# Влияние диффузии и напряжений на магнитные свойства многослойных пленок Fe/Pd и Fe/Ge

© Л.А. Чеботкевич\*,\*\*, А.В. Огнев\*,\*\*, Ю.П. Иванов\*, К. Lenz\*\*\*, А.И. Ильин\*, К.С. Ермаков\*

\* Институт физики и информационных технологий Дальневосточного государственного университета, Владивосток, Россия

\*\* Институт автоматики и процессов управления Дальневосточного отделения Российской академии наук, Владивосток, Россия

\*\*\* Freie Universität Berlin,

Berlin, Germany

E-mail: lach@phys.dvgu.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 29 января 2009 г.)

Многослойные пленки [Fe/Pd]<sub>10</sub> и [Fe/Ge]<sub>10</sub> исследовали методами ферромагнитного резонанса, магнитно-силовой и атомно-силовой микроскопии, манитооптическим эффектом Керра, рентгеноструктурным анализом. Показано, что с увеличением толщины прослойки изменяются такие магнитные параметры, как наведенная анизотропия, эффективная намагниченность, коэрцитивная сила и параметры тонкой магнитной структуры. Установлены причины изменения магнитных параметров.

Работа поддержана программой "Квантовые наноструктуры" (грант ДВО РАН П1-005), РФФИ (грант № 08-02-00587-а), программой сотрудничества "Михаил Ломоносов" DAAD (грант № А/06/17782), BRIDGE Research Co-operation project (RC 17).

PACS: 75.30.Gw, 75.60.-d, 75.70.-i

#### 1. Введение

Интерес к исследованию свойств наноразмерных магнитно-неоднородных материалов не ослабевает вследствие перспектив их практического применения. Так, многослойные наноструктуры, состоящие из чередующихся слоев типа ферромагнетик/парамагнетик и ферроманетик/полупроводник, находят применение в качестве сред для записи информации со сверхвысокой плотностью [1,2], сенсоров магнитных полей с высокой чувствительностью, магниторезистивной памяти с произвольной выборкой [3]. В последние годы особенно актуальны исследования спиновой поляризации при прохождении тока в структурах ферромагнетик/полупроводник, управлять которой можно, изменяя магнитное состояние наноструктуры внешним полем [4]. Известно, что магнитная структура и динамика процессов перемагничивания во многом определяются магнитной анизотропией K<sub>u</sub> и коэрцитивной силой H<sub>C</sub>. В случае однослойных поликристаллических пленок толщиной несколько десятков нанометров К<sub>и</sub> зависит от магнитострикционных напряжений, предпочтительной ориентации неоднородностей и эффектов затенения в процессе роста [5-7]. С уменьшением толщины пленок заметную роль начинают играть эффекты, обусловленные поверхностями раздела. Их влияние многократно усиливается в многослойных пленках. Комбинируя материалы, можно создать мультислои с различной структурой интерфейсов. Это позволяет конструировать материалы с требуемыми магнитными параметрами.

В настоящей работе мы исследовали многослойные пленки Fe/Ge и Fe/Pd с разными интерфейсными границами и кристалической структурой, что позволило нам изучить их влияние на магнитные свойства. Так, для системы Fe/Ge характерна взаимодиффузия, которая приводит к образованию размытых интерфейсов [8], а в пленках Fe/Pd диффузия практически отсутствует и интерфейсы должны быть резкими [9].

В многослойных пленках наличие осцилляции косвенной обменной связи между ферромагитными слоями [10] приводит к значительным изменениям величин магнитосопротивления (эффект гигантского магнитосопротивления), полей насыщения, коэрцитивной силы, а также к трансформациям магнитной структуры [11]. В случае антиферромагнитного выстраивания магнитных моментов смежных слоев величина коэрцитивной силы максимальна. Поэтому для уменьшения вклада, обусловленного косвенной связью, необходимо, чтобы она была слабой. Интересной особенностью системы Fe/Ge является осутствие антиферромагнитной (АФМ) косвенной обменной связи в диапазоне толщин d<sub>Ge</sub> от 0.5 до 4.5 nm [12], что позволяет не учитывать ее вклад в магнитные свойства. Для пленок Fe/Pd в ряде работ показано наличие признаков слабого АФМ-взаимодействия [13,14], в то время как в работе [10] говорится об отсутствии АФМ-связи в таких пленках.

В настоящей работе мы исследуем тонкую магнитную структуру и магнитные свойства (магнитную анизотропию, намагниченность и коэрцитивную силу) многослойных пленок Fe/Pd и Fe/Ge и влияние на них процессов диффузии и внутренних напряжений.

