

РАДИОФИЗИКА, ЭЛЕКТРОНИКА, АКУСТИКА

Комплексный анализ статических и динамических магнитных характеристик мультислойных наноструктур CoFeZr/ α -Si

С. А. Вызулин¹, А. В. Горобинский¹, Ю. Е. Калинин², Е. В. Лебедева^{3a*},
А. В. Ситников², Н. Е. Сырьев^{3b}, И. Т. Трофименко^{3a}, И. Г. Шипкова⁴

¹ Кубанский государственный университет, кафедра нанотехнологий и наносистем. Россия, 350040, г. Краснодар, ул. Ставропольская, д. 149. ² Воронежский государственный технический университет, кафедра физики твердого тела, Россия, 394026, г. Воронеж, Московский пр., д. 14. ³ Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, ^a кафедра фотоники и физики микроволн, Е-mail: * nss@phys.tsu.ru.; ^b кафедра общей физики. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2. ⁴ Национальный технический университет «Харьковский политехнический институт», кафедра физики металлов и полупроводников. Украина, 61002, г. Харьков, ул. Фрунзе, д. 21

Комбинированный метод статических и динамических магнитных измерений использован для исследования наноразмерных мультислойных аморфных пленок CoFeZr/ α -Si. Установлено, что при толщине магнитных слоев $x = 5 \div 12$ нм их намагниченность не отличается от намагниченности массивного материала. Показано, что при снижении x до $2 \div 3$ нм наблюдается уменьшение намагниченности магнитных слоев, которое может быть связано с образованием перемещенных слоев, содержащих немагнитные силициды. При толщине немагнитных прослоек, меньших 1 нм, в образцах наблюдаются особенности, характерные для слабого антиферромагнитного взаимодействия соседних слоев.

PACS: 75.75.+a

Ключевые слова: наноструктура, мультислой, переменные мультислой.

Статья поступила 23.04.2008, подписана в печать 04.12.2008.

В последние годы магнитные наноструктуры, содержащие контактирующие слои ферромагнитного металла и полупроводника, привлекают внимание исследователей как перспективный материал для устройств спиновой электроники, например при создании спиновых полевых транзисторов [1, 2]. Одной из проблем, возникающих при изготовлении мультислойных структур, содержащих прослойки Si, является образование силицидов на границе раздела металл — полупроводник [3].

Нами изучались многослойные структуры CoFeZr/ α -Si, нанесенные методом ионно-лучевого распыления мишней аморфного сплава Co₄₅Fe₄₅Zr₁₀ и аморфного кремния α -Si в атмосфере аргона (чистота 99.992%) с добавлением водорода при напряжении 2 кВ на подложки из ситалла и кремния, температура которых не превышала 50°C [3]. Задаваемые при осаждении толщины x магнитных слоев варьировались от 1 до 12 нм, толщины y немагнитных прослоек кремния — от 0.5 до 5 нм. Общее число бислоев $z = 40$.

Рассматривались три серии образцов со значениями толщин $x = 1.9 \div 2.3$, 3 нм (тонкие, серии 1 и 2) и 5 \div 12 нм (толстые, серия 3) и с переменной толщиной прослойки y (0.5 \div 5 нм). Для всех образцов снимались спектры ферромагнитного резонанса (ФМР) в зависимости от ориентации внешнего поля \mathbf{H} относительно плоскости пленки и кривые намагничивания. Спектры ФМР измерялись на ЭПР спектрометре на частоте $f = 9.27$ ГГц. Статические измерения проводились на вибрационном магнитометре в полях до 10 кЭ. Петли гистерезиса были измерены в плоскости слоя в двух взаимно перпендикулярных направлениях. По величине магнитного момента единицы площади образца (M/S) в области насыщения и данных о его общей толщине $z(x+y)$ были определены средняя намагниченность на-

сыщения многослойной структуры $I_m = M/[Sz(x+y)]$ и намагниченность магнитных слоев $I_l = M/(xzS)$.

