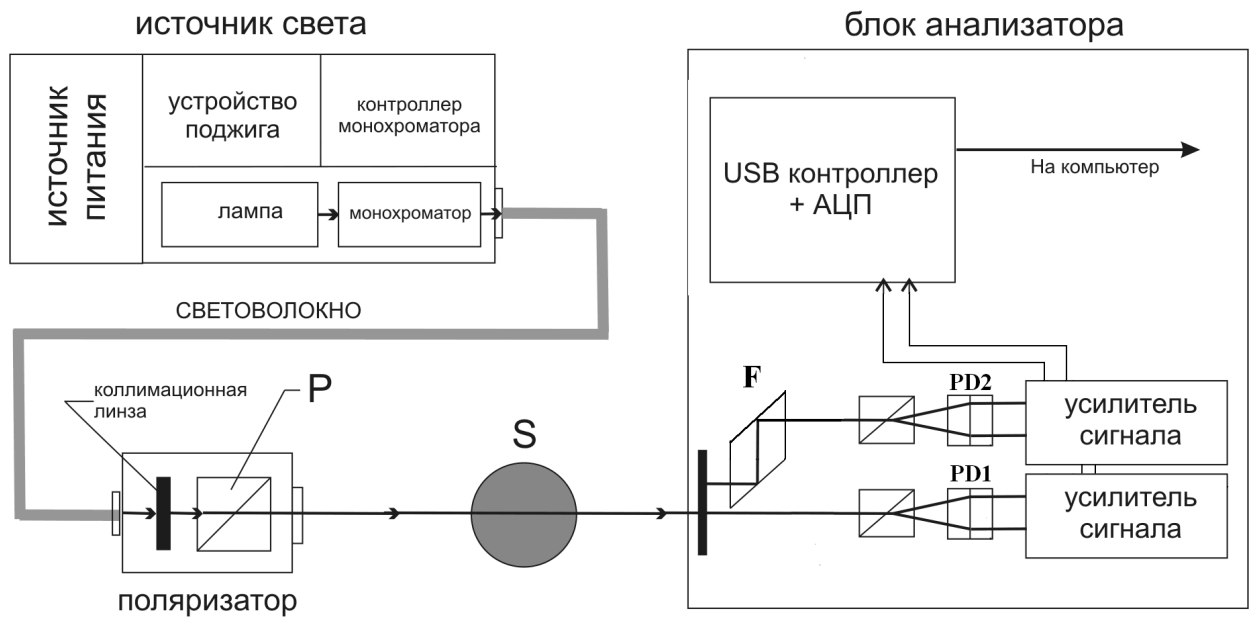


Рисунок 11 – Принципиальная схема спектрального эллипсометра Эллипс-1891

В приёмном плече анализатора определяется состояние поляризации света, отражённого от поверхности образца. Плечо анализатора включает в себя два пространственно разнесенных канала: амплитудный, для измерения параметра  $\Psi$ , и фазовый, для измерения параметра  $\Delta$  (рисунок 11). Часть светового потока отщепляется в фазовый канал с помощью ромба Френеля F, который также выполняет функцию фазосдвигающего элемента. Далее луч света попадает в анализирующий блок, состоящий из призмы Волластона и фотоприёмного устройства PD2. Призма Волластона разделяет падающий луч произвольной поляризации на два ортогонально поляризованных луча, расходящихся под

углом  $11^\circ$ . Расщеплённые призмой Волластона лучи далее засвечивают двухэлементный фотоприёмник PD2.

Световой пучок прошедший мимо ромба Френеля проходит в амплитудный измерительный канал  $\Psi$  и попадает в анализирующее устройство, аналогичное описанному выше, состоящее из призмы Волластона и фотоприёмника PD1.

Сигналы, снимаемые с фотоприёмников четырех каналов измерения, далее проходят аналого-цифровой преобразователь (АЦП) и передаются в компьютер. После некоторых математических преобразований над полученными с фотоприёмников сигналами вычисляются величины эллипсометрических углов  $\Psi$  и  $\Delta$ .

Стоит отметить, что в процессе спектральных эллипсометрических измерений практически всегда имеются ошибки измерений как результат разъюстировки оптических элементов, расходимости зондирующего пучка, погрешности ориентации образца. Для осуществления прецизионных спектральных измерений в конструкции эллипсометра Эллипс-1891 предусмотрена специальная система проведения измерений по четырем оптическим зонам, когда отдельно снимается спектр эллипсометрических параметров для каждой комбинации углов поворота – поляризатора  $\pm 45^\circ$  и анализатора (призма Волластона в канале  $\Psi$ )  $0^\circ$  и  $45^\circ$  относительно плоскости падения луча. В дальнейшем производится усреднение спектров по специальному алгоритму [59].

Следует заметить, что при *in situ* реализации системы существует проблема влияния структуры стекла вакуумных окон, предназначенных для ввода зондирующего пучка света внутрь сверхвысоковакуумной камеры, на состояние поляризации света. Окна в вакуумной камере могут вносить паразитное двулучепреломление, влияя на результаты эллипсометрических измерений. Этого удастся избежать с помощью тщательно подобранного материала для вакуумного окна с известными свойствами, а также при применении специального компенсатора. Зондирующий луч должен быть ориентирован перпендикулярно поверхности окна для уменьшения влияния на состояние поляризации.

Одноволновая эллипсометрия является частным случаем спектральной, когда до начала измерений монохроматором устанавливается определённая длина волны зондирующего пучка, и статично в одной оптической зоне производятся измерения эллипсометрических параметров от времени или от изменения амплитуды каких-либо внешних воздействий на образец, например магнитного поля или температуры. Таким образом, можно исследовать быстропротекающие процессы, происходящие на поверхности образца.

Для измерения эллипсометрических параметров, модулированных внешним магнитным полем на образце, была реализована магнитоэллипсометрическая схема. Был разработан и создан источник внешнего магнитного поля, который позволил проводить магнитооптические измерения экваториального эффекта Керра.

В мировой практике по отдельности широко используются как спектральная эллипсометрия, так и магнитооптические методы, которые встроены в технологические сверхвысоковакуумные камеры. Научной группой лаборатории Физики магнитных явлений Института физики им. Л.В. Киренского СО РАН совместно с сотрудниками Института физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН был создан прототип сверхвысоковакуумного технологического спектрального магнитоэллипсометрического комплекса [61]. Для управления аппаратными узлами установки было разработано специальное программное обеспечение [62].

Спектральный магнитоэллипсометр выполнен на базе быстродействующего спектрального эллипсометра Эллипс-1891 посредством добавления в его конструкцию электромагнита и блока питания «Импульс» производства ИФП СО РАН (рисунок 12). Для проведения быстрых и качественных магнитоэллипсометрических измерений необходимо наличие единой системы управления блоком питания электромагнита и эллипсометром. В блоках питания «Импульс» предусмотрена возможность цифрового задания ограничений по току и напряжению в диапазонах  $0 \div 15$  А и  $\pm 60$  В с точностью 20 мА и 10 мВ соответственно. Это позволяет регулировать напряжённость магнитного поля на

образце в диапазоне  $\pm 10$  кЭ с точностью 6 Э. Время установки магнитного поля в среднем составляет около 0.5 с.



Рисунок 12 – Внешний вид *ex situ* спектрального эллипсометра Эллипс-1891 с электромагнитом для магнитоэллипсометрических измерений

*In situ* спектральный магнитоэллипсометр работает по схожему принципу с единственным отличием – электромагнит располагается в специальном немагнитном стальном вакуумном кожухе, обеспечивая аналогичную системе *ex situ* напряжённость магнитного поля на образце. При этом сам электромагнит находится в атмосфере и не влияет на состояние вакуума в процессе технологических операций по созданию и *in situ* анализу образца.

#### *Атомно-силовая микроскопия [63]*

Атомно-силовая микроскопия (АСМ) является разновидностью сканирующей зондовой микроскопии. Первый атомно-силовой микроскоп был создан Биннигом, Куэйтом и Гербером в 1982 году как модификация изобретённого ранее сканирующего туннельного микроскопа.

Принцип работы атомно-силового микроскопа основан на регистрации взаимодействия между поверхностью исследуемого образца и острым зондом. В



роли зонда обычно используется игла из монокристаллического кремния с радиусом острия в несколько нанометров, располагающаяся на конце упругой консоли, называемой кантилевером. Сила со стороны поверхности, действующая на зонд, приводит к изгибу консоли. Прохождение зонда над возвышенностями или впадинами приводит к изменению силы, действующей на зонд, и, как следствие, к изменению величины изгиба кантилевера. Таким образом, регистрируя степень его изгиба, можно сделать вывод о рельефе поверхности.

Обычно взаимодействие между зондом и образцом рассматривают через дальнедействующие силы Ван-дер-Ваальса, которые сначала являются силами притяжения, а при тесном сближении с поверхностью переходят в силы отталкивания. В зависимости от характера действия силы между кантилевером и поверхностью образца выделяют три режима работы атомно-силового микроскопа:

- Контактный
- Полуконтактный
- Бесконтактный

При работе в контактном режиме атомно-силовой микроскоп является аналогом профилометра. Остриё зонда находится в непосредственном контакте между образцом и поверхностью, а сканирование осуществляется в режиме постоянной силы, когда система обратной связи поддерживает постоянной величину изгиба кантилевера. При анализе образцов с перепадами высот порядка единиц ангстрем возможно применять режим сканирования при постоянном среднем расстоянии между зондом и поверхностью образца. В этом случае кантилевер движется на некоторой средней высоте над образцом. Изгиб консоли, пропорциональный силе воздействия на зонд со стороны поверхности, записывается для каждой точки положения кантилевера. Изображение в этом режиме представляет собой двумерное распределение силы взаимодействия зонда с поверхностью [63].

К достоинствам метода можно отнести: высокую помехоустойчивость, большую скорость сканирования, наилучшее качество сканирования

поверхностей с резкими и большими перепадами рельефа. Недостатками метода являются: наличие артефактов от латеральных сил, действующих на зонд со стороны поверхности, действие на зонд капиллярных сил при сканировании в воздухе, увеличивающих погрешность в определении высоты поверхности), непригодность метода для зондирования объектов с малой механической прочностью.

При работе в бесконтактном режиме пьезовибратором на кантилевере возбуждаются колебания с некоторой частотой (обычно резонансной). Сила со стороны поверхности приводит к изменению амплитудно-частотной и фазово-частотной характеристик зонда. Система обратной связи сохраняет постоянной амплитуду колебаний зонда, при этом изменения частоты и фазы для каждой точки поверхности записываются. Возможно и задание обратной связи методом сохранения постоянной частоты или фазы колебаний с измерением амплитуды. Достоинством бесконтактного метода можно назвать отсутствие воздействия зонда на сканируемую поверхность, а недостатками метода являются: очень высокая чувствительность к внешним шумам, наименьшее латеральное разрешение, малая скорость сканирования и возможность работы только в условиях вакуума при отсутствии адсорбированного на исследуемой поверхности слоя воды. Из-за недостатков метода его использование в атомно-силовой микроскопии очень ограничено.

Колебания кантилевера генерируются и при работе микроскопа в полуконтактном режиме. Но в нижнем полупериоде колебаний кантилевер касается поверхности образца. Основным достоинством метода является универсальность по сравнению с другими методами, так как здесь практически отсутствует воздействие зонда на поверхность. Однако латеральные силы устранены, что упрощает интерпретацию получаемых изображений. Недостатком метода является меньшая, чем в контактном режиме, скорость сканирования.

Все АСМ измерения в настоящей работе проводились на зондовом микроскопе Veeco MultiMode NanoScope IIIa SPM System, внешний вид которого представлен на рисунке 13.



Рисунок 13 – Внешний вид атомно-силового микроскопа Veeco  
MultiMode NanoScope IIIa SPM System

Измерения проводились в полуконтактном режиме, так как синтезированные образцы с наноразмерной островковой структурой фактически шлифовались зондом на 60-70% по высоте при АСМ измерениях в контактном режиме.

#### *Растровая электронная микроскопия*

Растровый электронный микроскоп (РЭМ) является разновидностью электронного микроскопа, который предназначен для получения изображения поверхности массивного образца с пространственным разрешением до десятых долей нанометра.

В настоящей работе все РЭМ измерения проводились на сканирующем электронном микроскопе Hitachi S5500 (Япония) (рисунок 14) в вакууме порядка  $10^{-8}$  Па в режиме топографического контраста. Наивысшее разрешение достигалось на энергии пучка 30 кэВ.



Рисунок 14 – Внешний вид растрового электронного микроскопа Hitachi S5500

Принцип работы растрового электронного микроскопа состоит в генерировании тонкого электронного пучка с энергией от сотен эВ до нескольких десятков кэВ и последующей фокусировке пучка электронными линзами на образце. За счет отклонения пучка по двум координатам сканирующими электронными линзами удаётся построчно сканировать поверхность образца. При взаимодействии электронного пучка с веществом образца генерируются различные типы излучений: вторичные электроны, обратноотражённые электроны, Оже-электроны, рентгеновское вторичное излучение, световое излучение (катодоллюминесценция) и т.д. Регистрируя эти излучения в зависимости от геометрического положения точки попадания пучка на образце, можно анализировать поверхностную карту как топографии, так и химических свойств поверхности [64].

Обычно для получения информации о геометрии поверхности регистрируются вторичные и отражённые электроны. Контраст вторичных электронов в основном зависит от рельефа, а отражённые электроны несут информацию об электронной плотности поверхности. Поэтому различают два режима работы: топографический и фазовый контрасты. Так как фазовый

контраст эффективен в случае избытка на поверхности образца веществ со значительно большим атомным номером, чем материал подложки, то островковые структуры из материалов, близких по химическому составу к подложке и обладающих интегральной толщиной в несколько нанометров, практически не регистрируется в режиме фазового контраста. Поэтому в настоящей работе представлены результаты РЭМ анализа только в режиме топографического контраста. К тому же, этот режим позволяет произвести оценку псевдо-трёхмерных свойств поверхности.

В сравнении с методом АСМ применительно к исследованию объектов характерных размеров в десятки нанометров, преимуществами метода РЭМ является высокая степень соответствия полученного изображения реальной поверхности, благодаря отсутствию механического зонда с конечным радиусом закругления, а также высокой скорости измерений и быстрой фокусировке на поверхности. Основным недостатком метода РЭМ – частичное разрушение поверхности при сканировании на энергиях пучка более 20 кэВ – данная проблема особенно актуальна, так как высокие энергии требуются для анализа самых мелких деталей поверхности [65, 66]. Кроме того, к недостаткам метода относится требование предподготовки образцов, в частности нанесение тонкого слоя платины для улучшения стока поглощённых электронов на поверхность непроводящего образца, что может значительно исказить топографию поверхности на сверхвысоких увеличениях. Ещё одним недостатком РЭМ является отсутствие численных данных о высоте рельефа поверхности образца. В последнем случае можно сделать оценку рельефа только поворотом образца на заданный угол по отношению к направлению электронного пучка.

#### *Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ [67]*

Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ (РСФА) – метод элементного анализа, основанный на изучении спектра рентгеновского излучения, испущенного образцом под воздействием внешнего высокоэнергетического пучка фотонов.

История метода РСФА началась в 1913 году, когда английский физик Генри Мозли экспериментально определил зависимость между энергией спектральных линий характеристического излучения и атомным номером излучающего элемента [68]. Эта зависимость была названа законом Мозли, из которого следует, что анализируя рентгенофлуоресцентный спектр можно определять элементы по положению пиков интенсивности, а их количество – по величине интенсивности в этих пиках на спектре. Первое описание количественного метода РСФА было опубликовано в 1928 году Глокером и Шрайбером, и только в 1948 году Фридманом и Берксом был создан первый рентгенофлуоресцентный анализатор.

Процесс излучения флуоресцентных фотонов происходит в два этапа: образование электронной вакансии на одном из внутренних энергетических уровней атома под воздействием внешнего высокоэнергетического излучения и выход флуоресцентного кванта при переходе на свободную вакансию электрона из вышележащего уровня.

Преимуществами метода РСФА являются: простота спектральных зависимостей из-за небольшого количества линий и слабая зависимость от химического окружения, отсутствие необходимости особой подготовки образца, высокая объёмная чувствительность метода (на глубину в несколько мкм).

Существует два основных метода регистрации рентгенофлуоресцентных спектров: дисперсионный с применением кристаллических анализаторов и энергодисперсионный с использованием полупроводниковых или газолюминисцентных детекторов. В энергодисперсионном методе используется явление пропорциональности концентрации свободных носителей заряда в среде детектора при поглощении электромагнитного кванта от энергии этого кванта. В отличие от дисперсионного метода, где для развертки по спектру требуется совершать механическое вращение кристалла анализатора, применение энергодисперсионных детекторов не требует механических движений, что повышает надежность всей системы спектрометра.



Рисунок 15 – Внешний вид рентгеновского энергодисперсионного спектрометра ARL QUANT'X

В настоящей работе методом рентгеноспектрального флуоресцентного анализа проводились измерения интегральных толщин осаждаемых материалов на подложку с целью калибровки эллипсометрических методов технологического контроля геометрии растущих структур. РСФА измерения осуществлялись на рентгеновском энергодисперсионном спектрометре ARL QUANT'X компании Thermo Scientific (рисунок 15).

#### *Рентгеноструктурный анализ [69]*

В данной работе при исследованиях фазового состава поверхности образцов методом рентгеноструктурного анализа, применялся порошковый дифрактометр D8 ADVANCE (Cu  $K_{\alpha 1,2}$  - излучение) с линейным детектором VANTEC (рисунок 16).

Физический принцип работы рентгеновского дифрактометра основан на уникальности кристаллического строения различных фазовых модификаций химических соединений. Любое вещество в кристаллической форме характеризуется определённым набором межплоскостных расстояний  $d$  с различными ориентациями. Когда монохроматический рентгеновский пучок с длиной волны  $\lambda$  попадает на систему кристаллических плоскостей под углом  $\theta$ , то согласно условию Брэгга  $n \cdot \lambda = 2 \cdot d \cdot \sin \theta$  наблюдается явление дифракции рассеянных фотонов, где  $n$  – целое число.

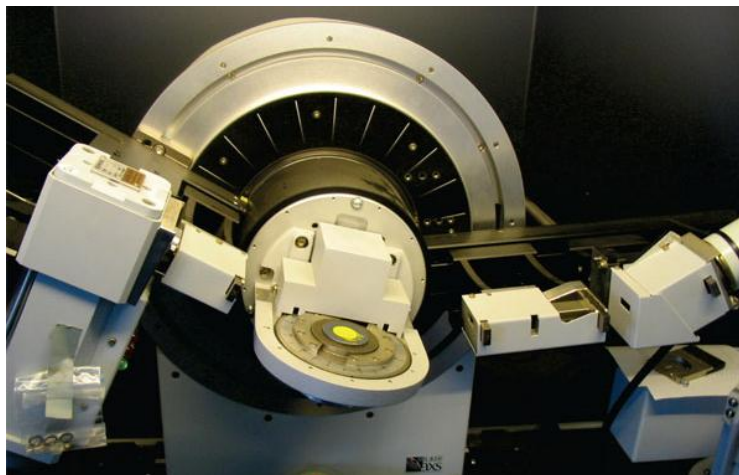


Рисунок 16 – Внешний вид дифрактометра D8 ADVANCE

Закон Брэгга удовлетворяется одновременно для различных наборов плоскостей в поликристаллическом образце, и, как следствие, на дифрактограмме исследуемого образца при изменении угла  $\theta$  формируются рентгеновские рефлексы – пики интенсивности излучения. Угловая зависимость распределения пиков на дифрактограмме характеризует исследуемое вещество образца.

Самый распространённый вид дифрактометрических исследований – это качественный и количественный анализ фазового состава образца. Каждой фазе материала образца соответствуют свои рентгеновские дифракционные пики, причем дифрактограмма содержит пики всех фаз образца независимо от их количества. Методом поиска в базе данных таких же рентгеновских пиков для предполагаемых известных кристаллических фаз, по угловому положению пиков определяют фазы, присутствующие в материале образца. А высота (интенсивность) пиков даёт информацию о количестве найденных кристаллических фаз, то есть определяет удельную поверхностную концентрацию каждой найденной фазы образца. Интенсивность нелинейного фона даёт информацию о суммарном содержании аморфных фаз [69].

Современные дифрактометры оснащены специализированным программным обеспечением для автоматического измерения, записи, интерпретации дифракционных пиков и подготовки аналитических отчётов. Электронные базы



данных, интегрированные в программное обеспечение дифрактометров, содержат информацию о дифракционных пиках десятков тысяч кристаллических веществ, что позволяет уверенно идентифицировать фазы и выполнять расчёт их концентраций в любых, даже достаточно сложных порошковых смесях и твёрдых образцах.

Кроме того, рентгеновская дифрактометрия позволяет определить структуру кристаллических веществ методом Ритвельда. Метод основан на нахождении степени соответствия между измеренной и теоретической дифрактограммой, вычисленной по модели предполагаемой структуры. Вычисление параметров кристаллической решётки, то есть межплоскостных расстояний исследуемого вещества осуществляется применением статистических моделей. Этот метод может быть использован и для идентификации конкретных фаз в смеси сложного состава [69].

Метод рентгеновской дифрактометрии позволяет проводить анализ тонких плёнок. Для этого используется специальная оптика, обеспечивающая параллельность рентгеновского пучка и облучение образца под малым углом к поверхности. При этом излучение не проникает в глубину образца и взаимодействует в основном с поверхностным слоем. В результате дифракционные пики от поверхности образца оказываются гораздо интенсивнее, чем пики от подложки. Это позволяет определить состав поверхности методом сравнения дифрактограммы чистой подложки без покрытия и с нанесённым покрытием.

Рентгеноструктурный анализ активно применяется для контроля качества изделий в промышленности и проведения экспериментов в исследовательской работе.

### **2.3 Методология анализа структурных и магнитооптических свойств с помощью спектральной эллипсометрии**

Как было показано ранее, теория эффективной среды для описания островковых структур удобна тем, что сокращает количество оптимизируемых параметров в оптической модели, описывающей прохождение электромагнитной волны через пористую среду, в которой отдельные компоненты имеют определённые параметры (размер включений, их форма, ориентация в пространстве, объёмная концентрация включений). Если величины этих параметров значительно больше длины волны падающего излучения, то условие квазистационарности (10) в электростатическом приближении не выполняется. В этом случае для описания такой пористой среды недостаточно задания только объёмной доли компоненты и её комплексной диэлектрической проницаемости для плотного массивного состояния, а требуется введение дополнительных параметров, которые характеризуют форму частиц и законы их статистического распределения.

В связи с тем, что спектральная эллипсометрия как оптический поляризационный метод позволяет проводить помимо анализа морфологии поверхности ещё и исследования магнитооптических свойств поверхности образца, актуальным является поиск алгоритма для нахождения магнитооптических параметров образца на эллипсометрическом оборудовании.

В магнитооптике одним из наиболее удобных и распространённых методов анализа ферромагнетика является комплексный эффект Фарадея, который характеризует различия в показателях преломления и коэффициентах поглощения для волн различной поляризации в результате электронных переходов между расщеплёнными уровнями энергии под действием внешнего магнитного поля и испускания фотонов правой и левой поляризации. Однако отражательная спектральная эллипсометрия не позволяет проводить прямое измерение эффекта Фарадея для сильнопоглощающих образцов, что требует создания некоторого математического аппарата для вычисления эффекта Фарадея из результатов

эллипсометрических измерений с приложением к образцу внешнего магнитного поля [47].

### 2.3.1 Модель случайно-распределённых дисков

Из анализа поведения эффективной диэлектрической проницаемости для двухфазной системы (17) Аспнесом [36] был сформулирован предел применимости теории эффективной среды для диэлектриков, который равен примерно  $\lambda/10$ . При размерах неоднородностей больше этой величины не следует ожидать физически адекватных результатов моделирования пористых сред по данным эллипсометрии. Близкий предел по размерам был найден и в экспериментальных работах при сопоставлении результатов по данным атомно-силовой микроскопии и спектральной эллипсометрии [70, 71].

Таким образом, можно сформулировать следующие ограничения теории эффективной среды, в том числе и модели эффективной среды Бруггемана:

А) ограничения при определении поверхностной шероховатости при характерных неоднородностях более чем  $\lambda/10$  [70];

Б) ограничения при характеристике роста двумерных островков на подложке, когда протяжённость островков в плоскости подложки превышает  $\lambda/10$  [25];

В) ограничения при вычислении параметров шероховатости прозрачной плёнки с малым коэффициентом преломления, например тонкого слоя пористого оксида. В этом случае, при прохождении света через плёнку, практически не изменяется отношение амплитуд взаимно-перпендикулярных компонент световой волны;

Г) ограничения при вычислении дисперсии диэлектрической проницаемости в оптическом диапазоне для полупроводниковых и металлических сплавов в связи с перекрытием электронных оболочек атомов различных компонент, и, как следствие, сильным влиянием квантовых эффектов [72, 73].

Так как первые два ограничения теории эффективной среды Бруггемана связаны с требованиями квазистационарности, то для анализа двумерных

кластерных систем была разработана модель случайно-распределённых дисков на основе геометрической оптики.

*Статистика кластеров в двумерном распределении островков*

Для моделирования оптических свойств двумерных кластерных систем необходимо иметь некоторую математическую модель для количественной характеристики степени заполнения поверхности подложки кластерами, а именно, для расчёта суммарного коэффициента отражения света от таких систем по формуле (2). Из-за сложности отыскания явного вида такой модели, исследования, как правило, проводятся методами машинного моделирования.

Первые результаты о распределении кластеров по размерам были получены в работе Смолуховского по коллоидной статистике [74], в которой, используя броуновское движение частиц, была получена формула распределения для трёхмерных кластеров в коллоидном растворе по коагуляционному механизму.

В мировой литературе имеется большое количество работ о моделировании по методу Монте-Карло таких островковых систем с использованием теории перколяции, где модель двумерных кластеров описывается как совокупность случайных графов [75, 76]. Например, в работе [77] рассматривается пуассоновское поле случайных точек, распределённых в двумерном пространстве с плотностью  $n$  и обладающих радиусом  $R$ . Кластером называется совокупность связанных взаимодействующих точек, расположенных друг от друга на расстоянии меньше чем  $2R$ . Для определения размеров кластера [77] выбиралась произвольная точка и проводилось обследование её окрестности в виде круга радиуса  $R$ . Если этот круг был пуст, то выбранная точка принадлежала кластеру размера  $m = 1$ . Если в круге насчитывалось  $m_1$  точек (точек первого поколения), то проводилось подобное обследование окрестности каждой из этих точек. Данная процедура продолжалась пока очередное  $k$  поколение не оказывалось пустым. Тогда исходная точка принималась принадлежащей кластеру

$$\text{размера } m = \sum_{i=1}^k m_i + 1.$$

По описанному алгоритму на ЭВМ в работе [77] вычислялась функция распределения кластеров по размерам в терминологии вероятности  $w_m^+$  того, что произвольная точка принадлежит кластеру размера  $m$  или более. Было определено, что статистика кластеров определяется безразмерной комбинацией  $p = \pi R^2 n$ , выражающей среднее число точек в круге радиуса  $R$  или полное заполнение поверхности кругами радиуса  $R$ .

На рисунке 17 изображены рассчитанные зависимости  $w_m^+$  от параметра  $m$  из работы [77]. Видно, что общий ход кривых полностью определяется величиной  $p$ . Причем при малых значениях параметра  $p$ , кривая  $w_m^+$  быстро падает с ростом размера кластера, а при  $p > 4.2$  кривые плавно переходят в асимптотическую форму, что свидетельствует о формировании некоторого числа кластеров с бесконечными размерами. Найденная критическая величина  $p_c \approx 4.1$  является очень важным параметром в теории перколяции.

В работе [78] была разработана простая вероятностная модель для описания двумерных распределений кластеров, которая позволяет получить аналитические выражения в случае малых  $m$ . Если построить случайное распределение дисков радиуса  $R$  с поверхностной концентрацией  $n$ , то часть дисков неизбежно пересекутся между собой.

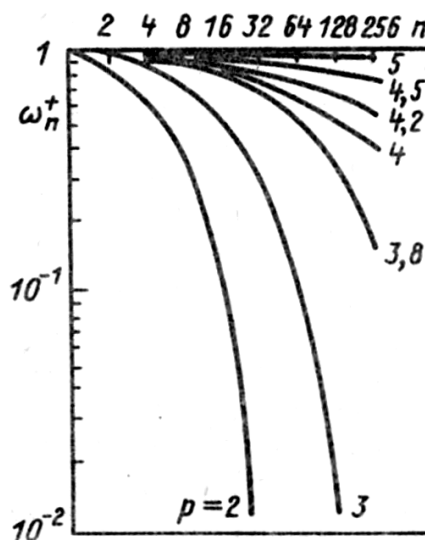


Рисунок 17 – Функции распределения вероятности  $w_m^+$  кластеров от размера  $m$  при различных  $p$ , по данным моделирования [77]

Если обозначить группу из  $m$  соприкасающихся дисков кластером размера  $m$  и ввести вероятность  $w_m$  того, что случайно выбранный диск принадлежит кластеру размера  $m$ , то  $w_m$  будет являться функцией распределения кластеров по размерам. Введенная ранее функция  $w_m^+$  будет суммой всех  $w_k$  при  $k \geq m$ .

Диски образуют распределение Пуассона. Следовательно, вероятность обнаружить  $M$  центров дисков на площади  $S$  определяется выражением [79]:

$$P_M = \frac{\langle M \rangle^M}{M!} \exp(-\langle M \rangle), \quad (33)$$

где  $\langle M \rangle = nS$  – среднее количество центров дисков на площади  $S$  любой формы. Рассматриваемый диск будет одиночным ( $m = 1$ ) в случае, если на расстоянии  $2R$  от его центра, на площади  $S = 4\pi R^2$ , не будет центра другого диска. Таким образом, учитывая (33), можно записать:

$$w_1 = \exp(-4\pi R^2 n) = \exp(-4\eta_e). \quad (34)$$

При этом  $\eta_e$  – среднее число центров дисков в круге радиуса  $R$ . А фактическое заполнение поверхности дисками получается из (33) при  $M = 0$ :

$$\eta = 1 - \exp(-\pi R^2 n). \quad (35)$$

Формулу (35) можно найти также методом отрисовки на белом полотне известной площади заданного количества чёрных окружностей с известным радиусом  $R$ , координаты которых имеют псевдослучайный характер. На рисунке 18 представлены результаты работы этого алгоритма: три полотна с различной концентрацией и радиусом окружностей.

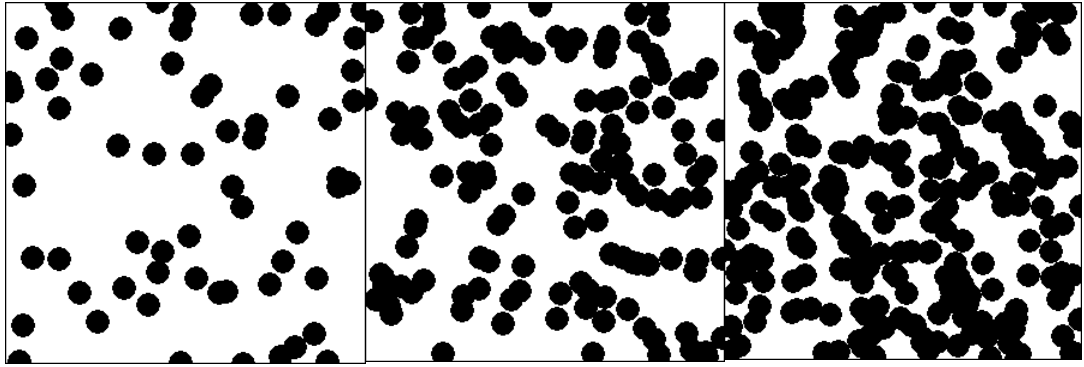


Рисунок 18 – Картины компьютерного моделирования случайных распределений дисков для трёх различных поверхностных концентраций. Заполнение по картинам: слева 0.2; в центре 0.4; справа 0.6. Количество дисков на каждой из картин: 64, 146 и 263 соответственно

После отрисовки каждого распределения, нужно вычислить  $\eta$  как отношение количества чёрных пикселей к полному количеству пикселей на поверхности полотна. Построив несколько распределений для различных  $n$  и  $R$ , и вычислив для каждого из них  $\eta$ , можно установить функциональную зависимость  $\eta(n, R)$ .

