

05

ФМР-исследование магнитной анизотропии эпитаксиальных тонких пленок CrO₂

© Б.З. Рамеев, А. Гупта, Г. Мяо, Г. Ксяо, Ф. Йылдыз,
Л.Р. Тагиров, Б. Акташ

Казанский физико-технический институт,
420029 Казань, Россия
Институт технологии Гебзе, 41400 Гебзе-Коджаели, Турция
E-mail: rameev@gyte.edu.tr
Университет Алабамы, Тускалуса, Алабама 35487, США
Университет Брауна, Провиденс, Род Айленд 02912, США
Казанский государственный университет,
420008 Казань, Россия

Поступило в Редакцию 5 апреля 2005 г.

Магнитная анизотропия эпитаксиальных тонких пленок диоксида хрома (CrO₂) исследована в зависимости от их толщины методом ферромагнитного резонанса (ФМР). Тонкие (27–535 nm) пленки CrO₂ были приготовлены методом химического осаждения из газовой фазы исходного реагента CrO₃ на монокристаллические подложки диоксида титана (TiO₂) с ориентацией (100). Была обнаружена сильная зависимость сигнала ФМР от толщины пленок для серии образцов, осажденных на подложки, поверхность которых была предварительно очищена травлением в растворе плавиковой кислоты (HF). Установлено, что магнитное поведение пленок CrO₂ определяется конкуренцией между энергиями магнокристаллической и магнитоупругой анизотропии. Последняя связана с упругими растягивающими напряжениями, возникающими из-за несовпадения кристаллических решеток пленки и подложки. В самой тонкой (27 nm) из пленок вклад магнитоупругой анизотропии доминирует, и направление оси легкого намагничивания „переключается“ от оси [001], характерной для объемного магнетика, к оси [010].

Введение

Дальнейшее развитие электроники в сторону все большей миниатюризации, роста рабочих скоростей и разнообразной функциональности возможно при использовании магнитоэлектронных устройств, принцип

работы которых основан на использовании не только заряда, но и спина электронов проводимости. Наиболее критичным параметром, определяющим эффективность элементов магнитоэлектроники, является величина спиновой поляризации электронов проводимости. Поэтому идеальным в этом смысле представляется использование так называемых полуметаллических ферромагнетиков, уникальная особенность которых — полностью поляризованная по спину зона проводимости. Одним из таких материалов является диоксид хрома (CrO_2), исключительно высокая спиновая поляризация электронов проводимости в котором (почти 100%) была подтверждена экспериментально (см., например, [1,2]). Поэтому успешный синтез [3] эпитаксиальных тонких пленок CrO_2 , стабилизированных за счет структуры подложки, вызвал особенный интерес исследователей к этому соединению [4–7].

Ранее нами были исследованы пленки CrO_2 , приготовленные методом химического осаждения из газовой фазы на подложки TiO_2 [8–11]. На основании ранее полученных результатов ФМР исследований были оптимизированы режимы осаждения пленок диоксида хрома (процесс предварительной подготовки подложек из рутила, температура подложки во время осаждения пленок, скорость их осаждения и др.). Благодаря этому были получены пленки с воспроизводимыми магнитными и структурными свойствами, которые и были исследованы методом ферромагнитного резонанса (ФМР) в данной работе. При этом исследовались кристаллическая и магнитоупругая анизотропии как функция толщины пленок для серии эпитаксиальных пленок CrO_2 , выращенной химическим осаждением из газовой фазы триоксида хрома (CrO_3). С помощью техники ФМР впервые показано, что под воздействием деформационной анизотропии в наиболее тонкой из исследованных пленок происходит „переключение“ легкой оси намагничивания с направления структуры (c) на направление (b).

Приготовление образцов и методика эксперимента

Образцы. Эпитаксиальные тонкие пленки CrO_2 были приготовлены методом химического осаждения из газовой фазы на подложках TiO_2 структуры рутила с ориентацией (100), используя твердый прекурсор CrO_3 , как описано в работе [4]. Была приготовлена серия пленок с толщинами 27, 65 и 434 nm на подложках TiO_2 , поверхность которых была очищена предварительным травлением в разбавленном растворе

плавиковой кислоты (HF). Кроме того, для сравнения была также выращена пленка с толщиной 535 nm без предварительного травления подложки TiO₂.

