

Размерные эффекты и намагниченность многослойных пленочных наноструктур $(\text{Fe}/\text{Si})_n$

© С.Н. Варнаков^{*,**}, J. Bartolomé^{***}, J. Sesé^{****}, С.Г. Овчинников^{*}, С.В. Комогорцев^{*},
А.С. Паршин^{**}, Г.В. Бондаренко^{*}

* Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук,
660036 Красноярск, Россия

** Сибирский государственный аэрокосмический университет им. акад. М.Ф. Решетнева,
660014 Красноярск, Россия

*** Instituto de Ciencia de Materiales de Aragón, CSIC-Universidad de Zaragoza,
50009 Zaragoza, Spain

**** Instituto de Nanociencia de Aragón, Universidad de Zaragoza,
50009 Zaragoza, Spain

E-mail: vsn@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 11 сентября 2006 г.)

Приводятся результаты исследований температурной зависимости намагниченности многослойных пленок $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ со слоями нанометровых толщин. Пленки получены методом термического испарения в сверхвысоком вакууме на подложках монокристаллического кремния Si(100) и Si(111). Обнаружена зависимость величины намагниченности и ее температурного хода в пленках $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ от толщины индивидуального слоя Fe. Показано, что эта зависимость является следствием образования химического интерфейса на границах раздела Fe–Si. Оценены характеристики интерфейса в пленках $(\text{Fe}/\text{Si})_n$.

Работа выполнена в рамках программы ОФН РАН „Спинтроника“, комплексного интеграционного проекта СО РАН № 3.5, проекта MAT2005/1272 of the Spanish MEC и при поддержке гранта Президента МК-4931.2006.2.

PACS: 75.50.Bb, 75.60.Nt

1. Введение

Интерес к многослойным магнитным наноструктурам связан с уникальностью их физических свойств и перспективами практического использования [1–3]. Магнитные мультислои и сэндвич-структуры с чередующимися полупроводниковыми и металлическими нанослоями интересны тем, что их свойства можно широко варьировать путем контролируемого введения примеси, а также при помощи излучений различных видов и изменения температуры [4–9]. В пленочных наноструктурах Fe/Si наблюдаются такие явления как температурно-зависимое изменение параметра обменного взаимодействия [7,10] и фотоиндуцированное изменение межслоевого обменного взаимодействия [4,11,12].

В большинстве теоретических моделей для описания этих физических свойств предполагается, что границы раздела слоев в многослойных наноструктурах сплошные и резкие [7]. В то же время известно, что в материалах подобного рода при нанометровой толщине индивидуальных слоев важными типами структурного несовершенства, способными существенным образом повлиять на физические свойства, являются шероховатость поверхности раздела соседних слоев и их взаимная диффузия [13]. В этом случае физические параметры многослойных наноструктур должны зависеть от толщины индивидуального слоя. Разделение вкладов от шероховатости соседних слоев и химического интерфейса в физические свойства в связи с этим является

актуальной задачей. Так как величины намагниченности насыщения (либо магнитного момента на атом) и обменной константы являются аддитивными характеристиками, чувствительными к ближайшему окружению атома, их исследование позволяет корректно разделять вклады химического интерфейса и шероховатости слоев [14].

Задачей этой работы является исследование влияния толщины индивидуального слоя Fe на величину намагниченности и ее температурный ход, позволяющий оценить величину обменной константы в многослойных пленочных наноструктурах $(\text{Fe}/\text{Si})_n$.

2. Эксперимент

Образцы, исследуемые в данной работе, получены методом термического испарения в сверхвысоком вакууме на подложки монокристаллического кремния Si(100) и Si(111) при комнатной температуре на модернизированной установке молекулярно-лучевой эпитаксии „Ангара“ [15]. Базовый вакуум в технологической камере составлял 10^{-7} Па. Материалы испарялись из высокотемпературных тиглей нитрида бора, скорость роста слоев соответствующих материалов контролировалась *in situ* быстродействующим лазерным эллипсометром ЛЭФ-751М и составляла 0.3 nm/min для Fe и 1.4 nm/min для Si. В дальнейшем точное определение толщины слоев проводилось *ex situ* методом рентгеновской флуоресценции. Контроль температуры испарителей, управление заслон-