По данным статических измерений в образцах с $x > 1$ нм, взаимодействие между слоями носит ферромагнитный характер. Форма и количественные параметры петель для серий существенно зависят от задаваемых в процессе изготовления значений x и y , а также от соотношения $x/(x+y)$. В качестве примера на рис. 1 показан характер изменения формы петель гистерезиса структур по мере возрастания величины y . Наблюдаются постепенный переход от сложной формы петли с нечетко выраженной ступенькой и коэрцитивной силой $H_c \approx 6 \div 7$ Э к форме, типичной для магнитомягких пленок с одноосной анизотропией в плоскости пленки и $H_c < 1$ Э. Средняя намагниченность I_m при этом постепенно уменьшается. Однако экспериментально найденные величины I_m заметно отличаются от тех, которые

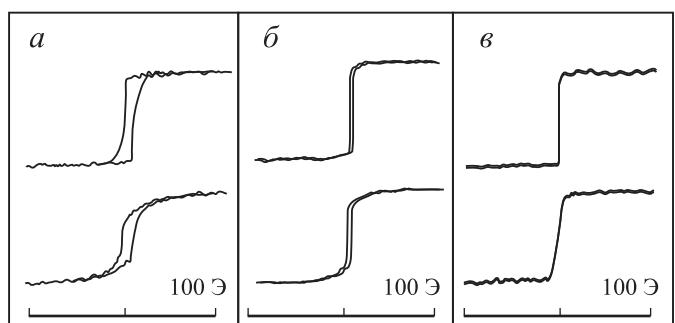


Рис. 1. Эволюция формы петель гистерезиса наноструктур Co₄₅Fe₄₅Zr₁₀/ α -Si при увеличении y : $y = 0.97$ нм (а), 1.7 нм (б), 4.45 нм (в). (Петли измерены в двух взаимно перпендикулярных направлениях.)

предсказывает расчет в предположении, что реальная толщина магнитных слоев равна задаваемой при синтезе, а намагниченность насыщения равна намагниченности массивного сплава $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}$ (оцененного, по данным ФМР, как 1050–1140 Гц).

Несоответствие расчетных и экспериментальных значений I_m может свидетельствовать о том, что в процессе изготовления многослойной наноструктуры происходит образование новых фаз (например, различных видов силицидов). С целью выяснения структурных особенностей данных образцов был проведен комплексный анализ результатов статических и динамических измерений магнитных характеристик.

На рис. 2 приведены зависимости напряженности резонансных полей однородного типа прецессии H_{\parallel} от толщины немагнитной прослойки при параллельной ориентации \mathbf{H} относительно плоскости пленки для всех исследованных серий. На этом же рисунке пунктиром отмечены данные для образцов с $y < 1$ нм (обсуждение результатов, полученных на этих образцах, будет дано ниже). Из графиков видно, что при больших x (порядка 5–12 нм), т. е. при формировании сплошных слоев, H_{\parallel} почти не зависят от толщины немагнитной прослойки и равны 780–800 Э. Статические измерения показали, что анизотропия в этих образцах мала. Используя формулу Киттеля

$$(\omega/\gamma)^2 = H_{\parallel} \cdot (H_{\parallel} + 4\pi I_0) \quad (1)$$

($\omega = 2\pi f$, γ — гиromагнитное отношение, имеющее в нашем случае величину порядка 2.7–2.9 МГц/Э), получаем для намагниченности образцов $I_0 = 1050$ –1140 Гс. Такие же значения I_0 , рассчитанные по H_{\parallel} , были получены на массивных образцах (I_{0M}) и тонкопленочных образцах, напылявшихся без прослоек аморфного кремния. Эти величины близки к значениям намагниченности магнитных слоев I_l , рассчитанных по кривым намагничивания (920–1280 Гс) образцов этой серии.