#### *Моделирование рассеяния света на случайно-распределённых дисках*

В связи с ограничениями теории эффективной среды для описания островковой структуры была разработана модель отражающей поверхности, состоящая из случайного распределения дисков заданного радиуса и концентрации на поверхности.

Для модели случайного распределения дисков можно вычислить степень заполнения поверхности по формуле (35). Однако при вычислении коэффициентов Френеля в разработанной модели необходимо учитывать интерференцию парциальных волн, так как любой островок, имеющий форму диска (или близкую к ней), следует рассматривать как часть сплошной плёнки, для которой необходимо задать некоторое конечное количество парциальных волн  $m$  (8а). Так, какими бы протяжёнными не были кластеры на поверхности образца, при наличии у них границ или пустот имеется конечное расстояние от места попадания волны до границы островка. На границе кластера волна

рассеивается в окружающее пространство, при этом на фотоприёмном устройстве эллипсометра образуя относительно слабый сигнал, не влияющий на эллипсометрические измерения. Рассеянная на границе волна деполяризована из-за случайного характера формы границ.

Если обозначить расстояние от места попадания волны до границы островка как  $\langle A \rangle$ , то можно записать:

$$m = \left[ \frac{\langle A \rangle}{\Delta x} \right], \quad (36)$$

где  $\Delta x$  – среднее расстояние между двумя ближайшими, выходящими из плёнки парциальными волнами или пространственный сдвиг волны при отражении от границы между подложкой и плёнкой.

Из условия однородности и изотропности плёнки с высотой  $d$ , то есть неизменности скалярной величины вещественной части её коэффициента преломления по высоте, используя закон Снеллиуса  $N_0 \sin \varphi_0 = N_1 \sin \varphi_1$  для угла преломления  $\varphi_1$ , и из геометрических соображений можно найти шаг  $\Delta x$ :

$$\Delta x = \frac{2 \cdot d \cdot \gamma}{\sqrt{1 - \gamma}}, \quad \gamma = \frac{N_0}{N_1} \sin \varphi_0. \quad (37)$$

Из выражения (37) видно, что величина  $\Delta x$  для разных частот падающего света изменяется обратно пропорционально коэффициенту преломления плёнки и увеличивается с ростом угла падения света к нормали. Также из закона Снеллиуса следует, что если  $\gamma \geq 1$ , то имеет место полное внутреннее отражение, и  $\Delta x$  не определима в поле вещественных чисел. Тем не менее, благодаря тому, что толщина плёнки обычно много меньше длины волны света, то излучение проходит через плёнку с затуханием пропорциональным  $\exp(-d/\lambda)$ , где  $\lambda$  – длина волны света [80]. Число  $m$  в таком случае принимается равным нулю.

Для нахождения величины  $\langle A \rangle$  в модели случайно-распределённых дисков необходимо определить среднюю длину отрезка между случайно выбранной точкой на окружности до ближайшей её границы по направлению плоскости



падения света. То есть фактически найти половину ширины  $b$  прямоугольника (рисунок 19), длина которого равна диаметру  $D$  рассматриваемой окружности, а площадь прямоугольника эквивалентна площади окружности.

Таким образом, ширина  $b = \pi D/4 = \pi R/2$  и величина  $\langle A \rangle$  равна:

$$\langle A \rangle = \frac{b}{2} = \frac{\pi R}{4}. \quad (38)$$

Следует заметить, что найденное выражение (38) соответствует одиночному, не пересекающемуся с другими, диску. Фактически такая ситуация реализуется только при средней поверхностной концентрации островков  $n \rightarrow 0$ , когда практически не образуются кластеры размером более единицы. Обычно при случайном формировании наноразмерных островков практически всегда присутствуют крупные кластеры, которые нельзя описать формулой (38).

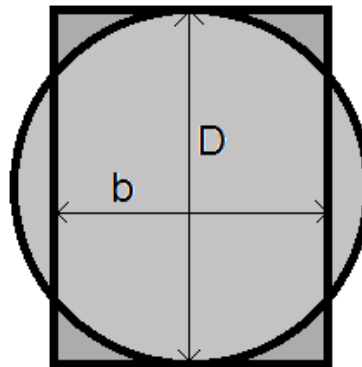


Рисунок 19 – К вычислению  $\langle A \rangle$  в уравнении (38)

Для учета большого количества случайно-распределённых дисков в выражение (38) нужно добавить коэффициент, который пропорционален среднему числу центров дисков в круге радиуса  $R$ . Так как величина  $\langle A \rangle$  обратно пропорциональна вероятности того, что на площадке  $S = \pi R^2$  вообще не окажется дисков, то величину (38) достаточно разделить на вероятность (34) при  $M = 0$ :

$$\langle A \rangle = \frac{\pi R}{4 \exp(-\pi R^2 n)} = \frac{\pi R}{4(1-\eta)}. \quad (39)$$

Откуда следует, что количество парциальных волн  $m$  для высокой плотности случайно-распределённых перекрывающихся дисков равно:

$$m = \left\lfloor \frac{\pi R \sqrt{1-\gamma}}{8d \cdot \gamma \cdot (1-\eta)} \right\rfloor, \quad \gamma = \frac{N_0}{N_1} \sin \varphi_0. \quad (40)$$

Для оценки величины  $m$  удобно рассмотреть модельные распределения дисков, которые представлены на рисунке 18. Например, были рассчитаны число  $m$  и относительная амплитуда  $m$ -ой волны для трёх длин волн света 250, 500 и 750 нм при угле падения  $70^\circ$  к нормали для системы, где в качестве материала островков высотой 10 нм использовалась медь (металл с высоким коэффициентом поглощения [81]), для материала подложки использовался монокристаллический кремний [82]. Результаты расчётов относительных интенсивностей парциальных волн с различными радиусами дисков и поверхностных концентраций для каждого распределения представлены в таблице 1. Относительные амплитуды для двух поляризаций  $m$ -ой парциальной волны были рассчитаны, используя выражения для коэффициентов Френеля (7) и фазовой толщины (6), как:  $R_{m,p} = |E_{rm,p}/E_{im,p}|^2$  и  $R_{m,s} = |E_{rm,s}/E_{im,s}|^2$ .

В таблице 1 выражениями  $Re(N)$  и  $-Im(N)$  обозначены величины вещественной и отрицательной мнимой частей комплексного коэффициента преломления соответствующего материала для конкретных длин волн света.

Из данных по расчёту относительных интенсивностей парциальных волн видно, что их величина после нескольких переотражений  $m$  имеет ничтожно малый вклад в суммарную интенсивность отражённого потока. Особенно это проявляется в том случае, если слой (наноразмерный кластер) обладает сильным поглощением.

Также дополнительные расчёты показывают, что суммарная относительная интенсивность света, который выходит из плёнки меди толщиной 10 нм на кремнии при длине волны 750 нм с вычетом первого рефлекса составляет  $5.29 \cdot 10^{-4}$  для  $p$ -поляризации и  $9.72 \cdot 10^{-4}$  для  $s$ -поляризации волны. На длине волны 250 нм

величины соответственно равны  $2.04 \cdot 10^{-4}$  и  $4.73 \cdot 10^{-4}$ . Угол падения света задавался  $70^\circ$  к нормали, как и для результатов расчёта, приведенных в таблице 1.

Таблица 1 – Результаты расчётов относительных интенсивностей парциальных волн для островков Cu на кремниевой подложке

№	$\lambda$ , нм	$R$ , нм	$n$ , МКМ <sup>-2</sup>	$\eta$	$Re(N)$ , Cu	$-Im(N)$ , Cu	$Re(N)$ , Si	$-Im(N)$ , Si	$m$	$R_{m,p}$	$R_{m,s}$
1	250	33.3	64.0	0.2	1.51	1.74	1.58	3.64	1	$6 \cdot 10^{-4}$	$10^{-3}$
	500				1.06	2.33	4.30	0.07	0	0.4	0.8
	750				0.20	4.56	3.74	0.01	0	0.9	1
2	250	66.6	36.5	0.4	1.51	1.74	1.58	3.64	4	$2 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	500				1.06	2.33	4.30	0.07	1	$10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$
	750				0.20	4.56	3.74	0.01	0	0.9	1
3	250	66.6	65.8	0.6	1.51	1.74	1.58	3.64	6	$2 \cdot 10^{-11}$	$2 \cdot 10^{-11}$
	500				1.06	2.33	4.30	0.07	2	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4}$
	750				0.20	4.56	3.74	0.01	0	0.9	1

Таким образом, на основании анализа рассчитанных относительных интенсивностей отражённого света от островковой структуры меди на кремнии для различного количества парциальных волн  $m$  можно сделать заключение о слабом влиянии учёта количества парциальных волн на результаты моделирования для металлических кластеров, материал которых обладает высоким оптическим поглощением.

Как следствие, основной вклад в анализе геометрических свойств случайного распределения дисков на подложке даёт значение доли заполнения (35) поверхности для подстановки в формулу (2). В результате образуется бесконечное множество решений для различных радиусов островков  $R$  и их поверхностной концентрации  $n$  в широких пределах на основании выражения (35). Исключением является ситуация со слабо-поглощающими свет веществами, когда концентрация

$n$  мала, а отношение  $2R/d$  порядка единицы, что соответствует малости количества парциальных отражений  $m$ .

### 2.3.2 Алгоритм расчёта магнитооптических параметров ферромагнетика по данным магнитоэллипсометрии

Как было показано в работе [83], используя измеренные при перемагничивании ферромагнитного образца величины  $\delta\Psi$  и  $\delta\Delta$ , теоретически возможно получить информацию о величине магнитооптического параметра Фогта  $Q$  для ферромагнетика, если известны его оптические постоянные в размагниченном состоянии, и соответственно величину комплексного эффекта Фарадея.

Несмотря на широкие потенциальные возможности метода прямых измерений  $\delta\Psi$  и  $\delta\Delta$  при перемагничивании образца, в литературе более распространён алгоритм анализа магнитооптического параметра  $Q$  по относительному изменению интенсивности отраженного от образца линейно-поляризованного света после прохождения анализатора эллипсометра [84]:

$$\frac{\delta I}{I}(t_1, t_2) = 2 \frac{I_{\uparrow} - I_{\downarrow}}{I_{\uparrow} + I_{\downarrow}}, \quad (41)$$

где  $I_{\uparrow}$  и  $I_{\downarrow}$  – интенсивности падающего на фотоприемник излучения при перемагничивании образца, а  $t_1$  и  $t_2$  – углы поворота поляризатора и анализатора эллипсометра относительно плоскости падения света. В этом случае величина  $\delta I/I$  характеризует изменение отражающих свойств поверхности ферромагнетика при его перемагничивании и не требует дополнительных расчётов эллипсометрических углов  $\Psi$  и  $\Delta$ .

В работе [85] показан алгоритм расчета  $Q$  по данным спектральных измерений величины  $\delta I/I$ . Алгоритм [85] был разработан для модели полубесконечной ферромагнитной среды. Однако при наличии отражения от нижних немагнитных слоёв в структуре помимо эффекта Керра в

магнитооптическом сигнале  $\delta I/I$  появляется вклад и эффекта Фарадея, который вносит изменения в итоговый рассчитанный параметр  $Q$  в области спектра со слабым поглощением. Этот вклад оказывает влияние только на амплитуду  $Q$ , что позволяет приближённо оценить спектральные магнитооптические свойства ферромагнитного слоя.

Для поиска параметра  $Q$  авторы [85] использовали следующее выражение:

$$Q = i \frac{\left( B_1 - i \frac{B_2 - B_1 B_6}{\sqrt{B_5 - B_6^2}} \right) [\sin(2\varphi_0) - \sin(2\varphi_1)] \sin(\varphi_0 + \varphi_1) \cos(\varphi_1)}{\cos(\beta) \sin(2\varphi_0) \sin^2(\varphi_1)}, \quad (42)$$

где  $\varphi_0$  и  $\varphi_1$  – углы падения и преломления света относительно нормали образца,  $\beta$  – азимутальный угол намагниченности образца относительно плоскости падения света, а  $B_{1-6}$  – вещественные коэффициенты, которые находятся из измерений  $\delta I/I$ .

При этом величина  $\beta$  определяется как:

$$\beta = \Re \left( \arctan \left( - \frac{(B_4 - B_3 B_6 + i B_3 \sqrt{B_5 - B_6^2}) \cos(\varphi_0 - \varphi_1)}{2 \cos(\varphi_1) (B_2 - B_1 B_6 + i B_1 \sqrt{B_5 - B_6^2})} \right) \right), \quad (43)$$

а комплексный угол преломления света в ферромагнетике находится из:

$$\varphi_1 = -i \ln \left( \sqrt{\frac{-e^{2i\varphi_0} (1 + B_5 + 2B_6 \cos(2\varphi_0)) + 2\sqrt{B_5 - B_6^2} \sin(2\varphi_0)}{1 + 2B_6 e^{2i\varphi_0} + B_6 e^{4i\varphi_0}}} \right). \quad (44)$$

Во всех трёх выражениях (42), (43) и (44) вещественные коэффициенты  $B$  находятся из магнитооптических измерений. Для их вычисления Бёргером [85] был предложен алгоритм на основе решения системы уравнений, состоящей из выражений следующего вида:

$$\frac{\delta I}{I} = 4 \frac{B_1 g_1 + B_2 g_2 + B_3 g_3 + B_4 g_4}{B_5 g_5 + 2B_6 g_4 + g_3}, \quad (45)$$

где  $g_i = g_i(t_1, t_2)$  – функции, зависящие от углов поворота поляризатора  $t_1$  и анализатора  $t_2$  эллипсометра. Функции  $g_i$  имеют следующий вид:

$$\begin{aligned}
 g_1 &= \sin t_2 \cos t_2 \sin^2 t_1 - \sin t_1 \cos t_1 \sin^2 t_2, \\
 g_2 &= \sin t_1 \cos t_1 \sin^2 t_2 - \sin t_2 \cos t_2 \sin^2 t_1, \\
 g_3 &= \sin^2 t_1 \sin^2 t_2, \\
 g_4 &= \sin t_1 \cos t_1 \sin t_2 \cos t_2, \\
 g_5 &= \cos^2 t_1 \cos^2 t_2.
 \end{aligned}
 \tag{46}$$

Количество уравнений (45) в системе равно количеству искомым коэффициентов  $B$ , и в случае измерения экваториального эффекта Керра их количество равно шести. Однако коэффициенты  $B_5$  и  $B_6$ , расположенные в знаменателе выражений (45), затрудняют поиск решений системы уравнений из-за наличия сингулярностей при условии малости выражения  $B_5 g_5 + 2B_6 g_4 + g_3$ .

Предложенный метод из [85] был модифицирован нами с целью более точного расчёта оптических постоянных ферромагнетика и сокращения времени магнитооптических измерений. Было решено проводить предварительное независимое вычисление коэффициентов  $B_5$  и  $B_6$  из измеренных оптических постоянных ферромагнитной плёнки по [86] методом многоугловой спектральной эллипсометрии с применением закона преломления Снелла и уравнения (44). Такой подход позволяет сократить количество выражений (45) в системе уравнений до четырёх, избавив от необходимости проведения двух из шести спектральных магнитооптических измерений  $\delta I/I$  и тем самым сократив на треть продолжительность всех магнитооптических измерений. Кроме того, поиск только коэффициентов  $B_{1-4}$  с заранее известными значениями  $B_5$  и  $B_6$  позволяет значительно улучшить достоверность результатов вычисления всех коэффициентов различными оптимизационными алгоритмами. В процессе поиска коэффициентов  $B_{1-6}$  использовался алгоритм симплекс-оптимизации Нелдера-Мида [87] с заданием функции минимизации по методу наименьших квадратов.

*Анализ экспериментальных погрешностей магнитооптических измерений*

Для уменьшения погрешности экспериментальных измерений  $\delta I/I$  по формуле (41) измерение каждой интенсивности  $I_{\uparrow}$  и  $I_{\downarrow}$  должно производиться более двух раз с последующим вычислением средних значений сигнала на фотоприёмниках  $\langle I_{\uparrow} \rangle$ ,  $\langle I_{\downarrow} \rangle$ , а также среднеквадратических отклонений сигналов  $\Delta I_{\uparrow}$  и  $\Delta I_{\downarrow}$  по выборке. При этом среднее значение итогового магнитооптического сигнала вычисляется по формуле (41):

$$\left\langle \frac{\delta I}{I} \right\rangle = 2 \frac{\langle I_{\uparrow} \rangle - \langle I_{\downarrow} \rangle}{\langle I_{\uparrow} \rangle + \langle I_{\downarrow} \rangle}, \quad (47)$$

а его абсолютная ошибка находится как погрешность косвенных воспроизводимых измерений (закон распространения ошибок):

$$\Delta \left\langle \frac{\delta I}{I} \right\rangle = \frac{4 \sqrt{(\Delta I_{\uparrow} \cdot \langle I_{\downarrow} \rangle)^2 + (\Delta I_{\downarrow} \cdot \langle I_{\uparrow} \rangle)^2}}{(\langle I_{\uparrow} \rangle + \langle I_{\downarrow} \rangle)^2}. \quad (48)$$

Поиск отклонений  $\Delta B_5$  и  $\Delta B_6$  производится численным расчётом частных производных по инструментальным погрешностям  $\Delta n$ ,  $\Delta k$ ,  $\Delta \varphi_0$  от разности выражения (44) и формулы для  $\varphi_1$  из закона преломления Снелла. Как для численного дифференцирования коэффициентов  $B_5$  и  $B_6$ , так и для нахождения их средних значений удобно использовать метод симплекс-оптимизации Нелдера-Мида [87].

Наибольшие методические трудности могут возникать с вычислением погрешностей  $\Delta B_{1-4}$ , так как расчёт самих коэффициентов  $B_{1-4}$  основан на решении системы уравнений методом наименьших квадратов. Для решения этой задачи удобно выразить последовательно каждый из коэффициентов  $B_{1-4}$  из выражения (45) как функцию от остальных  $B$ , измеренной величины  $\langle \delta I/I \rangle$  и углов поворота оптических элементов эллипсометра  $t_1$  и  $t_2$ . Полученные таким образом функции для  $B_{1-4}$  должны быть продифференцированы по каждому аргументу. Используя метод расчёта ошибки косвенных измерений, рассчитывается

среднеквадратическое значение  $\Delta B_{1-4}$  для каждого измеренного  $\langle \delta I/I \rangle$ . В результате последовательного расчёта  $\Delta B_i$  для всех четырёх величин  $\langle \delta I/I \rangle$  и вычисления их геометрической суммы определяется итоговая абсолютная погрешность для всех коэффициентов  $B_{1-4}$ .

При расчёте погрешности для магнитооптического параметра  $Q$  предлагается использовать метод поиска ошибки косвенных измерений посредством численного расчета производных от функции (42) по каждому из её аргументов. Итоговый поиск погрешности величины МКД также находится по закону распространения ошибок:

$$\Delta \psi_F = \frac{\pi}{\lambda} \text{Im}(\sqrt{(\Delta N \cdot Q)^2 + (\Delta Q \cdot N)^2}), \quad (49)$$

где  $\Delta N = \Delta n + i\Delta k$  и  $\Delta Q = \Delta Q_1 + i\Delta Q_2$  – соответствующие ошибки для коэффициента преломления ферромагнетика и его магнитооптического параметра Фогта.

### 2.3.3 Обоснование выбора метода определения экстремумов функции минимизации

Очень часто в научных и инженерных задачах по оптимизации используется метод модифицируемого многогранника, или иначе, симплекс-метод Нелдера-Мида [87], как один из эффективных методов поиска локального экстремума функции минимизации, не требующий гладкости производной для целевой функции. Этот метод основан на автоматическом модифицировании  $M$ -мерного симплекса (многогранника, содержащего  $(M+1)$  – точек) до того момента, пока разность значений функции минимизации  $\sigma$  не достигнет заранее заданной величины. Недостатком данного метода является низкая скорость сходимости, однако это компенсируется его высокой лояльностью к начальным данным и поведению самой целевой функции в отличие от, например, модификаций метода Ньютона. Более того, алгоритм Нелдера-Мида допускает использование любого



количества подгоняемых параметров вследствие работы со стандартной матричной алгеброй, где размерность матриц и векторов равна количеству искомых параметров. При оптимизации эллипсометрической модели ведется поиск минимального расхождения между теоретической кривой и экспериментальными данными. Таким образом, алгоритм симплекс-метода ищет локальный минимум.

Для удобства оптимизации начальный симплекс  $A$  задаётся в виде набора точек:  $A = ([P_{1min} P_{2min} \dots P_{j-1max} \dots P_{Mmin}]_j, j = 1 \dots M+1)$ . На рисунке 20 приведен пример начального симплекса  $A = ([P_{1min} P_{2min}], [P_{1min} P_{2max}], [P_{1max} P_{2min}])$  для  $M = 2$ . С увеличением  $M$  (размерности пространства функции минимизации) уменьшается относительная объёмная доля начального симплекса в  $M$ -мерном кубе. Данное обстоятельство ухудшает эффективность поиска локального экстремума функции минимизации, так как уменьшается вероятность «захвата» нужной точки  $M$ -мерного пространства.

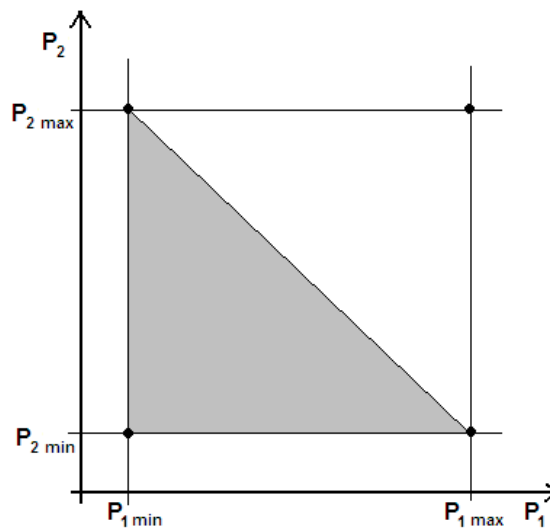


Рисунок 20 – Начальный симплекс в двухмерном пространстве

Следует отметить, что поведение самой функции минимизации  $\sigma$  может иметь сложный характер, обусловленный наличием нескольких точек локальных экстремумов. Схематически это представлено на рисунке 21.

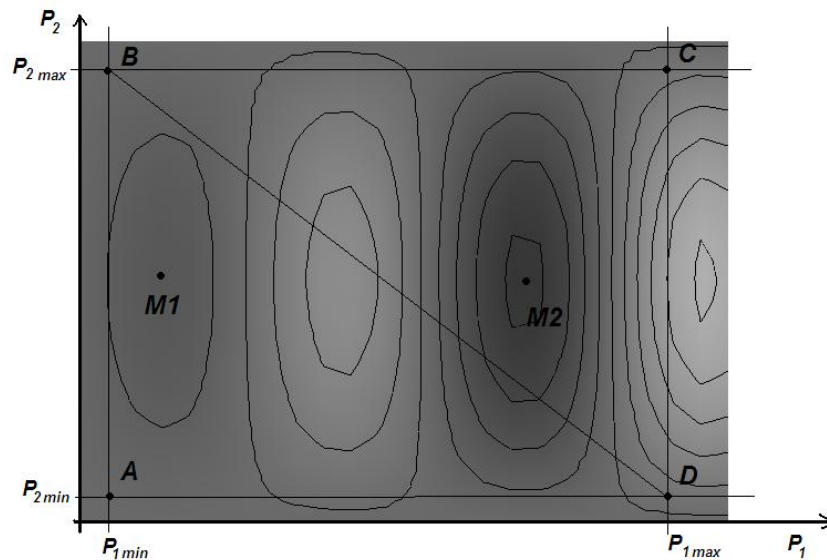


Рисунок 21 – Схематическая диаграмма симплекс-оптимизации для двух аналитических параметров  $P_1$  и  $P_2$ . Оттенок характеризует величину  $\sigma$ . M1 – точка локального минимума, M2 – точка основного решения

Алгоритм оптимизации, работающий по начальному симплексу BCD (рисунок 21), обнаружит экстремум M1, так как первую дополнительную точку он проверяет за пределами начального симплекса. Экстремум M2, как наиболее приемлемый, будет незамечен.

Симплекс-оптимизация ведет поиск только одной точки экстремума, около которой строится конечный симплекс, что позволяет фиксировать границы поиска экстремума блокированием операции создания новой точки за пределами сторон симплекса (симплекс на каждом шаге принудительно стягивается к точке, лежащей внутри симплекса предыдущего шага). Таким образом, имеется возможность усовершенствования метода для поиска множества локальных минимумов функции минимизации.

В данной работе была использована возможность задания отражённого через центральную точку симплекса (рисунок 22, а). Также был разработан метод разбиения пространства оптимизируемых параметров на заданное количество  $M$ -мерных кубов, в каждом из которых создаются прямой и отражённый начальные симплексы (рисунок 22, б).

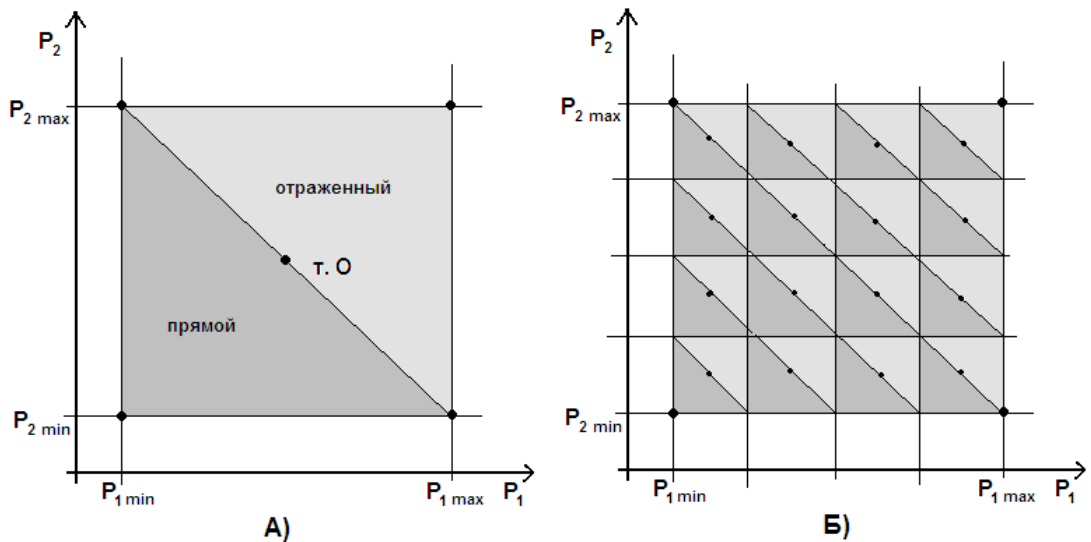


Рисунок 22 – а) прямой и отражённый через точку О начальные симплексы в двухмерном пространстве; б) разбиение каждого параметра на 4 равные части

Таким образом, после разбиения пространства оптимизации на  $2K^M$  начальных симплексов, где  $K$  - количество долей для каждого аналитического параметра, и нахождения для них локальных минимумов производится операция по составлению списка неповторяющихся решений оптимизации с сортировкой этого списка по возрастанию функции минимизации  $\sigma$ . В качестве текущего решения принимается результат с наименьшей величиной  $\sigma$ .

В итоге, только превышение величиной  $2K^M$  размера динамической памяти ограничивает выполнение этого алгоритма на ЭВМ.

## 2.4 Выводы к главе

Рассмотрены основные аппаратные средства и методы исследования экспериментальных образцов. Анализ статистической модели случайно-распределённых дисков позволил установить определяющие её параметры: поверхностная концентрация пересекающихся дисков и их средний радиус. Используя эти параметры, были найдены выражения для доли заполнения поверхности образца кластерами и количества парциальных волн при отражении света от таких кластеров в приближении геометрической оптики. Установлено,

что для протяжённых сильно-поглощающих дисков модель не позволяет достоверно определить их размеры и концентрацию на поверхности. Качественный анализ в этом случае возможен только для доли поверхности, занимаемой кластерами. Разработанная оптическая модель имеет преимущества перед электростатическими моделями среды при анализе островковой пленки, когда размеры островков и/или расстояния между ними более 10 % от длины волны зондирующего излучения.

Модификация метода расчёта магнитооптических параметров по данным спектральной магнитоэллипсометрии позволяет значительно сократить время измерений и уменьшить суммарную статистическую погрешность за счёт использования спектральной зависимости комплексного коэффициента преломления ферромагнетика, которая измеряется обычной эллипсометрической методикой. Применение специальных оптических моделей поверхности образца, которые позволяют избежать многоугловых эллипсометрических измерений при вычислении коэффициента преломления ферромагнитного слоя, даёт возможность получать информацию о магнитооптических свойствах в режиме *in situ* при статическом креплении оптических элементов магнитоэллипсометра. Тем не менее, усовершенствованный метод расчёта магнитооптических параметров, как и его прототип [85], обладает недостатком – он даёт достоверный результат только в случае толстой сильнопоглощающей ферромагнитной плёнки или массивного образца. При спектральных измерениях на тонких и прозрачных ферромагнетиках вероятны высокие погрешности в длинноволновой области спектра.

Предложен алгоритм поиска множества решений обратной задачи эллипсометрии методом симплекс-оптимизации Нелдера-Мида [87], использующий сетку из прямых и отражённых начальных симплексов в пространстве искомым параметров оптимизации.

## Глава 3 Исследование влияния технологических условий на формирование метастабильной при комнатной температуре фазы силицида $\text{Fe}_5\text{Si}_3$

### 3.1 Создание массивных образцов системы $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Измерение дисперсий коэффициентов преломления и поглощения $\text{Fe}_5\text{Si}_3$

Спектральная отражательная эллипсометрия позволяет получить информацию о дисперсии диэлектрической проницаемости  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  при известных параметрах отражающей структуры. Получение вещественной и мнимой частей диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  основано на решении уравнения для измеряемых в эллипсометрии параметров  $\Psi$  и  $\Delta$ . При этом вид такого уравнения задаётся оптической моделью поверхности образца. Для получения спектральной зависимости  $\epsilon$  решение уравнения производится для каждой пары  $\Psi$  и  $\Delta$  по длине волны  $\lambda$ .

Простейшей оптической моделью в отражательной эллипсометрии является полубесконечная среда с резкой границей раздела, для которой  $\epsilon$  находится по формуле (5). Если же требуется найти диэлектрическую проницаемость вещества некоторого слоя толщины  $d$ , то в таком случае удобно применить симплекс-оптимизацию Нелдера-Мида для решения уравнения (6) относительно комплексной величины  $N_1^2$ .

Для оценки толщины и дисперсии коэффициента преломления слоя стехиометрического состава  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  были использованы многоугловые спектральные эллипсометрические измерения [88].

Для создания однородной плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  толщиной более 25 нм были использованы два различных метода получения экспериментальных образцов: соосаждение железа и кремния со стехиометрическим соотношением молекулярных потоков 5:3 на нагретую подложку  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ ; последовательное осаждение субнанометровых слоёв железа и кремния на холодную подложку  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  с последующим отжигом в сверхвысоком вакууме.