ками в процессе формирования многослойной структуры осуществлялись автоматизированным программно-аппаратным комплексом [15]. Контроль химического состава получаемых слоев проводился *in situ* методами электронной Оже-спектроскопии и спектроскопии характеристических потерь энергии электронов [15]. Кривые малоуглового рентгеновского рассеяния многослойных пленок $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ указывают на хорошо определенную сверхрешетку, характерные периоды модуляции которой удовлетворительно согласуются с технологически заданным регламентом [14].

Определение магнитных характеристик $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ проводилось на СКВИД-магнитометре в полях до 50 кОе и в диапазоне температур от 4.2 до 400 К. Магнитный момент в отсутствие поля лежит в плоскости пленок, что проявляется и в характерных прямоугольных петлях гистерезиса, полученных в геометрии, в которой внешнее поле H было параллельно плоскости пленки. Величина коэрцитивной силы исследуемых образцов составляла от 60 до 200 Ое. Температурный ход намагниченности измерялся во внешнем поле $H = 700$ Ое в состоянии магнитного насыщения. Магнитные свойства, измеренные с помощью СКВИД-магнитометра, сравнивались с результатами измерений с помощью вибрационного магнитометра, опубликованными в [14].

3. Результаты

Температурный ход нормированной намагниченности многослойных структур, измеренный во внешнем поле $H = 0.7$ кОе, приведен на рис. 1. Общий характер зависимости $M(T)$, измеренный в диапазоне температур от 4.2 до 400 К, указывает на отсутствие суперпарамагнитного отклика.

Из рис. 1 видно, что величина температурного градиента намагниченности увеличивается с уменьшением

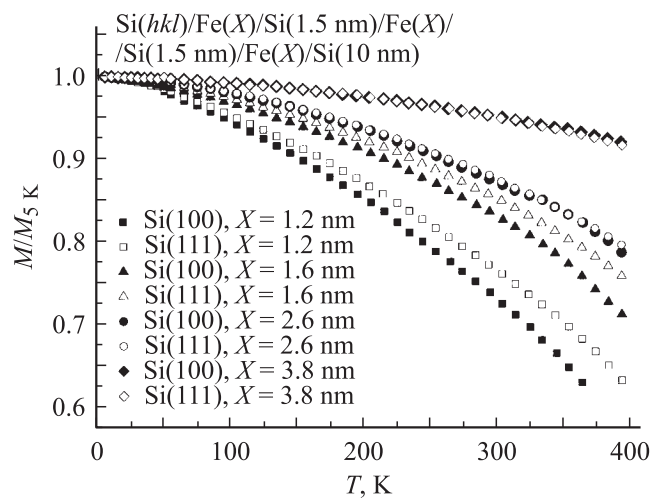


Рис. 1. Температурный ход нормированной намагниченности насыщения $M/M_{5\text{K}}$ в многослойных пленках $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ с различной толщиной индивидуального слоя $\text{Fe}(X)$.

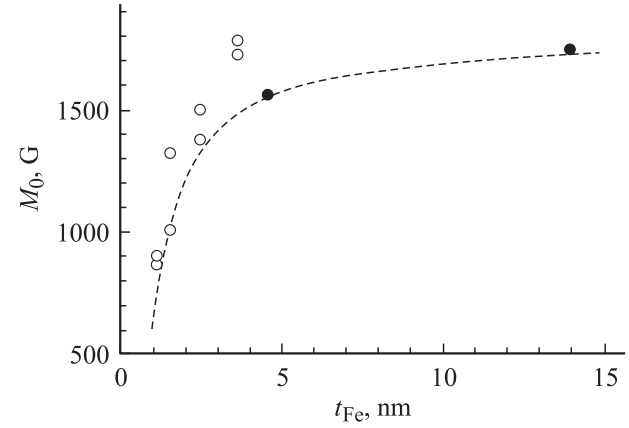


Рис. 2. Зависимость намагниченности M_0 в многослойных пленках $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ от толщины индивидуального слоя Fe . Светлые кружки — данные настоящей работы, темные — данные работы [14].