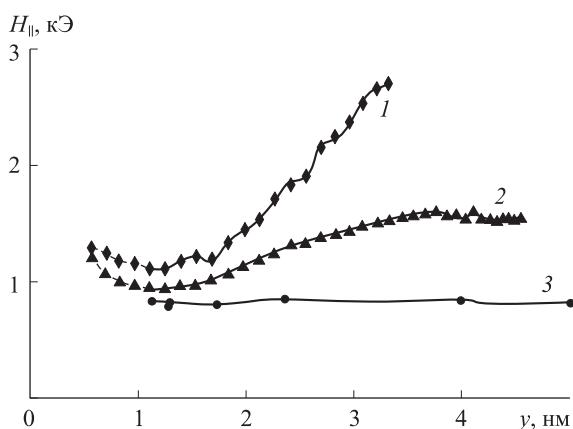


Рис. 2. Зависимости H_{\parallel} от y . Кривая 1 — серия 1, 2 — серия 2, 3 — серия 3

При уменьшении x появляется зависимость H_{\parallel} от толщины немагнитных слоев: чем меньше x , тем более сильно она выражена. Минимальные значения H_{\parallel} для $x = 2$ –3 нм наблюдаются при $y \approx 1$ нм, когда образуется пленочный композит ферромагнитного материала с включениями аморфного Si.

Статические измерения показали, что намагниченность магнитного слоя в сериях с $x \approx 2$ и 3 нм оказывается ниже, чем в объемных образцах.

На рис. 3 для образцов с $x \approx 2$ и 3 нм приведены зависимости резонансных полей для различных типов колебаний спектра от толщины немагнитной прослойки, возбуждаемых при параллельной H_{\parallel} и перпендикулярной H_{\perp} ориентациях поля \mathbf{H} относительно плоскости пленки. Сложность системы, обусловленная внутренними неоднородностями, не позволяет полностью расшифровать спектр. Однако из сравнения рис. 3, а и б видно, что внутренние поля образцов этих серий различны. Из рисунков видно, что при толщинах $x \approx 2$ нм для фиксированной толщины прослойки линии спектра наблюдаются в широком диапазоне полей. Для некоторых типов колебаний резонансные поля для двух направлений \mathbf{H} оказываются близки друг другу. Данные рентгенографических исследований [4] показали, что при таких x в образцах отсутствуют четкие границы между слоями, и магнитные слои имеют островковую структуру. Возможны прямые контакты между магнитными слоями.

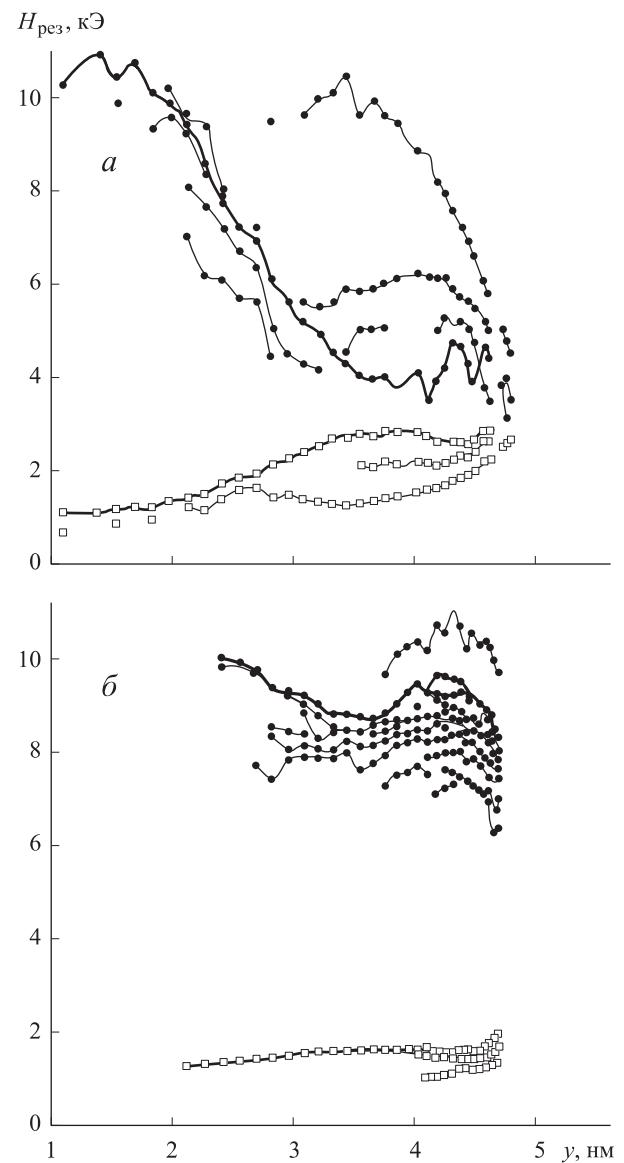


Рис. 3. Зависимости резонансных полей различных линий спектра магнитостатических колебаний от толщины прослойки y : ● — H_{\perp} , □ — H_{\parallel} . Сплошные линии соединяют резонансы предположительно одинаковых типов колебаний. Жирными линиями выделена однородная прецессия (а — серия 1, б — серия 2)