Экспериментальные методы. Контроль ориентации образцов осуществлялся на рентгеновском дифрактометре Rigaku RINT 2000. Спектры ферромагнитного резонанса регистрировались на ЭПР спектрометре Bruker EMX с рабочей частотой 9.8 GHz. Использовалась стандартная процедура исследования ФМР в тонких пленках, которая состоит из измерений в двух геометриях вращения внешнего магнитного поля относительно плоскости образца: 1) магнитное поле вращается в плоскости образца („параллельная“ геометрия), 2) магнитное поле вращается в плоскости, проходящей через легкую ось намагничивания и нормаль к плоскости образца („перпендикулярная“ геометрия).

Экспериментальные результаты

Спектры ФМР в параллельной и перпендикулярных геометриях для тонких пленок CrO₂ с толщиной 27 и 65 nm, выращенных на травленных подложках, показаны на рис. 1. Спектр пленки из той же серии с наибольшей толщиной (434 nm) обнаруживает расщепление на несколько компонент, в то время как спектр пленки CrO₂ на необработанной подложке состоит из одиночной моды ФМР. За исключением данных по ФМР для пленки с толщиной 434 nm на травленной подложке, угловые зависимости резонансных полей для всех других образцов в параллельной и перпендикулярных геометриях представлены на рис. 2. Как видно из рис. 1 и 2 в перпендикулярной геометрии измерений наблюдается типичная для тонких пленок угловая зависимость сигнала ФМР, в которой преобладает эффект поля размагничивания (анизотропии формы) образца (т.е. легкая ось намагничивания лежит в плоскости пленок диоксида хрома). С другой стороны, в параллельной геометрии измерений обнаруживается сильное влияние кристаллической анизотропии. При этом максимальное и минимальное значения резонансного поля наблюдаются для трудной и легкой осей намагничивания образца соответственно.

Спектр ФМР в параллельной геометрии для пленки CrO₂ с толщиной 535 nm, выращенной на нетравленной подложке, обнаруживает наибольшую среди исследованных образцов анизотропию в плоскости пленки. Очевидно, что направление легкой оси намагничивания в