толщины слоя Fe . Общее выражение для уменьшения намагниченности ферромагнитного металла с ростом температуры может быть записано следующим образом [16]:

$$M(T) = M_0(1 - BT^{3/2} - DT^2 - CT^{5/2} - \dots), \quad (1)$$

либо при разложении по безразмерной температуре

$$M(T) = M_0(1 - b(T/T_C)^{3/2} - d(T/T_F)^2 - c(T/T_C)^{5/2} - \dots), \quad (1a)$$

где M_0 — величина спонтанной намагниченности при 0 К. Слагаемые $BT^{3/2}$ и $CT^{5/2}$ учитывают вклад в уменьшение намагниченности за счет возбуждения тепловых магнонов с законом дисперсии $\omega \sim 1 - \cos(\pi k/a)$ [16]. Слагаемое DT^2 в выражении (1) связано с фермиевскими возбуждениями электронов в металлах [17]. Аппроксимация экспериментальных кривых $M_e(T)$ выражением (1) по методу наименьших квадратов приводит к появлению отрицательных по величине подгоночных параметров D либо C , что лишено физического смысла и связано с количеством слагаемых в аппроксимирующей функции (1). Запись выражения для $M(T)$ в виде (1a) позволяет оценить вклады различных слагаемых в температурный градиент намагниченности. Безразмерные коэффициенты b, c, d в ферромагнетиках характеризуются величинами порядка единицы [16,17]; величина температуры Кюри для железа $T_C \sim 10^3$ К, величина же температуры Ферми в металлах $T_F \geq 10^4$ К. Отсюда, выбрав $T = 200$ К (средняя величина в нашем температурном диапазоне), получаем $(T/T_C)^{3/2} \sim 10^{-1}$, $(T/T_C)^{5/2} \sim 10^{-2}$, $(T/T_F)^2 \sim 10^{-4}$. Эта оценка позволяет исключить слагаемое, связанное с фермиевскими возбуждениями. При дальнейшем описании экспериментальных кривых $M(T)$ будем пользоваться выражением, учитывающим уменьшение намагниченности с ростом температуры только за счет возбуждения

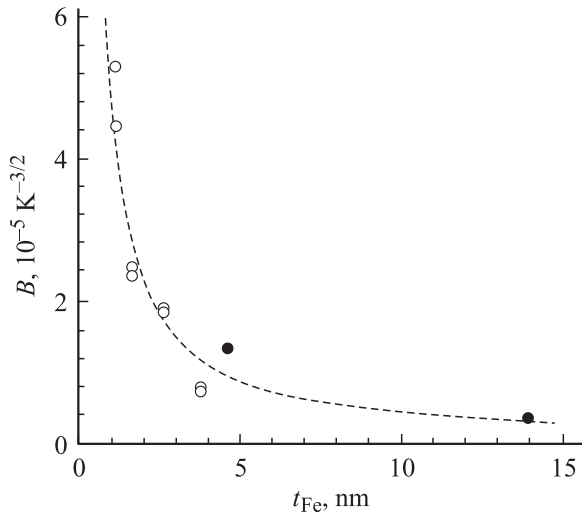


Рис. 3. Зависимость константы Блоха B в многослойных пленках $(\text{Fe/Si})_n$ от толщины индивидуального слоя Fe. Светлые кружки — данные настоящей работы, темные — данные работы [14].

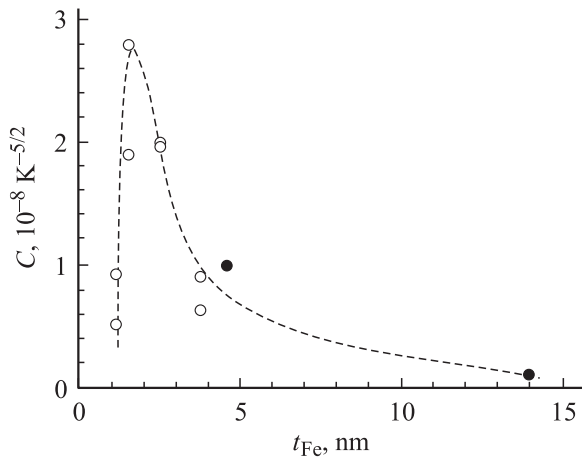


Рис. 4. Зависимость константы C в многослойных пленках $(\text{Fe/Si})_n$ от толщины индивидуального слоя Fe. Светлые кружки — данные настоящей работы, темные — данные работы [14].