Это должно приводить к большим неоднородностям внутреннего магнитного поля. При $x \approx 3$ нм формирование слоев в основном заканчивается, структура из островковой переходит в сплошную, внутренние поля становятся более однородными. Намагниченность в них при $y > 3$ нм значительно выше, чем в серии с $x \approx 2$ нм, поэтому для таких образцов величины резонансных полей при касательном и нормальном подмагничивании сильно различаются.

В настоящее время существует два подхода к описанию явления ФМР в многослойных структурах. В первом поведение вектора намагниченности рассматривается отдельно в каждом магнитном слое, которое может быть описано с помощью уравнения движения магнитного момента слоя $d\mathbf{I}/dt = -\gamma\mathbf{J} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}$, где t — время. Влияние остальной части пленки учитывается введением эффективных магнитных полей \mathbf{H}_{eff} , определяемых через магнитную энергию всей системы [5].

В втором подходе многослойная структура рассматривается как некая эффективная среда со средней намагниченностью $I_m = I_l \cdot x/(x+y)$.

В таблице приведены значения I_m — средней намагниченности насыщения образца, I_l — намагниченности магнитного слоя и I_0 — намагниченности, рассчитанной по формуле для серий 1 и 2. Из таблицы видно, что хорошее совпадение расчетных данных, полученных по статическим и СВЧ измерениям, наблюдается только в предположении, что поведение вектора намагниченности определяется намагниченностью магнитного слоя, которая оказывается ниже, чем в массивных образцах.

№	x , нм	y , нм	M/S^* , Гс/нм	I_m , Гс	I_l , Гс	I_0 , Гс	x' , нм
Серия 1							
1	1.9	0.8	52345	485	690	567	1.24
2	2.12	1.2	54020	410	640	508	1.28
3	2.25	1.66	46818	300	520	414	1.11
4	2.2	1.9	50094	290	540	335	1.19
5	2.2	2.2	36146	205	410	272	0.86
6	2.29	2.45	32342	170	350	221	0.77
7	2.3	2.7	23250	115	250	169	0.55
8	1.94	1.7				506	
9	1.94	1.76				490	
10	1.95	1.83				470	
11	1.95	1.9				450	
12	1.95	2.0				444	
13	1.96	2.1				416	
Серия 2							
1	2.71	1.7	57111	320	530	622	1.38
2	2.87	2.54	56335	260	490	508	1.36
3	2.93	3.1	48069	200	410	446	1.16
4	2.97	3.57	47785	180	400	399	1.15
5	2.99	4.14	39137	140	330	349	0.95
6	2.93	4.45	36794	120	310	370	0.89

* Погрешность при измерении M/S составляла $\sim 10\text{--}15\%$.

Возможны две причины наблюдаемого уменьшения намагниченности. Во-первых, электронная система кремниевой прослойки и магнитного слоя могут взаимодействовать таким образом, что электронное состояние последнего будет меняться. Например, в работе [6] было показано, что изменение магнитного момента ионов кобальта

зависит от структуры интерфейса. В частности, в образцах Co/Rh магнитный момент ионов кобальта не меняется даже при сильном перемешивания ионов Co и Rh в интерфейсе, в то время как в мультислоях Co/Ru он сильно уменьшается на интерфейсе с увеличением концентрации Ru. Такой же результат был получен в работе [7] на образцах Fe/V, где при толщине слоя железа в 2\AA обменное взаимодействие и локальные магнитные моменты ионов Fe отсутствовали. Однако в нашем случае такой вклад тонких интерфейсных слоев (< 0.2 нм) в общий магнитный момент слоя толщиной (2–3 нм) был бы слишком мал, чтобы быть обнаруженным в статических измерениях.

