



УДК 541.123

А. В. Асташенко, Г. С. Курпирянова, А. Ю. Гойхман  
А. Ю. Зюбин, А. Н. Орлова

### МАГНИТНО-РЕЗОНАНСНЫЕ СВОЙСТВА ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ СТРУКТУР Fe<sub>3</sub>Si / MgO

Методом ферромагнитного резонанса исследованы анизотропные свойства тонкопленочных структур Fe<sub>3</sub>Si / MgO, различающихся условиями роста и содержанием Si. Было выяснено, что условия роста и концентрация Si существенным образом влияют на формирование индуцированной магнитнокристаллической анизотропии. Моделирование результатов экспериментов позволило извлечь данные о константах анизотропии, которые согласуются с известными для подобных структур.

The article presents anisotropic properties investigation of Fe<sub>3</sub>Si / MgO thin film structures with different growing conditions and Si content. Growing conditions and Si concentration parameters make an impact on shaping of induced magnetic crystalline anisotropy. Results of experiment data simulation allows to extract magnetic anisotropy constants, proved by known results for same structures.

**Ключевые слова:** ферромагнитный резонанс, спинтроника.

**Key words:** ferromagnetic resonance, spintronics.

#### Введение

Одним из привлекательных кандидатов для ферромагнитного электрода при создании магнитного туннельного перехода типа ФМ – ТИ – ФМ становится ферромагнитный силицид Fe<sub>3</sub>Si, который, согласно расчетам, является ферромагнитным полуметаллом, имеет 43 % спиновую поляризацию и достаточно высокую температуру Кюри в 850 К. Наибольший интерес представляет формирование полностью эпитаксиальных структур: ферромагнетик – туннельный изолятор – ферромагнетик (ФМ – ТИ – ФМ) на основе MgO. Это обусловлено, с одной стороны, близостью параметров кубических решеток и, следовательно, возможностью эпитаксиального роста ( $d_{\text{Fe}_3\text{Si}} = 0,568$  нм,  $d_{\text{MgO}} = 0,591$  нм, MgO[100] || Fe<sub>3</sub>Si[110]), с другой стороны, в монокристаллических туннельных слоях ожидается большая длина свободного пробега, чем в поликристаллических структурах. Эпитаксиальные тонкие Fe – Si пленки на монокристаллических подложках, таких как GaAs и MgO, активно исследовались в последние годы. Частично интерес стимулировали поиски лучшего материала для магнитного туннельного перехода [1 – 8]. В ряде работ были изучены анизотропные свойства эпитаксиальных тонких пленок Fe<sub>100-x</sub>Si<sub>x</sub> на MgO (001) в зависимости от концентрации Si. Было выяснено, что напряжение в решетке вызывает одноосную магнитнокристаллическую анизотропию, причем знак константы сильно зависит от напряжений в решетке, состояния интерфейса и состава пленки. Од-



нако многие вопросы, связанные с процессом возникновения индуцированной оси анизотропии и корреляции этих процессов с условиями роста, остаются невыясненными. Важны вопросы зависимости возникающих свойств анизотропии от условий формирования.

Основная цель данной работы — исследование магнитно-резонансных свойств сформированных структур  $\text{Fe}_3\text{Si}$  на подложке  $\text{MgO}$  в зависимости от метода их получения. В качестве метода исследования выбран метод ферромагнитного резонанса как наиболее эффективный для изучения магнитной и кристаллической анизотропии в ферромагнитных системах [1].

### Методы получения структур

61

Для исследования были выбраны 3 тонкопленочные структуры типа  $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{Si}$ : образцы структур с номерами 2322, 2332 и 2550, которые были сформированы методом импульсного лазерного осаждения (ИЛО) при различных параметрах формирования, при этом варьировалось соотношение импульсов совместного осаждения железа и кремния в цикле формирования. Применялась методика ИЛО с вакуумным отжигом перед началом формирования до  $T = 600^\circ\text{C}$  и осаждением при повышенной температуре подложки  $T = 250 - 450^\circ\text{C}$ .