Для синтеза исследуемых структур были выбраны пластины монокристаллического кремния марки *p*-Si(100). Для исключения процессов диффузии атомов кремния из подложки [89] поверхности Si(100) был сформирован буферный аморфный слой SiO<sub>2</sub> толщиной более 10 нм. Создание толстого слоя оксида проводилось в ИФП СО РАН методом термического окисления в среде O<sub>2</sub> + HCl при температуре около 1000 °С. Основная роль активного хлора в окислителе сводится к превращению случайно проникших примесных ионов натрия или калия в слой SiO<sub>2</sub> в электрически нейтральные соединения. Кроме того, повышаются плотность оксида и скорость его роста [90]. Для уменьшения количества дефектов в созданном слое оксида производился 15 минутный отжиг подложек в инертной атмосфере азота высокой чистоты.

Непосредственно перед синтезом структур Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> подложки SiO<sub>2</sub>/Si(100) помещались в теплый раствор NH<sub>4</sub>OH(1 часть):H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(4 части):H<sub>2</sub>O(16 частей) на несколько секунд для очистки поверхности от органики. Затем проводилась промывка в бидистиллированной воде и сушка.

Перед помещением подложек в сверхвысокий вакуум производились *ex situ* спектральные эллипсометрические измерения для определения толщины SiO<sub>2</sub>. Средняя толщина оксида на исследуемых образцах составила около 14 нм.

После помещения в сверхвысокий вакуум подложки отжигались несколько часов при температуре 250 °С. Отжиг производился с контролем по давлению остаточной атмосферы в технологической камере. До отжига давление в камере составляло порядка 10<sup>-8</sup> Па. После нагрева подложки и держателя до температуры 200 °С начиналась активная десорбция газов с поверхности, и давление увеличивалось до 10<sup>-6</sup> Па. По истечении полутора-двух часов давление стабилизировалось на первоначальном уровне 10<sup>-8</sup> Па и не изменялось в дальнейшем.

По окончании отжига с поверхности подложек были получены дифрактограммы отражённых быстрых электронов, на которых просматривается серия колец Дебая на фоне рассеянных от аморфной фазы электронов, как следствие присутствия поликристаллического SiO<sub>2</sub>. На рисунке 23 представлена

фотография ДОБЭ поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  после сверхвысоковакуумного отжига.

Для оценки шероховатости поверхности  $\text{SiO}_2$  после отжига на одном из образцов были проведены *ex situ* АСМ измерения в полуконтактном режиме. На рисунке 24 представлена фотография АСМ от подложки  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  после сверхвысоковакуумного отжига.

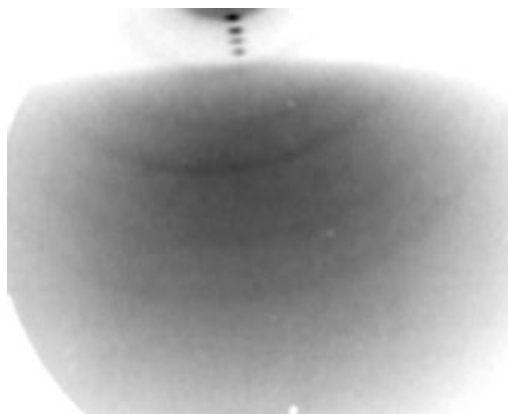


Рисунок 23 – Типичная дифрактограмма отражённых быстрых электронов от поверхности образца  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  после сверхвысоковакуумного отжига

Из статистического анализа АСМ изображения следует, что чистая поверхность слоя двуокиси кремния  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  после сверхвысоковакуумного отжига имеет шероховатость 0.22 нм, без какой-либо упорядоченной структуры

Первый образец с массивной пленкой был синтезирован методом термического испарения в сверхвысоком вакууме на установке «Ангара» со стехиометрическим соотношением молекулярных потоков железа и кремния 5:3 на нагретую поверхность  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Скорости осаждения материалов задавались соответствующими температурами молекулярных источников, которые ранее были откалиброваны по измерениям РСФА.

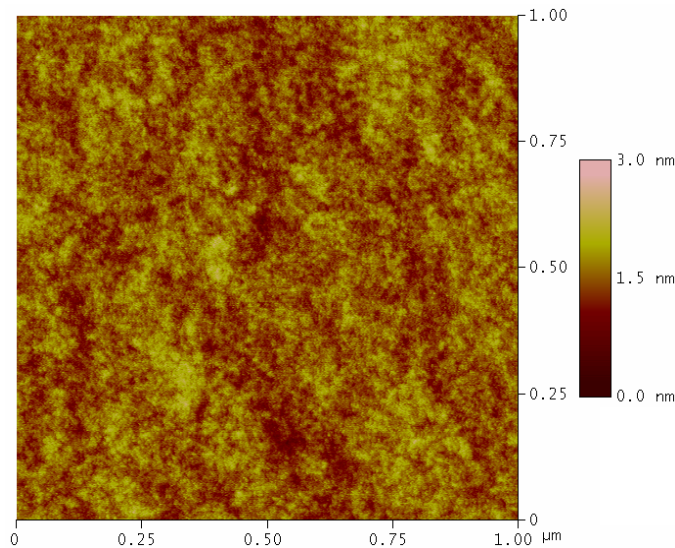


Рисунок 24 – Результаты АСМ измерений для чистой поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$

По результатам измерений спектральной эллипсометрии до осаждения плёнки толщина  $\text{SiO}_2$  на поверхности подложки составила около 13.7 нм. На поверхность оксида осаждалось по  $30.0 \pm 0.5$  нм Fe и Si для объёмной плотности чистых материалов при нормальных условиях, при этом поверхностная плотность массы составила  $6.9 \pm 0.3$  мкг/см<sup>2</sup> и  $23.7 \pm 1.2$  мкг/см<sup>2</sup> для кремния и железа соответственно. Осаждение производилось в течение 5 часов. Температура подложки при осаждении была около 120 °С.

Для идентификации кристаллической структуры полученного слоя проводился его *ex situ* рентгеноструктурный анализ. Разностная рентгенограмма слоя представлена на рисунке 25, там же показана рентгенограмма от чистой подложки  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ .

Из анализа полученных данных РСА можно заключить, что при таких технологических условиях была сформирована плёнка  $\text{Fe}_3\text{Si}$ , ориентированная на плоскость (022).

Для получения массивной пленки вторым методом производилось последовательное осаждение тонких слоёв Fe и Si на поверхность подложки  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Расчёт толщины двуоксида кремния по данным спектральной эллипсометрии показал величину  $\sim 13.6$  нм.



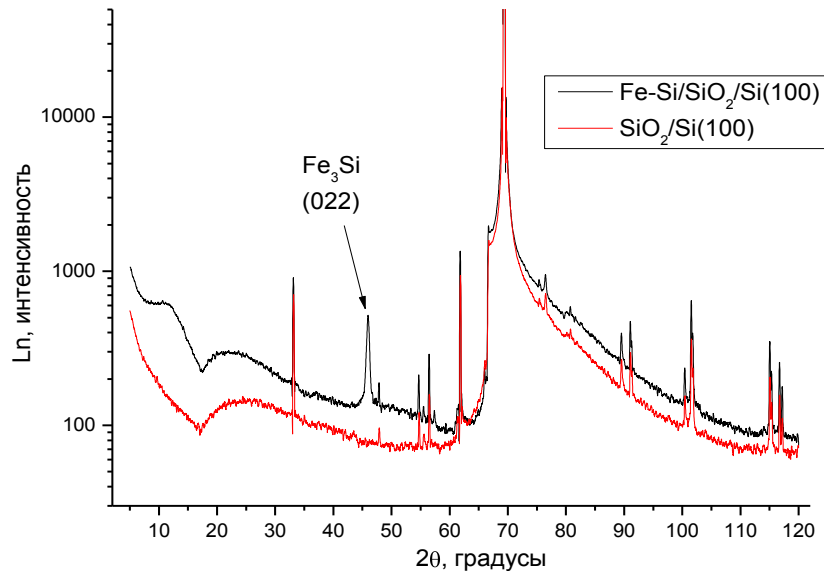


Рисунок 25 – Рентгенограммы слоя Fe-Si и подложки SiO<sub>2</sub>/Si(100). Индексом в скобках показан характерный рефлекс от плёнки Fe<sub>3</sub>Si. Использована фильтрация Савицкого-Голея по 20 точкам [91]

Толщина для каждого тонкого слоя Fe и Si первые 6 слоёв составляла 0.5 нм, остальные 30 слоёв были по 0.8 нм каждый. Первым слоем на подложке было железо. Суммарная толщина Fe-Si составила около 27 нм в пересчете на плотность массивных чистых материалов или  $10.7 \pm 0.6$  мкг/см<sup>2</sup> для железа и  $3.1 \pm 0.1$  мкг/см<sup>2</sup> для кремния. Скорости осаждения для обоих материалов были равны 0.1 нм/мин. Температура подложки в процессе осаждения составляла около 50 °С.

После осаждения образец подвергался отжигу в сверхвысоком вакууме при температуре 450 °С. Суммарное время отжига составило около 30 минут, а сам процесс контролировался *in situ* лазерной эллипсометрией. В процессе нагрева образца наблюдалось непрерывное изменение его эллипсометрических параметров, что свидетельствует об изменениях состояния поверхности. После стабилизации измеряемых на образце эллипсометрических параметров нагрев образца был остановлен.

Для идентификации кристаллической структуры полученного слоя проводился *ex situ* рентгеноструктурный анализ пленки, который показал наличие

фазы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Разностная рентгенограмма слоя представлена на рисунке 26. Уточнение Ритвельда проведено при помощи программы TOPAS 4.2 [92]. Рефлексы от подложки были смоделированы отдельными пиками с профилем Пирсон VII, остальные рефлексы подгонялись соответствующими фазами методом Ритвельда. В качестве исходной структуры использовалась структура  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93]. Координаты атомов не уточнялись из-за того что рефлексы от плёнки очень слабые. Уточняемыми параметрами являлись параметры ячейки  $a$ ,  $c$ , коэффициент текстуры и размеры кристаллитов. Так как на рентгенограмме обнаружены только два сильных пика от плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с индексами (002) и (112), а других рефлексов почти не видно, то можно предположить наличие поликристаллической плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с основными ориентациями кристаллитов в плоскостях (002) и (112). Основные параметры уточнения следующие: пространственная группа  $R\bar{6}_3/mc$ ;  $a = 0.743$  нм;  $c = 0.4683$  нм; объем элементарной ячейки  $0.224$  нм<sup>3</sup>; размер кристаллитов  $13.7$  нм.

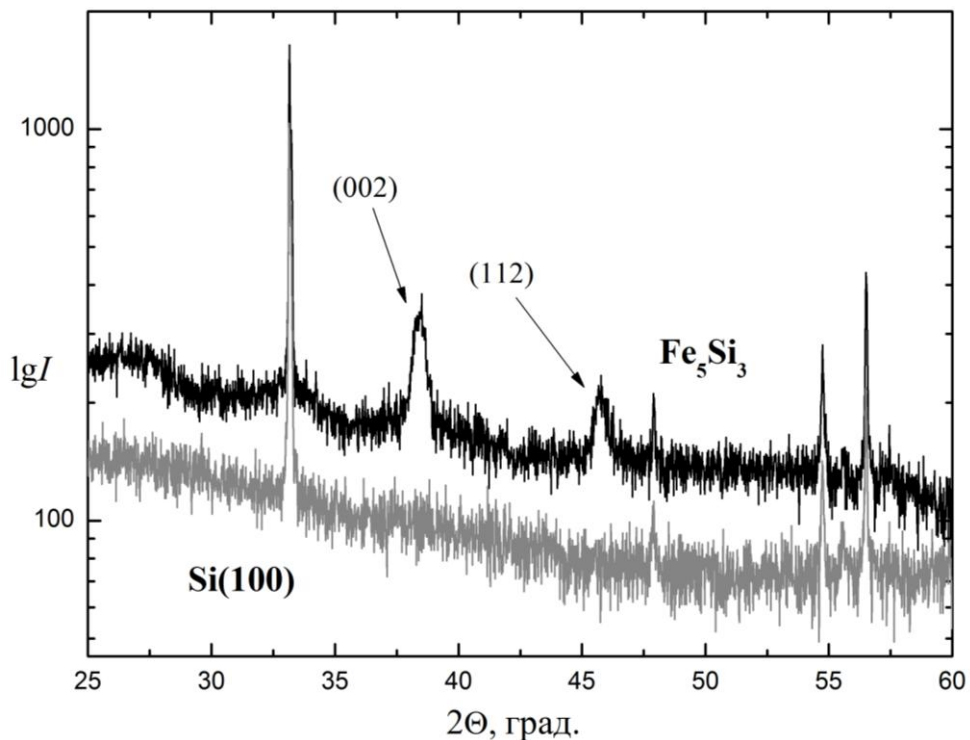


Рисунок 26 – Разностная рентгенограмма поликристаллического слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  (002)+(112) на подложке  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Индексами в скобках показаны характерные рефлексы от плёнки

Для получения информации о величине шероховатости и морфологии поверхности проводились АСМ измерения в полуконтактном режиме при различных увеличениях. На рисунке 27 представлены результаты АСМ измерений.

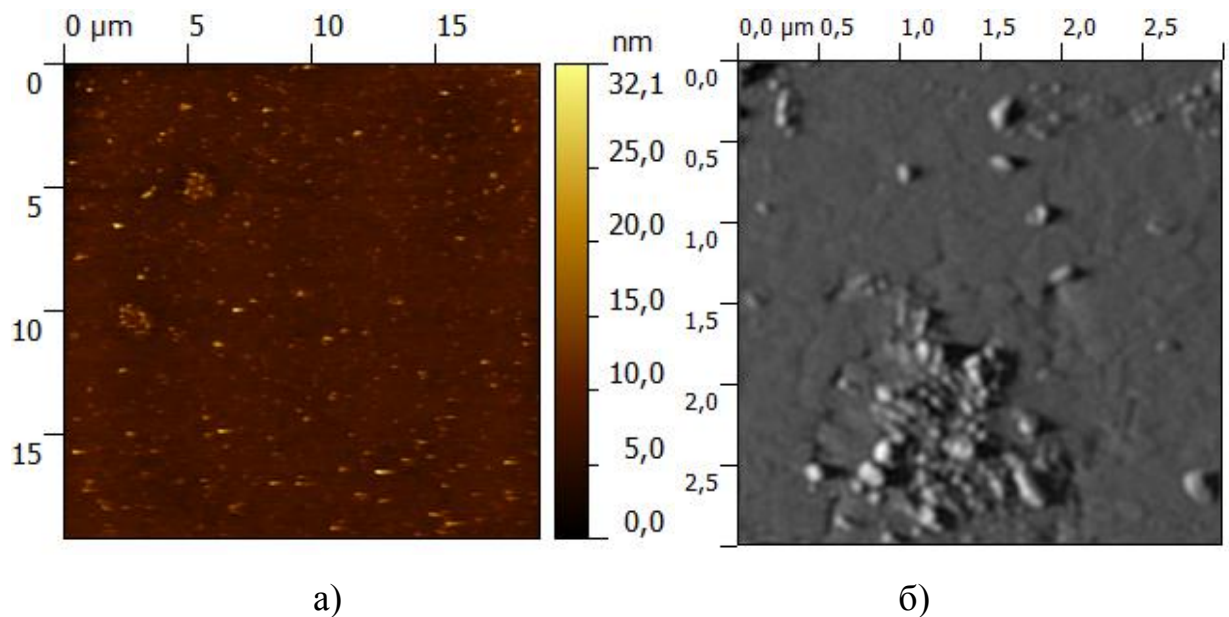


Рисунок 27 – Результаты АСМ измерений поверхности массивного образца Fe-Si, полученного методом послойного осаждения железа и кремния: (а) – топографический режим; (б) – изображение около крупнокристаллического образования в режиме ошибки распознавания

На рисунке 27 (а) видна плоская поверхность, на которой случайным образом сформировались отдельные кристаллические зерна с размерами порядка 200 нм и редкие крупные скопления таких зёрен. Размеры скоплений достигают 2 мкм в диаметре. Высота кристаллитов в основном не превышает нескольких нанометров. При большем увеличении окрестности скопления и в режиме ошибки распознавания (рисунок 27 (б)) хорошо различима высокая дефектность плёнки в виде трещин шириной 10-15 нм и средней длиной около 200 нм.

В удалении от крупных скоплений дефекты в основном слое практически не наблюдаются. А средняя шероховатость поверхности образца без учета

случайных островков составляет около 1.5 нм. Расстояние между случайными кристаллитами около 5 мкм. В связи с тем что крупные скопления кристаллитов достаточно редки, они не оказывают существенного влияния на эллипсометрические измерения, несмотря на их сравнительно большие размеры.

Ввиду малости суммарного объема отдельных кристаллитов к объему основного слоя (по данным АСМ интегральная толщина всех кристаллитов составляет около 1 нм) при анализе оптических свойств рассматривался однородный по высоте слой  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с резкими границами раздела.

Для оценки оптических свойств полученной пленки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  были построены номограммы  $n$  от  $k$  при различных углах падения света  $70^\circ$ ,  $60^\circ$  и  $50^\circ$  в зависимости от толщины слоя. Подробно метод оценки толщины слоя по данным многоугловых эллипсометрических измерений представлен в работе [86]. Полученные номограммы представлены на рисунках 28 (а) и (б) для длин волн 500 и 800 нм в диапазонах толщины слоя  $20\div 40$  нм и  $16\div 35$  нм соответственно.

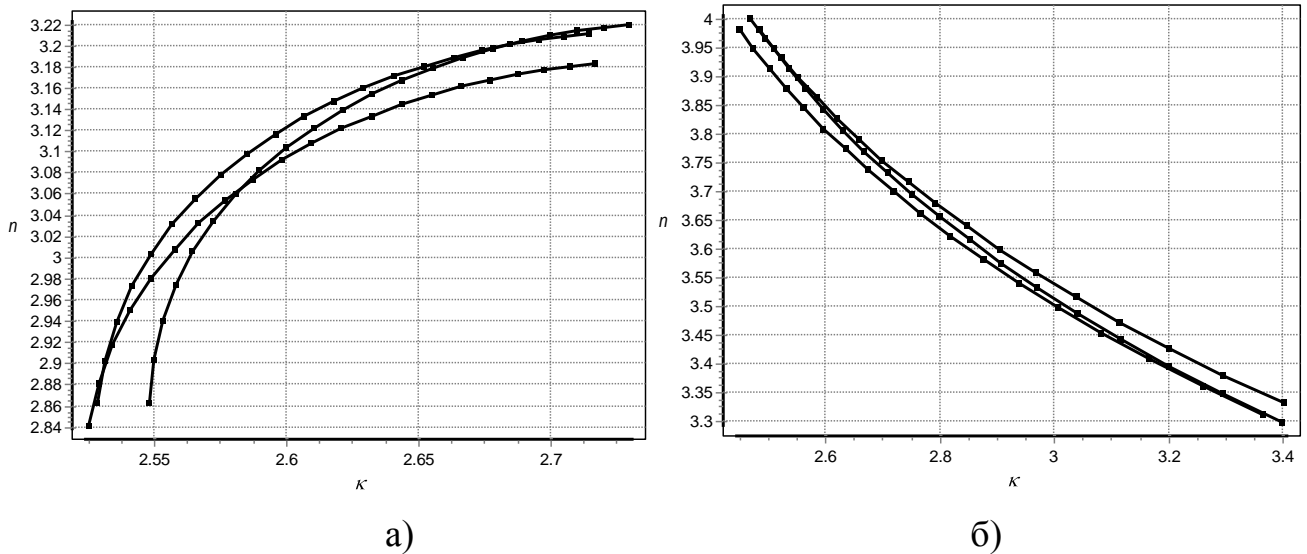


Рисунок 28– Номограммы  $n(k)$  на трёх углах падения света  $70^\circ$ ,  $60^\circ$  и  $50^\circ$  для четырех длин волн в диапазонах толщины слоя: а) 500 нм –  $20\div 40$  нм; б) 800 нм –  $16\div 33$  нм

На каждой длине волны были выбраны следующие значения начальных коэффициентов преломления и поглощения, а также толщины слоя: для 500 нм –

$n = 3.08$ ,  $\kappa = 2.576$ ,  $d = 27.1$ ; для 800 нм –  $n = 3.64$ ,  $\kappa = 2.79$ ,  $d = 23.47$ . При использовании начальных приближений для каждой полученной с образца эллипсометрической спектрограммы была найдена дисперсия оптических постоянных вещества слоя. Дополнительно были рассчитаны оптические постоянные образца в приближении псевдо-диэлектрической функции полубесконечной среды по формуле (5). Все рассчитанные спектральные зависимости коэффициента преломления и коэффициента поглощения представлены на рисунках 29 и 30 соответственно.

Так как ранее спектральные зависимости коэффициента преломления и коэффициента поглощения не исследовались для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , были проведены теоретические расчёты для стандартного поликристаллического  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93] в рамках метода функционала плотности и для поликристаллического  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , используя уточнённые параметры кристаллической решётки по данным PCA. Расчёты электронной структуры  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  проводились с помощью квантово-химического моделирования в лицензионном программном пакете VASP 5.3 [86, 94, 95]. Так как монокристалл  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  обладает двухосной оптической анизотропией из-за гексагональной кристаллической решётки и для тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_x = \epsilon_y \neq \epsilon_z$ , то расчёт  $\epsilon$  для поликристаллического  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  проводился по модели эффективной среды Бруггемана при одинаковой объёмной доли кристаллитов, ориентированных по всем трём направлениям оптических осей.

Результаты теоретических расчётов спектральных зависимостей коэффициента преломления и коэффициента поглощения для структур  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в рамках метода функционала плотности также представлены на рисунках 29 и 30.

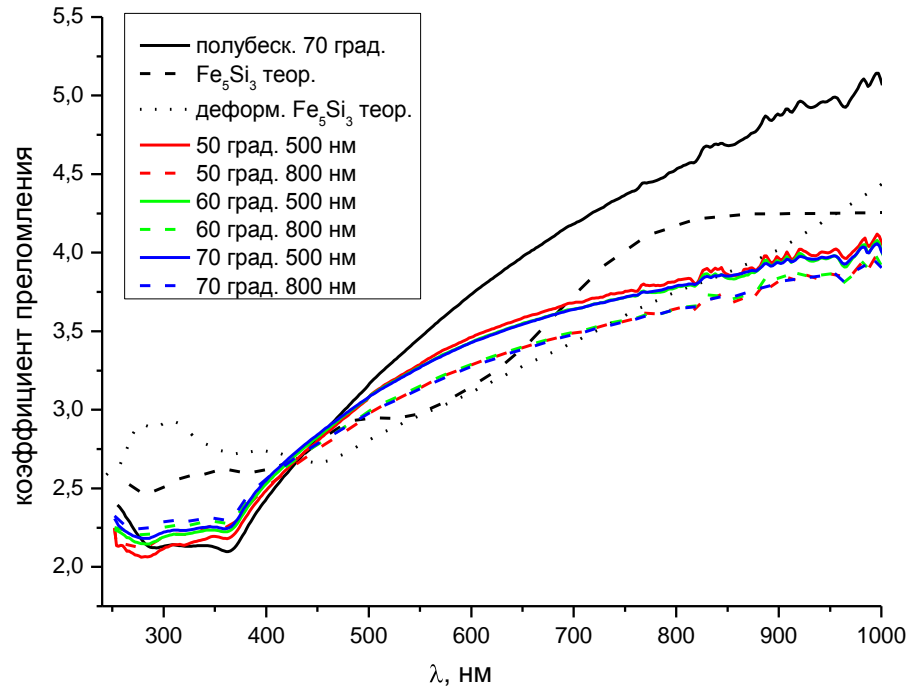


Рисунок 29 – Дисперсии коэффициента преломления, вычисленные для массивного слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , теоретически рассчитаны для стандартного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93] и деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  по данным PCA

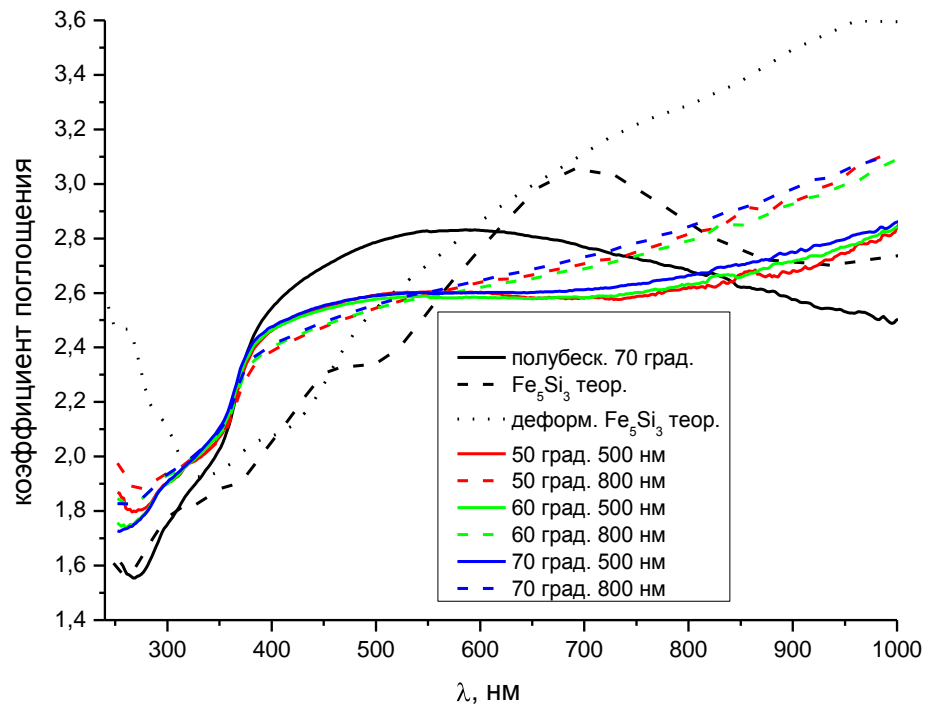


Рисунок 30 – Дисперсии коэффициента поглощения, вычисленные для массивного слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , теоретически рассчитаны для стандартного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93] и деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  по данным PCA

На представленных спектральных зависимостях видны значительные различия между данными для модели полубесконечной среды и двухслойной модели, что свидетельствует о прозрачности созданного слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  практически во всем представленном спектральном диапазоне. Между кривыми, полученными для длин волн 500 и 800 нм начальной точки расчёта, также видны некоторые расхождения. Что можно отнести к результатам плохой сходимости.

Стоит отметить, что результаты расчётов для начального приближения на 500 нм лежат ближе всего к теоретическим данным для стандартного поликристаллического  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93] при учете размытия пиков. Пересчёт оптических постоянных для деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  из данных РСА показал значительное изменение кривых в сторону увеличения коэффициента поглощения в длинноволновой области спектра. Пик при 690 нм на спектре поглощения для стандартного силицида сместился ближе к 1000 нм для деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

В связи с тем что средними значениями обладает кривая для начального приближения 500 нм, найденная из эллипсометрических измерений при угле падения света  $60^\circ$ , толщину слоя можно оценить как 27.1 нм, что практически совпадает с технологическими толщинами исходных Fe и Si. Данные для 500 нм из эллипсометрических измерений при угле падения света  $60^\circ$  были использованы в дальнейшем при расчётах параметров островковых структур системы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  и анализе спектральных магнитооптических свойств силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

### **3.2 Формирование островковых образцов стехиометрического состава $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ методом послойного осаждения Fe и Si на поверхность $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ в различных технологических условиях**

Для анализа степени влияния эффективной толщины композиционной системы Fe-Si на морфологию поверхности островковых структур стехиометрического состава  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  были синтезированы четыре различных островковых образца методом термического испарения в сверхвысоком вакууме

камеры ЭПС на установке «Ангара» с различным количеством осажденного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и температурой отжига. Для всех четырех образцов производилось поочередное осаждение тонких слоёв Fe и Si субнанометровой толщины на поверхность подложки  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  при комнатной температуре, после осаждения образцы отжигались в сверхвысоком вакууме. Скорости осаждения железа и кремния составляли для обоих материалов 0.1 нм/мин.

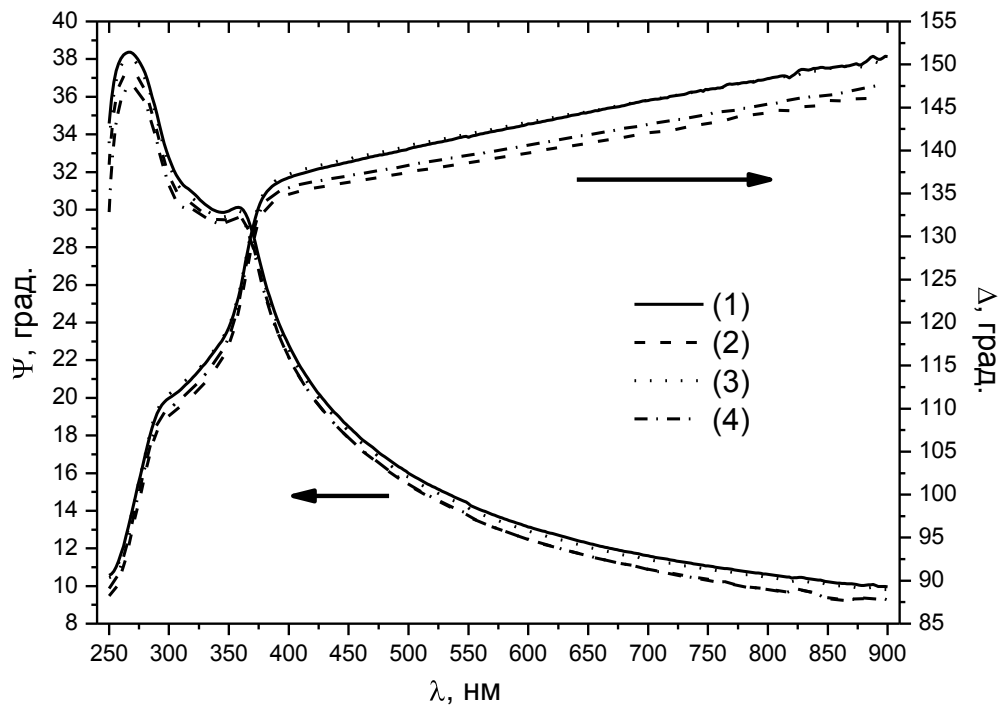


Рисунок 31 – Данные *ex situ* спектральных эллипсометрических измерений на образцах для послойного осаждения Fe и Si до химической обработки поверхности. Угол падения света  $70^\circ$

Предварительное исследование методом *ex situ* спектральной эллипсометрии поверхностей подложек  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  показало, что до осаждения Fe-Si образцы имеют близкие оптические свойства (рисунок 31). Расхождения в данных связаны с различными толщинами  $\text{SiO}_2$  и различным состоянием поверхности образцов. Угол падения зондирующего пучка составлял  $70^\circ$ . При расчёте толщин двуокиси кремния на всех четырех образцах, используя однослойную оптическую модель



SiO<sub>2</sub>/Si(100), найдены следующие величины толщин SiO<sub>2</sub> с погрешностью 0.1 нм: 13.8 нм, 13.8 нм, 13.2 нм и 13.5 нм соответственно.

Первый образец был сформирован послойным осаждением 8 субслоёв Fe и Si по  $0.50 \pm 0.03$  нм каждый, суммарная толщина образованной структуры составила  $4.0 \pm 0.1$  нм для объёмной плотности чистых Fe и Si при нормальных условиях. Таким образом, поверхностная плотность массы составила  $0.46 \pm 0.02$  мкг/см<sup>2</sup> и  $1.58 \pm 0.08$  мкг/см<sup>2</sup> для кремния и железа соответственно. После осаждения Fe-Si образец отжигался в сверхвысоком вакууме при температуре 450 °С.