#### 2. Методика эксперимента

Пленки [Fe/Pd]<sub>10</sub> и [Fe/Ge]<sub>10</sub> получали термическим испарением в высоком вакууме. Перед осаждением Fe на естественно окисленые монокристаллические Si(111)-подложки напыляли буферный слой Ge или Pd толщиной 3 nm. Сверху мультислои покрывали слоем Ge или Pd толщиной 3 nm. Толщина слоев железа во всех пленках была одинаковой,  $d_{\rm Fe} = 1$  nm, а толщина прослоек  $d_{\rm Ge}$  и  $d_{\rm Pd}$  изменялась в интервале от 0.5 до 2.5 nm. Толщина слоев контролировалась кварцевым измерителем толщин. Все пленки осаждались на подложки при комнатной температуре.

Структуру пленок определяли методом рентгеноструктурного анализа. Поле магнитной анизотропии H<sub>a</sub> измеряли методом ферромагнитного резонанса на частотах 4.9 и 34 GHz,  $H_a = (H_{ha} - H_{ea})/2$ , где  $H_{ha}$  и  $H_{ea}$  резонансные поля в направлении осей трудного и легкого намагничивания. Коэрцитивную силу Н<sub>С</sub> определяли по петлям магнитного гистерезиса, полученным магнитооптическим эффектом Керра (NanoMOKE-2) и индукционным методом на автоматизированном вибромагнитометре. Для получения изображения тонкой магнитной структуры пленок использовали метод магнитной силовой микроскопии (МСМ). Параметры тонкой магнитной структуры (период длинноволновой  $\lambda_{LR}$  и коротковолновой λ<sub>SR</sub> ряби намагниченности, коэффициент анизотропии магнитных неоднородностей у и угол дисперсии вектора намагниченности  $\phi$ ) определяли, используя спектральный Фурье-анализ изображений тонкой магнитной структуры. Шероховатости поверхностей исследовали методом атомной силовой микроскопии.

## 3. Результаты и их обсуждение

Рентгеноструктурный анализ показал, что все пленки  $[Fe/Pd]_{10}$  имеют кристаллическую структуру. На представленном фрагменте дифрактограммы пленки  $[Fe/Pd]_{10}$  явно видны дифракционные максимумы, принадлежащие Pd ( $2\theta = 40.1^{\circ}$ ) и Fe ( $2\theta = 44.6$  и  $64.7^{\circ}$ ) (рис. 1). На фрагменте дифрактограммы пленки  $[Fe/Ge]_{10}$  в районе  $2\theta = 27.28^{\circ}$  наблюдается размытый пик, принадлежащий Ge. Это указывает на то, что Ge (и, вероятно, Fe–Ge) находится в аморфном состоянии. Отсутствие явно выраженного пика Fe свидетельствут о том, что в пленках присутствует только небольшая доля слоев Fe, свободная от атомов примеси. Интенсивный пик на рис. 1 принадлежит Si.

Методом подгонки теоретической кривой резонансного поля  $H_{\rm res} = f(\alpha)$  к экспериментальной кривой определяли  $M_{\rm eff}$ , где  $\alpha$  — угол между внешним магнитным полем и осью легкого намагничивания. Константа наведенной магнитной анизотропии  $K_u = H_a M_{\rm eff}/2$ и значение эффективной намагниченности  $M_{\rm eff}$  в зависимости от толщины прослоек Pd и Ge представлены на рис. 2. Точка на графике, соответствующая d = 0, относится к пленке Fe толщиной 10 nm, осажденной на 3 nm-буфер Pd и покрытой сверху 3 nm-слоем Pd. Значение наведенной анизотропии пленок [Fe/Pd]<sub>10</sub> не изменяется до толщин  $d_{\rm Pd} = 2$  nm и только при  $d_{\rm Pd} > 2$  nm  $K_u$  резко уменьшается. В пленках [Fe/Ge]<sub>10</sub>



**Рис. 1.** Фрагмент дифрактограмм многослойных пленок  $[Fe/Pd]_{10}$  (*a*) и  $[Fe/Ge]_{10}$  (*b*) с  $d_{Pd} = d_{Ge} = 2.5$  nm.



**Рис. 2.** Зависимость наведенной анизотропии  $K_u$  (1, 2) и эффективной намагниченности  $M_{\text{eff}}$  (3, 4) от толщины прослойки. 1, 3 — пленки [Fe/Pd]<sub>10</sub>, 2, 4 — пленки [Fe/Ge]<sub>10</sub>.