Образец 2332 был синтезирован при соосаждении Fe и Si в соотношении 10 : 9, а образец 2322 — в соотношении 11 : 3. Толщина слоя силицида железа равнялась 240 Å. Для формирования образца 2550 использовалась сплавная стехиометрическая компонентная мишень  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Ее применение позволило получить стехиометрическое соотношение в процессе создания самой мишени и при отлаженных параметрах формирования вырастить стехиометрический тонкопленочный слой  $\text{Fe}_3\text{Si}$ . Сплавная стехиометрическая мишень  $\text{Fe}_3\text{Si}$  изготавливалась методом дуговой плавки. Массы сплавляемых компонентов Fe и Si выбирались с учетом их атомных плотностей исходя из соотношения атомов  $\text{Fe} : \text{Si} = 3 : 1$ . Рецепт роста заключался в следующем: тонкопленочный слой  $\text{Fe}_3\text{Si}$  формировался методом импульсного лазерного осаждения испарением сплавной мишени  $\text{Fe}_3\text{Si}$  на свежесколотую поверхность (100) монокристалла  $\text{MgO}$ , нагретую до  $T = 500^\circ\text{C}$ . Осаждение производилось с частотой повторения импульсов 5 Гц при остаточном давлении в вакуумной камере  $P_0 \sim 10^{-6}$  Па. Расстояние между мишенью и подложкой составляло 5 см. После осаждения образец подвергался отжигу при температуре  $T = 600^\circ\text{C}$  в течение  $t = 30$  мин. Для образца 2550 был проведен анализ качества эпитаксии слоев  $\text{Fe}_3\text{Si}(011)$  на подложке  $\text{MgO}(001)$  методом каналирования ионов в спектроскопии резерфордского обратного рассеяния [6]. Исследования показали, что параметр каналирования ионов  $\chi \approx 20\%$ , что подтверждает преимущественную ориентацию в сформированной тонкопленочной структуре [7]. При этом детальный анализ разориентированного спектра POР показал наличие нестехиометричности в структуре пленки (спектр соответствует сигналу от тонкой пленки  $\text{Fe} : \text{Si} = 3,5 : 1$ ).



### Экспериментальные результаты

Вышеописанные структуры (табл.) изучались на установке ЭПР «Радиопан» с рабочей частотой 9,4 ГГц. Использовался резонатор прямоугольного типа E102. Частота модуляции равнялась 100 кГц. С целью исследования анизотропных свойств структур установка была оборудована двухосевым гониометром, позволяющим изучать угловые зависимости резонансного сигнала в двух геометриях [8]. Точность установки угла поворота  $\theta_H$  при вращении образца относительно внешнего постоянного магнитного поля достигает  $0,5^\circ$ , а при повороте образца в азимутальном направлении  $\varphi_H$  в плоскости магнитного поля –  $1^\circ$ .

62

Магнитно-резонансные характеристики исследованных структур  
(в скобках указана толщина слоя Fe<sub>3</sub>Si)

Образец	Резонансное поле вдоль ЛОН, Э	Ширина линии вдоль ЛОН, Э	M, emu/cm <sup>3</sup>	Константы анизотропии, 10 <sup>5</sup> эрг/см <sup>3</sup>
2322 (24 нм), азимут	310	63	1120	$K_{2\perp} = -4,9$ $K_{2\parallel} = 0$ $K_{4\perp} = -2 \div -1$ $K_{4\parallel} = -1,9$
2332 (24 нм), полярная	1080	227	842	$K_{2\perp} \sim 0,5$ $K_{4\perp} = 0,1 \div 0,2$
2550 (26,5 нм), азимут	627	41	1040	$K_{2\perp} = -2,5$ $K_{2\parallel} = 0$ $K_{4\perp} = 0 \div 2$ $K_{4\parallel} = 0,84$

Первая серия экспериментов проводилась таким образом, что при вращении образца плоскость пленки все время оставалась в плоскости линий постоянного магнитного поля, тем самым исследовались анизотропные свойства структур, характеризующие кристаллический порядок, и определялось положение оси легкого намагничивания (ЛОН). Во второй серии экспериментов вращение образца осуществлялось относительно постоянного магнитного поля, менялся угол  $\theta$  начиная с направления легкой оси, ориентация которой выяснялась в первой серии экспериментов исследуемой пленки [3; 9]. Результаты измерений представлены в таблице.