Для второго образца использовалась аналогичная технология послойного осаждения Fe-Si с такими же толщинами и количеством субслоёв. Однако последующий отжиг образца производился уже при температуре 500 °С. Такое увеличение температуры отжига производилось из предположения, что увеличение температуры на 50 °С должно увеличить средний размер отдельных кристаллитов в структуре образца, но не окажет существенного влияния на химический состав этих кристаллитов.

Структура третьего образца получена послойным осаждением железа и кремния с толщиной каждого субслоя  $0.60 \pm 0.03$  нм. Общее количество субслоёв равнялось 10, суммарная толщина образованной структуры составила  $6.00 \pm 0.15$  нм для объёмной плотности чистых Fe и Si при нормальных условиях. Из расчёта поверхностной плотности массы получено: кремния  $0.69 \pm 0.03$  мкг/см<sup>2</sup> и железа  $2.37 \pm 0.12$  мкг/см<sup>2</sup>.

Четвертый образец был также получен последовательным осаждением десяти чередующихся субслоёв железа и кремния с толщиной  $0.80 \pm 0.04$  нм каждый. Суммарная толщина материалов составила  $8.0 \pm 0.4$  нм для объёмной плотности при нормальных условиях. Что в пересчете на поверхностную плотность массы составляет для кремния  $0.92 \pm 0.04$  мкг/см<sup>2</sup> и железа  $3.16 \pm 0.16$  мкг/см<sup>2</sup>. Третий и четвертый образцы после напыления также отжигались в сверхвысоком вакууме в течение 2 часов при температуре 500 °С.

Для всех четырёх образцов, включая образец Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>(27 нм)/SiO<sub>2</sub>/Si(100), после их получения проводился *in situ* анализ методом дифракции отражённых

быстрых электронов. На дифрактограммах просматриваются серии колец Дебая на фоне рассеянных электронов от аморфной фазы. Дифрактограммы для всех образцов похожи на дифрактограмму от поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  (рисунок 23), и в пределах погрешности измерений не удаётся идентифицировать сформировавшиеся фазы силицидов. На рисунке 32, в качестве примера, представлена фотография ДОБЭ поверхности  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  четвёртого образца.

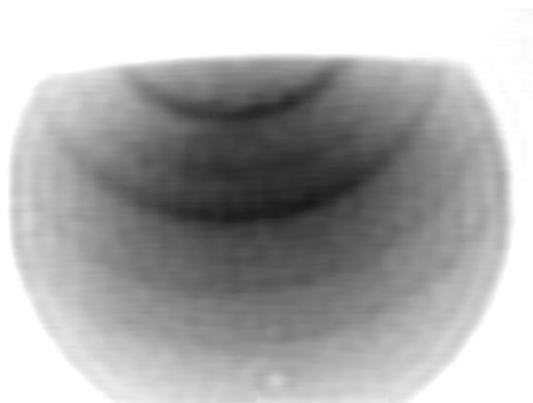


Рисунок 32 – Дифрактограмма отражённых быстрых электронов от поверхности четвёртого образца  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$

После извлечения образцов из сверхвысокого вакуума был проведен рентгеноструктурный анализ, который показал наличие фазы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с ориентацией кристаллитов в плоскости (002) только для четвёртого образца. Разностная рентгенограмма слоя представлена на рисунке 33. При сравнении разностных рентгенограмм представленных на рисунках 26 и 33, слабо различимый пик при  $2\Theta \approx 45^\circ$ , можно отнести к пику от  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с ориентацией кристаллитов в плоскости (112). Для остальных образцов не удалось провести идентификацию полученной кристаллической структуры методом рентгеноструктурного анализа по причине малого количества композиционного материала Fe-Si.

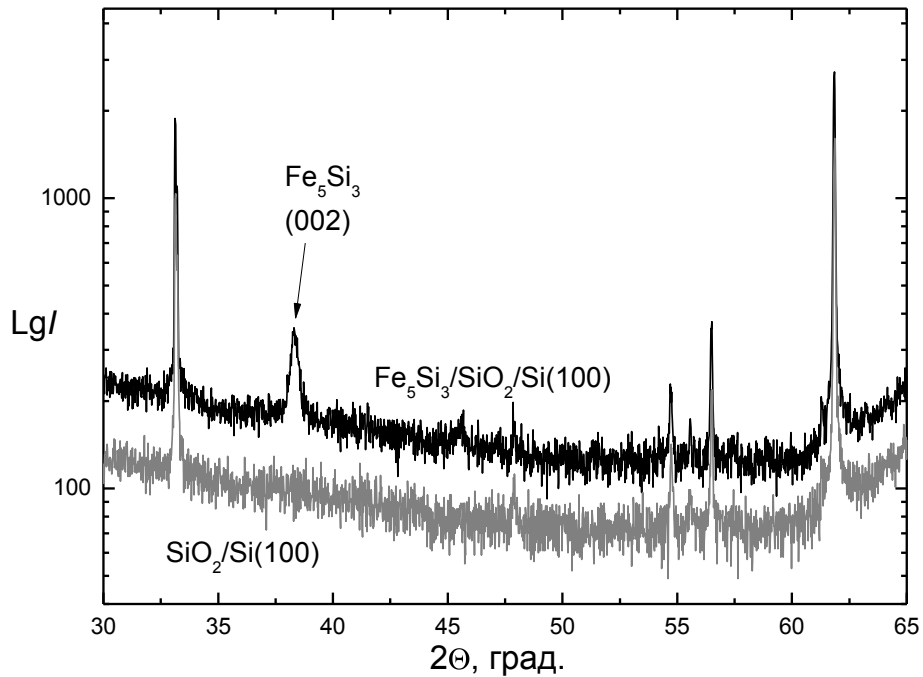


Рисунок 33 – Рентгенограмма  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  (002) на подложке  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  для четвёртого образца

Далее были проведены *ex situ* спектральные эллипсометрические измерения. На рисунках 34 и 35 представлены диаграммы спектральных зависимостей эллипсометрических параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  для углов падения зондирующего пучка  $60^\circ$  и  $70^\circ$  к нормали соответственно. Эллипсометрические измерения проводились в 4-х зонном режиме [59]. На полученных образцах при спектральных эллипсометрических измерениях не обнаружена ориентационная анизотропия, измеренные спектры при различных азимутальных направлениях отличались в пределах экспериментальных погрешностей эллипсометрических измерений.

На спектральных зависимостях параметров  $\Psi$  и  $\Delta$  (рисунки 34 и 35) для двух углов падения света наблюдается последовательное увеличение  $\Psi$  с ростом количества осажденного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

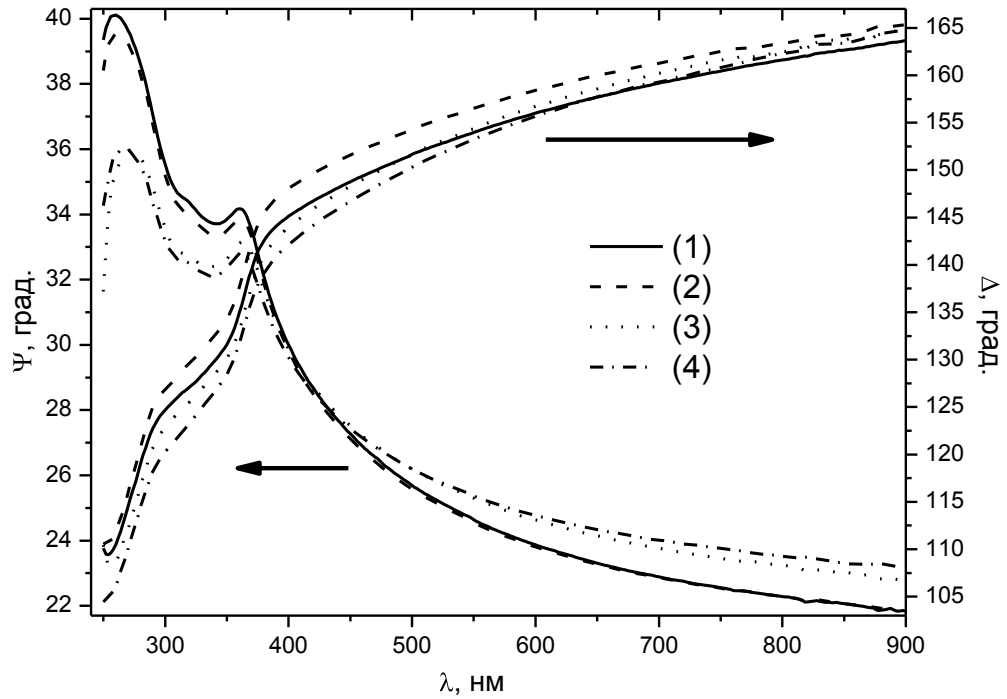


Рисунок 34 – Данные *ex situ* спектральных эллипсометрических измерений после осаждения и отжига Fe-Si. Угол падения света  $60^\circ$

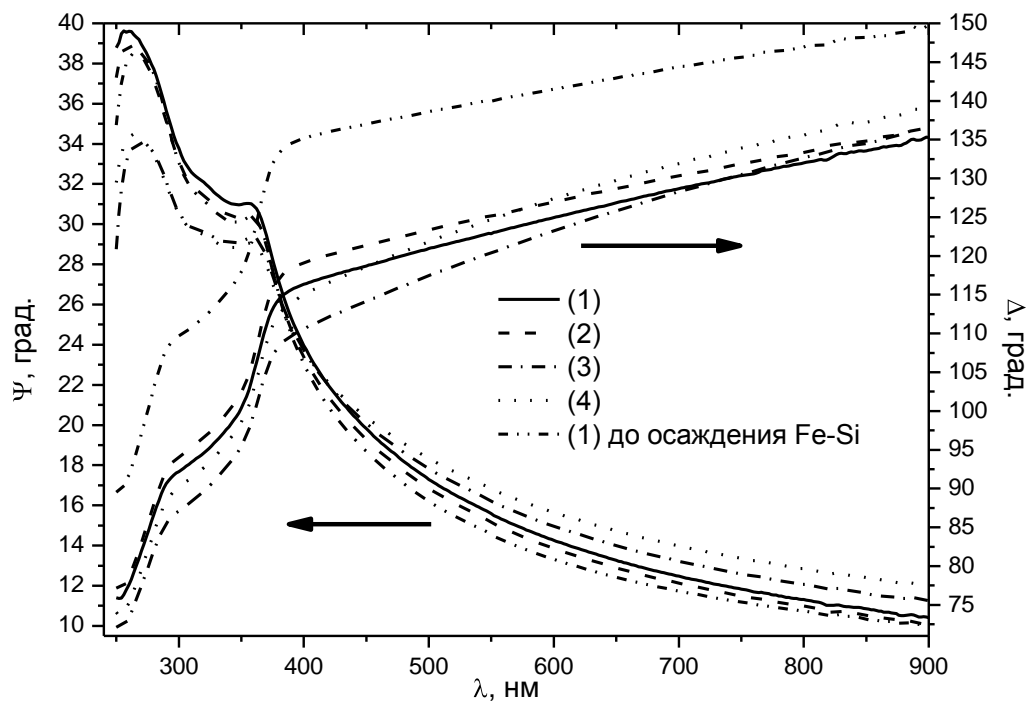


Рисунок 35 – Данные *ex situ* спектральных эллипсометрических измерений для всех образцов серии после осаждения и отжига Fe-Si и до осаждения Fe-Si для первого образца. Угол падения света  $70^\circ$

Для параметра  $\Delta$  наблюдается более сложное поведение, предположительно вызванное различиями в морфологии поверхности полученных образцов. При этом данные  $\Delta$  для всех четырех образцов изменились примерно на одинаковую величину по отношению к чистой подложке независимо от технологической толщины плёнки (рисунок 35), особенно в длинноволновой области спектра. Данное обстоятельство может свидетельствовать о высокой шероховатости поверхности всех четырех образцов.

### **3.3 Анализ морфологии островковых образцов стехиометрического состава $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ методами атомно-силовой микроскопии, растровой электронной микроскопии и спектральной эллипсометрии**

Эффективность разработанной эллипсометрической модели случайно-распределённых дисков была продемонстрирована при исследованиях четырех островковых плёнок  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и моделировании параметров островков, используя данные спектральных эллипсометрических измерений. Все островковые структуры по химическому составу были идентичны массивной плёнке  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , так как наблюдалось совпадение основных рефлексов PCA от массивной (толщина Fe-Si ~ 27 нм) и островковых (толщина Fe-Si ~ 8 нм) плёнок  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , полученных методом последовательного осаждения Fe и Si с последующим отжигом. В используемых эллипсометрических моделях не учитывались квантовые эффекты взаимодействия островков между собой.

С учетом наследования химического состава и оптических свойств  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , полученного в разных количествах и при схожих условиях осаждения, возможно оценить пригодность разработанной эллипсометрической модели для оценки морфологии островковой системы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  и сравнить полученные результаты с результатами оптимизации модели неоднородного слоя по теории эффективной среды Бруггемана, а также с данными микроскопии поверхности.

В работе использовались две основные эллипсометрические модели для описания параметров поверхности экспериментальных образцов:

1) модель однородных изотропных пересекающихся дисков из  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , случайно-распределённых на сплошном однородном слое  $\text{SiO}_2$  с подложкой  $\text{Si}(100)$ ;

2) модель пористого слоя с линейной зависимостью объёмной концентрации  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в воздухе от высоты. Под пористым слоем располагается сплошной однородный слой  $\text{SiO}_2$ , далее подложка  $\text{Si}(100)$ .

Следует добавить, что при полном заполнении поверхности островками ( $\eta \rightarrow \infty$ ) с помощью разработанной модели случайно-распределённых дисков можно найти решение для случая однородной двухслойной структуры  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ .

Все границы между слоями рассматривались как математически гладкие, а сами слои – оптически однородные и изотропные. Толщина слоя двуокиси кремния, порядка  $13 \div 14$  нм, уже была известна из спектральных эллипсометрических измерений до осаждения  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Для дисперсии диэлектрических постоянных материала  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  использованы результаты вычислений для образца с массивной плёнкой, а также результаты теоретических оценок дисперсии  $n$  и  $k$  для стандартного поликристаллического  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93] в рамках метода функционала плотности и с деформированной кристаллической решёткой из расчётов по данным РСА.

В каждой эллипсометрической модели использовался свой диапазон длин волн при её оптимизации по экспериментальным данным. Для первой модели случайно-распределённых дисков оптимизация параметров осуществлялась во всей измеренной области спектра  $250 \div 900$  нм. Для второй модели неоднородного по высоте слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  использовалась длинноволновая область  $500 \div 900$  нм, так как приближение среды Бруггемана наиболее эффективно для длинных волн зондирующего пучка по условию квазистационарности.

Функция  $\sigma$  при оптимизации модели задавалась формулой (31). Оптимизация искомых параметров во всех представленных эллипсометрических моделях производилась симплекс-методом Нелдера-Мида [96] с заданием сетки исходных симплексов. Для каждой использованной эллипсометрической модели

предварительно строилась поверхность функции  $\sigma$  от двух ключевых параметров модели по экспериментальным эллипсометрическим данным для угла падения зондирующего пучка  $60^\circ$  и проводился визуальный поиск всех решений модели на двумерной плоскости, затем эти решения уточнялись методом Нелдера-Мида.

Величина  $\sigma$  между двумя спектральными эллипсометрическими измерениями в одной точке поверхности образца при равных условиях проведения измерений имеет порядок  $10^{-5}$  из-за аппаратной погрешности эллипсометрических углов  $\Psi$  и  $\Delta$ .

Первый образец состава  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с технологической толщиной Fe-Si около 4 нм, полученный методом последовательного осаждения железа и кремния, исследовался методом АСМ в полуконтактном режиме (рисунок 36).

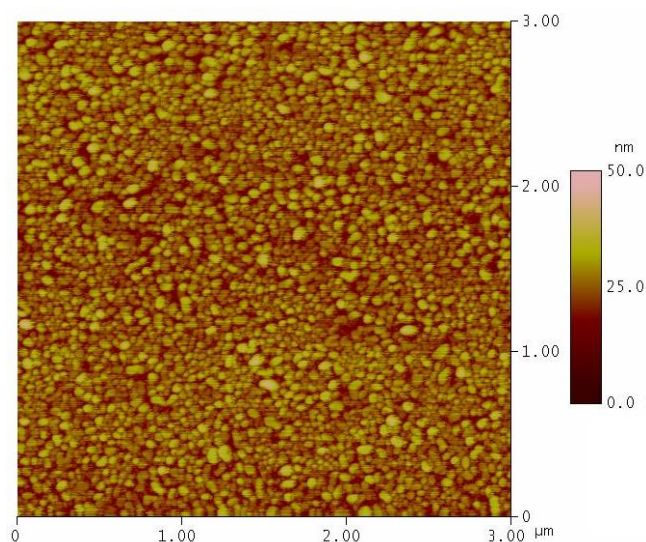


Рисунок 36 – Результаты АСМ измерений для поверхности первого образца, полученного методом послойного осаждения Fe и Si с последующим сверхвысоковакуумным отжигом при  $450^\circ\text{C}$

Данный образец обладает шероховатостью поверхности около 4.64 нм. На изображении АСМ присутствуют островки округлой формы среднего диаметра  $30 \pm 7$  нм, средней высоты  $20 \pm 5$  нм и плотности распределения на поверхности около  $980 \text{ мкм}^{-2}$ . Форма островков преимущественно сфероидальная. Площадь проекции островков на подложке около 50 %.

Используя начальное приближение для диаметра дисков  $\langle d \rangle$  из статистического анализа измерений АСМ, для первого образца с островковой морфологией поверхности производился поиск локальных минимумов функции  $\sigma$  в модели случайно-распределённых дисков. В связи с предполагаемым преобладанием влияния доли заполнения островков  $\eta$  в сравнении с их диаметром  $\langle d \rangle$  и концентрацией  $\langle n \rangle$ , из-за высокого оптического поглощения  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , в первую очередь, была численно найдена поверхность  $\sigma$  от концентрации  $\langle n \rangle$  и средней высоты дисков  $\langle h \rangle$ . Из данных АСМ следует, что средний диаметр дисков  $\langle d \rangle$  равнялся 30 нм. Поверхность  $\sigma$  представлена на рисунке 37. Дисперсия оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  использована из вычислений по данным спектральной эллипсометрии тестового образца с массивной плёнкой.

На построенной поверхности для  $\sigma$  (рисунок 37) видны два экстремума функции минимизации:

- 1) высота дисков  $\langle h \rangle$  78.97 нм, концентрация на поверхности  $\langle n \rangle$  около  $358 \text{ мкм}^{-2}$ , доля покрытия поверхности  $\eta = 0.224$ ,  $\sigma = 0.078$ ;
- 2) высота дисков  $\langle h \rangle$  5.94 нм, концентрация на поверхности  $\langle n \rangle$  около  $867 \text{ мкм}^{-2}$ , доля покрытия поверхности  $\eta = 0.459$ ,  $\sigma = 0.082$ .

Для анализа зависимости  $\sigma$  от концентрации  $\langle n \rangle$  и среднего диаметра дисков  $\langle d \rangle$ , при известной высоте  $\langle h \rangle$  были численно построены аналогичные поверхности для тех же экспериментальных данных, но при средней высоте однородных дисков  $\langle h \rangle$  равной 78.97 нм и 5.94 нм. Данные расчётов соответственно представлены на рисунках 38 и 39.



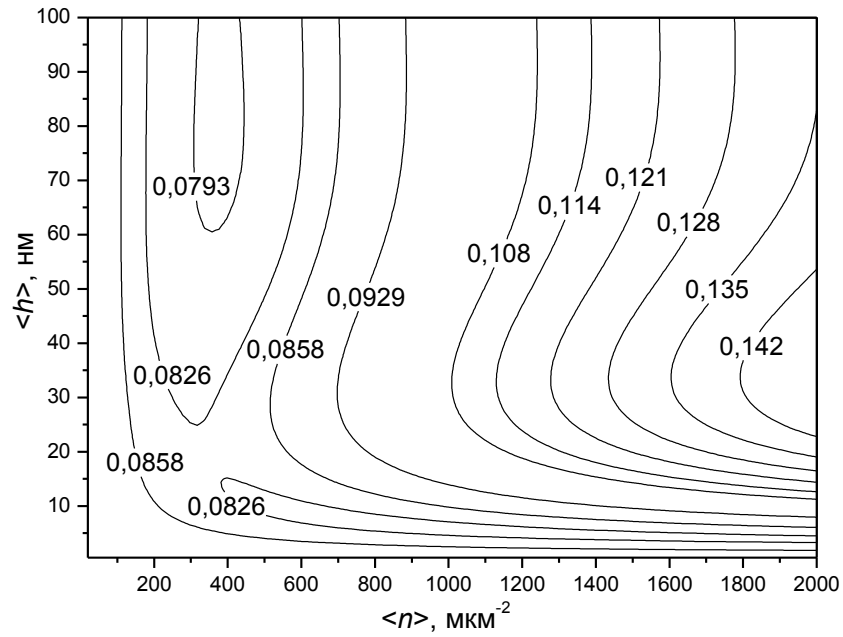


Рисунок 37 – Величина  $\sigma$  от концентрации  $\langle n \rangle$  и высоты случайно-распределённых дисков  $\langle h \rangle$  диаметром 30 нм. Расчёт проведён для спектральных эллипсометрических измерений первого образца под углом  $60^\circ$ . Оптические постоянные  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  из вычислений для массивной плёнки

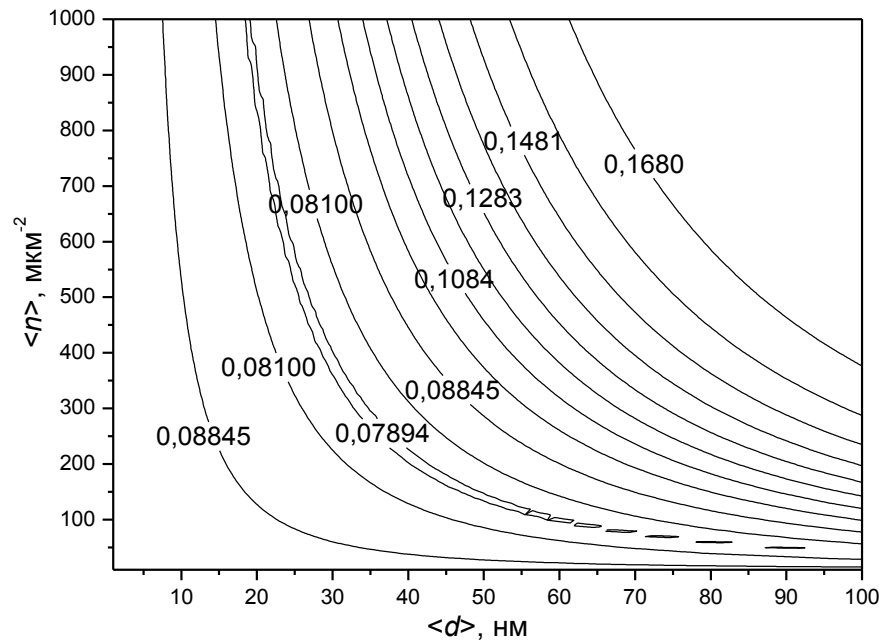


Рисунок 38 – Величина  $\sigma$  от плотности распределения  $\langle n \rangle$  и диаметра случайно-распределённых дисков  $\langle d \rangle$ . Расчёт проведён для спектральных эллипсометрических измерений первого образца под углом  $60^\circ$  и высоты дисков 78.97 нм

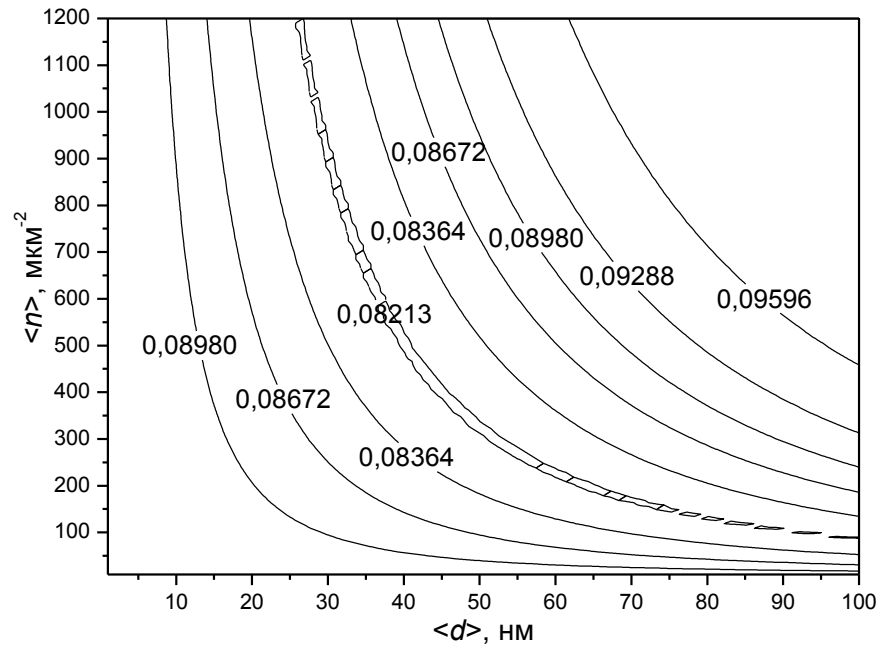


Рисунок 39 – Величина  $\sigma$  от плотности распределения  $\langle n \rangle$  и диаметра случайно-распределённых дисков  $\langle d \rangle$ . Расчёт проведён для спектральных эллипсометрических измерений первого образца под углом  $60^\circ$  и высоты дисков 5.94 нм

По представленным диаграммам видно, что, несмотря на значительную вытянутость минимума функции  $\sigma$  вдоль кривых, удовлетворяющих функции (31) при  $\eta = 0.224$  (рисунок 38) и  $\eta = 0.458$  (рисунок 39), основной локальный минимум приходится на область диаметра дисков  $37 \pm 10$  нм и  $45 \pm 10$  нм соответственно. Выбор того или иного решения в процессе симплекс-оптимизации на поверхности  $(\langle n \rangle, \langle d \rangle)$  в указанных пределах определяется уже начальными условиями поиска и случайными выбросами данных на экспериментальной кривой. Для поиска более точного решения метод симплекс-оптимизации Нелдера-Мида практически непригоден из-за случайного характера расположения близких решений. Удовлетворительные результаты пока может обеспечить ручная выборка с применением графоаналитического метода [97]. Возможным решением для локального минимума в этом случае может быть точка, удовлетворяющая минимальным значениям  $\langle n \rangle$  и  $\langle d \rangle$  для функции (31).

При использовании в эллипсометрической модели теоретически рассчитанных дисперсий оптических постоянных для стандартного и деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  было также обнаружено по два локальных минимума на поверхности  $\sigma(\langle h \rangle, \langle n \rangle)$ , координаты которых уточнялись методом симплекс-оптимизации.

При нахождении концентрации поверхностного распределения дисков  $\langle n \rangle$  и их диаметра  $\langle d \rangle$  по измеренным эллипсометрическим данным для остальных трёх островковых образцов в качестве первого приближения по  $\langle d \rangle$  использовался средний диаметр островков первого образца из АСМ – 30 нм. А оптимизация модели дисков производилась поиском их концентрации и, как следствие, доли заполнения поверхности  $\eta$ .

По результатам спектральных эллипсометрических измерений под углом  $60^\circ$  на остальных трёх образцах с островковой структурой  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  был проведён поиск локальных минимумов на поверхности  $\sigma(\langle h \rangle, \langle n \rangle)$ . Используя полученные данные для  $\langle h \rangle$  и  $\eta$  в найденных локальных минимумах, были построены поверхности  $\sigma(\langle d \rangle, \langle n \rangle)$ , по которым установлены значения среднего диаметра и поверхностной концентрации дисков на каждом образце.

Оценка результатов оптимизации модели случайно-распределённых дисков для остальных трёх образцов островковой структуры  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  проводилась в сравнении с данными АСМ измерений. Так, после эллипсометрических измерений и определения значения среднего диаметра и поверхностной концентрации дисков с помощью разработанной модели случайно-распределённых дисков каждый образец исследовался методом АСМ в полуконтактном режиме.

Фотография АСМ для второго образца представлена на рисунке 40. Поверхность имеет шероховатость уже порядка 8.16 нм и структуру с более крупными островками, чем у первого образца.

Статистический анализ показал средний диаметр островков  $66 \pm 10$  нм, среднюю высоту около 25 нм и среднюю поверхностную концентрацию  $170 \pm 30$   $\text{мкм}^{-2}$ . Площадь покрытия островками поверхности примерно 44 %.

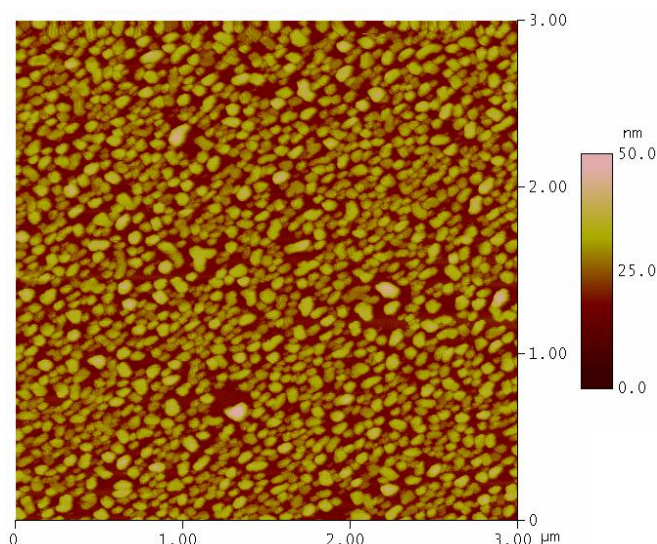


Рисунок 40 – Результаты АСМ измерений для поверхности второго образца, полученного методом послойного осаждения Fe и Si

Островки имеют сравнительно невысокое распределение по размерам и преимущественно круглые очертания, при этом нередки кластерные образования сложной формы, состоящие из нескольких объединившихся небольших островков. Вокруг таких относительно крупных кластеров образуются обширные пустые зоны, которые остались после слияния близкорасположенных ранее островков в единый кластер. Так как отжиг производился довольно длительное время и при высокой температуре, а коалесцирующих островков наблюдается сравнительно мало, то вероятна высокая пространственная устойчивость самих островков на поверхности  $\text{SiO}_2$  после их образования в многослойной структуре Fe-Si на этапе осаждения.

Третий образец (рисунок 41) имеет поверхностную шероховатость около 5.36 нм. На АСМ фотографии отчётливо выделяется большое количество кластеров сложной формы, которые образованы слиянием близкорасположенных ранее зародышей островков. Размеры таких кластеров достигают 300 нм. Оставшиеся отдельные островки имеют геометрические параметры, близкие к наноразмерным островкам второго образца.

Если рассматривать крупные кластеры как результат перекрытия меньших островков округлой формы, то для такой структуры поверхности подходит

модель случайно-распределённых дисков. Тогда удобным для эллипсометрического моделирования подходом является анализ среднего диаметра именно оставшихся округлых островков, как структурообразующих элементов поверхности. Анализ оставшихся вне крупных кластеров островков по данным АСМ даёт средний диаметр около 98 нм. Высота всех островков  $21 \pm 6$  нм. Так как доля поверхности, занятая островками составляет около 35 %, то концентрацию  $n$  поверхностного распределения кластерообразующих островков легко вычислить по формуле (35), в результате концентрация равна около  $57 \text{ мкм}^{-2}$ .

При этом из анализа всех наноразмерных кластеров на поверхности, в том числе состоящих из одного островка округлой формы, по данным АСМ найдена концентрация поверхностного распределения около  $30 \text{ мкм}^{-2}$ . Это может свидетельствовать о том, что в процессах коалесценции участвовало почти половина всех изначальных шарообразных островков, которые случайным образом зародились в объеме многослойной плёнки Fe-Si.