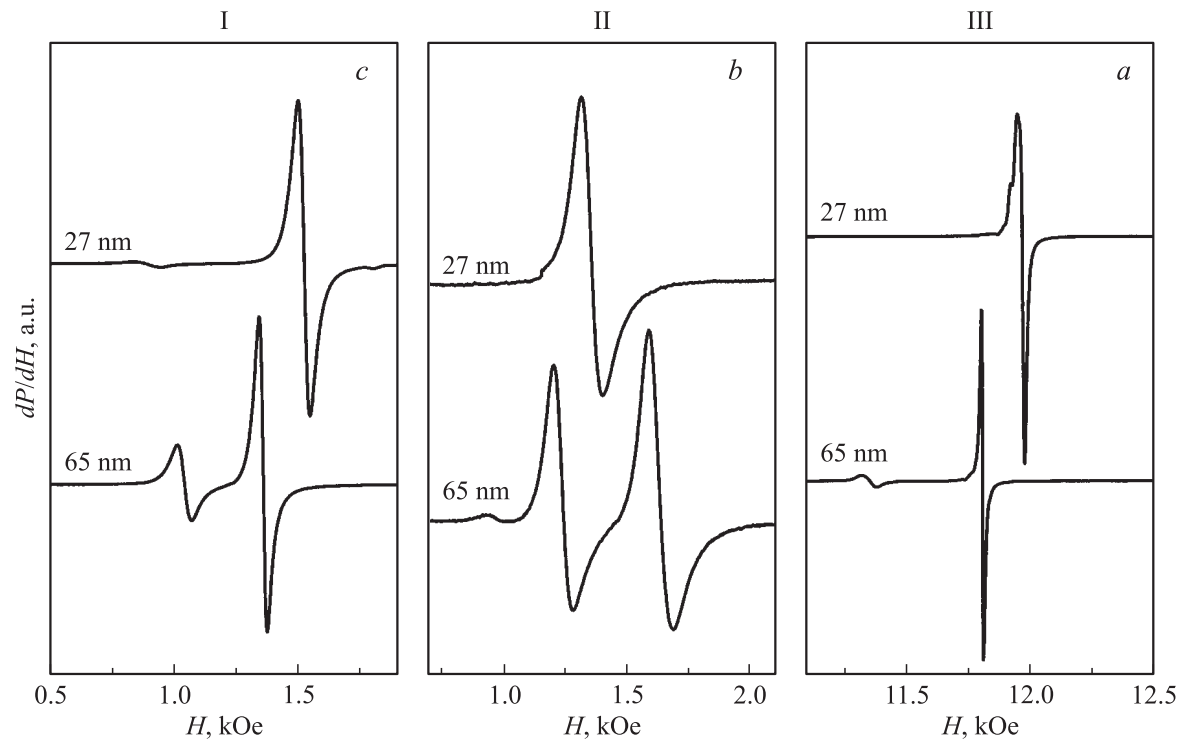


Рис. 1. Спектры ФМР образцов SrO_2 : I, II — для направлений магнитного поля вдоль кристаллографических осей c, b (параллельно плоскости пленки); III — перпендикулярно к плоскости пленки вдоль оси a .

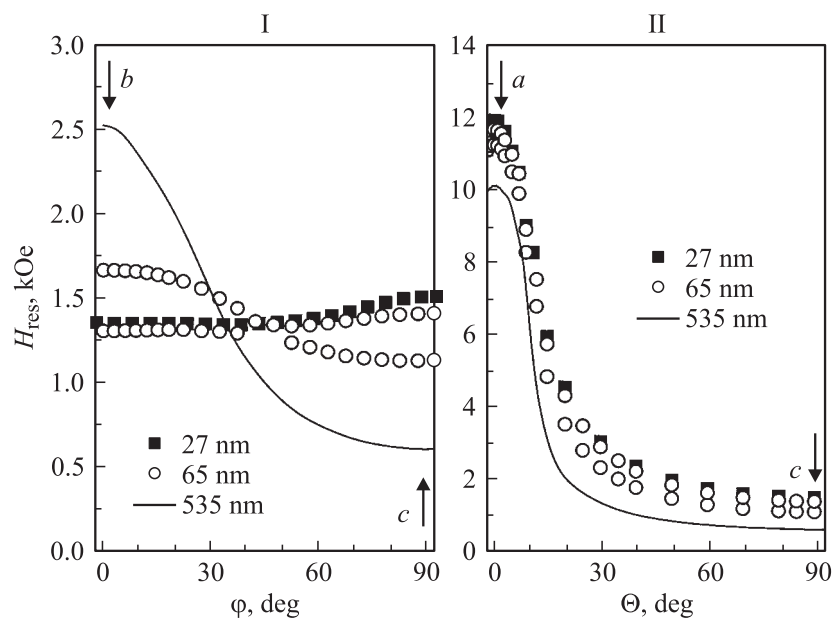


Рис. 2. Экспериментальные угловые зависимости резонансных полей для образцов CrO_2 в параллельной (I) и перпендикулярной (II) геометриях.

этой пленке соответствует оси (c) структуры, т.е. [001]. Подобное же поведение наблюдается в самой „толстой“ (434 nm) из серии пленок, выращенных на протравленных подложках, однако величина анизотропии несколько меньше. Что же касается пленок CrO_2 из той же серии с толщинами 65 и 27 nm, то из рис. 2 очевиден значительно меньший размах анизотропии в плоскости пленки. При этом наиболее тонкая пленка (27 nm) этой серии обнаруживает минимальное резонансное поле для направления магнитного поля вдоль оси (b) структуры. Таким образом, наблюдается переключение легкой оси намагничивания с кристаллографического направления (c) на направление (b), что согласуется с результатами статических магнитных измерений для этой цели [12]. Измерения ФМР пленки CrO_2 промежуточной толщины (65 nm) на нетравленной подложке показывают весьма необычную угловую зависимость (рис. 2), обнаруживая („антифазное“) противофазное

поведение двух основных мод ФМР, т.е. наименьшее резонансное поле первой моды соответствует наибольшему для второй и наоборот. Такое поведение предполагает существование в этой пленке двух магнитных фаз со взаимно перпендикулярными осями легкого намагничивания вдоль направлений [001] и [010].