С другой стороны, как уже отмечалось выше, причиной кажущегося уменьшения намагниченности магнитных слоев может быть образование силицидов. В работе [8] было показано, что при ионно-плазменном напылении мультислойных структур $\text{Fe}_{89}\text{Co}_{11}\text{-Si}$ при нанесении $\text{Fe}_{89}\text{Co}_{11}$ на кремниевую прослойку образуется промежуточный слой толщиной 1.5 нм с составом, близким к моносилициду металла $(\text{Fe}_{89}\text{Co}_{11})_{0.5}\text{Si}_{0.5}$, а при напылении прослойки Si на слой $\text{Fe}_{89}\text{Co}_{11}$ формируется слой $(\text{Fe}_{89}\text{Co}_{11})_{0.67}\text{Si}_{0.33}$ толщиной 1.9 нм.

Нами были рассчитаны два варианта. В первом варианте оценивалась толщина магнитного слоя, которая необходима, чтобы обеспечить экспериментально наблюдаемые значения магнитного момента образца при условии, что намагниченность слоя равна намагниченности массивного материала I_{0M} . Расчет предполагаемой толщины проводился по формуле $x' = M/(zSI)$, где x' — толщина магнитного слоя с намагниченностью I_{0M} . Из таблицы видно, что изменение x должно быть значительным. Кроме того, в этом случае нужно предположить, что магнитный слой нужно рассматривать как некую эффективную среду (не учитывая при этом немагнитную прослойку), состоящую из двух слоев, один из которых имеет намагниченность, равную намагниченности массивного образца, а второй имеет нулевую намагниченность. В противном случае результаты измерений резонансных полей по спектрам будут сильно отличаться от расчетных величин.

Во втором варианте предполагалось, что часть атомов металлического слоя уходит на образование немагнитных силицидов. Доля оставшихся атомов металла определяется выражением

$$1 - \frac{N_{\text{Si}}}{N_{\text{Me}}} = 1 - \frac{y\rho_{\text{Si}}\mu_{\text{Me}}}{x\rho_{\text{Me}}\mu_{\text{Si}}}, \quad (2)$$

где ρ и μ — плотность и молярная масса соответствующих материалов. При расчетах использовались следующие (для металла — усредненные) значения: $\rho_{\text{Si}} = 2.1 \text{ г/см}^3$, $\rho_{\text{Me}} = 8.1 \text{ г/см}^3$, $\mu_{\text{Si}} = 28 \text{ г/моль}$, $\mu_{\text{Me}} = 58 \text{ г/моль}$. Намагниченность магнитного слоя без силицидов 1050 Гс. Намагниченность с силицидами рассчитывается в предположении, что она пропорциональна числу оставшихся атомов металла. Естественно, такая модель лучше подходит к образцам с более тонкими и рыхлыми магнитными слоями. Несмотря на очень грубую модель, наблюдается удовлетворительное совпадение рассчитанных и экспериментальных данных (рис. 4 и 5).

В пользу этой модели говорят результаты, полученные на образцах с таким же составом магнитных слоев и диэлектрической прослойкой SiO_2 . В этом случае кремний оказывается связанным кислородом, и условия образования силицидов менее благоприятны. Это приводит к тому, что в образцах с прослойкой SiO_2 коли-

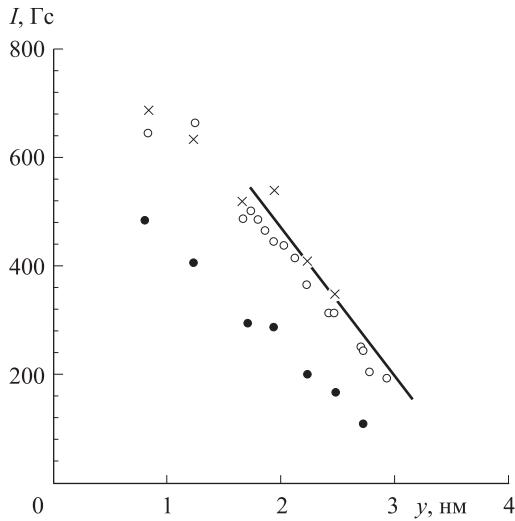


Рис. 4. Зависимости намагниченности от y в образцах серии 1: \times — I_l , \bullet — I_m , \circ — I по данным ФМР, сплошная линия — расчет по формуле (2)