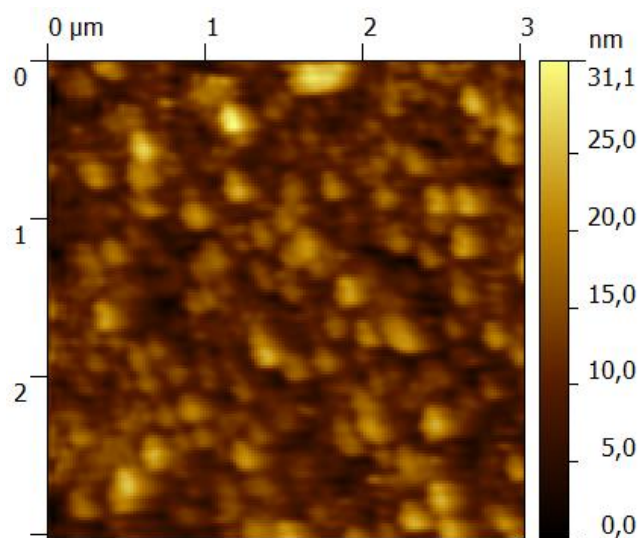


Рисунок 41 – Результаты АСМ измерений для поверхности третьего образца, полученного методом послойного осаждения Fe и Si

Четвертый образец исследован методом растровой электронной микроскопии в режиме топографического контраста (рисунок 42). Предварительно на его

поверхность осаждалось несколько ангстрем платины в аргоновой плазме для лучшего стока заряда. Поверхность имеет развитую морфологию. В основном сформировались крупные кластеры сложной формы, некоторые из которых достигают размеров 2 мкм. Высоту наноразмерных образований из РЭМ анализа точно установить невозможно, но предположительно она близка к значениям для второго и третьего образцов. Аналогично третьему образцу была проведена статистическая оценка диаметра оставшихся свободных островков с формой близкой к окружности. Получена величина среднего диаметра порядка 94 нм. Если доля покрытия поверхности образца кластерами составила примерно 33 %, то из формулы (35) концентрация поверхностного распределения свободных островков составляет порядка  $58 \text{ мкм}^{-2}$ .

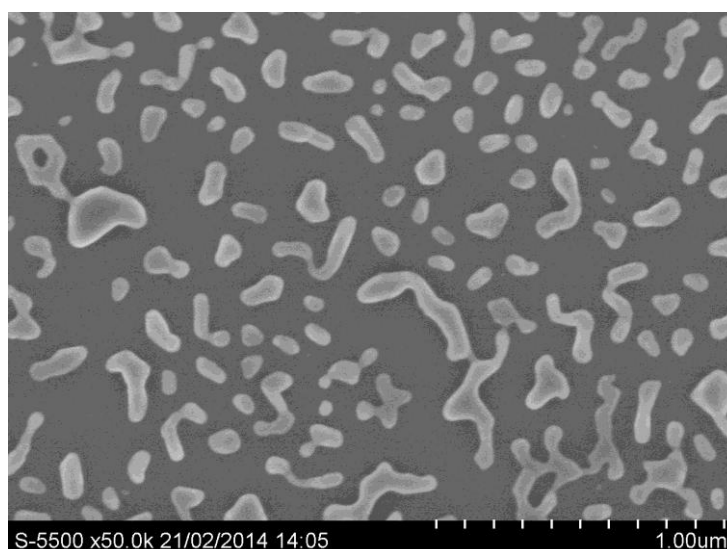


Рисунок 42 – Результаты РЭМ измерений для поверхности четвертого образца, полученного методом послойного осаждения Fe и Si

Из анализа всех наноразмерных кластеров на поверхности по данным РЭМ, концентрация поверхностного распределения равна  $28.5 \pm 1.6 \text{ мкм}^{-2}$ . То есть в процессах коалесценции участвовало более половины всех изначальных зародышей.

В результате, из статистического анализа данных атомно-силовой и растровой электронной микроскопии для четырех образцов, полученных методом послойного осаждения Fe и Si на поверхность SiO<sub>2</sub>/Si(100) с последующим отжигом, можно выделить что:

1) при послойном осаждении железа и кремния в атомарной пропорции 5:3 на холодную поверхность SiO<sub>2</sub>(~14 нм)/Si(100) с последующим двухчасовым отжигом в условиях сверхвысокого вакуума при температуре 500 °С образуется островковая структура из Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>;

2) с увеличением количества осажденного Fe-Si растёт вероятность коалесценции отдельных островков в крупные кластеры сложной формы, что вызвано большей концентрацией свободных островков на поверхности;

3) размеры образующихся свободных островков прямо пропорциональны температуре отжига образца, их средний диаметр уменьшается примерно в два раза при уменьшении температуры отжига с 500 °С до 450 °С.

В таблице 2 показаны результаты оптимизации модели случайного распределения сплошных однородных дисков по эллипсометрическим измерениям на всех четырех образцах под углом падения света 60°, а также результаты измерений АСМ и РЭМ.

В таблице использованы следующие обозначения:  $h_{\text{тех}}$  – технологическая толщина напыленного слоя Fe-Si из расчёта чистых железа и кремния;  $h_m$ ,  $d_m$ ,  $n_m$  и  $\eta_m$  – соответственно, средняя высота островков, диаметр перекрывающихся островков, их концентрация на поверхности и доля покрытия поверхности образца по данным микроскопии;  $\langle h \rangle$  – средняя высота дисков из модели;  $\langle n \rangle$  – средняя поверхностная концентрация дисков из модели;  $\langle d \rangle$  – средний диаметр дисков из модели;  $\eta$  – доля поверхности образца, покрытая дисками;  $H_{\text{sum}}$  – суммарная толщина Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>, найденная при оптимизации. Для источника дисперсии оптических постоянных  $n$ ,  $k$  силицида в дисках использованы следующие обозначения: а) массивный образец Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>; б) теоретические расчёты для стандартного поликристалла Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>; в) теоретические расчёты для деформированного поликристалла Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> в массивной плёнке по данным РСА.

Таблица 2 – Результаты оптимизации модели случайно-распределённых дисков по данным *ex situ* спектральных эллипсометрических измерений для четырех образцов островковой структуры Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si(100) (\* - данные РЭМ)

№	n, κ	h <sub>тех</sub> , нм	h <sub>m</sub> , нм	d <sub>m</sub> , нм	n <sub>m</sub> , МКМ <sup>-2</sup>	η <sub>m</sub>	Параметры модели					
							σ · 10 <sup>-2</sup>	<h>, нм	<n>, МКМ <sup>-2</sup>	<d>, нм	η	H <sub>sum</sub> , нм
1	а)	4	20	30	980	0.5	8.2	5.9	387 ± 120	45 ± 10	0.46	2.72
							7.8	79.0	235 ± 80	37 ± 10	0.22	17.66
	б)						8.2	4.4	435 ± 130	47 ± 15	0.53	2.33
							8.2	71.4	248 ± 100	32 ± 15	0.18	12.95
	в)						8.4	1.7	–	–	1.00	1.73
							8.4	72.1	238 ± 50	29 ± 5	0.15	10.51
2	а)	4	25	66	170	0.44	6.3	6.6	109 ± 35	70 ± 15	0.34	2.27
							6.1	80.8	85 ± 15	55 ± 15	0.18	14.37
	б)						6.3	5.3	106 ± 35	75 ± 25	0.38	1.98
							6.3	72.9	85 ± 15	50 ± 10	0.15	10.74
	в)						6.4	1.5	–	–	1.00	1.47
							6.5	73.7	85 ± 30	45 ± 15	0.17	12.26
3	а)	6	21	98	57	0.35	8.2	7.8	118 ± 20	109 ± 7	0.63	4.95
							8.1	87.8	90 ± 20	80 ± 10	0.34	30.16
	б)						8.2	6.5	117 ± 20	110 ± 15	0.65	4.21
							8.6	76.5	85 ± 20	78 ± 15	0.30	22.74
	в)						8.5	3.1	–	–	1.00	3.14
							9.1	79.4	70 ± 15	75 ± 10	0.24	19.07
4	а)	8	–	94*	58*	0.33*	8.9	7.1	130 ± 50	125 ± 15	0.75	5.33
							9.0	88.3	85 ± 25	85 ± 20	0.38	33.31
	б)						8.9	6.0	140 ± 40	120 ± 20	0.77	4.58
							9.4	76.4	85 ± 30	80 ± 20	0.33	25.00
	в)						9.2	3.4	–	–	1.00	3.42
							10.0	78.9	75 ± 15	75 ± 10	0.26	20.81



Из таблицы с результатами оптимизации видно, что рассчитанные данные для модели случайно-распределённых дисков в обоих локальных минимумах имеют сопоставимые значения  $\sigma$ . Высота дисков  $\langle h \rangle$  в модели практически не коррелирует с измеренной на АСМ высотой островков, однако имеет спадающий характер при последовательном использовании дисперсии оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  из представленных источников. При использовании дисперсии оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  из теоретических расчётов деформированной кристаллической решётки (в) уточнение локального минимума для низких дисков даёт значения сплошной плёнки. Также наблюдается корреляция суммарной толщины  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  по модели и технологической толщины  $h_{\text{тех}}$  на всех четырех образцах.

При сравнении итоговых параметров  $\langle d \rangle$  и  $\langle n \rangle$  по модели с результатами микроскопического анализа образцов видно соответствие данных по  $\eta$  для локального минимума «низких» дисков с первыми двумя образцами и для локального минимума «высоких» дисков с последними двумя образцами. Это может говорить об изменениях в поведении спектральной зависимости рассчитанных эллипсометрических параметров при увеличении высоты дисков в модели из-за интерференционных эффектов. Для более подробного анализа данных особенностей необходимо проводить моделирование островков, состоящих из слабопоглощающего свет вещества.

В целом можно отметить, что для всех представленных островковых образцов найдены оптимальные конфигурации модели случайно-распределённых дисков при использовании данных о дисперсии оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  из массивной плёнки и теоретических расчётов стандартного поликристаллического  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93] в рамках метода функционала плотности. Теоретические расчёты оптических постоянных для поликристаллического деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  не позволили найти параметры модели, удовлетворяющие реальной структуре образцов. Разработанная модель случайно-распределённых дисков позволяет определить двумерную морфологию островковой поверхности при наличии больших кластеров, но не даёт достоверной информации о высоте островков.

Для сравнения результатов оптимизации по разработанной модели с другими известными моделями был дополнительно проведён анализ поверхности островковых образцов  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , используя теорию эффективной среды Бруггемана [22], с помощью которой сделана попытка определить функцию пористости островкового слоя по высоте над подложкой и суммарную толщину этого пористого слоя. Для этого была использована многослойная модель.

Количество используемых субслоёв в эллипсометрической модели при всех расчётах было равно 220. Данная величина является оптимальной с точки зрения точности расчёта модели неоднородного по высоте слоя и времени вычислений. Увеличение количества субслоёв не гарантирует повышение точности из-за накопления ошибок округления при расчётах на компьютере. Кроме того, столь высокая точность может оказаться избыточной из-за аппаратной погрешности эллипсометрических измерений.

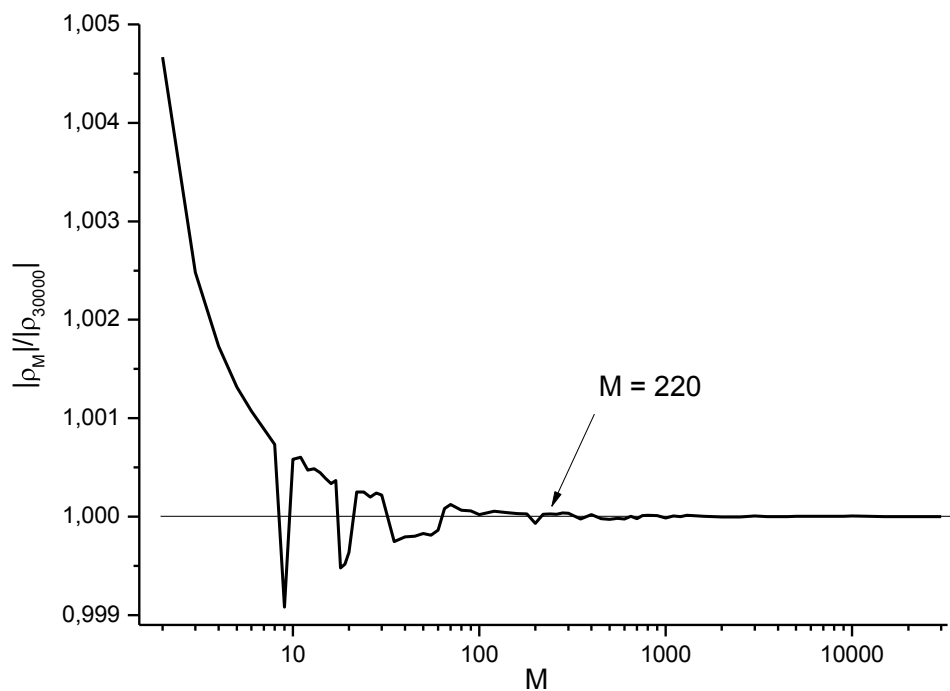


Рисунок 43 – Зависимость модуля комплексного  $\rho$ , входящего в основное уравнение эллипсометрии (3), от количества субслоёв модели. Расчёт однослойной модели механической смеси Si-SiO<sub>2</sub> толщиной 10 нм на Si. Длина волны излучения 500 нм, угол падения 60°

На рисунке 43 представлены результаты расчёта модуля комплексного  $\rho$ , входящего в основное уравнение эллипсометрии (3) для однослойной модели механической смеси состава Si-SiO<sub>2</sub> толщиной 10 нм на подложке Si и длиной волны излучения 500 нм. Объёмная доля Si линейно уменьшается с высотой над подложкой от 1 до 0, полностью замещаясь SiO<sub>2</sub>. По оси абсциссы отложено количество субслоёв модели  $M$ , а по оси ординаты – разность  $|\rho_M/\rho_{30000}|$ . Видно, что при  $M > 200$  точность расчёта практически не изменяется, но время расчёта увеличивается пропорционально  $M$ .

Для второй модели неоднородного по высоте слоя вначале была построена поверхность решений  $\sigma$  от высоты слоя  $h$  и его постоянной по высоте пористости  $\langle c \rangle$  (под пористостью понимается объёмная доля пустот в слое из Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>). А в дальнейшем пористость задавалась линейной функцией по высоте и производилась оптимизация трёх независимых параметров: объёмной доли Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> у основания  $c_0$  и на верхней границе слоя  $c_1$ , а также высота слоя  $h$ .

На рисунке 44 представлена поверхность  $\sigma$  для первого образца в спектральном диапазоне от 500 до 900 нм для модели пористого однородного по высоте слоя Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>. Дисперсия оптических постоянных для Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> использована по результатам анализа массивного тестового образца. На полученной диаграмме имеется единственное решение, которое соответствует однородному по высоте пористому слою Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> высоты 8 нм и объёмной долей силицида 0.24. Другие локальные минимумы на диаграмме не обнаруживаются вплоть до высоты слоя в 100 нм, то есть найденное решение является единственным.

На рисунках 45 и 46 представлены аналогичные поверхности для  $\sigma$  того же образца с той разницей, что были использованы теоретически рассчитанные дисперсии оптических постоянных поликристаллического стандартного Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> [93] и с деформированной кристаллической структурой по данным PCA. В этих случаях также имеются по одному физическому решению модели, согласно которым объёмная доля силицида в пористом слое равна 0.26 и 0.28, а высота такого слоя 7.5 нм и 7.1 нм соответственно для двух материалов.

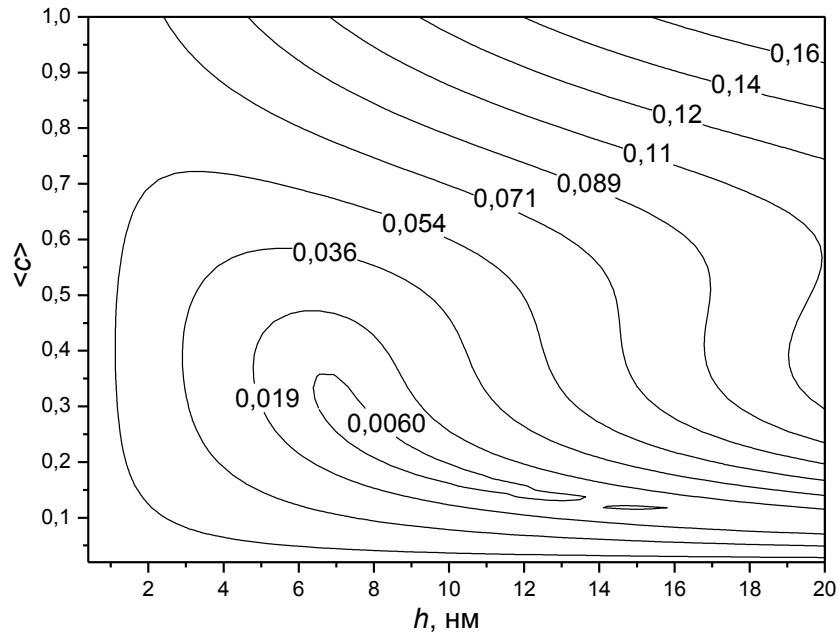


Рисунок 44 – Поверхность  $\sigma$  от объёмной доли  $\langle c \rangle$  и высоты слоя  $h$  для спектральных эллипсометрических измерений первого образца под углом  $60^\circ$  по модели пористого слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

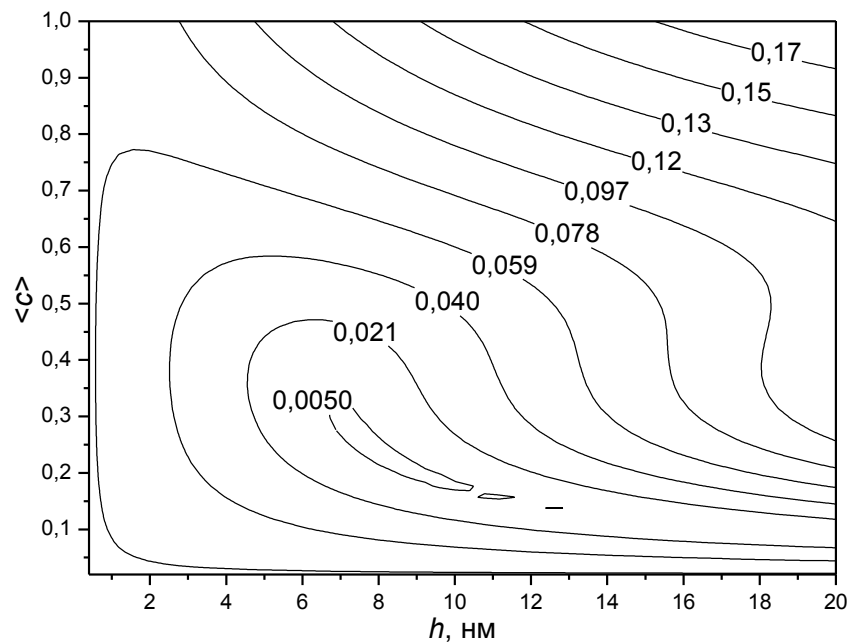


Рисунок 45 – Поверхность  $\sigma$  от средней объёмной доли  $\langle c \rangle$  и высоты слоя  $h$  для спектральных эллипсометрических измерений первого образца под углом  $60^\circ$  по модели пористого слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Оптические постоянные из теоретического расчёта для стандартного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  [93]

Поверхности решений  $\sigma$  для остальных трёх образцов серии с различными представленными оптическими постоянными для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  выглядят похожим образом и не вызывают трудностей при оптимизации модели неоднородного по высоте слоя.

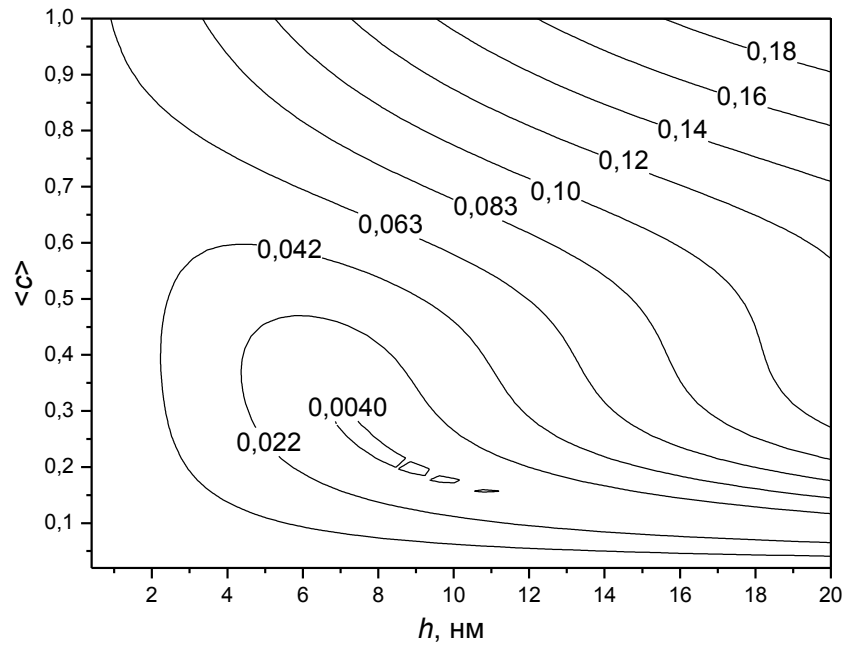


Рисунок 46 – Поверхность  $\sigma$  от объёмной доли  $\langle c \rangle$  и высоты слоя  $h$  для спектральных эллипсометрических измерений первого образца под углом  $60^\circ$  по модели пористого слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Оптические постоянные из теоретического расчёта для деформированного  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$

В таблице 3 представлены результаты оптимизации модели неоднородного слоя по эллипсометрическим измерениям на всех четырех образцах под углом падения света  $60^\circ$  совместно с данными статистического анализа измерений АСМ. Использовались следующие обозначения:  $h_{\text{тех}}$  – технологическая толщина напыленного слоя Fe-Si из расчёта чистых железа и кремния;  $h_m$  – средняя высота островков по данным АСМ;  $\eta_m$  – доля покрытия поверхности островками по данным микроскопии;  $\langle h \rangle$  – средняя высота рассчитанного пористого слоя  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ ;  $c_0$  и  $c_1$  – объёмная доля  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в воздухе у основания слоя и на его верхней границе соответственно;  $H_{\text{sum}}$  – суммарная толщина  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , найденная при оптимизации модели.

Таблица 3 – Результаты оптимизации модели неоднородного по высоте слоя по данным *ex situ* спектральных эллипсометрических измерений для четырех образцов островковой структуры Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si(100)

№	Оптические постоянные для Fe <sub>5</sub> Si <sub>3</sub>	$h_{\text{тех}}$ , нм	$h_m$ , нм	$\eta_m$	Параметры модели				
					$\sigma \cdot 10^{-2}$	$\langle h \rangle$ , нм	$c_0$	$c_1$	$H_{\text{sum}}$ , нм
1	толст. плёнка	4	20	0.5	0.90	8.48	0.21	0.22	1.729
	теор. станд.				0.96	7.58	0.23	0.25	1.819
	теор. деформ.				1.1	7.87	0.22	0.21	1.692
2	толст. плёнка	4	25	0.44	1.1	5.67	0.23	0.22	1.276
	теор. станд.				1.3	5.55	0.23	0.24	1.304
	теор. деформ.				1.4	5.6	0.22	0.22	1.232
3	толст. плёнка	6	21	0.35	2.0	7.3	0.18	0.65	3.028
	теор. станд.				2.7	8.87	0	0.63	2.791
	теор. деформ.				2.2	7.47	0.21	0.63	3.136
4	толст. плёнка	8	–	0.33	2.1	7.88	0.23	0.66	3.505
	теор. станд.				2.6	7.04	0.52	0.4	3.239
	теор. деформ.				2.2	6.12	0.48	0.39	2.662

Согласно данным, полученным при оптимизации модели неоднородного слоя, наблюдается увеличение расхождения  $\sigma$  с ростом технологической толщины Fe-Si и размеров островков на поверхности. Несмотря на то, что значения  $\sigma$  примерно в 5 раз меньше, чем для разработанной модели случайно-распределённых дисков (таблица 2), величины пористости слоя не соответствуют данным из АСМ и РЭМ анализа. Более того, на третьем и четвертом образцах по результатам моделирования пористость силицида уменьшается по высоте в слое, что является примером нефизического решения. Тем не менее, видна корреляция суммарной толщины Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> из модели и технологической толщины Fe-Si на поверхности образцов. Таким образом, в целом данная модель неоднородного по высоте слоя даёт только качественную оценку изменений эллипсометрических углов и не несет в себе информацию о морфологии островковой поверхности.

Для анализа причин образования двух локальных минимумов в модели случайно-распределённых дисков и общего характера поведения рассчитанных спектрограмм эллипсометрических параметров были построены дисперсии  $\Psi$  и  $\Delta$  для всех моделей первого (с наименьшими островками) (рисунки 47 и 48) и четвертого (с наибольшими островками) (рисунки 49 и 50) образцов.

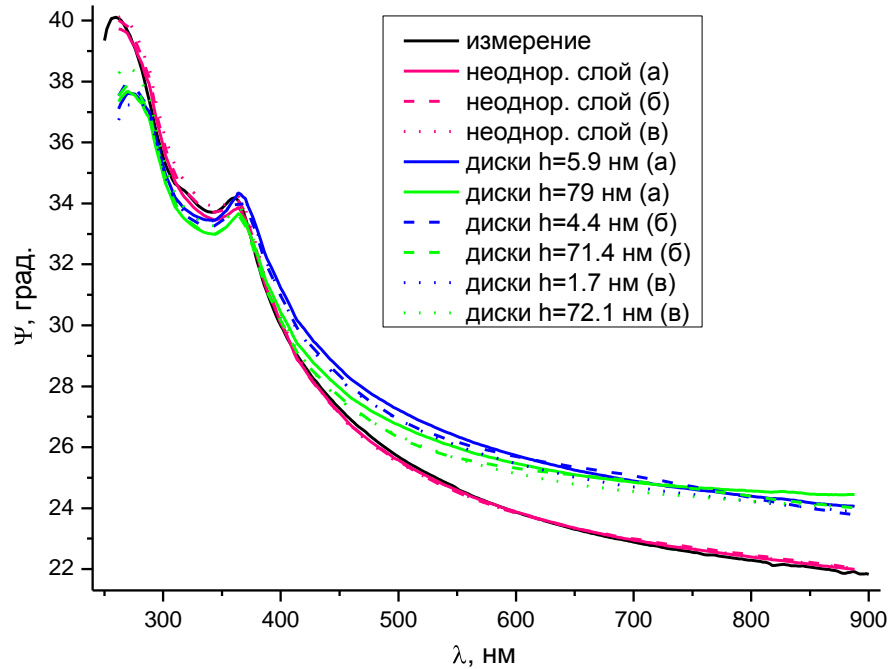


Рисунок 47 – Результаты измерений и расчётов эллипсометрического параметра  $\Psi$  на первом образце для всех эллипсометрических моделей. Угол падения света  $60^\circ$

По рассчитанным спектральным зависимостям  $\Psi$  и  $\Delta$  для первого образца видно хорошее согласие с измеренной кривой данных модели неоднородного по высоте слоя. Видны некоторые расхождения кривых фазового параметра  $\Delta$  в коротковолновой области. При этом разница в данных между различными источниками дисперсии оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  заметна только по параметру  $\sigma$  (таблица 3).

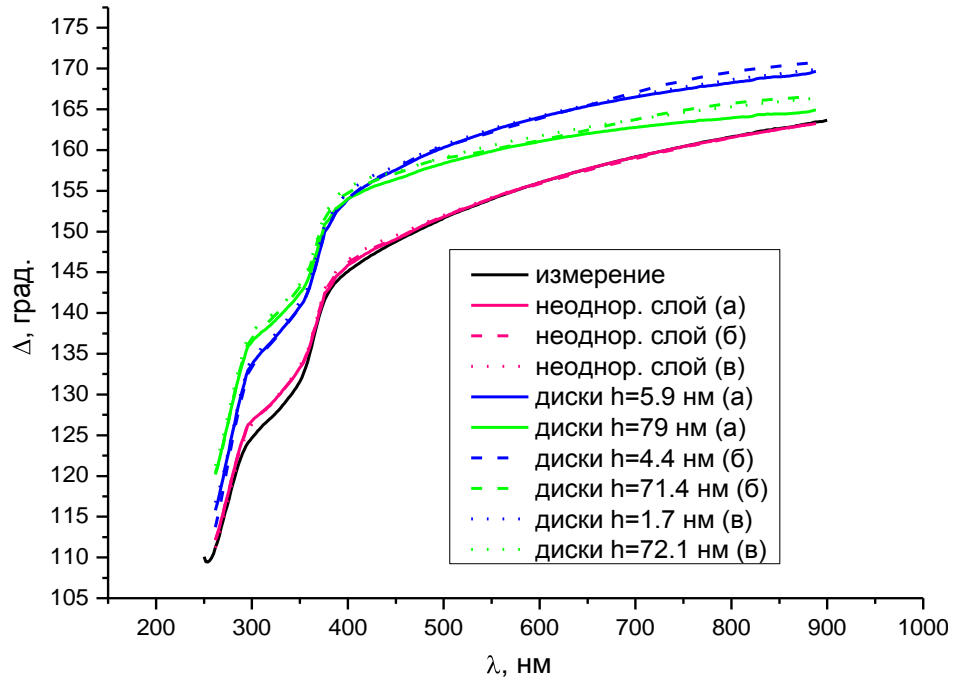


Рисунок 48 – Результаты измерений и расчётов эллипсометрического параметра  $\Delta$  на первом образце для всех эллипсометрических моделей. Угол падения света  $60^\circ$

Что касается модели случайно-распределённых дисков, то случай низких дисков (линии синего цвета) показывает качественно лучшее поведение эллипсометрических кривых, нежели случай высоких дисков. Кривые для низких дисков лучше отражают характер экспериментальных данных.

Относительно источников дисперсии оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  на первом образце наблюдаются сильные различия в данных длинноволновой области спектра, которые вызваны наличием пиков поглощения у  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

Для четвертого образца, с наибольшей шероховатостью поверхности, видны расхождения с экспериментом для модели неоднородного слоя в коротковолновой области ниже 600 нм. При этом не наблюдается разница в рассчитанных графиках для различных источников дисперсии оптических постоянных  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Расхождения в коротковолновой области вызваны неэффективностью использования модели эффективной среды Бруггемана.