тепловых спиновых волн,

$$M(T) = M_0(1 - BT^{3/2} - CT^{5/2}). \quad (2)$$

На рис. 2–4 показаны зависимости величин M_0 , B и C , полученные с помощью аппроксимации экспериментальных зависимостей $M(T)$ (рис. 1) выражением (2), от толщины слоя Fe. Там же приведены данные из работы [14]. Из рис. 2 и 3 видно, что уменьшение толщины индивидуального слоя Fe приводит к значительному уменьшению намагниченности M_0 и росту константы Блоха B . Зависимость величины C от t_{Fe} носит немонотонный характер: величина C возрастает при уменьшении толщины индивидуального слоя Fe до $t_{\text{Fe}} = 2\text{--}3$ nm, а в районе $t_{\text{Fe}} = 1.1$ nm резко уменьшается.

4. Обсуждение результатов

Причина уменьшения намагниченности M_0 с уменьшением толщины слоя Fe в пленках $(\text{Fe/Si})_n$ может быть связана с изменением вклада в намагниченность от промежуточного слоя (интерфейса), формирующегося на границе раздела слоев Fe и Si и обладающего меньшей намагниченностью [14,18,19]. Образование такого слоя может быть связано, например, с проникновением атомов Fe и Si в соседние слои мультислойной пленки [14,18,19]. Последнее приводит к формированию межслоевой фазы, представляющей собой твердый раствор либо соединения Fe–Si.

Изменение величины намагниченности M_0 , обусловленное магнитной гетерофазностью системы, описывается выражением

$$M_0 = M_b n_b + M_a n_a = M_b - (M_b - M_a) \frac{2\Delta}{t_{\text{Fe}}}, \quad (3)$$

где n_a и n_b — доля поверхностных (входящих в интерфейс) и объемных атомов Fe соответственно, M_0 — намагниченность слоя Fe, M_0 — намагниченность поверхностной фазы, Δ — толщина интерфейса, представляющего собой сплав Fe–Si (рис. 5). Эта линейная зависимость описывает модельное упрощение наблюдаемой ситуации путем замены реального концентрационного профиля, характеризующего сплав переменного состава, формирующийся в области интерфейса, концентрационным профилем типа ступеньки (параметры этой ступеньки — состав и Δ — характеризуют сплав постоянного состава [14,18]). Модель сплава Fe–Si постоянного состава на интерфейсе, обладающего намагниченностью M_0 , позволяет провести оценку объемной доли этого сплава, или толщины интерфейса Δ . Зависимость экспериментальных величин намагниченности от t_{Fe}^{-1} (рис. 6) находится в хорошем соответствии с уравнением (3). Это указывает на достоверность представленной выше гетерофазной модели и позволяет использовать выражение (3) для оценки параметров интерфейса. Из рис. 6 можно сделать следующие оценки: $0 < M_a < 850$ G, $0.7 < 2\Delta < 1.1$ nm. Нижняя граница толщины интерфейса, согласно (3), соответствует $M_a = 0$, т.е. по данным рис. 6 невозможно однозначно ответить на вопрос, обладает ли сплавной слой Fe–Si спонтанной намагниченностью. Полученная толщина

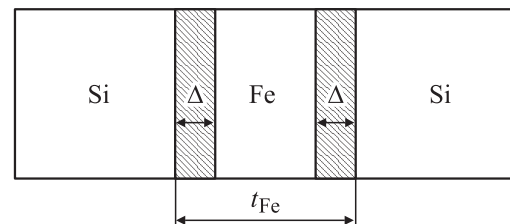


Рис. 5. Магнитная гетерофазная модель системы $(\text{Fe/Si})_n$.