наблюдается иная картина. С увеличением толщины плослойки Ge  $K_u$  резко падает, и при  $d_{\text{Ge}} > 2 \,\text{nm}$  значение наведенной анизотропии стабилизируется. Эффективная намагниченность пленок обоих типов уменьшается с увеличением толщины плослойки. Однако скорость падения  $M_{\text{eff}}$  в пленках с плослойками Pd меньше, чем в пленках с прослойками Ge.

Известно, что атомы Ge хорошо диффундируют в Fe [8], в то время как атомы Pd проникают в Fe всего на 1-2 атомных слоя Fe ( $\approx 0.4$  nm) [15]. С другой стороны, несоответствие параметров решетки Fe и Ge мало́ и составляет ~ 1.3%, а несоответствие параметров решетки Fe и Pd большое, ~ 26.3%. Падение намагниченности в пленках [Fe/Ge]<sub>10</sub> обусловлено взаимодиффузией атомов Fe и Ge. Согласно фазовой диаграмме [16], в системе Fe–Ge образуются как слабомагнитные, так и немагнитные фазы. В пленках [Fe/Pd]<sub>10</sub> несоответствие параметров решеток Pd и Fe компенсируется упругими деформациями и дислокациями несоответствия. Образование дислокаций несоответствия приводит к уменьшению размеров зерен. Упругие деформации в зернах были



Рис. 3. Изображения МСМ тонкой магнитной структуры многослойных пленок  $[Fe/Pd]_{10}$  (a-e) и  $[Fe/Ge]_{10}$  (f-j). Толщина прослоек Pd и Ge равна 0.5 (a, f), 1.0 (b, g), 1.5 (c, h), 2.0 (d, i) и 2.5 nm (e, j). На вставках приведено распределение энергии спектра в угловых секторах.

оценены из выражения [17]:

$$\varepsilon = -\frac{3ba_{\rm Fe}\ln[2\beta(1+\beta^2)^{1/2}-2\beta^2]}{[1+(\mu_{\rm Fe}/\mu_{\rm Pd})](a_{\rm Fe}+a_{\rm Pd})2R},$$

где  $\beta = 2\pi\mu_1 b/D_H (1-\nu)[1+(\mu_{\rm Fe}/\mu_{\rm Pd})]\mu_{\rm Fe/Pd}$  — параметр, характеризующий степень несоответствия между решетками,  $b = a_1 a_2/(a_1 + a_2)$ ,  $D_H = a_{\text{Fe}} a_{\text{Pd}}/(a_{\text{Fe}} - a_{\text{Pb}})$ ,  $\mu_i$  — модуль сдвига,  $a_i$  — параметр решетки  $(a_{\rm Fe} = 0.2866 \,\mathrm{nm}, a_{\rm Pd} = 0.389 \,\mathrm{nm}), v$  — коэффициент Пуассона ( $\nu = 0.3$ ),  $2R = 5 \, \text{nm}$  — размер зерна. Деформация равна  $\varepsilon \approx -3 \cdot 10^{-3}$ . Магнитная анизотропия, наведенная внутренними напряжениями (деформациями),  $K = \frac{3}{2} \lambda \sigma \approx -1.8 \cdot 10^4 \, \mathrm{erg/cm^3}$ , где  $\lambda = -1 \cdot 10^{-5}$  константа магнитострикции Fe,  $\sigma = G\varepsilon$ , G = $= 4 \cdot 10^{11} \, \text{dyn/cm}^2$  — модуль сдвига (внутренние напряжения и деформации имеют противоположные знаки). Так как K < 0, в пленке наводится анизотропия, перпендикулярная поверхности пленки. Поэтому намагниченность будет иметь составляющую, нормальную к поверхности пленки. Это позволило нам исследовать магнитную структуру в этих пленках методом МСМ.

На рис. З приведены изображения МСМ тонкой магнитной структуры пленок  $[Fe/Ge]_{10}$  и  $[Fe/Pd]_{10}$ . Из рисунка видно, что тонкая магнитная структура зависит как от материала, так и от толщины плослойки. На изображении МСМ пленки  $[Fe/Ge]_{10}$  с  $d_{Ge} = 2$  nm тонкая магнитная структура дисперсна, и выделить визуально период ряби очень сложно, а в пленках с  $d_{Ge} = 2.5$  nm рябь вообще отсутствует.