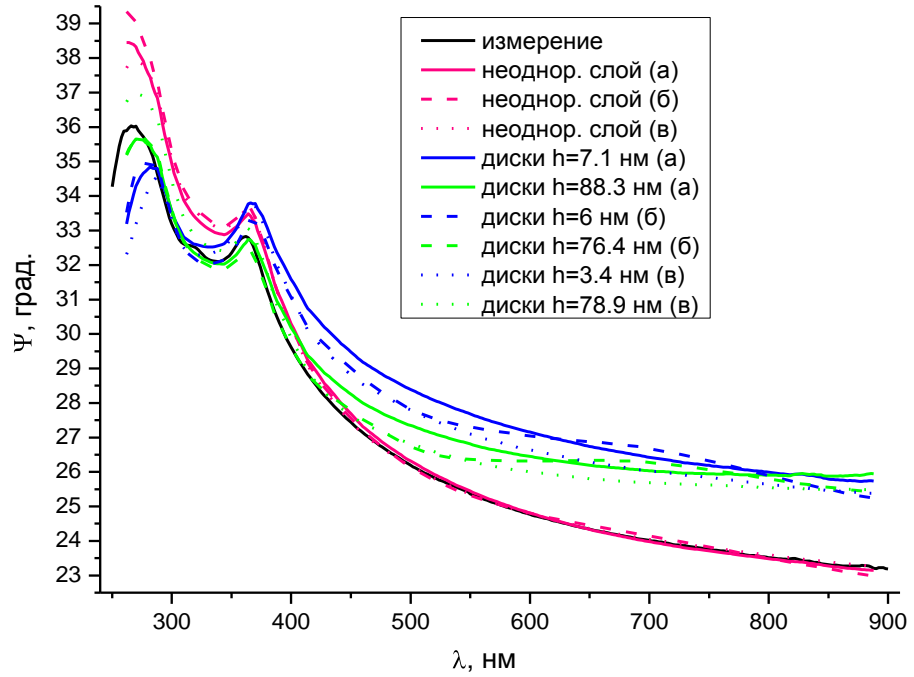


Рисунок 49 – Результаты измерений и расчётов эллипсометрического параметра  $\Psi$  на четвертом образце для всех эллипсометрических моделей. Угол падения света  $60^\circ$

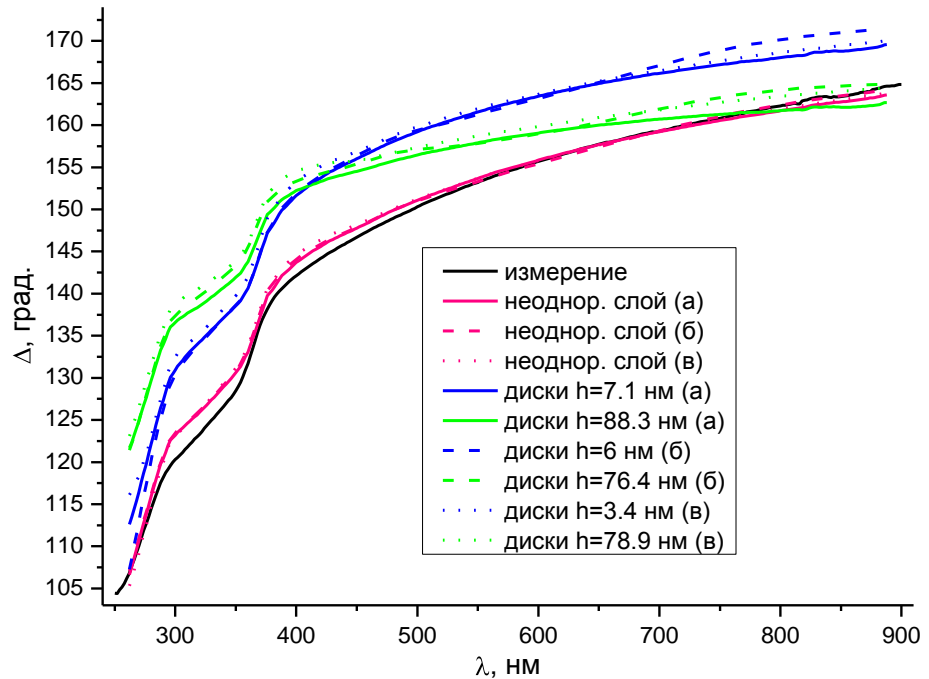


Рисунок 50 – Результаты измерений и расчётов эллипсометрического параметра  $\Delta$  на четвертом образце для всех эллипсометрических моделей. Угол падения света  $60^\circ$

Таким образом, применение классических многослойных и неоднородных по высоте моделей, использующих эффективную среду Бруггемана [22], практически не позволяют описать морфологию островковой структуры на поверхности образца. Особенно, когда неоднородности на поверхности образца значительно превышают параметр  $\lambda/10$ . В то же время процедура оптимизации с помощью разработанной модели случайно-распределённых дисков позволяет достаточно близко описать морфологию реальной поверхности.

### 3.4 Выводы к главе

В результате проведённых работ по получению островковых систем Fe-Si и экспериментальной апробации разработанной модели случайно-распределённых дисков можно сделать следующие выводы:

1) методом поочередного осаждения субнанометровых слоёв Fe и Si на холодную поверхность  $\text{SiO}_2(\sim 14 \text{ нм})/\text{Si}(100)$  с последующим отжигом образца при температуре  $450 \text{ }^\circ\text{C}$  получена поликристаллическая пленка  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с двумя преимущественными ориентациями кристаллитов в плоскостях (002) и (112) и определена дисперсия комплексной диэлектрической проницаемости в приближении объёмной среды;

2) методом поочередного осаждения субнанометровых слоёв Fe и Si на холодную поверхность  $\text{SiO}_2(\sim 14 \text{ нм})/\text{Si}(100)$  с последующим отжигом при температурах  $450$  и  $500 \text{ }^\circ\text{C}$ , получены четыре образца с различным количеством осажденного Fe-Si, состава  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . По данным АСМ и РЭМ анализа установлено, что поверхность каждого образца серии имеет островковую структуру, а размер, концентрация на поверхности и форма островков зависят от количества осажденного Fe-Si и температуры отжига;

3) применение разработанной модели случайно-распределённых дисков при моделировании поверхности островковых структур показало согласие результатов моделирования с результатами АСМ и РЭМ анализа.

## Глава 4 Анализ магнитных и спектральных магнитооптических характеристик структур $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ и $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$ методами *ex situ* и *in situ* отражательной спектральной магнитоэллипсометрии

### 4.1 Апробация метода спектральной магнитоэллипсометрии при анализе структуры $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$

Для проведения *ex situ* и *in situ* спектральных магнитоэллипсометрических исследований ферромагнитных структур в лаборатории физики магнитных явлений ИФ СО РАН был разработан и создан технологический комплекс, позволяющий получать сверхтонкие пленки и проводить анализ их оптических, структурных и магнитных свойств.

Апробация основных параметров разработанного аппаратно-программного магнитоэллипсометрического комплекса была проведена при тестовом напылении тонкой плёнки железа на поверхность монокристаллического кремния с буферным слоем диоксида кремния  $\text{SiO}_2$  [98]. После подготовки поверхности подложки и формирования структуры  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  были проведены *ex situ* спектральные эллипсометрические измерения на эллипсометре Эллипс-1891 в спектральном диапазоне от 250 до 900 нм. Измерения проводились по четырем оптическим зонам с последующим усреднением [59]. Угол падения света на образец при измерениях составлял  $70^\circ$ .

Далее образец был помещён в сверхвысокий вакуум технологической камеры спектрального магнитоэллипсометра, где были проведены *in situ* спектральные эллипсометрические измерения [59] (в спектральном диапазоне  $360 \div 900$  нм, угол падения света составил  $\sim 56^\circ$ ). Следует отметить, что при *in situ* эллипсометрических измерениях нет возможности прецизионного задания угла падения светового пучка, так как поляризатор и анализатор имеют жесткое закрепление. Поэтому при настройке положения образца в вакуумной камере по отношению к измерительной схеме эллипсометра подбирается такое положение, при котором *in situ* измеренная толщина  $\text{SiO}_2$  соответствуют значению,

полученному из *ex situ* измерений. Для спектральных эллипсометрических измерений на воздухе и в сверхвысоковакуумной камере при поиске толщины оксидного слоя и угла падения света на образец в технологической камере использовалась оптическая модель изотропного однородного слоя  $\text{SiO}_2$  на полубесконечной подложке Si, с резкими границами разделов [22].

*In situ* спектральные эллипсометрические измерения в отсутствие наведенного электромагнитом магнитного поля представлены на рисунке 51. Там же показана спектральная зависимость эллипсометрических углов, полученная при решении прямой задачи эллипсометрии для модели оксидного слоя на кремнии. Толщина  $\text{SiO}_2$ , установленная при оптимизации эллипсометрической модели, составила  $0.4 \pm 0.1$  нм.

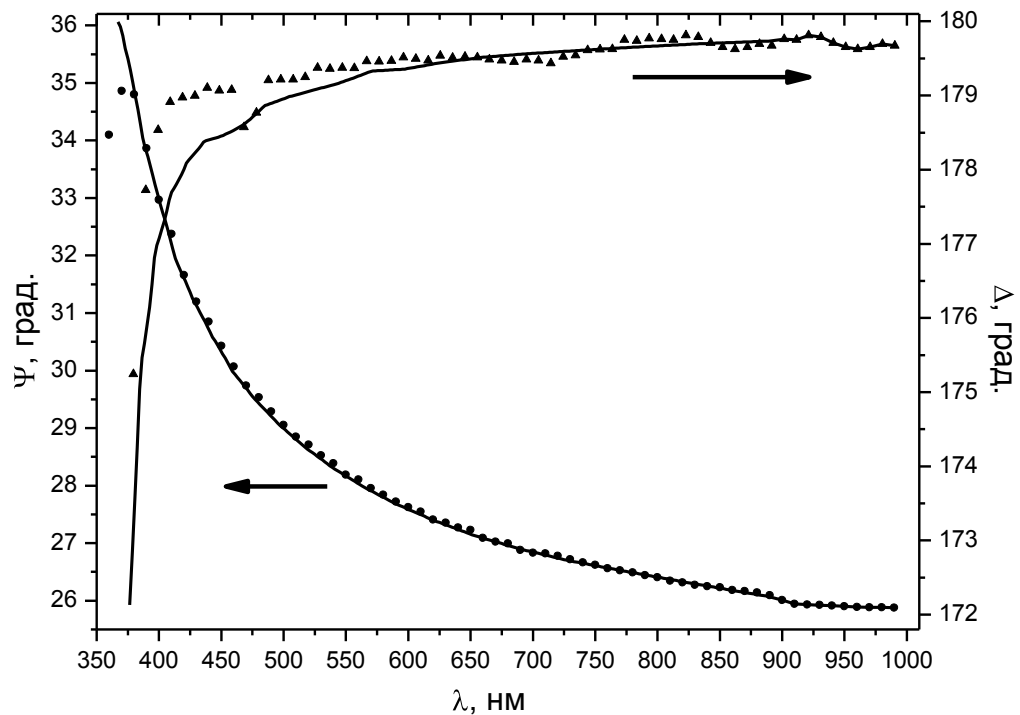


Рисунок 51 – Спектральные зависимости измеренных и рассчитанных эллипсометрических углов от подложки  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Сплошными линиями обозначены результаты моделирования, а символами – измеренные данные

После проведения предварительного анализа поверхности подложки на неё осаждалось поликристаллическое железо методом термического испарения из молекулярного источника с тиглем из нитрида бора. При осаждении железа внешнее магнитное поле, наведенное электромагнитом, в области образца отсутствовало. Температура подложки в процессе осаждения железа составляла около  $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ . В процессе осаждения производился одноволновый эллипсометрический контроль растущей структуры. Для измерений на спектральном эллипсометре была установлена постоянная длина волны  $500\text{ нм}$ , что соответствует максимальной интенсивности в спектре излучения галогенной лампы.

Угловое положение поляризатора эллипсометра составляло  $-45^{\circ}$ , а анализатора –  $+45^{\circ}$ . Для фильтрации полезного сигнала был использован механический прерыватель светового потока [51].

Одновременно с эллипсометрическими измерениями осуществлялся расчёт эффективной толщины растущей плёнки железа. Для этого использовался специальный алгоритм на основе численного метода Ньютона [99]. Помимо толщины однородной плёнки этот алгоритм позволяет одновременно вычислять и оптические свойства плёнки, то есть коэффициенты преломления и поглощения, что даёт возможность анализировать структурные свойства осаждаемого вещества [100].

Измеренные в процессе роста значения эллипсометрических параметров (на длине волны  $500\text{ нм}$ ) и рассчитанная по этим данным зависимость толщины плёнки от времени представлены на рисунках 52а и 52b соответственно. Рассчитанные кривые коэффициентов преломления  $n$  и поглощения  $k$  железа от толщины плёнки представлены на рисунке 53.

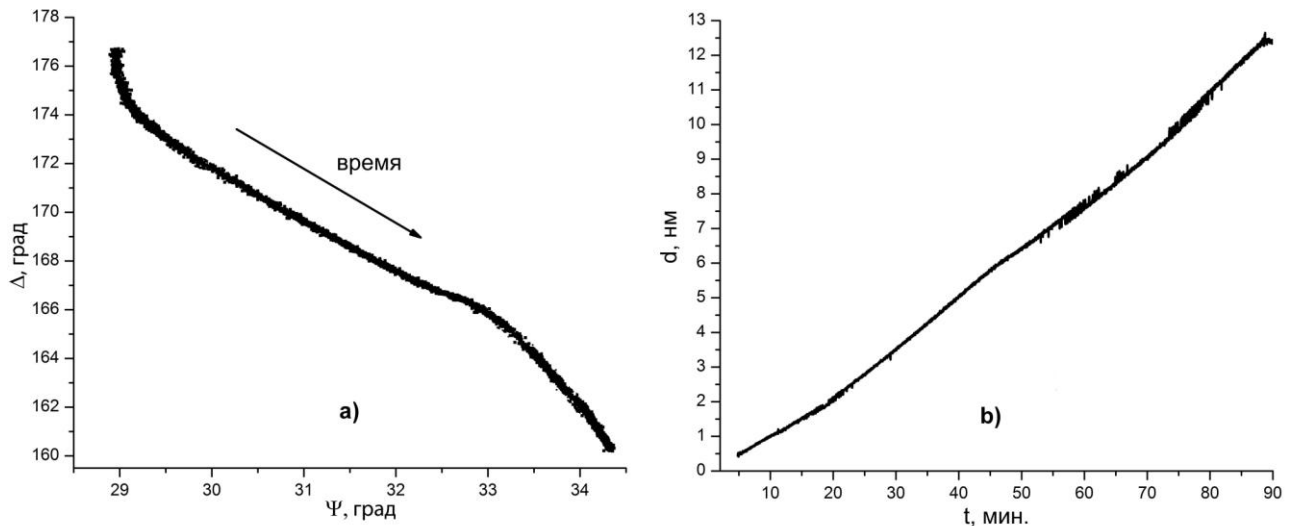


Рисунок 52 – а) номограмма изменения эллипсометрических углов по данным одноволновой эллипсометрии; б) рассчитанная зависимость толщины плёнки железа от времени по данным одноволновой эллипсометрии

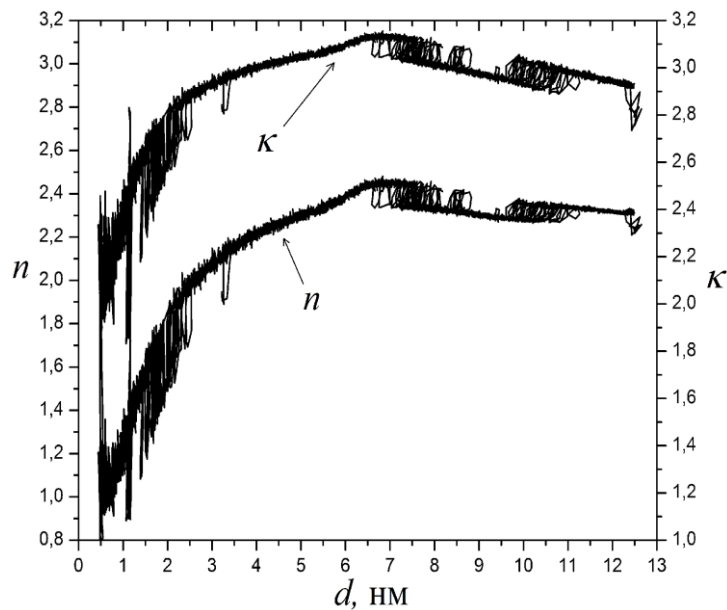


Рисунок 53 – Вычисленные зависимости оптических постоянных  $n$  и  $\kappa$  плёнки железа от её толщины по данным одноволновой эллипсометрии

По найденным зависимостям оптических постоянных от толщины видно, что вначале роста плёнки  $n$  и  $\kappa$  сильно зашумлены и имеют малые величины. При этом на графике толщины от времени (рисунок 52b) наблюдается плавное

увеличение скорости роста плёнки до выхода на постоянную скорость после  $3 \div 4$  нм. Это можно объяснить островковым механизмом роста плёнки.

Результирующая рассчитанная толщина плёнки Fe по данным одноволновой эллипсометрии составляет  $12.5 \pm 0.1$  нм. Впоследствии для проверки результатов расчётов толщины плёнки железа полученная структура была исследована *ex situ* методом РСФА. Толщина плёнки железа, полученная с помощью метода РСФА, составила  $12.4 \pm 0.6$  нм. Таким образом, можно говорить о том, что с учетом погрешностей измерений методами РСФА и одноволновой эллипсометрии значения толщин Fe совпадают.

После осаждения поликристаллического слоя железа на поверхность кремниевой подложки со слоем естественного оксида были проведены *in situ* спектральные эллипсометрические измерения без магнитного поля. Полученные спектральные зависимости эллипсометрических углов до и после осаждения Fe представлены на рисунке 54 под цифрой 2. Там же представлены результаты решения прямой задачи эллипсометрии для оптической модели «полубесконечная подложка Si – слой SiO<sub>2</sub> ( $0.4 \pm 0.1$  нм) – слой Fe ( $12.4 \pm 0.1$  нм)» с резкими границами разделов.

Для расчета толщины железа была использована дисперсия коэффициентов преломления и поглощения из работы [101]. Таким образом, по данным измерений рентгеноспектрального флуоресцентного анализа, одноволновой *in situ* эллипсометрии в процессе роста и спектральной эллипсометрии после окончания осаждения и релаксации системы были получены толщины слоя железа равные соответственно  $12.4 \pm 0.6$  нм,  $12.5 \pm 0.1$  нм и  $12.4 \pm 0.1$  нм. Оптимизация толщин во всех спектральных эллипсометрических измерениях проводилась симплекс-методом Нелдера-Мида [96].

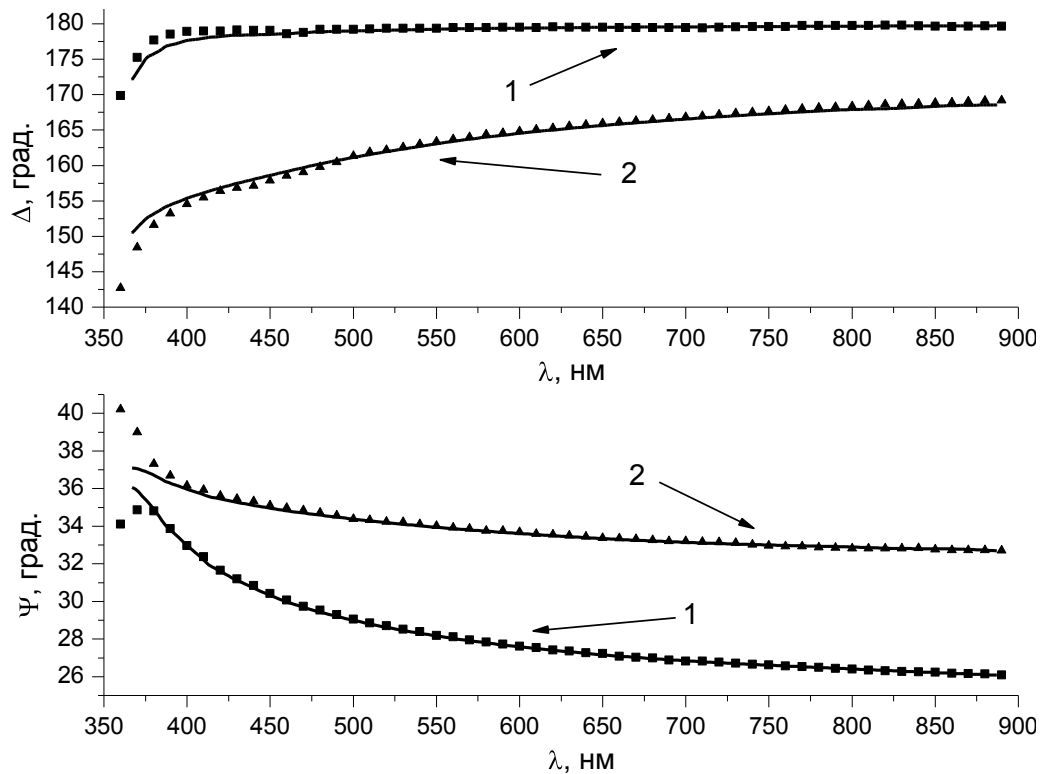


Рисунок 54 – Спектральные зависимости измеренных и рассчитанных эллипсометрических углов до (1) и после (2) осаждения железа: сплошные линии – оптическая модель, квадраты и треугольники – измеренные данные до и после осаждения соответственно

После анализа толщины железной плёнки методом спектральной эллипсометрии проводилось измерение петли перемагничивания образца непосредственно в технологической камере. Магнитное поле задавалось дискретно с шагом 6 Э в диапазоне  $\pm 450$  Э, что обеспечивало полное магнитное насыщение пленки Fe. Положения поляризатора эллипсометра и анализатора были  $45^\circ$  и  $0^\circ$  соответственно. Данная конфигурация оптических элементов позволяет получить наибольшую величину сигнал/шум при измерениях экваториального магнитооптического эффекта Керра, как было показано ранее. Результаты измерений петли перемагничивания для амплитудного параметра  $\Psi$  представлены на рисунке 55.



Анализ полученных данных позволил определить величину коэрцитивной силы плёнки Fe, которая составила  $120 \pm 6$  Э. Найденное значение коэрцитивной силы соответствует известным литературным данным [102].

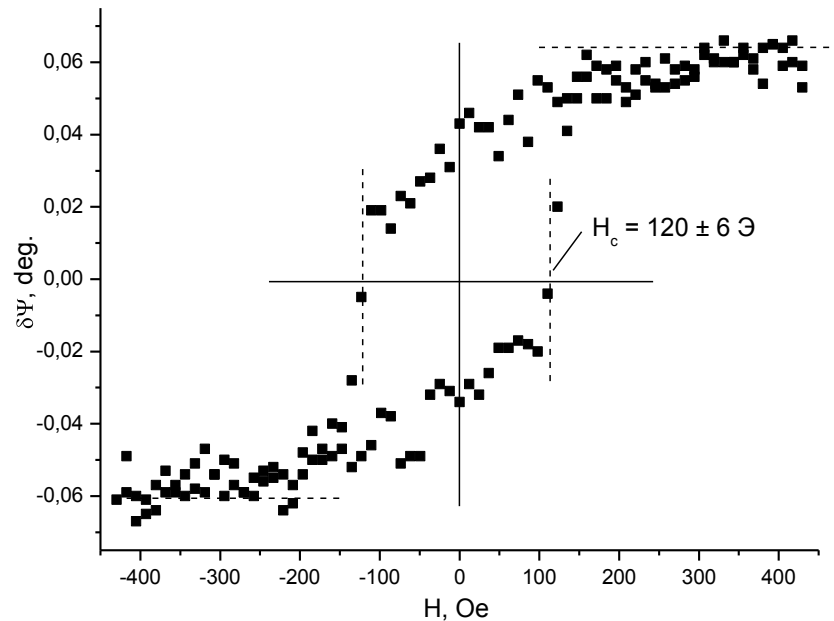


Рисунок 55 – Зависимость эллипсометрического параметра  $\Psi$  от величины магнитного поля для структуры Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) на длине волны 500 нм при *in situ* измерениях экваториального магнитооптического эффекта Керра

Слабая интенсивность сигнала в коротковолновой области спектра *in situ* магнитоэллипсометра дает низкое отношение сигнал/шум, что затрудняет анализ измеряемых данных. Для устранения данного недостатка, были проведены дополнительные измерения спектра экваториального эффекта Керра на *ex situ* спектральном магнитоэллипсометре в диапазоне  $\sim 1.4 \div 3.8$  эВ по следующей схеме:

- 1) устанавливалась заданная длина волны излучения на монохроматоре;
- 2) подавался ток на электромагнит в определённом направлении для наведения на образце максимального магнитного поля 4 кЭ;
- 3) после выдержки 0.5 с, для релаксации всей магнитной системы электромагнит-образец, производилось измерение эллипсометрических углов;

4) для перемагничивания образца подавался ток на электромагнит в обратном направлении той же величины;

5) после паузы 0.5 с повторно измерялись эллипсометрические углы;

6) в завершении цикла производилось вычисление модуля разности полученных эллипсометрических углов для двух состояний намагниченности образца.

Все описанные шаги выполнялись в автоматическом режиме с помощью специально созданного программного обеспечения для магнитоэллипсометра [62]. Полное измерение спектра ( $360 \div 1000$  нм) перемагничивания образца производилось в течение 20 минут.

На рисунке 56 представлены результаты *ex situ* и *in situ* измерений спектра экваториального эффекта Керра.

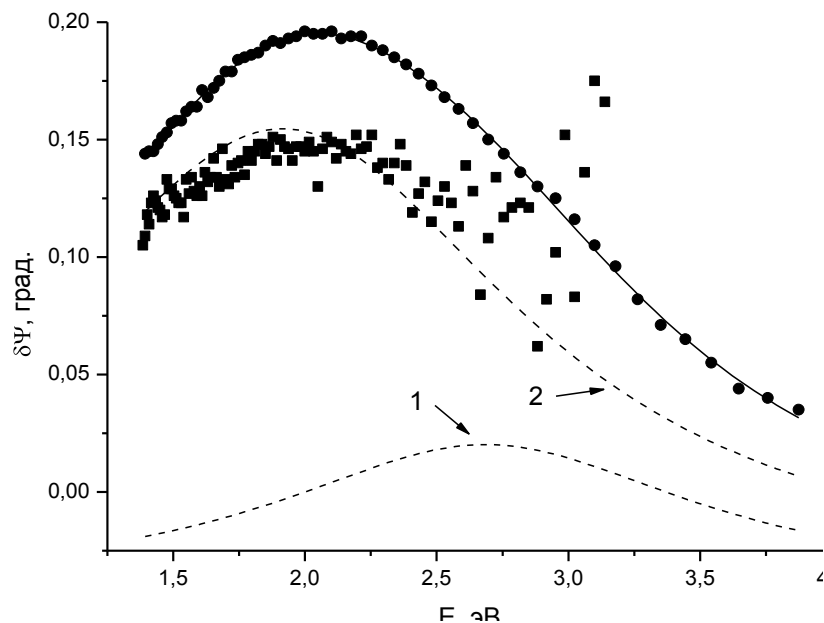


Рисунок 56 – Энергетическая зависимость магнитооптического эффекта Керра, измеренная для структуры Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) *ex situ* методом (окружности) и *in situ* методом (квадраты). Пунктиром обозначено разложение спектра *ex situ* на гауссовы пики. Сплошной линией обозначена сумма найденных гауссовых пиков

Различия в интенсивностях пиков для двух спектров обусловлены различными углами падения света для *in situ* и *ex situ* измерений. Полученная энергетическая зависимость экваториального магнитооптического эффекта Керра качественно совпадает с результатами исследований приведенных в работе [49] для объёмного железа.

Расчёт спектральной зависимости магнитооптического параметра Фогта  $Q$  для слоя Fe проводился по формуле (42), используя результаты *ex situ* магнитоэллипсометрических измерений [47] и спектральной дисперсии оптических постоянных из [101]. Магнитоэллипсометрические измерения  $\delta I/I$  проводились при комнатной температуре в двух положениях анализатора эллипсометра  $0^\circ$  и  $45^\circ$  к плоскости падения света. Поляризатор эллипсометра был установлен в положении  $45^\circ$ . Применение призмы Волластона с двумя фотоприёмниками в качестве анализатора позволило при двух циклах спектральных измерений получить четыре независимых величины  $\delta I/I$  при следующих комбинациях углов поворота оптических элементов ( $t_1, t_2$ ): ( $45^\circ; 0^\circ$ ), ( $45^\circ; 90^\circ$ ), ( $45^\circ; 45^\circ$ ) и ( $45^\circ; 135^\circ$ ). Магнитное поле переключалось в диапазоне  $\pm 2$  кЭ. Данные по  $Q$  после нормировки представлены на рисунке 57.

По результатам расчётов наблюдается качественное совпадение кривых  $Q$  с результатами магнитооптических измерений Кринчика и Нойбера для поликристаллического железа [84, 102]. Отличия в кривых на рисунке 57 могут быть вызваны различными технологическими условиями создания образцов и, как следствие, различными спектральными зависимостями оптических постоянных Fe, которые использовались при расчёте  $Q$ .

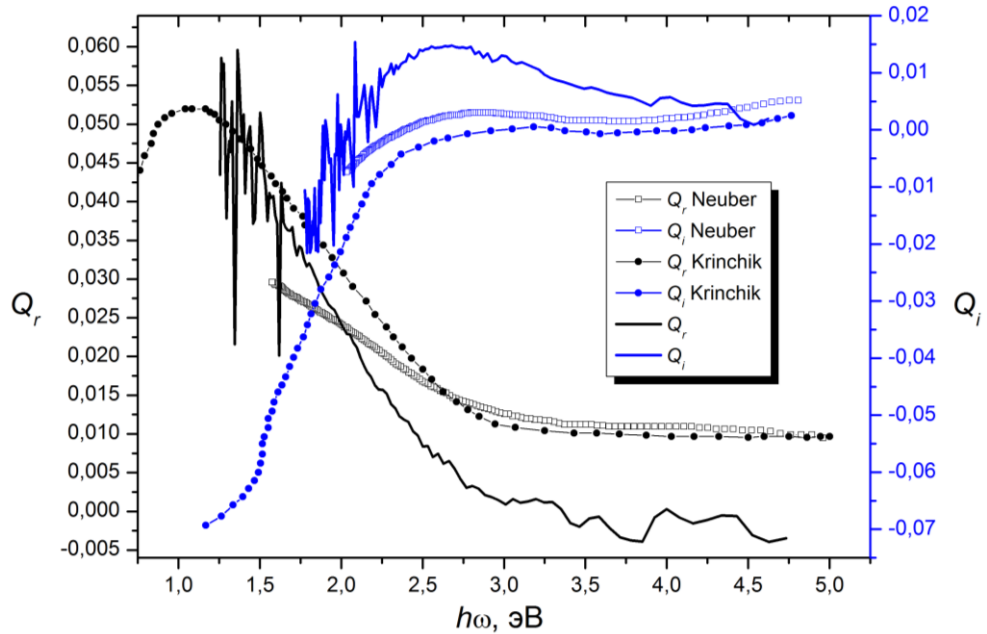


Рисунок 57 – Энергетическая зависимость нормированного магнитооптического параметра Фогта  $Q = Q_r + iQ_i$ , измеренная для структуры  $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  *ex situ* методом и экспериментальные данные из [84, 102]

Однако качественное совпадение кривых по спектру показывает наличие характерных оптических переходов во всех экспериментальных работах, что подтверждает достоверность методики для анализа спектральных магнитооптических свойств различных ферромагнитных плёнок с неизвестными оптическими свойствами.

#### 4.2 Анализ магнитных и магнитооптических свойств структуры $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ методами *ex situ* спектральной магнитоэллипсометрии

Разработанная методика измерений спектральной магнитоэллипсометрии была использована при исследовании магнитооптических и магнитных свойств образца, представляющего собой массивную поликристаллическую плёнку  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  на подложке  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , полученную методом послойного осаждения Fe и Si в сверхвысоком вакууме с последующим сверхвысоковакуумным отжигом.

Технология создания, структурные, морфологические и оптические свойства исследуемого образца подробно описаны в главе 3.1.