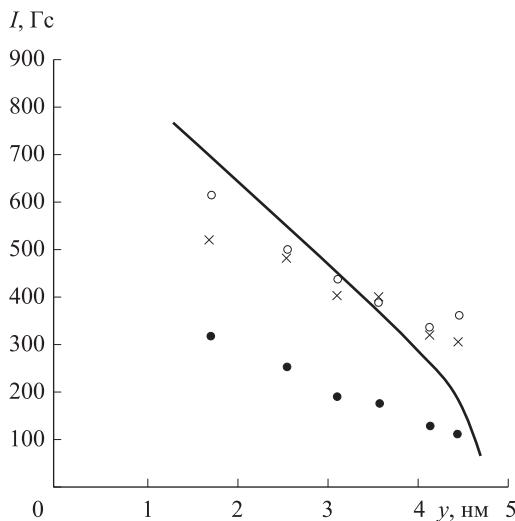


Рис. 5. Зависимости намагниченности от y в образцах серии 2. Обозначения те же, что на рис. 4

чество силицидов оказывается значительно меньшим по сравнению с образцами с теми же значениями x и y , но с полупроводниковой прослойкой α -Si. Намагниченность этих образцов выше, и как следствие они имеют более низкие значения H_{\parallel} . Например, в образце с прослойкой α -Si $x = 2.97$ нм, $y = 4.3$ нм $H_{\parallel} = 1530$ Э, а в образце с прослойкой SiO_2 $x = 3.1$ нм, $y = 4.5$ нм $H_{\parallel} = 860$ Э. Намагниченности магнитных слоев образцов с прослойкой SiO_2 , рассчитанные по кривым намагничивания, оказываются равными примерно 1100–1200 Гс (для образцов с прослойкой α -Si $I = 350$ Гс), что несколько выше величин, полученных по формуле (1) с учетом экспериментальных значений H_{\parallel} ($I = 950$ Гс).

В области $y < 1$ нм, по-видимому, заметную роль начинают играть квантовые эффекты. Статические измерения показали, что с уменьшением толщины прослойки

намагниченность образцов уменьшается, при этом величина H_{\parallel} возрастает. Частично это может быть связано с островковой структурой и большим количеством парамагнитных или суперпарамагнитных частиц. С другой стороны, возможно влияние наноразмерных эффектов. Кривые намагничивания имеют форму (рис. 1), свидетельствующую о наличии в этих образцах фаз с разной коэрцитивной силой и слабым антиферромагнитным взаимодействием слоев. Так, например, поле насыщения намагниченности образцов с $x = 2.5$ нм, $y = 0.8$ нм превышает 3 кЭ. При таких толщинах прослойки наблюдается эффект отрицательного магнитного сопротивления, достигающего максимума при $y = 0.7$ нм [3]. По данным магнитооптики [9], при $y = 0.5$ нм кривые экваториального эффекта Керра имеют характер, аналогичный наблюдаемым в композитах при концентрациях магнитной фазы, чуть ниже порога переколяции.

В заключение подчеркнем основные результаты работы.

Исследованы статические и высокочастотные свойства многослойных наноразмерных структур $\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10}/\alpha\text{-Si}$. При описании ФМР хорошее соответствие расчетных и экспериментальных данных наблюдается в предположении, что поведение вектора намагниченности определяется намагниченностью магнитного слоя.

Существенную роль в формировании свойств мультислойных структур играет образование силицидов. Предлагается расчет учета влияния силицидов на характеристики рассматриваемых систем. Сравнение расчетных и экспериментальных данных показывает удовлетворительное совпадение. В пользу этой модели говорят результаты, полученные на образцах с таким же составом, но с диэлектрической прослойкой SiO_2 .

Взаимодействие слоев носит в основном ферромагнитный характер. Однако с уменьшением немагнитной прослойки $y < 1$ нм наблюдается переход к слабому антиферромагнитному взаимодействию.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 06-02-96607 и 08-03-99042) и Программы Президента РФ по поддержке ведущих научных школ (грант НШ-671.2008.2).