Для количественной оценки параметров магнитных неоднородностей и их распределения проводился спектральный анализ изображений МСМ. Методом интегрально-пространственной характеристики Фурье-спектров определены  $\lambda_{LR}$  и  $\lambda_{SR}$ . Анизотропия магнитных неоднородностей определялась по распределению энергии спектра в угловых секторах. Коэффициент анизотропии магнитных неоднородностей  $\gamma$ рассчитывался как отношение максимальной энергии к минимальной в секторе. В правом верхнем углу изображений доменной структуры приведено распределение энергии спектра в угловых секторах для всех исследуемых пленок. Угол дисперсии вектора намагниченности определялся как  $\varphi = \operatorname{arctg}(1/\gamma)$ .

На рис. 4 приведены зависимости  $\lambda_{LR} = f(d)$ и  $\varphi = f(d)$ . Видно, что 1) период длинноволновой ряби  $\lambda_{LR}$  в пленках с прослойками Рd больше, чем с прослойками Ge; 2)  $\lambda_{LR}$  и  $\varphi$  возрастают с увеличением толщины прослойки.

На рис. 5 приведена зависимость коэрцитивной силы  $H_C$  от толщины прослойки многослойных пленок [Fe/Pd]<sub>10</sub> и [Fe/Ge]<sub>10</sub>. В обеих пленках  $H_C$  уменьшается с увеличением толщины прослойки. Существует несколько причин, приводящих к изменению величины коэрцитивной силы: внутренние напряжения из-за несоответствия параметров решетки ферромагитных слоев и прослоек; уменьшение намагниченности многослойных пленок из-за перемешивания; изменение радиуса ферромагнитной корреляции, аморфизация пленки. Коэрци-



**Рис. 4.** Зависимость периода длинноволновой ряби  $\lambda_{LR}$  (*1*, 2) и угла дисперсии вектора намагниченности  $\varphi$  (*3*, 4) от толщины прослойки. *1*, 3 — пленки [Fe/Pd]<sub>10</sub>, 2, 4 — пленки [Fe/Ge]<sub>10</sub>.



**Рис. 5.** Зависимость коэрцитивной силы  $H_C$  и коротковолновой ряби  $\lambda_{SR}$  (на вставке) от толщины прослоек многослойных пленок. Точки — экспериментальные значения для пленок [Fe/Pd]<sub>10</sub> (*I*) и [Fe/Ge]<sub>10</sub> (*2*), штриховые линии — теоретически оцененные значения  $H_C$ .

тивную силу пленок оценивали по формуле [18]

$$H_C = P \langle K_a \rangle / M_{\text{eff}},$$

где  $\langle K_a \rangle = K_1(R_C/R_f), R_C$  — размер зерна,  $R_f$  — радиус ферромагнитной корреляции,  $K_1$  — константа кристаллографической анизотропии Fe, P — кооэффициент пропорциональности для случайно распределенных зерен [19]. Радиус ферромагнитной корреляции соизмерим с коротковолновой компонентой тонкой магнитной структуры  $\lambda_{SR}$  ( $R_f \approx \lambda_{SR}$ ). На вставке к рис. 5 приведена зависимость  $\lambda_{SR} = f(d)$ .

Возрастание  $\lambda_{SR}$  в многослойных пленках [Fe/Pd]<sub>10</sub> с увеличением толщины плослойки Pd свидетельствует об уменьшении размера зерен [20]. С ростом  $d_{\rm Pd}$  увеличиваются внутренние напряжения, что сопровождается измельчением зерен. В пленках [Fe/Ge]10, в которых наблюдается аморфизация, коротковолновая компонента ряби практически не изменяется. На рис. 5 приведены рассчитанные значения Н<sub>С</sub> (штриховые линии). Видно хорошее согласие рассчитанных значений с экспериментальными данными для пленок [Fe/Pd]<sub>10</sub>. Для пленок  $[Fe/Ge]_{10}$  при толщине  $d_{Ge} \ge 2 \,\mathrm{nm}$  определить параметры ряби намагничивания оказалось невозможно, так как из-за резкого уменьшения намагниченности пленки уменьшается магнитный контраст. Н<sub>С</sub> в пленках [Fe/Pd]<sub>10</sub> спадает медленнее, чем в пленках [Fe/Ge]<sub>10</sub>. Это обстоятельство связано с тем, что в пленках [Fe/Pd]10 присутствуют причины, которые могут приводить и к возрастанию  $H_C$  (внутренние напряжения), и к уменьшению Н<sub>С</sub> (увеличение коротковолновой компоненты ряби  $\lambda_{SR}$ ). Сильное уменьшение коэрцитивной силы в многослойных пленках  $[Fe/Ge]_{10}$  при  $d_{Ge} = 2.5 \,\mathrm{nm}$ обусловлено аморфизацией пленок.