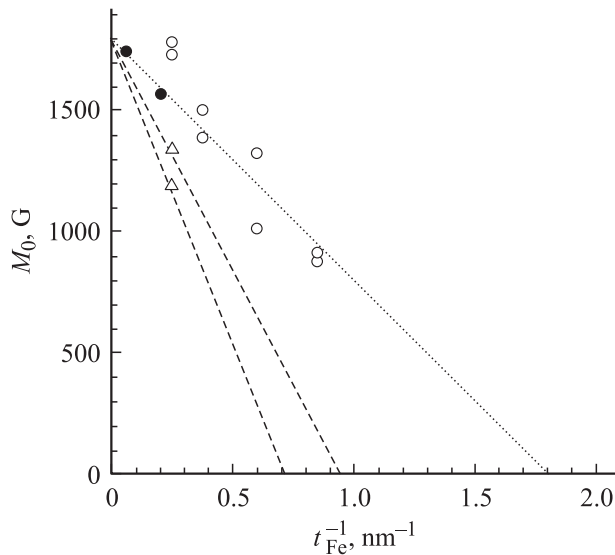


Рис. 6. Зависимость экспериментальных величин намагниченности в многослойных пленках $(\text{Fe/Si})_n$ от t_{Fe}^{-1} . Светлые кружки — данные настоящей работы, темные кружки — данные работы [14], треугольники — данные работы [20].

интерфейса химического происхождения ($\Delta \sim 0.4 \text{ nm}$) оказалась значительно меньше толщины морфологического интерфейса (шероховатости), оцененного в наших пленках методом малоугловой рентгеновской дифракции ($\sim 1.8 \text{ nm}$) [14]. На рис. 6 приведены также данные из работы [20] — по намагниченности пленок $(\text{Fe/Si})_n$, приготовленных методом ионно-лучевого распыления. Оценки параметров интерфейса здесь дают следующие результаты: $0 < M_a < 1000 \text{ G}$, $1.6 < 2\Delta < 2.5 \text{ nm}$, т.е. толщина интерфейса в системе $(\text{Fe/Si})_n$ в этой работе в 1.5–2 раза больше, чем у исследованных нами пленок. Из публикаций по структуре и составу сплавного интерфейса на границе раздела Fe и Si следует, что на интерфейсе Fe/Si образуются как стабильные фазы (магнитные твердые растворы Fe–Si [12,21–24], немагнитные силициды $\epsilon\text{-FeSi}$, $\beta\text{-Fe}_2\text{Si}$ [12,23,24]), так и метастабильные силициды Fe_3Si [12,21], $\alpha\text{-FeSi}_2$ [12,23], $c\text{-FeSi}$ [12,22,23]. Величина намагниченности гетерофазного интерфейса является усредненной, т.е. она определяется фазовым составом и величинами намагниченностей составляющих фаз. В работе [22] было показано, что для слоев Si толщиной до 1.5 nm в мультислоях Fe–Si весь промежуточный слой между слоями Fe формируется в виде кристаллического моносилцида FeSi (метастабильной металлической фазы со структурой типа CsCl) с решеткой, эпитаксиально подстроенной к соседним слоям Fe. Возможность формирования полупроводникового слоя Fe–Si, обладающего спонтанной намагниченностью, представляет интерес для задач спинтроники, поскольку это должно приводить к спиновой поляризации электронов при протекании тока через магнитную гетероструктуру.

5. Обменная константа

Связь коэффициента B из соотношения (1) с основными магнитными константами материала — константой обменного взаимодействия A и намагниченностью M_0 — задается формулой [16]

$$A = \frac{k}{8\pi} \left(\frac{M_0}{g\mu_B} \right)^{1/3} \left(\frac{2.612}{B} \right)^{2/3}. \quad (4)$$