Обсуждение

Известно, что как эпитаксиальная пленка CrO_2 , так и монокристаллическая подложка TiO_2 ориентации (100) имеют структуру рутила (тетрагональная симметрия) [3,4,6]. При этом несовпадение решеток CrO_2 и TiO_2 составляет -3.79% вдоль направления [010] (ось b) и -1.48% вдоль [001] (ось c), что приводит к появлению анизотропной деформации растяжения в плоскости пленок CrO_2 [3]. Для неискаженной структуры диоксида хрома характерна тетрагональная магнитокристаллическая анизотропия с легкой осью, параллельной кристаллической оси (c) структуры. Наличие напряжения из-за несовпадения параметров решеток пленки и подложки приводит к появлению добавочного вклада магнитоупругой анизотропии. Таким образом, энергию анизотропии можно записать в следующем виде:

$$E_{ani} = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_\sigma \sin^2(\theta - \delta), \quad (1)$$

где θ — угол между вектором намагниченности \mathbf{M} и осью c кристалла CrO_2 , K_i — параметры кристаллической анизотропии, K_σ — константа магнитоупругой анизотропии и ось деформации в плоскости пленки составляет угол δ относительно оси c [3,6,7].

Анализ спектра ФМР пленки CrO_2 на нетравленной подложке наиболее прост, поскольку в этом случае, как показывают рентгеноструктурные исследования [13], пленка практически свободна от деформаций и можно пренебречь вкладом последнего члена в равенстве (1). Компьютерное моделирование зависимостей резонансных полей в обеих экспериментальных геометриях измерений ФМР позволяет получить поля анизотропии $K_1/M_s = 510 \text{ Ое}$, $K_2/M_s \sim 0 \text{ Ое}$ и намагниченность $M_s = 470 \text{ Ое}$. Полученные значения отлично согласуются с результатами, приведенными в литературе для объемного кристалла CrO_2 [14] и монокристаллических пленок CrO_2 [3,6].

Спектры ФМР-образцов на протравленных подложках свидетельствуют, что эти пленки в большой степени деформированы из-за

несовпадения параметров решетки эпитаксиальной пленки SrO_2 и монокристаллической подложки. В результате деформирования пленка характеризуется конкуренцией между энергиями магнитокристаллической и магнитоупругой анизотропии, оси легкого намагничивания которых направлены вдоль направлений $[001]$ и $[010]$ соответственно. Что же касается различных мод ФМР, наблюдаемых для пленок с толщиной 65 и 434 nm, то они, по-видимому, отражают неоднородное распределение деформаций в плоскости этих пленок.

Анализ угловых зависимостей ФМР как в параллельной, так и перпендикулярной геометриях показывает, что влияние магнитоупругой анизотропии может быть корректно описано в упрощенной модели:

$$E_{ani} = K_{1eff} \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta, \quad (2)$$

где использован единый параметр K_{1eff} для учета квадратичных членов магнитокристаллической и магнитоупругой анизотропий (1 и 3-е слагаемые предыдущего выражения). Такая модель означает, что легкая ось магнитоупругой анизотропии направлена под углом $\delta = 90^\circ$ по отношению к оси (c) , т.е. вдоль оси (b) структуры рутила, как это наблюдалось в работе [3]. Параметр K_{1eff} уменьшается с толщиной пленок и становится даже отрицательным для самой тонкой (27 nm) из пленок деформированной серии. Моделирование дает значение -60 Oe для поля эффективной анизотропии $K_{1eff}/M_s = (K_1 - K_\sigma)/M_s$. Примечательно, что экспериментальная угловая зависимость резонансного поля ФМР, наблюдаемая в пленке с толщиной 27 nm, может быть воспроизведена при моделировании только при учете параметра K_2 перед членом магнитокристаллической анизотропии четвертой степени. Наилучшее согласие было достигнуто при $K_2/M_s = 25$ Oe.