Список литературы

1. Vincenzo D.P., Loss D. // J. Magn. Magn. Mater. 1999. **200**. P. 4451.
2. Ведяев А.В. // УФН. 2002. **172**, № 12. С. 1458.
3. Белоусов В.А., Калинин Ю.Е., Королев К.Г. и др. // Вестн. ВГТУ. 2006. **2**. С. 24.
4. Аронзон Б.А., Грановский А.Б., Давыдов А.Б. и др. // ЖЭТФ. 2006. **130**, № 1(7). С. 127.
5. Гуревич А.Г., Мелков Г.А. Магнитные колебания и волны. М., 1994.
6. Dini A., Zoll S., Gester M. // Eur. Phys. J. B. 1998. **5**. P. 203.
7. Endoh Y., Kawaguchi K., Hosoi N. et al. // J. Phys. Soc. Japan. 1984. **53**. P. 903.
8. Cho S.-J., Krist Th., Mezei F. // Thin Solids Films. 2003. **434**, N 1. P. 136.
9. Вызуллин С.А., Ганышева Е.А., Горобинский А.В. и др. // Тр. конф. «Нанотехнологии — производству 2006». Фрязино, 2006. С. 252.

Combined analysis of static and dynamical magnetic characteristics of multilayer CoFeZr/ α -Si nanostructures

S. A. Vyzulin¹, A. V. Gorobinsky¹, Y. E. Kalinin², E. V. Lebedeva^{3a*}, A. V. Sitnikov², N. E. Syr'ev^{3b}, I. T. Trofimenko^{3a}, I. G. Shipkova⁴

¹Department of Nanotechnology and Nanosystems, Kuban State University, Krasnodar 350040, Russia.

²Department of Solid State Physics, Voronezh State University of Technologies, Voronezh 394026, Russia.

^{3a}Department of Photonics and Microwave Physics, ^bDepartment of General Physics, Faculty of Physics, M. V. Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

⁴Physical and Engineering Faculty, National University of Technologies "Kharkov Polytechnical Institute", Kharkov 61002, Ukraine.

E-mail: * nss@phys.msu.ru.

A method of combined static and dynamical magnetic measurements was exploited for investigation of nanodimensional multilayer amorphous films of CoFeZr/ α -Si. For thickness 5 \div 12 nm their magnetization was found out to be the same as for the bulk material. For thickness of 2 \div 3 nm a certain decrease in magnetization was observed which can be obliged to formation of intermixed layers containing nonmagnetic silicides. For nonmagnetic layers thinner than 1 nm peculiarities were observed which indicate a weak antiferromagnetic interaction of neighboring layers.

PACS: 75.75.+a.

Keywords: nanostructure, multilayers, discontinuous multilayers.

Received 23 April 2008.

English version: *Moscow University Physics Bulletin* 2(2009).

Сведения об авторах

1. Выхулин Сергей Александрович — д. ф.-м. н., доцент, зав. кафедрой; тел.: +7 (861) 219-96-18, e-mail: vizulin@kubsu.ru.
2. Горобинский Александр Викторович — аспирант; тел.: +7 (909) 462-99-29, e-mail: alexandr_vg@mail.ru.
3. Калинин Юрий Егорович — д. ф.-м. н., доцент, зав. кафедрой; e-mail: kalinin48@mail.ru.
4. Лебедева Евгения Васильевна — к. ф.-м. н., ст. научн. сотр.; тел.: 939-28-98, e-mail: nss@phys.msu.ru.
5. Ситников Александр Викторович — к. ф.-м. н., доцент; доцент; e-mail: kalinin48@mail.ru.
6. Сырьев Николай Егорович — к. ф.-м. н., доцент; доцент; тел.: 939-33-79, e-mail: niksyrr@mail.ru.
7. Трофименко Игорь Тимофеевич — к. ф.-м. н., доцент; доцент; тел.: 939-29-22, e-mail: itro@mail.ru.
8. Шипкова Ирина Геннадьевна — к. ф.-м. н., ст. научн. сотр.; ст. научн. сотр.; тел.: 38 (057) 707-60-69, e-mail: ship@kpi.kharkov.ua.