Рассчитанные величины констант A исследованных пленок $(\text{Fe/Si})_n$ приведены на рис. 7. Совпадение величины обменной константы однослойной пленки Fe толщиной 14 nm с величиной обменной константы объемного химически чистого ОЦК Fe указывает на то, что слой Fe здесь является также химически чистым ОЦК Fe. Это полностью согласуется с данными по намагниченности, величина которой для однослойной пленки Fe толщиной 14 nm также совпадает с величиной намагниченности объемного химически чистого ОЦК Fe. Уменьшение эффективной обменной константы в исследуемых пленках $(\text{Fe/Si})_n$ выходит за рамки известного эффекта уменьшения эффективного обмена для тонких пленок, предсказанного в рамках спин-волновой теории [25]. Действительно, согласно работе Миллса–Марадудина константа Блоха ультратонкого ферромагнитного слоя (B_s) относится к константе объемного материала (B_b) как $B_s/B_b = 2$, соответственно отношение обменных констант (см. (4)) составляет $A_s/A_b = 1/2^{2/3} = 0.63$, т.е. эффективная обменная константа в формулах (1), (4) при переходе к ультратонким слоям может уменьшиться не более чем на 37% от константы объемного материала. Из рис. 7 видно, что в исследуемых пленках величина A с изменением толщины слоя Fe изменяется более чем в 7 раз. Для мультислойных структур величина эффективной константы обмена, определяемая из

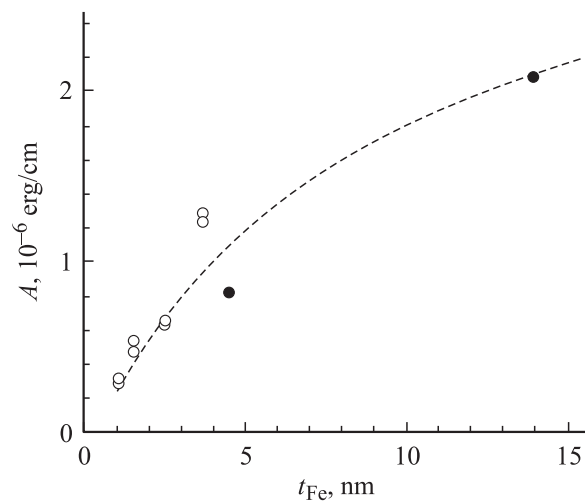


Рис. 7. Зависимость константы обменного взаимодействия A в многослойных пленках $(\text{Fe/Si})_n$ от толщины магнитных слоев t_{Fe} , рассчитанная по формуле (4). Светлые кружки — данные настоящей работы, темные — данные работы [14].

температурного хода намагниченности по формулам (1), (4), должна зависеть как от величины парциальных обменных взаимодействий A_i , характеризующих слои Fe и интерфейса, так и от обмена между ферромагнитными слоями, осуществляемого через слои Si. Кроме того, величина обменной константы оказывается также весьма чувствительной к различным дефектам атомного строения ферромагнитного слоя [18,26]. По этим причинам обсуждение теоретических выражений, пригодных для интерпретации данных рис. 5, выходит за рамки нашей работы.

6. Заключение

Исследована низкотемпературная зависимость намагниченности многослойных пленок (Fe/Si)_n со слоями нанометровых толщин. Величина намагниченности и величина обменной константы, оцененная из температурного хода намагниченности в пленках (Fe/Si)_n, значительно уменьшаются с уменьшением толщины индивидуального слоя Fe от 10 до 1 nm. Эта зависимость является следствием образования магнитного интерфейса на границах раздела Fe—Si с магнитными константами, отличающимися от констант слоя Fe. Применение гетерофазной модели строения слоистой наноструктуры (Fe/Si)_n позволило нам оценить такие характеристики интерфейса в пленках (Fe/Si)_n, как толщина, намагниченность и константа обменного взаимодействия.