Для анализа магнитооптических свойств были проведены *ex situ* спектральные магнитоэллипсометрические измерения  $\delta I/I$  при комнатной температуре для азимутальных положений анализатора эллипсометра  $0^\circ$  и  $45^\circ$  и поляризатора  $45^\circ$  к плоскости падения света. Применение призмы Волластона с двумя фотоприёмниками в качестве анализатора позволило при двух циклах спектральных измерений получить четыре независимых величины  $\delta I/I$  при следующих комбинациях  $(t_1, t_2)$ :  $(45^\circ; 0^\circ)$ ,  $(45^\circ; 90^\circ)$ ,  $(45^\circ; 45^\circ)$  и  $(45^\circ; 135^\circ)$ . Угол падения света к нормали поверхности образца составлял  $70^\circ$ . Магнитное поле на образце переключалось в диапазоне  $\pm 2$  кЭ. На рисунке 58 показаны рассчитанные из измеренных  $\delta I/I$  и  $N$  спектральные зависимости вещественной и мнимой частей магнитооптического параметра Фогта  $Q$  для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

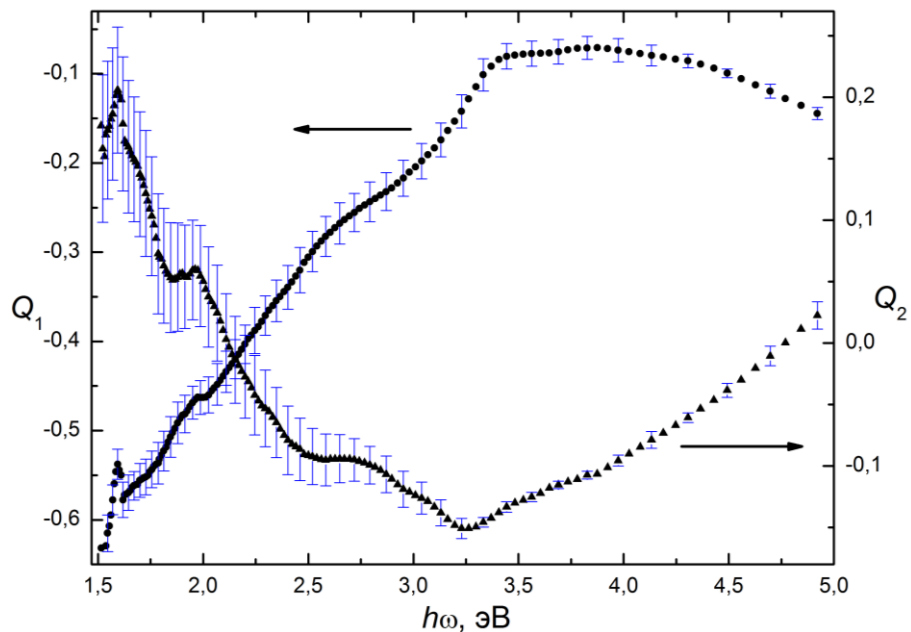


Рисунок 58 – Рассчитанная дисперсия параметра  $Q = Q_1 + iQ_2$  для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$

Расчёт спектральной зависимости магнитного кругового дихроизма по формуле (26) выявил наличие нескольких пиков по интенсивности сигнала (рисунок 59а). Найденные пики характеризуют спин-поляризованные межзонные

переходы электронов в ферромагнетике [103]. Для установления природы наблюдаемых пиков был проведён их анализ методом аппроксимации экспериментальной кривой МКД различным количеством гауссианов. На рисунке 59 представлен спектр МКД для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с различным количеством подгоночных гауссианов: зелёными линиями показаны гауссианы, а красной – их сумма. Из рисунка 59 видно, что увеличение числа подгоночных гауссианов приводит к более лучшему соответствию между их суммой и экспериментальной кривой МКД.

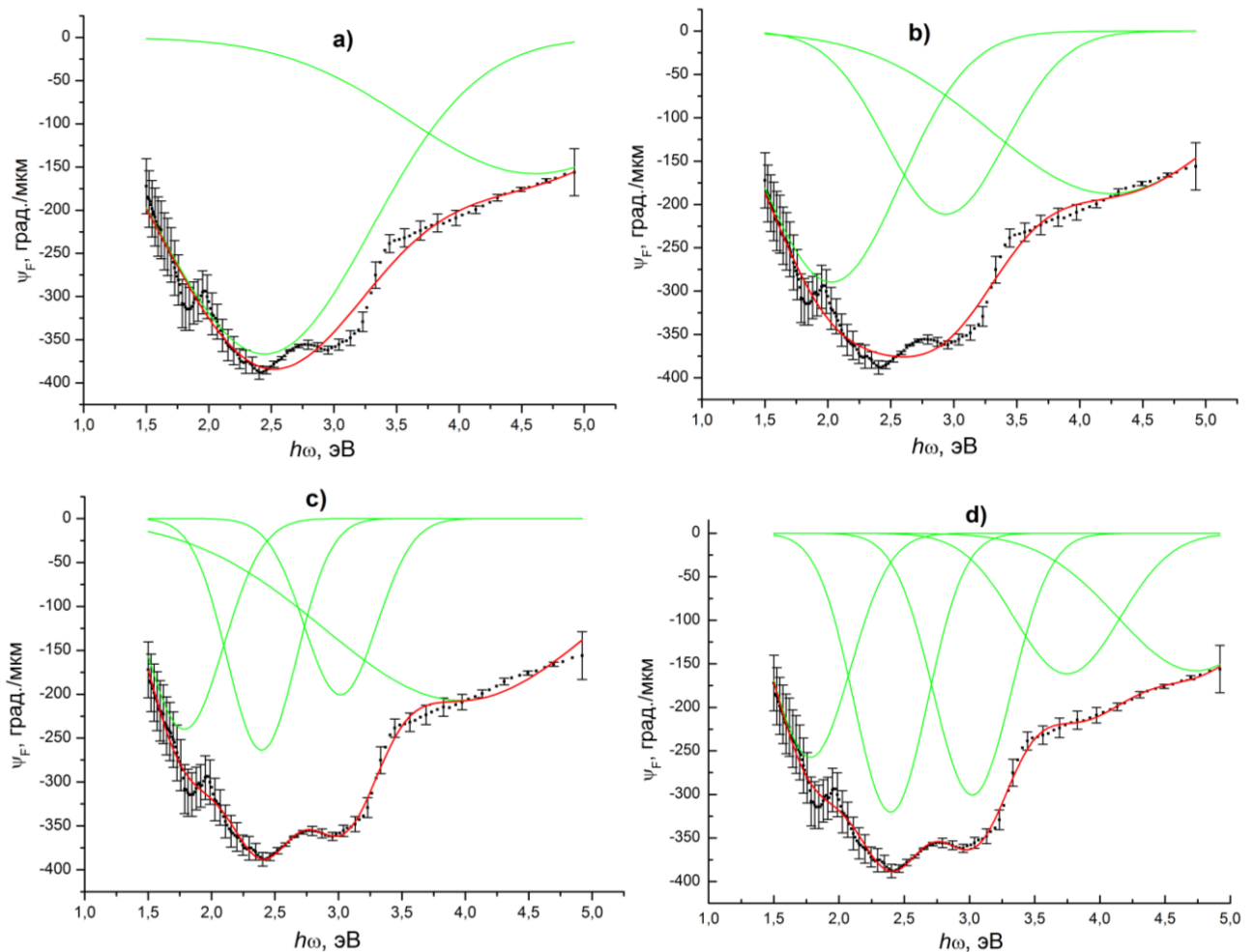


Рисунок 59 – Спектр МКД для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с разложением на серию гауссианов:

а) 2 пика; б) 3 пика; в) 4 пика; г) 5 пиков

В таблицу 4 сведены значения среднеквадратического отклонения

$$S = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \left( \frac{\langle y_j \rangle - f(x_j)}{\langle y_j \rangle} \right)^2}$$

в зависимости от количества гауссовых кривых при

аппроксимации спектра МКД для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , где  $n$  – количество экспериментальных точек,  $\langle y_j \rangle$  и  $f_j$  – экспериментальное значение МКД и сумма всех гауссовых кривых в точке  $j$  соответственно. Расчёт величины  $S$  осуществлялся только для спектрального диапазона экспериментальных данных, который соответствует области подгонки суммой гауссовых кривых.

Таблица 4 – Результаты анализа среднеквадратичного отклонения  $S$  для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$

КОЛ-ВО ПИКОВ	2	3	4	5	6	7
$S$	0.0490	0.0416	0.0308	0.0250	0.0239	0.0235

Из таблицы 4 видно, что с ростом количества гауссовых пиков уменьшается и величина  $S$ . При аппроксимации экспериментальной зависимости пятью и более пиками изменение  $S$  незначительно. Таким образом, для аппроксимации кривой МКД являются вполне достаточными пять гауссианов.

Для выяснения природы найденных магнитооптических максимумов с помощью квантово-химического моделирования в программном пакете VASP 5.3 [94, 95] в рамках метода функционала плотности (DFT) с использованием базиса плоских волн и PAW формализма [104, 105] был выполнен спин-поляризованный расчёт парциальных плотностей электронных состояний (DOS) для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  (рисунок 60а), у которого структура, как и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ , характеризуется наличием двух неэквивалентных состояний атомов Fe в кристаллической решетке. Вычисления проводились в рамках обобщенного градиентного приближения (GGA) – обменно-корреляционного функционала PBE (Perdew-Burke-Ernzerhof). При оптимизации геометрии элементарной ячейки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$   $P6_3/mcm$  первая зона Бриллюэна обратного пространства автоматически разбивалась на сетку 6 x 6 x 6, выбранную по схеме Монхорста-Пака [106]. Энергия обрезания плоских волн  $E_{cutoff}$  в расчетах была равна 293 эВ. При моделировании исследуемой структуры

оптимизация геометрии проводилась до значения максимальных сил, действующих на атомы, равных 0.1 эВ/нм.

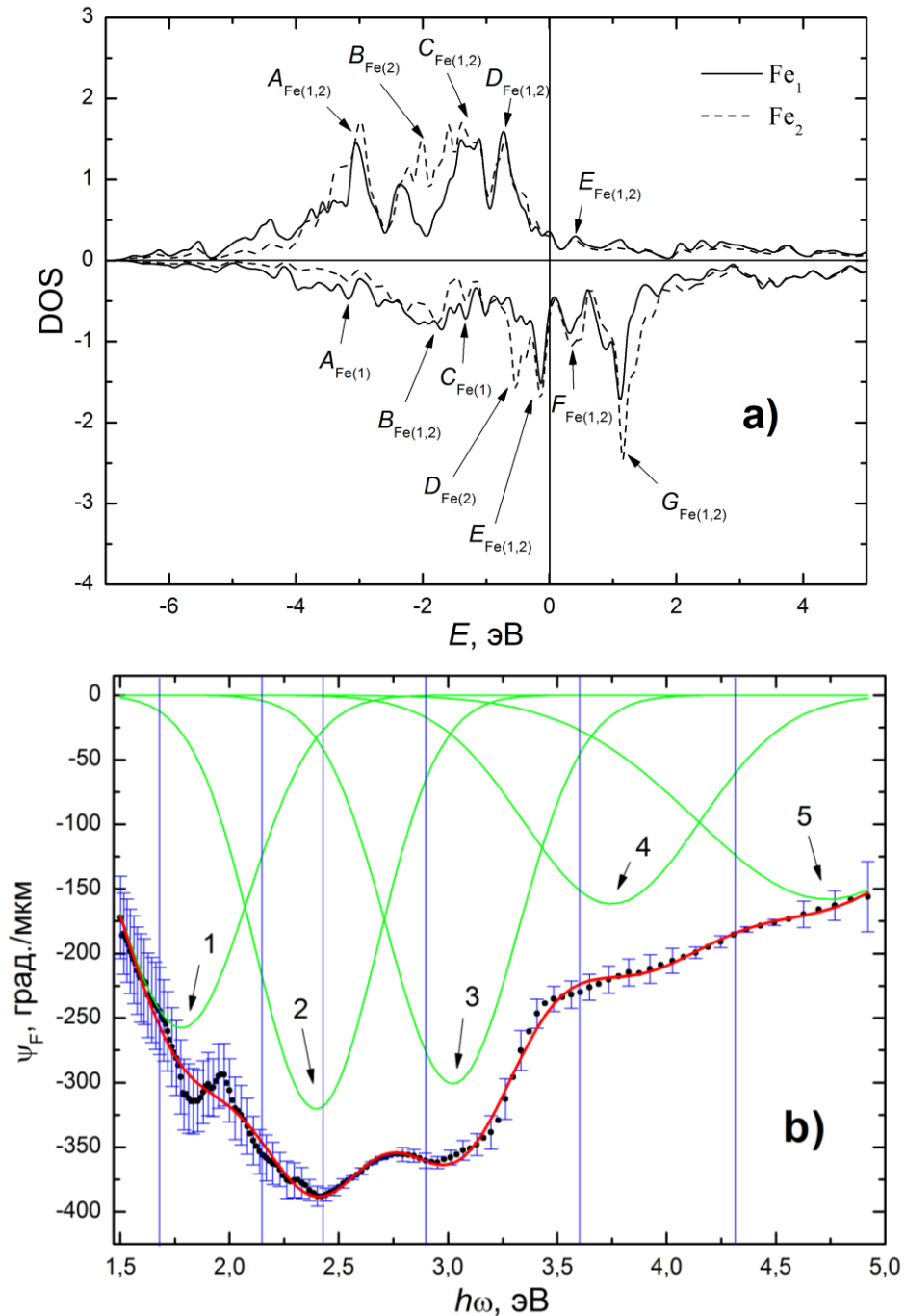


Рисунок 60 – а) расчёт спин-поляризованной плотности электронных состояний для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ ; б) спектр МКД для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  с разложением на серию гауссианов (вертикальными линиями показаны вероятные межзонные переходы электронов)



На рисунке 60b представлена энергетическая зависимость эллиптичности Фарадея с разложением кривой на серию гауссианов. Найденные пики гауссовой формы имеют следующие максимумы по энергии, эВ: 1)  $1.78 \pm 0.36$ ; 2)  $2.40 \pm 0.33$ ; 3)  $3.02 \pm 0.35$ ; 4)  $3.75 \pm 0.47$ ; 5)  $4.74 \pm 0.71$ . Дополнительно на рисунке 60b вертикальными линиями показаны основные межзонные переходы по рассчитанному DOS для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

Анализ вероятных межзонных переходов по DOS в энергетических состояниях атомов железа для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  показывает, что найденные максимумы на кривой эллиптичности Фарадея вызваны межзонными переходами электронов: 1)  $D_{\text{Fe}(2)\downarrow} \rightarrow G_{\text{Fe}(2)\downarrow}$  (1.68 эВ); 2)  $B_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow F_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (2.15 эВ) и  $B_{\text{Fe}(2)\uparrow} \rightarrow E_{\text{Fe}(2)\uparrow}$  (2.42 эВ); 3)  $B_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow G_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (2.9 эВ); 4)  $A_{\text{Fe}(1)\downarrow} \rightarrow F_{\text{Fe}(1)\downarrow}$  (3.6 эВ). Пик 5 скорее всего вызван суммой переходов  $A_{\text{Fe}(1)\downarrow} \rightarrow G_{\text{Fe}(1)\downarrow}$  (4.3 эВ) и переходов с более высокой энергией из DOS, расположенных левее  $A_{\text{Fe}(1)\downarrow}$ , в  $G_{\text{Fe}(1)\downarrow}$ . Стрелками обозначены:  $\uparrow$  – спин вверх,  $\downarrow$  – спин вниз. Полученные данные для  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  позволяют качественно понять природу пиков на спектре МКД.

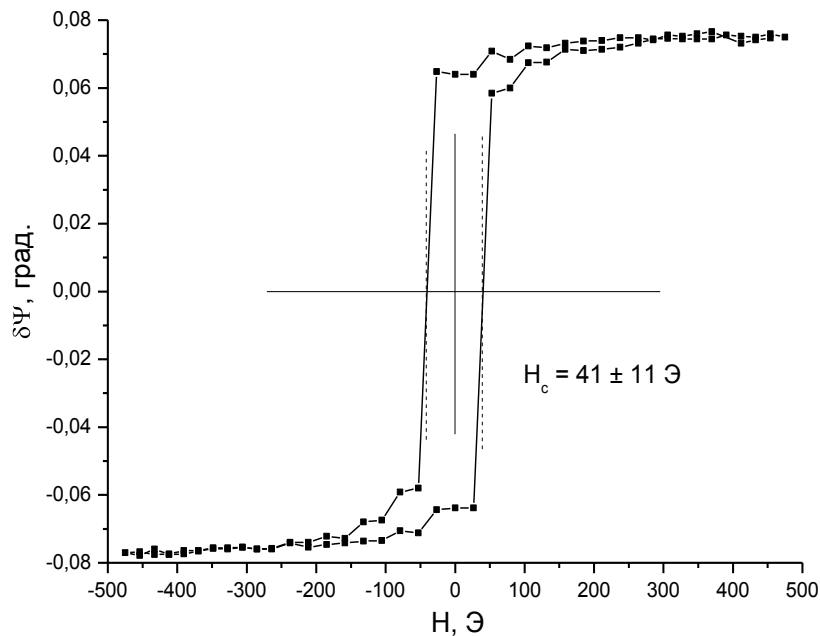


Рисунок 61 – Измерения петли перемагничивания поверхности образца  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , полученные на длине волны 400 нм (3.1 эВ) для эллипсометрического параметра  $\Psi$

Помимо энергетической зависимости магнитооптического сигнала на структуре  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  была измерена зависимость эллипсометрического параметра  $\Psi$  от приложенного к образцу внешнего магнитного поля в диапазоне  $\pm 470$  Э с шагом 25 Э. Результаты измерений петли перемагничивания представлены на рисунке 61. Измерения проводились на длине волны 400 нм (3.1 эВ) для азимутального положения анализатора эллипсометра  $+45^\circ$  и поляризатора  $0^\circ$ , угол падения света на образец  $70^\circ$ .

По измеренным данным были определены магнитные свойства плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ : коэрцитивная сила  $H_c = 41 \pm 11$  Э и поле насыщения  $200 \pm 50$  Э. Измеренная величина коэрцитивной силы в несколько раз меньше значений, полученных для поликристаллических плёнок  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  толщиной 65 и 500 нм [6].

### **4.3 Анализ магнитных и магнитооптических свойств структуры $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$ методами *ex situ* спектральной магнитоэллипсометрии**

Силицид  $\text{Fe}_3\text{Si}$ , как Fe и  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , обладает ферромагнитными свойствами при комнатной температуре. В связи с этим был проведён анализ его магнитных и магнитооптических свойств методами спектральной магнитоэллипсометрии на отражение.

Исследуемый образец представлял собой эпитаксиальную пленку силицида  $\text{Fe}_3\text{Si}$  структуры  $\text{DO}_3$  на атомарно чистой поверхности кремния (111). Данный образец был получен методом термического соосаждения Fe и Si в сверхвысоком вакууме на заранее очищенную от  $\text{SiO}_2$  поверхность монокристаллического Si(111). Технология создания исследуемого образца подробно описана в работе [9]. В работе [20] впервые производились измерения и анализ дисперсии диэлектрической проницаемости данного образца  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  методами лазерной и спектральной эллипсометрии.

На длине волны 400 нм (3.1 эВ), где наблюдался сильный магнитооптический отклик, были измерены зависимости изменения эллипсометрического параметра

$\Psi$  от приложенного к образцу внешнего магнитного поля в диапазоне  $\pm 260$  Э с шагом 25 Э. Измерения проводились по всем 4-м конфигурациям оптических элементов эллипсометра. Результаты измерений представлены на рисунке 62.

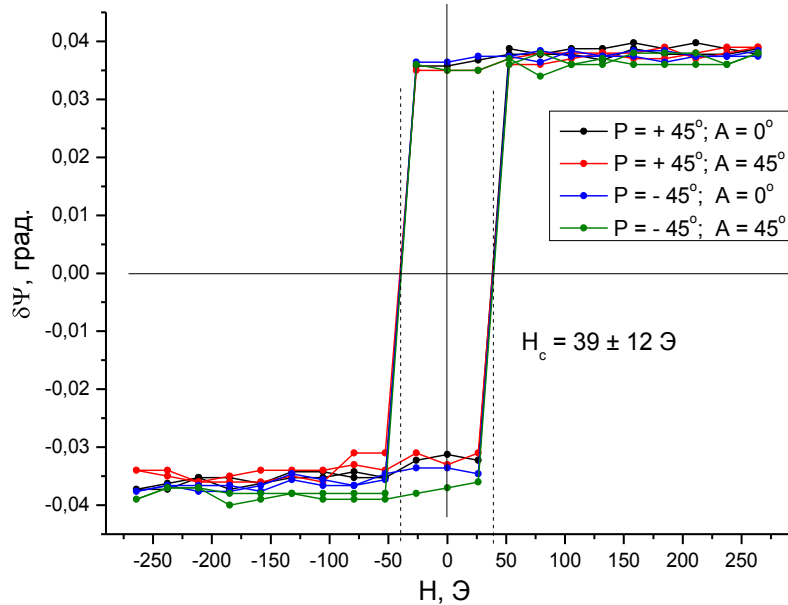


Рисунок 62 – Измерения петли перемагничивания поверхности образца  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$ , полученные на длине волны 400 нм при различных азимутальных положениях поляризатора и анализатора эллипсометра

На полученных графиках перемагничивания образца  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  практически не видны различия между положениями оптических элементов измерительной схемы эллипсометра. Кроме того, из полученных данных можно определить магнитные свойства поверхности образца. В частности, коэрцитивная сила  $H_c$  пленки  $\text{Fe}_3\text{Si}$  составляет  $39 \pm 12$  Э, а поле насыщения порядка 100 Э. Измеренная величина коэрцитивной силы несколько превышает значения, полученные для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  ранее другими авторами [9, 107], в том числе на подложках GaAs(001) и Ge(111) [21, 108].

Для анализа спектральных магнитооптических свойств образца  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  были проведены спектральные магнитоэллипсометрические измерения с длительным накоплением сигнала. Угол падения света на образец был равен  $70^\circ$ .

Как и для образца  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , измерения  $\delta I/I$  проводились при комнатной температуре в двух положениях анализатора эллипсометра  $0^\circ$  и  $45^\circ$  к плоскости падения света. Поляризатор эллипсометра был установлен в положении  $45^\circ$ . На рисунке 63 представлены рассчитанные из измеренных  $\delta I/I$  и данных для  $N$  из [20] спектральные зависимости вещественной и мнимой частей магнитооптического параметра Фогта  $Q$  для  $\text{Fe}_3\text{Si}$ .

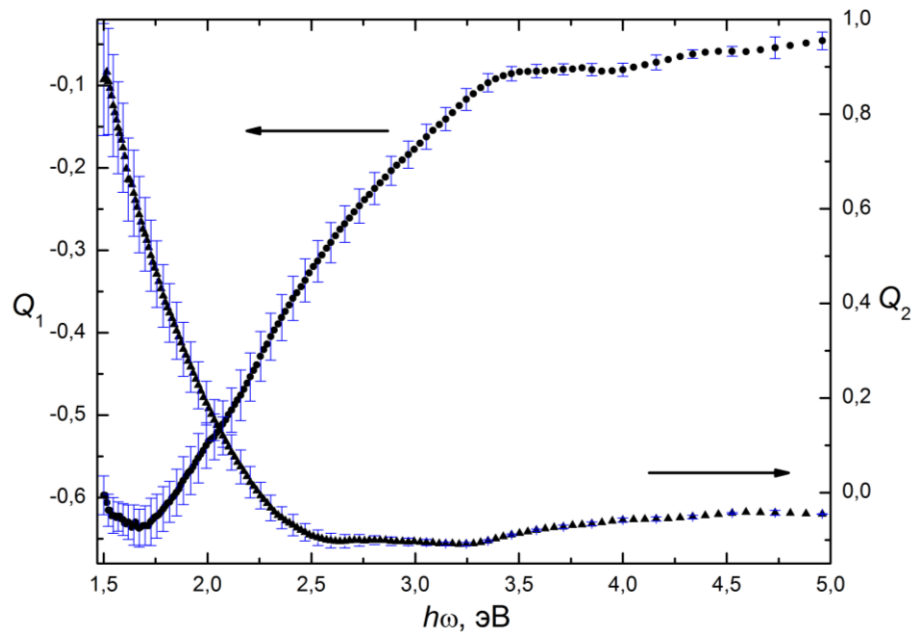


Рисунок 63 – Рассчитанная дисперсия параметра  $Q = Q_1 + iQ_2$  для  $\text{Fe}_3\text{Si}$

На рисунке 64 представлен спектр МКД для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  с различным количеством подгоночных гауссианов: зелёными линиями показаны гауссианы, а красной – их сумма. Увеличение числа подгоночных гауссианов также приводит к лучшему соответствию между их суммой и экспериментальной кривой МКД.

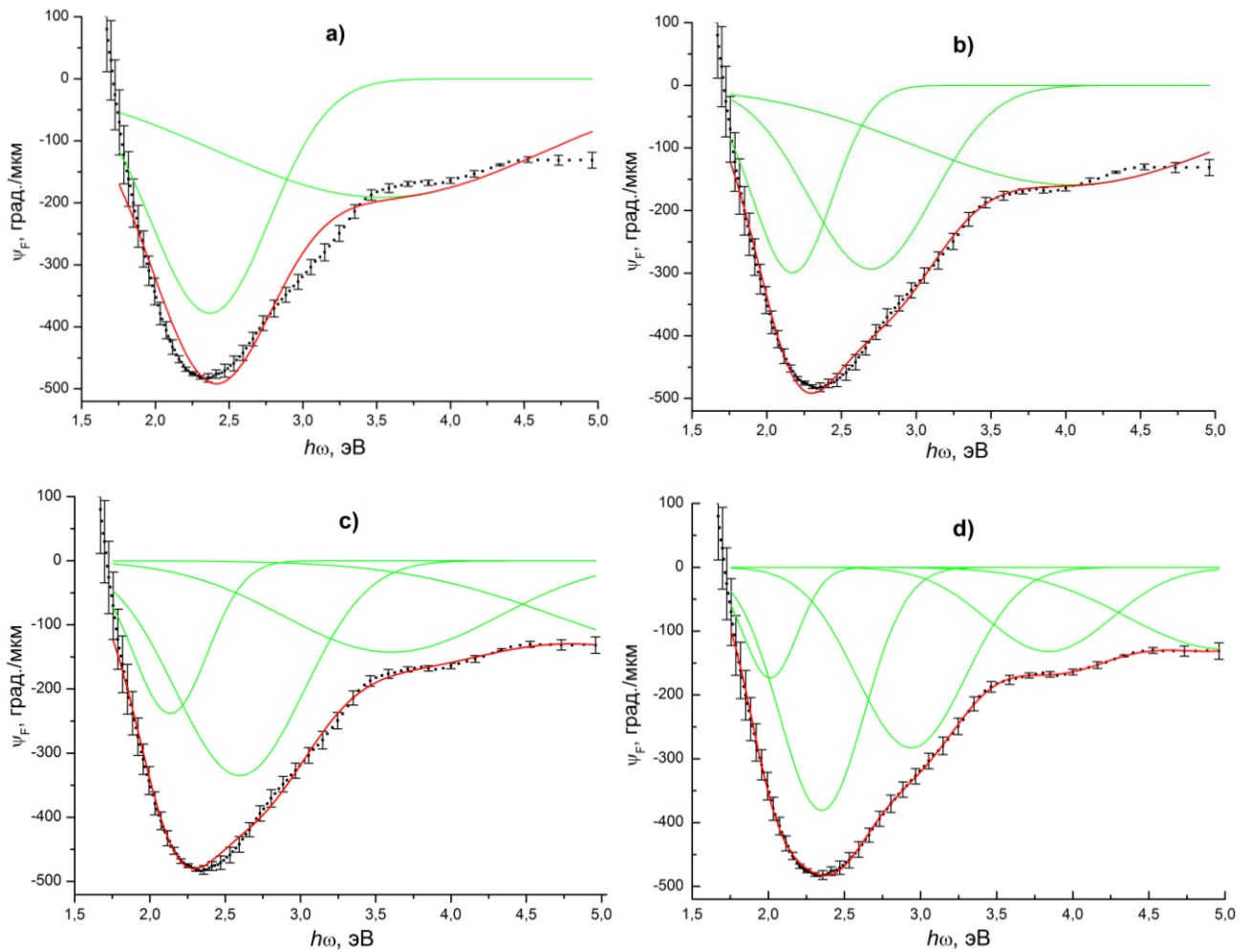


Рисунок 64 – Спектр МКД для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  с разложением на серию гауссианов:

а) 2 пика; б) 3 пика; в) 4 пика; г) 5 пиков

В таблице 5 приведены значения среднеквадратичного отклонения  $S$  в зависимости от количества гауссовых кривых при аппроксимации спектра МКД для  $\text{Fe}_3\text{Si}$ .

Таблица 5 – Результаты анализа среднеквадратичного отклонения  $S$  для  $\text{Fe}_3\text{Si}$

КОЛ-ВО ПИКОВ	2	3	4	5	6	7
$S$	0.2118	0.0982	0.0958	0.0471	0.0457	0.0416

Из таблицы 5 видно, что с ростом количества гауссовых пиков уменьшается величина  $S$ . Для количества пиков менее пяти добавление каждого следующего

гауссиана резко снижало отклонение  $S$ , а при дальнейшем увеличении числа пиков изменения  $S$  незначительны.

Кристаллическая структура  $\text{Fe}_3\text{Si}$  представляет собой структуру типа  $\text{DO}_3$ , подобную сплаву Гейслера  $\text{Fe(II)}_2\text{Fe(I)}_1\text{Si}$ . В работе [20] был проведен расчет плотности электронных состояний как для атомов  $\text{Fe(I)}$ , так и для  $\text{Fe(II)}$  (рисунок 65а).

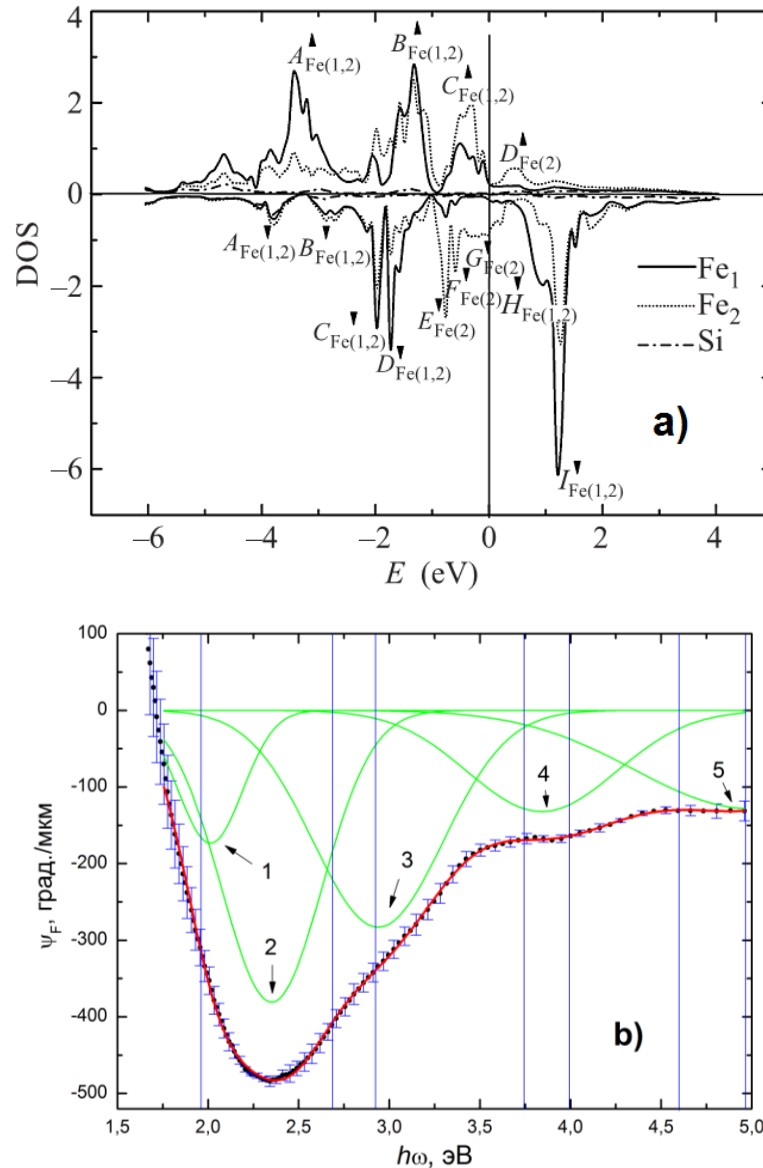


Рисунок 65 – а) теоретический расчёт спин-поляризованной плотности электронных состояний для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  [20]; б) спектр МКД для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  с разложением на серию гауссианов (вертикальными линиями показаны вероятные межзонные переходы электронов для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  по данным DOS)

На рисунке 65b показана энергетическая зависимость МКД с разложением кривой на серию из пяти гауссианов. Найденные пики имеют следующие максимумы по энергии, эВ: 1)  $2.01 \pm 0.21$ ; 2)  $2.35 \pm 0.33$ ; 3)  $2.94 \pm 0.42$ ; 4)  $3.84 \pm 0.48$ ; 5)  $4.99 \pm 0.74$ . На рисунке 65b дополнительно вертикальными линиями показаны основные межзонные переходы по рассчитанному DOS [20].