Отсутствие осцилляций на кривых  $K_u = f(d)$ и  $H_C = f(d)$ , а также трансформаций магнитной структуры [21] свидетельствует о том, что в этих пленках присутствует только косвенная ферромагнитная связь между слоями Fe.

#### 4. Заключение

Исследованы  $[Fe/Pd]_{10}$ многослойные пленки и [Fe/Ge]10, полученные термическим осаждением на естественно окисленные монокристаллы Si(111). Показано, что с увеличением толщины прослоек эффективная намагниченность, наведенная анизотропия и коэрцитивная сила уменьшаются, а угол дисперсии вектора намагниченности, период коротковолновой и длинноволновой ряби намагниченности возрастают. Установлено, что изменения магнитных параметров в пленках [Fe/Ge]<sub>10</sub> связаны в основном с процессами взаимной диффузии атомов Ge и Fe и аморфизацией, а в пленках [Fe/Pd]<sub>10</sub> обусловлены внутренними напряжениями из-за несоответствия параметров решетки Pd и Fe.

Авторы выражают благодарность А. Nogaret и А. Samardak за помощь в получении пленок и W. Kuch, M. Charilaou за помощь в проведении исследований методом ФМР.

## Список литературы

- Advanced magnetic nanostructures / Eds D. Sellmyer, R. Skomski. Springer, N. Y. (2006). 508 p.
- [2] M.F. Toney, J.A. Borchers, K.V. O'Donovan, C.F. Majkrzak, D.T. Margulies, E.E. Fullerton. Appl. Phys. Lett. 86, 162 506-1 (2005).
- [3] J.M. Daughton, A.V. Pohm, R.T. Fayfield, C.H. Smith. J. Phys. D: Appl. Phys. 32, 169 (1999).

- [4] R. Jansen. Nature Phys. 3, 521 (2007).
- [5] З. Малек, В. Шюппель. В кн.: Тонкие ферромагнитные пленки / Под ред. Р.В. Телеснина. Мир, М. (1964). С. 61.
- [6] M. Takahashi. J. Appl. Phys. 33, 110 (1962).
- [7] А.Г. Лесник. Наведенная магнитная анизотропия. Наук. думка, Киев (1976). 164 с.
- [8] M. Schleberger, P. Walser, M. Hunziker, M. Landolt. Phys. Rev. B 60, 20, 14360 (1999).
- [9] L. Cheng, Z. Altounian, D.H. Ryan, J.O. Strom-Olsen. J. Appl. Phys. 91, 10, 7188 (2002).
- [10] S.S.P. Parkin. Phys. Rev. Lett. 67, 25, 3598 (1991).
- [11] А.В. Огнев, Ю.П. Иванов, Б.Н. Грудин, Л.А. Чеботкевич. ФММ 100, 6, 42 (2005).
- [12] P. Wandziuk, T. Lucinski, M. Kopcewicz. Mater. Sci. Poland 24, 3, 861 (2006).
- [13] J.R. Childress, R. Kargoat, O. Durand, J.M. George, P. Galtier, J. Miltat, A. Schuhl. J. Magn. Magn. Mater. 130, 13, 275 (1994).
- [14] M. Li, X.D. Ma, C.B. Pengetal. J. Appl. Phys. 77, 3965 (1995).
- [15] L. Cheng, Z. Altounian, D.H. Ryan, J.O. Strom-Olsen, M. Sutton. Phys. Rev. B 69, 144 4403-1 (2004).
- [16] Диаграммы состояния двойных металлических систем. Справочник / Под ред. Н.П. Лякишева. Машиностроение, М. (1997). Т. 2. С. 494.
- [17] Л.С. Палатник, М.Я. Фукс, В.М. Косевич. Механизм образования и субструктура конденсированных пленок. Наука, М. (1972). 348 с.
- [18] G. Herzer. IEEE Trans. Magn. 26, 5 (1990).
- [19] А.В. Огнев, Ю.Д. Воробьев, Л.А. Чеботкевич. ФММ 97, 6, 47 (2004).
- [20] Л.А. Чеботкевич, Л.А. Юдина, Л.Г. Кашина, В.В. Ветер. ФММ 39, 6 (1975).
- [21] Л.А. Чеботкевич, Ю.П. Иванов, А.В. Огнев. ФТТ 49, 11, 2039 (2007).