Список литературы

- [1] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Greuzet, A. Friederich, J. Chazelas. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [2] R.E. Camley, R.L. Stamps. *J. Phys.: Cond. Matter* **5**, 3727 (1993).
- [3] I.K. Schuller, S. Kim, C. Leighton. *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 571 (1999).
- [4] Г.С. Патрин, Н.В. Волков, В.П. Кононов. *Письма в ЖЭТФ* **68**, 287 (1998).
- [5] Г.С. Патрин, С.Г. Овчинников, Д.А. Великанов, В.П. Кононов. *ФТТ* **43**, 1643 (2001).
- [6] Г.С. Патрин, Н.В. Волков, С.Г. Овчинников, Е.В. Еремин, М.А. Панова, С.Н. Варнаков. *Письма в ЖЭТФ* **80**, 560 (2004).
- [7] G.J. Strijkers, J.T. Kohlhepp, H.J.M. Swagten, W.J.M. de Jonge. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1812 (2000).
- [8] R.R. Gareev, D.E. Bürgler, M. Buchmeier, D. Olligs, R. Schreiber, P. Grünberg. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157 202 (2001).
- [9] D.E. Burgler, M. Buchmeier, S. Gramm, S. Eisebitt, R.R. Gareev, P. Grünberg, C.L. Jia, L.L. Pohlmann, R. Schreiber, M. Siegel, Y.L. Qin, A. Zimina. *J. Phys.: Cond. Matter* **15**, S443 (2003).
- [10] S. Toscano, B. Briner, H. Hopster, M. Landolt. *J. Magn. Magn. Mater.* **114**, L 6 (1992).
- [11] J.E. Mattson, S. Kumar, E.E. Fullerton, S.R. Lee, C.H. Sowers, M. Grimsditch, S.D. Bader, F.T. Parler. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 185 (1993).

- [12] J.E. Mattson, S. Kumar, E.E. Fullerton, S.R. Lee, C.H. Sowers, M. Grimsditch, S.D. Bader, F.T. Parker. *J. Appl. Phys.* **75**, 6169 (1994).
- [13] Magnetism. V. II. Materials and applications / Eds Tremolet de Lacheisserie, D. Gignoux, M. Schlenker. Kluwer Academic Publ., Norwell (2002).
- [14] С.Н. Варнаков, А.С. Паршин, С.Г. Овчинников, D. Rafaja, L. Kalvoda, А.Д. Балаев, С.В. Комогорцев. *Письма в ЖТФ* **31**, 1 (2005).
- [15] С.Н. Варнаков, А.А. Лепешев, С.Г. Овчинников, А.С. Паршин, М.М. Коршунов, Р. Nevoral. *ПТЭ* **6**, 252 (2004).
- [16] F. Keffer. *Handbuch der Physic. B. XXIII/2*. Springer-Verlag (1966). 560 p.
- [17] П.С. Кондратенко. *ЖЭТФ* **47**, 1536 (1964).
- [18] Р.С. Исхаков, Н.А. Шепета, С.В. Комогорцев, С.В. Столяр, Л.А. Чеканова, Г.Н. Бондаренко, В.К. Мальцев, А.Д. Балаев. *ФММ* **93**, 37 (2003).
- [19] H. Fritzsche, Y.T. Liu, J. Hauschild, H. Maletta. *Phys. Rev. B* **70**, 214 406 (2004).
- [20] A. Chaiken, R.P. Michek, M.A. Wall. *Phys. Rev. B* **53**, 5518 (1996).
- [21] М.Ю. Гомоюнова, И.И. Пронин, Д.Е. Малыгин, С.М. Соловьев, Д.В. Вялых, С.Л. Молодцов. *ЖТФ* **75**, 106 (2005).
- [22] G.J. Strijkers, J.T. Kohlhepp, H.J.M. Swagten, W.J.M. de Jonge. *Phys. Rev. Lett.* **60**, 9583 (1999).
- [23] T. Lucinski, M. Kopcewicz, A. Hütten, H. Brückl, S. Heitmann, T. Hempel, G. Reiss. *J. Appl. Phys.* **93**, 6501 (2003).
- [24] J.M. Gallego, R. Miranda. *J. Appl. Phys.* **69**, 1377 (1991).
- [25] D.L. Mills, A.A. Maradudin. *J. Phys. Chem. Sol.* **28**, 1855 (1967).
- [26] Р.С. Исхаков, Ж.М. Мороз, Л.А. Чеканова, Е.Е. Шалыгина, Н.А. Шепета. *ФТТ* **45**, 846 (2003).