Обсуждая результаты измерений в перпендикулярной геометрии (правая панель в рис. 2), следует отметить увеличение максимального резонансного поля для наиболее тонких пленок, что отражает эффект так называемой „перпендикулярной“ анизотропии. Влияние последней наблюдается в моделировании ФМР как увеличение „эффективной“ намагниченности, которую можно записать как $M_{eff} = M_s - K_\perp/2\pi M_s$, где M_s — намагниченность насыщения при комнатной температуре и K_\perp — константа наведенной перпендикулярной анизотропии. Появление добавочной перпендикулярной анизотропии с осью симметрии вдоль нормали к пленке связано с тем, что растягивающее усилие в плоскости пленки вызывает компенсирующую деформацию сжатия

в направлении, перпендикулярном поверхности пленки (вдоль оси a). Причем отрицательный знак константы перпендикулярной анизотропии K_{\perp} , т.е. увеличение M_{eff} , означает, что трудная ось перпендикулярна плоскости пленки CrO_2 .

Заключение

Исследования методом ФМР магнитных свойств эпитаксиальных тонких пленок CrO_2 позволили установить, что:

- несовпадение параметров решеток пленки CrO_2 и подложки TiO_2 приводит к возникновению анизотропных упругих растягивающих напряжений, сильно влияющих на параметры магнитной анизотропии, вплоть до „переключения“ направления легкой оси намагничивания от кристаллографической оси (c) к оси (b) в наиболее тонкой пленке;
- неоднородный характер магнитоупругой анизотропии проявляется в пленке CrO_2 с промежуточной толщиной 65 nm как сосуществованию двух магнитных фаз с взаимноперпендикулярными направлениями легких осей — $[001]$ и $[010]$;
- изменяя условия синтеза пленок, возможно „настраивать“ магнитную анизотропию в широких пределах, т.е. получать тонкие пленки CrO_2 с заранее заданными магнитными параметрами, что исключительно важно с точки зрения возможного применения этих пленок в магнитоэлектронике.

Работа выполнена при поддержке гранта № 2003–А–15 Института технологии Гебзе. Л.Р. Тагиров также благодарит за частичную поддержку грант BRHE REC–007.

Список литературы

- [1] Ji Y., Strijkers G.J., Yang F.Y., Chien C.L. et al. // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. N 24. P. 5585–5588.
- [2] Anguelouch A., Gupta A., Gang Xiao et al. // Phys. Rev. B. 2000. V. 64. N 18. P 180 408-3(R).
- [3] Li X.W., Gupta A., Xiao G. // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 75. N 2. P. 713–715.

- [4] *Li X.W., Gupta A., McGuire T.R.* et al. // Journ. Appl. Phys. 1999. V. 85. N 8. P. 5585–5587.
- [5] *Gupta A., Sun J.Z.* // Journ. Magn. Magn. Mater. 1999. V. 200. P. 24–43.
- [6] *Yang F.Y., Chien C.L., Ferrari E.F.* et al. // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. N 2. P. 286–288.
- [7] *Spinu L., Srikanth H., Gupta A.* et al. // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. N 13. P. 8931–8934.
- [8] *Rameev B.Z., Yilgin R., Aktas B., Gupta A., Tagirov L.R.* // Microelectronic Engineering. 2003. V. 69. P. 336–340.
- [9] *Rameev B.Z., Aktaş B., Gupta A., Tagirov L.R., Özdemir M., Yilgin R.* // NATO Science Series II: Mathematics, Physics and Chemistry / Ed. Aktaş B., Tagirov L.R., Mikailov F. Boston/Dordrecht/London: Kluwer Acad. Publ., 2004. V. 143. P. 273–282.
- [10] *Rameev B.Z., Gupta A., Anguelouch A., Xiao G., Yıldız F., Tagirov L.R., Aktaş B.* // J. Magn. Magn. Mater. 2004. V. 272–276 (P2). P. 1167–1168.
- [11] *Rameev B.Z., Gupta A., Miao G.X., Xiao G., Yıldız F., Tagirov L.R., Aktaş B.* // Phys. Stat. Sol. (a). 2004. V. 201. P. 3350–3353.
- [12] *Miao G., Xiao G., Gupta A.* // submitted to Phys. Rev. B.
- [13] *Gupta A.* Private communications.
- [14] *Rodbell D.S.* // J. Phys. Soc. Japan. 1966. V. 21. P. 1224–1225.