Согласно [20] обнаруженные пики образованы следующими вероятными межзонными энергетическими переходами электронов: 1)  $E_{\text{Fe}(2)\downarrow} \rightarrow I_{\text{Fe}(2)\downarrow}$  (1.96 эВ); 3)  $D_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow H_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (2.68 эВ) и  $D_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow I_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (2.93 эВ); 4)  $B_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow H_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (3.74 эВ) и  $B_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow I_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (3.99 эВ); 5)  $A_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow H_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (4.60 эВ) и  $A_{\text{Fe}(1,2)\downarrow} \rightarrow I_{\text{Fe}(1,2)\downarrow}$  (4.96 эВ). Пик 2, вероятно, является результатом переходов электронов с не обозначенных в работе [20] уровней, лежащих левее пика плотности состояний  $B_{\text{Fe}(2)\uparrow}$ , в  $D_{\text{Fe}(2)\uparrow}$ . Стрелками обозначены:  $\uparrow$  – спин вверх,  $\downarrow$  – спин вниз.

Наилучшее соответствие максимумов найденных пиков по МКД с межзонными переходами электронов наблюдается в видимой области спектра от 2 до 4.5 эВ с наибольшим соотношением сигнал/шум. Полученные данные для  $\text{Fe}_3\text{Si}$  позволяют качественно понять природу пиков на спектре МКД, как и для плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ . Однако эпитаксиальная плёнка  $\text{Fe}_3\text{Si}$  демонстрирует более точное соответствие пиков МКД с энергиями межзонных переходов, нежели поликристаллическая плёнка  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , что может являться следствием влияния меньшей доли поверхностных атомов в эпитаксиальном силициде  $\text{Fe}_3\text{Si}$  на спиновую поляризацию по сравнению с поликристаллическим  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ .

#### 4.4 Выводы к главе

Основными результатами главы 4 являются:

1) Синтезирована структура системы  $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  методом термического испарения в сверхвысоком вакууме. Методами одноволновой и спектральной эллипсометрии определена толщина полученной плёнки железа и толщина естественного слоя  $\text{SiO}_2$ . Анализ данных одноволновой эллипсометрии в процессе осаждения железа показал поликристаллическую структуру слоя Fe с характерными размерами кристаллитов около 7 нм.

2) Методами спектральной магнитоэллипсометрии в конфигурации экваториального эффекта Керра проведены *in situ* исследования магнитных свойств плёнки  $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , а также *ex situ* исследования образцов  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  и  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Определена величина коэрцитивной силы  $129 \pm 6$  Э и поле насыщения образца порядка 450 Э для  $\text{Fe}/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Полученные значения близки к значениям для аналогичных структур железа, найденных другими исследователями. Для  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  величина коэрцитивной силы и поле насыщения образца составили  $39 \pm 12$  Э и 100 Э соответственно. Анализ магнитных свойств структуры  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  показал величину коэрцитивной силы  $41 \pm 11$  Э и поле насыщения  $200 \pm 50$  Э.

3) Методами *ex situ* спектральной магнитоэллипсометрии установлена энергетическая зависимость магнитооптического параметра Фогта и магнитного кругового дихроизма для структур  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$  и  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  в диапазоне 1.5 ÷ 4.9 эВ. Разложением дисперсионных зависимостей МКД на гауссовы пики и сравнением полученных данных с результатами расчётов спин-зависимой DOS были выявлены наиболее вероятные межзонные переходы электронов в обоих силицидах. Лучшее совпадение пиков МКД с вероятными межзональными переходами по DOS качественно указывает на более высокую концентрацию поверхностных атомов в плёнке  $\text{Fe}_5\text{Si}_3/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , чем в  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Si}(111)$ .

Таким образом, разработанная методика одновременного измерения эллипсометрических и магнитооптических параметров непосредственно в камере роста позволили исследовать магнитные и магнитооптические свойства. Обработка спектров магнитооптического эффекта Керра с пересчётом в спектральную зависимость магнитного кругового дихроизма позволяет получить информацию о спин-зависящей плотности электронных состояний, согласующуюся с данными теоретических расчётов.



## Заключение

1) Предложен способ получения метастабильной при комнатной температуре фазы силицида  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  в виде плёнки на подложке  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ . Методом рентгеноструктурного анализа определены параметры гексагональной кристаллической решетки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ : пространственная группа  $P6_3/mc$ ; параметры ячейки  $a = 0.743$  нм;  $c = 0.4683$  нм; объем элементарной ячейки  $0.224$  нм<sup>3</sup>. Поликристаллическая пленка  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  толщиной 27 нм имеет размер кристаллитов 13.7 нм и преимущественную ориентацию кристаллитов в плоскостях (002) и (112).

2) Методами рентгеноструктурного анализа, атомно-силовой микроскопии, растровой электронной микроскопии и спектральной эллипсометрии с применением предложенной оптической модели случайно-распределённых дисков на поглощающей подложке установлено, что уменьшение эффективной толщины исходной композиционной структуры Fe-Si вплоть до 8 нм не меняет технологический регламент получения фазы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$ , которая теперь формируется в виде островков. Дальнейшее уменьшение эффективной толщины (до 6 и 4 нм) композиционной структуры Fe-Si в стехиометрическом соотношении 5:3 также приводит к формированию островковых структур со средним диаметром кластеров 98 и 66 нм и концентрацией поверхностного распределения пересекающихся кластеров 57 и 170 мкм<sup>-2</sup> соответственно, однако в этом случае подтвердить формирование фазы  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  не удалось.

3) Впервые определены дисперсии коэффициентов преломления и поглощения поликристаллической пленки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  (толщиной 27 нм) в диапазоне длин волн 250 ÷ 1000 нм при комнатной температуре с помощью метода спектральной эллипсометрии. Методом магнитоэллипсометрии измерена петля гистерезиса и определены магнитные характеристики структуры  $\text{Fe}_5\text{Si}_3(27 \text{ нм})/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$ , такие как величина коэрцитивной силы  $H_C = 41 \pm 11$  Э и поле насыщения  $H_S = 200 \pm 50$  Э.

4) Впервые измерена дисперсия магнитного кругового дихроизма для поликристаллической плёнки  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  толщиной 27 нм на поверхности  $\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  и эпитаксиальной монокристаллической плёнки  $\text{Fe}_3\text{Si}$  на подложке  $\text{Si}(111)$  методом спектральной магнитоэллипсометрии в диапазоне длин волн 250 ÷ 825 нм. Установлено соответствие выявленных пиков дихроизма и энергий межзонных переходов электронов в этих соединениях, полученных из *ab initio* расчётов спин-зависимой плотности состояний.

**Список сокращений и условных обозначений**

АСМ – атомно-силовая микроскопия

РЭМ – растровая (сканирующая) электронная микроскопия

РСА – рентгеноструктурный анализ

ОЦК – объемно-центрированная кубическая (решетка)

РСФА – рентгеноспектральный флуоресцентный анализ

ПЭМ – просвечивающая электронная микроскопия

МЛЭ – молекулярно-лучевая эпитаксия

ДОБЭ – дифракция отраженных быстрых электронов

СВВ – сверхвысокий вакуум

DOS – density of states (рус. «плотность состояний»)

**Список литературы**

1. Prinz, G.A. Spin-polarized transport // *Physics Today*. – Vol. 48. No. 4. – 1995. – P. 353.
2. Bader, S.D. Spintronics / S.D. Bader, S.S.P. Parkin // *Annual Review of Condensed Matter Physics*. – Vol. 1. – 2010. – P. 71-88.
3. Monsma, D.J. Perpendicular Hot Electron Spin-Valve Effect in a New Magnetic Field Sensor: The Spin-Valve Transistor / D.J. Monsma, J.C. Lodder, Th. J.A. Popma et al. // *Phys. Rev. Lett.* – Vol. 74, No. 26. – 1995. – P. 5260-5263.
4. Srivastava, P.C. Giant magnetoresistance (GMR) in swift heavy ion irradiated Fe films on c-silicon (Fe\_c-Si) / P.C. Srivastava, J.K. Tripathi // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – Vol. 39. – 2006. – P. 1465-1471.
5. Appelbaum, I. Electronic measurement and control of spin transport in silicon / I. Appelbaum, B. Huang, D.J. Monsma // *Nature*. – Vol. 447. – 2007. – P. 295-298.
6. Sawatzky, E. Magnetic and magnetooptical properties of sputtered Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> films / E. Sawatzky // *IEEE Trans. Magn.* – Vol. 7. – 1971. – P. 374-376.
7. Varadwaj, K.S.K. Phase-controlled growth of metastable Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> nanowires by a vapor transport method / K.S.K. Varadwaj, K. Seo, J. In // *J. Am. Chem. Soc.* – Vol. 129. – 2007. – P. 8594-8599.
8. Maeda, Y. Magneto-optical properties of iron based Heusler alloy epitaxial films on Ge(111) / Y. Maeda, T. Ikeda, T. Ichikawa et al. // *Physics Procedia*. – Vol. 11. – 2011. – P. 200–203.
9. Яковлев, И.А. Исследование структурных и магнитных характеристик эпитаксиальных пленок Fe<sub>3</sub>Si/Si(111) / И.А. Яковлев, С.Н. Варнаков, Б.А. Беляев и др. // *Письма в ЖЭТФ*. – Т. 99, вып. 9. – 2014. – С. 610- 613.
10. Nakane, R. Preparation and characterization of ferromagnetic DO<sub>3</sub>-phase Fe<sub>3</sub>Si thin films on silicon-on-insulator substrates for Si-based spin-electronic device applications / R. Nakane, M. Tanaka, S. Sugahara // *Appl. Phys. Lett.* – Vol. 89. – 2006. – P. 192503.

11. Noor, S. Surface morphology and atomic structure of thin layers of  $\text{Fe}_3\text{Si}$  on  $\text{GaAs}(001)$  and their magnetic properties / S. Noor, I. Barsukov, M.S. Özkan et al. // *J. Appl. Phys.* – Vol. 113. – 2013. – P. 103908.
12. Ржанов, А.В. Основы эллипсометрии / А.В. Ржанов, К.К. Свиташев, А.И. Семененко и др. – Новосибирск: Наука, 1979. – 419 с.
13. Горошко, Д.Л. Полупроводниковые нанокompозиты на основе кремния и силицидов: дис. ... докт. физ.-мат. наук: 01.04.10 / Горошко Дмитрий Львович. – Владивосток, 2013. – 255 с.
14. Безбабный, Д.А. Исследование формирования, электронной структуры и свойств пленок полупроводниковых силицидов кальция на  $\text{Si}(111)$ : дис. ... канд. физ.-мат. наук: 01.04.10 / Безбабный Дмитрий Александрович. – Владивосток, 2014. – 126 с.
15. Komogortsev, S.V. Magnetic anisotropy in Fe films deposited on  $\text{SiO}_2/\text{Si}(001)$  and  $\text{Si}(001)$  substrates / S.V. Komogortsev, S.N. Varnakov, S.A. Satsuk et al. // *JMMM.* – Vol. 351. – 2014. – P. 104-108.
16. Варнаков, С.Н. Структурные и магнитные характеристики однослойных и многослойных пленок  $\text{Fe}/\text{Si}$ , полученных термическим испарением в сверхвысоком вакууме / С.Н. Варнаков, А.С. Паршин, С.Г. Овчинников и др. // *Письма в ЖТФ.* – Т. 31, № 22. – 2005. – С. 1-8.
17. Varnakov, S.N. Change in the magnetization of multilayer  $\text{Fe}/\text{Si}$  nanostructures during synthesis and subsequent heating / S.N. Varnakov, S.V. Komogortsev, J. Bartolomé et al. // *The Phys. of Metals and Metallography.* – V.106. – 2008. – P. 51.
18. Диаграмма состояния двойных металлических систем: справочник: В 3 т.: Т. 2 / под общ. ред. Н.П. Лякишева. – М.: Машиностроение, 1997. – 1024 с.
19. Seo, K. Room Temperature Ferromagnetism in Single-Crystalline  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  Nanowires / K. Seo, S. Lee, Y. Jo // *The Journal Of Physical Chemistry Letters C.* – Vol. 113. – 2009. – P. 6902-6905.

20. Тарасов, И.А. Оптические свойства эпитаксиальной пленки силицида железа Fe<sub>3</sub>Si/Si(111) / И.А. Тарасов, З.И. Попов, С.Н. Варнаков и др. // Письма в ЖЭТФ. – Т. 99, вып. 10. – 2014. – С. 651-655.
21. Ionescu, A. Structural, magnetic, electronic, and spin transport properties of epitaxial Fe<sub>3</sub>Si/GaAs(001) / A. Ionescu, C.A.F. Vaz, T. Trypiniotis et al. // Physical Review B. – Vol. 71. – 2005. – P. 094401.
22. Spectroscopic Ellipsometry. Principles and Application / Fujiwara H. – Wiley, 2007. – 369 p.
23. Эллипсометрия / М.М. Горшков. – М.: Сов. Радио, 1974. – 42 с.
24. Qiu, Z.Q. Surface magneto-optic Kerr effect (SMOKE) / Z.Q. Qiu, S.D. Bader // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – V. 200. – 1999. – P. 664-678.
25. Muller, R.H. Macroscopic optical model for the ellipsometry of an underpotential deposit: Lead on copper and silver / R.H. Muller, J.C. Farmer // Surf. Sci. – Vol. 135 – 1983. – P. 521-531.
26. Farmer, J.C Effect of Rhodamine-B on the electrodeposition of lead on copper / J.C. Farmer, R.H. Muller // J. Electrochem. Soc. – Vol. 132. – 1985. – P. 313-319.
27. Spectroscopic ellipsometry of solids, in Optical Properties of Solids: New Developments / D.E. Aspnes. – Chapter 15, North-Holland, Amsterdam. – 1976. – P. 801-846.
28. Azzam, R.M.A. Elipsometry and polarized light / R.M.A. Azzam, N.M. Bashara. – N.-Y.: North Holland Publishing Company, 1977. – 583 p.
29. Lorentz, H.A. Über die Beziehung zwischen der Fortpflanzungsgeschwindigkeit des Lichtes und der Körperdichte / H.A. Lorentz // Ann. der Phys. – Vol. 9. – 1880. – P. 641-665.
30. Aspnes, D.E. Optical properties of thin films / D.E. Aspnes // Thin Solid Films. – Vol. 89. – 1982. – P. 249-262.
31. Bruggeman, D.A.G. Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen / D.A.G. Bruggeman // Ann. der Phys. – Vol. 24. – 1935. – P. 636-664.

32. Greiner, F. Imaging Mie ellipsometry: dynamics of nanodust clouds in an argon–acetylene plasma / F. Greiner, J. Carstensen, N. Kohler // *Plasma Sources Sci. Tech.* – Vol. 21. – 2012. – P. 065005.
33. Борен, К. Поглощение и рассеяние света малыми частицами: пер. с англ. / К. Борен, Д. Хаффман. – М.: Мир, 1986. – 664 с.
34. Light scattering by nonspherical particles: theory, measurements, and applications / M.I. Mishchenko, J.W. Hovenier, L.D. Travis. – Academic press, 1999. – 690 p.
35. Moroz, A. Improvement of Mishchenko's T-matrix code for absorbing particles / A. Moroz // *Applied Optics.* – Vol. 44, Issue 17. – 2005. – P. 3604-3609.
36. Aspnes, D.E. Bounds on allowed values of the effective dielectric function of two-component composites at finite frequencies / D.E. Aspnes // *Phys. Rev. B.* – Vol. 25. – 1982. – P. 1358-1361.
37. Aspnes, D.E. Investigation of effective-medium models of microscopic surface roughness by spectroscopic ellipsometry / D.E. Aspnes, J.B. Theeten, F. Hottier // *Phys. Rev. B.* – V. 20, No. 8. – 1979. – P. 3292-3304.
38. Koh, J. Correlation of real time spectroellipsometry and atomic force microscopy measurements of surface roughness on amorphous semiconductor thin films / J. Koh, Y. Lu, C.R. Wronski et al. // *Appl. Phys. Lett.* – Vol. 69. – 1996. – P. 1297-1299.
39. Латышев, А.В. Моноатомные ступени на поверхности кремния / А.В. Латышев, А.Л. Асеев // ИФП СО РАН. – Новосибирск: Издательство СО РАН. – 2006. – 242 с.
40. Zak, J. Universal approach to magneto-optics / J. Zak, E.R. Moog, C. Liu, S.D. Bader // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* – 1990. – Vol. 89. – P. 107.
41. Физика магнитных явлений / Г.С. Кринчик. – М., Изд-во Моск. ун-та, 1976. – 367 с.
42. Hulme, H.R. The Faraday Effect in Ferromagnetics / H.R. Hulme // *Proceedings of the Royal Society of London. Series A.* – Vol. 135, No. 826. – 1932. – P. 237.
43. Kittel, C. Relaxation Process in Ferromagnetism / C. Kittel, E. Abrahams // *Rev. Mod. Phys.* – Vol. 25. – 1953. – P. 233-238.

44. Argyres, P.N. Theory of the Faraday and Kerr Effects in Ferromagnetics / P.N. Argyres // Phys. Rev. – Vol. 97. – 1955. – P. 334-345.
45. Shen, Y.R. Faraday Rotation of Rare-Earth Ions. I. Theory / Y.R. Shen // Phys. Rev. – Vol. 133. – 1964. – P. A511-A515.
46. Erskine, J.E. Magneto-optic Kerr Effect in Ni, Co, and Fe / J.E. Erskine, E.A. Stern // Phys. Rev. Let. – Vol. 30. – 1973. – P. 1329-1332.
47. Лященко, С.А. Исследование оптических и магнитооптических спектров магнитных силицидов  $\text{Fe}_5\text{Si}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$  методом спектральной магнитоэллипсометрии / С.А. Лященко, З.И. Попов, С.Н. Варнаков и др. // ЖЭТФ. – Т. 147, № 5. – 2015.
48. Оптические свойства металлов / А.В. Соколов. – М: Физматгиз, 1961. – 464 с.
49. Krinchik, G.S. Magneto-optical properties of Ni, Co, and Fe in the ultraviolet visible, and infrared parts of the spectrum / G.S. Krinchik, V.A. Artem'ev // Zh. Eksp. Teor. Fiz. – Vol. 53. – 1967. – P. 1901-1912.
50. Penfold, C. Transverse magneto-optical Kerr effect: the phase change of reflected light / C. Penfold, R.T. Collins, A.P.B. Tufaile, Y. Souche // Journal of Magnetism and Magnetic Materials 242–245. – 2002. – P. 964-966.
51. Лященко, С.А. Исследования магнитооптических свойств тонких слоев Fe *in situ* методами / С.А. Лященко, И.А. Тарасов, С.Н. Варнаков и др. // ЖТФ. – Т. 83, № 10. – 2013. – С. 139-142.
52. Александров, Е.Б. Лазерная магнитная спектроскопия / Е.Б. Александров, В.С. Запасский. – Наука, Москва, 1986. – 280 с.
53. Wakagi, M. Real time spectroscopic ellipsometry for characterization of the crystallization of amorphous silicon by thermal annealing / M. Wakagi, H. Fujiwara, R. W. Collins // Thin Solid Films. – V. 313–314. – 1998. – P. 464-468.
54. Jellison, G.E. Use of the biased estimator in the interpretation of spectroscopic ellipsometry data / G.E. Jellison // Appl. Opt. – V. 30. – 1991. – P. 3354-3360.
55. Техническое описание и инструкция по эксплуатации установки «Ангара»: Новосибирск, 1986. – 21 с.



56. Комплекс виртуальных лабораторных работ КЛР 1.0 [Электронный ресурс] / С.А. Лященко, И.А. Яковлев, С.Н. Варнаков, Р.В. Мосин. – Красноярск: СибГАУ, 2013. – (Программа ЭВМ. Свидетельство о гос. рег. № 2013660341 от 31.01.2013).
57. Оптика, 4 изд. / Г.С. Ландсберг. – М.: ГИТТЛ, 1957. – 749 с.
58. Преображенский, А.А. Магнитные материалы и элементы / А.А. Преображенский, Е.Г. Бишард. – М.: Высшая школа, 1986. – 350 с.
59. Швец, В.А. Анализ статической схемы эллипсометрических измерений / В.А. Швец, Е.В. Спесивцев, С.В. Рыхлицкий // Оптика и спектр. – Т. 97, № 3. – 2004. – С. 514-525.
60. Быстродействующий спектральный эллипсомер. Техническое описание и инструкция по эксплуатации / Новосибирск: Наука, 1978. – 424 с.
61. Рыхлицкий, С.В. Измерительно-ростовой комплекс для синтеза и исследования *in situ* материалов спинтроники / С.В. Рыхлицкий, В.А. Швец, Е.В. Спесивцев и др. // ПТЭ. – № 2. – 2012. – С. 165-166.
62. Автоматизированный комплекс для управления технологическими процессами получения тонких структур металла на полупроводнике, используя измерение и анализ магнитоэллипсометрических данных (Valnadin Auto) [Электронный ресурс] / С.А. Лященко, И.А. Тарасов, Д.В. Шевцов, С.Н. Варнаков, С.Г. Овчинников. – Красноярск: ИФ СО РАН, 2013. – (Программа ЭВМ. Свидетельство о гос. рег. № 2013617818 от 08.07.2013).
63. Основы сканирующей зондовой микроскопии / В.Л. Миронов. – Институт физики микроструктур РАН, Нижний Новгород, 2004. – 110 с.
64. Гоулдстейн, Дж. Растровая электронная микроскопия и рентгеновский микроанализ: в двух книгах. Пер. с англ. / Дж. Гоулдстейн, Д. Ньюбери, П. Эчлин и др. – М.: Мир, 1984. – 303 с.
65. Гоулдстейн, Дж. Практическая растровая электронная микроскопия / Дж. Гоулдстейн, Х. Яковиц. – М.: Мир, 1978. – 656 с.
66. Масловская, А.Г. Анализ тепловых эффектов, возникающих при взаимодействии электронных пучков с сегнетоэлектрическими кристаллами /

- А.Г. Масловская // Известия высших учебных заведений. Физика. – Т. 53, № 1. – 2010. – С. 34-40.
67. Рентгеноспектральный флуоресцентный анализ в геологии и геохимии / А.В. Бахтиаров. – Ленинград: Недра, 1985. – 144 с.
68. Moseley, H.G.J. XCIII. The high-frequency spectra of the elements / H.G.J. Moseley // The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science. – Vol. 26, No. 156. – 1913. – P. 1024-1034.
69. X-ray Diffraction / B.E. Warren. – Courier Corporation. New York, 1969. – 381 p.
70. Fujiwara, H. Real-time spectroscopic ellipsometry studies of the nucleation and grain growth processes in microcrystalline silicon thin films / H. Fujiwara, M. Kondo, A. Matsuda // Phys. Rev. B. – Vol. 63. – 2001. – P. 115306-1-9.
71. Fang, S.J. Comparison of Si surface roughness measured by atomic force microscopy and ellipsometry / S.J. Fang, W. Chen, T. Yamanaka, C.R. Helms // Appl. Phys. Lett. – Vol. 68. – 1996. – P. 2837-2839.
72. Erman, M. Optical properties and damage analysis of GaAs single crystals partly amorphized by ion implantation / M. Erman, J.B. Theeten, P. Chambon et al. // J. Appl. Phys. – Vol. 56. – 1984. – P. 2664-2671.
73. Snyder, P.G. Modeling Al\_Ga\_As optical constants as functions of composition / P.G. Snyder, J.A. Woollam, S.A. Alterovitz, B. Johs // J. Appl. Phys. – Vol. 68. – 1990. – P. 5925-5926.
74. Смолуховский, М. Опыт математической теории кинетики коагуляции коллоидных растворов // Коагуляция коллоидов. М.: ОНТИ, 1936. – С. 7-39.
75. Pike, G.E. Percolation and conductivity – A computer study / G.E. Pike, C.H. Seager // Phys. Rev. B. – Vol. 10, No. 4. – 1974. – P. 1421-1434.
76. Kertesz, J. Monte Carlo Renormalization Group Study of the Percolation Problem of Discs with a Distribution of Radii / J. Kertesz, T. Vicsek // Z. Phys. B – Condensed Matter. – Vol. 45. – 1982. – P. 345-350.
77. Ottavi, H. Percolation in a continuous two-dimensional medium / H. Ottavi, J.P. Gayda // J. Phys. France. – Vol. 35, No. 9. – 1974. – P. 631-633.

78. Осадченко В.А., Трофимов В.И., Коллоидный журнал. – Т. 47, № 3. – 1985. – С. 539-544.
79. Кендалл, М. Геометрические вероятности. Под. ред. Ю.В. Прохорова. Перевод с англ. Р. В. Амбарцумяна / М. Кендалл, П. Моран. – М.: Наука, 1972. – 192 с.
80. Sophocles J. Orfanidis, *Electromagnetic Waves and Antennas* [Электронный ресурс]. 2013. – URL: <http://www.ece.rutgers.edu/~orfanidi/ewa>. Дата обращения: 10 января 2015.
81. Rakić, A.D. Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices / A.D. Rakić, A.B. Djurišić, J.M. Elazar, M.L. Majewski // *Appl. Opt.* – Vol. 37. – 1998. – P. 5271-5283.
82. Aspnes, D.E. Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV / D.E. Aspnes, A.A. Studna // *Phys. Rev. B.* – Vol. 27. – 1983. – P. 985-1009.
83. Maksimova, O.A. Features of the ellipsometric investigation of magnetic nanostructures / O.A. Maksimova, N.N. Kosyrev, S.N. Varnakov et al. // *Journal of Structural Chemistry.* – Vol. 55, No. 6. – 2014. – P. 1134-1141.
84. Neuber, G. Generalized magneto-optical ellipsometry in ferromagnetic metals / G. Neuber, R. Rauer, J. Kunze et al. // *Thin Solid Films*, 455 – 456. – 2004. – P. 39.
85. Rauer, R. Temperature-dependent spectral generalized magneto-optical ellipsometry for ferromagnetic compounds / R. Rauer, G. Neuber, J. Kunze et al. // *Rev. Sci. Instrum.* – Vol. 76. – 2005. – P. 023910.
86. Barton, D. Ellipsometer analysis in the n–k plane / D. Barton, F.K. Urban III // *Thin Solid Films.* – Vol. 516. – 2007. – P. 119-127.
87. Nelder, J.A. A simplex method for function minimization / J.A. Nelder, R. Mead // *The computer journal.* – Vol. 7, No. 4. – 1965. – P. 308-313.
88. Urban III, F.K. Numerical ellipsometry: Analysis of thin metal layers using n–k plane methods with multiple incidence angles / F.K. Urban III, D. Barton, T. Tiwald // *Thin Solid Films.* – Vol. 518. – 2009. – P. 1411-1414.

89. Балашев, В.В. Влияние дефектов тонкого слоя оксида кремния на процессы силицидообразования в системе Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(001) / В.В. Балашев, В.В. Коробцов, Т.А. Писаренко и др. // ФТТ. – Т. 51, вып. 3. – 2009. – С. 565-571.
90. Технология микроэлектронных устройств: Справочник / З.Ю. Готра. – М.: Радио и связь, 1991. – 528 с.
91. Savitzky, A. Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures / A. Savitzky, M.J.E. Golay // Analytical Chemistry. – Vol. 36 (8). – 1964. – P. 1627-39.
92. Bruker AXS TOPAS V4: General profile and structure analysis software for powder diffraction data. – User's Manual. Bruker AXS, Karlsruhe, Germany, 2008.
93. Errandonea, D. Structural stability of Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> and Ni<sub>2</sub>Si studied by high-pressure x-ray diffraction and ab initio total-energy calculations / D. Errandonea, D. Santamaría-Perez, A. Vegas et al. // Physical Review B. – Vol. 77. – 2008. – P. 094113.
94. Kresse, G. Ab initio molecular dynamics for liquid metals / G. Kresse, J. Hafner // Phys. Rev. B. – Vol. 47. – 1993. – P. 558-561.
95. Kresse, G. Efficiency of ab-initio total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set / G. Kresse, J. Furthmüller // Computational Materials Science. – Vol. 6. – 1996. – P. 15-50.
96. Хемди, А. Таха, Введение в исследование операций. Глава 3. Симплекс-метод. 7-е изд. / Хемди А. Таха – М.: Вильямс. – 2007. – С. 95-141.
97. Методы оптимизации: пособие / Р. Габасов и др. – Минск: Издательство «Четыре четверти», 2011. – 472 с.
98. Volkov, N.V. Magnetic-field- and bias-sensitive conductivity of a hybrid Fe/SiO<sub>2</sub>/p-Si structure in planar geometry / N.V. Volkov, A.S. Tarasov, E.V. Eremin et al. // Journal Of Applied Physics. – Vol. 109. – 2011. – P. 123924.
99. Mathews, J.H. Numerical methods. Using Matlab / J.H. Mathews, K.D. Fink. – Prentice Hall, Jersey, 2001. – 715 p.

100. Тарасов, И.А. Эллипсометрическая экспресс-методика определения толщины и оптических постоянных в процессе роста наноструктур Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) / И.А. Тарасов, Н.Н. Косырев, С.Н. Варнаков и др. // ЖТФ. – Т. 82, вып. 9. – 2012. – С. 44-48.
101. Johnson, P.V. Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd / P.V. Johnson, R.W. Christy // Phys. Rev. B. – Vol. 9, No. 12. – 1974. – P. 5056-5070.
102. Яковлев, И.А. Получение, структура и магнитные свойства тонкоплёночных силицидов железа: дис. ... канд. физ.-мат. наук: 01.04.07 / Яковлев Иван Александрович. – Красноярск, 2014. – 139 с.
103. Гребенькова, Ю.Э. Намагниченность и магнитный круговой дихроизм поликристаллических плёнок La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/YSZ / Ю.Э. Гребенькова, А.Э. Соколов, Е.В. Еремин и др. // Физика твёрдого тела. – Т. 55, вып. 4. – 2013. – С. 771-778.
104. Blöchl, P.E. Projector augmented-wave method / P.E. Blöchl // Phys. Rev. B. – Vol. 50. – 1994. – P. 17953-17979.
105. Kresse, G. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method / G. Kresse, G.D. Joubert // Phys. Rev. B. – Vol. 59. – 1999. – P. 1758.
106. Monkhorst, H.J. Special points for Brillouin-zone integrations / H.J. Monkhorst, J.D. Pack // Phys. Rev. B. – Vol. 13, No. 12. – 1976. – P. 5188-5192.
107. Hamaya, K. Epitaxial ferromagnetic Fe<sub>3</sub>Si/Si(111) structures with high-quality heterointerfaces / K. Hamaya, K. Ueda, Y. Kishi et al. // Appl. Phys. Lett. – Vol. 93. – 2008. – P. 132117.
108. Ando, Y. Magnetic properties of epitaxially grown Fe<sub>3</sub>Si/Ge(111) layers with atomically flat heterointerfaces / Y. Ando, K. Hamaya, K. Kasahara et al. // Journal of Applied Physics. – Vol. 105. – 2009. – P. 07B102.