### Теоретическая модель

Для теоретического моделирования результатов исследований кристаллической структуры пленки магнитно-резонансным методом использовался стандартный термодинамический подход [9]. Равновесное направление намагниченности пленки соответствует минимумам плотности свободной энергии  $F$ , которая в общем случае включает в се-



бя зеемановскую энергию взаимодействия магнитного момента пленки с приложенным полем  $E_z$ , обменную энергию  $E_{ex}$ , энергию магнитостатической ( $E_{ms}$ ) и кристаллической ( $E_c$ ) анизотропии:

$$F = E_z + E_{ex} + E_{ms} + E_c. \quad (1)$$

Рассматривалась однодоменная структура. Зеемановская энергия в формуле (1) имеет вид

$$E_z = -M \cdot H = -M \cdot H (\sin \theta \sin \theta_H \cos(\varphi - \varphi_H) + \cos \theta \cos \theta_H),$$

где  $M$  – намагниченность пленки;  $H$  – приложенное поле. Углы  $(\theta, \varphi)$  и  $(\theta_H, \varphi_H)$  задают соответственно направления векторов  $M$  и  $H$  в сферической системе координат. Обменной энергией можно пренебречь при предположении, что образец намагничен однородно. Это условие реализуется с хорошей степенью точности в эксперименте, так что далее будем полагать  $E_{ex} = 0$ . Магнитостатическая анизотропия (анизотропия формы) дает вклад в свободную энергию, равный

$$E_{ms} = 2\pi M^2 \cos^2 \theta = const - 2\pi M^2 \sin^2 \theta.$$

Энергию магнитокристаллической анизотропии представим в виде

$$E_c = -K_{2\perp} \cos^2 \theta + K_{2\parallel} \sin^2 \theta \cos^2(\varphi - \delta) + E_{cub},$$

где  $K_{2\perp}$ ,  $K_{2\parallel}$  – константы, характеризующие соответственно одноосную анизотропию в  $Z$  – направлении и в плоскости пленки, а угол  $\delta$  задает направление ЛОН. Энергия  $E_{cub}$  есть энергия анизотропии для кубической решетки и с точностью до членов четвертого порядка по компонентам единичного вектора  $\mathbf{m} = M/M$  может быть записана как

$$E_{cub} = K_4 (m_x^2 m_y^2 + m_x^2 m_z^2 + m_y^2 m_z^2) + K_6 m_x^2 m_y^2 m_z^2, \quad (2)$$

где  $K_4$ ,  $K_6$  – константы. Выражение (2) приводится к виду

$$E_{cub} = -\frac{K_{4\perp}}{2} \cos^4 \theta - \frac{K_{4\parallel}}{8} (3 + \cos 4\varphi) \sin^4 \theta. \quad (3)$$

Константы кубической анизотропии в первом и втором слагаемом выражения (3) положены различными с целью выявления разницы в энергии между состояниями с  $M \parallel [100]$  и  $M \parallel [110]$ , возникающей за счет искажений, которые вызваны решеточным несоответствием (ясно, что если разницы нет, то константы должны быть одинаковы).

Поле, при котором возникает резонанс на заданной частоте  $\omega$  [14], определяется выражением

$$\left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 - \frac{\det F_{ab}}{M^2 \sin^2 \theta_0} = 0,$$

где  $\theta_0$  – равновесный угол отклонения магнитного момента;  $\gamma$  – гиромагнитное отношение;  $F_{ab}$  – матрица, составленная из вторых производных функционала (1) по углам  $(\theta, \varphi)$ , взятых в точках устойчивого равновесия:

$$F_{ab} = \begin{pmatrix} F_{\theta\theta} & F_{\theta\varphi} \\ F_{\theta\varphi} & F_{\varphi\varphi} \end{pmatrix}_{\theta_0, \varphi_0}.$$



Положение равновесия определяется решением уравнений  $F_\theta = 0$ ;  $F_\varphi = 0$ .

Если исследуется азимутальная зависимость резонансного поля и поле  $H$  приложено в плоскости пленки, то можно положить  $\theta_0 = \theta_H = 90^\circ$ . В этом случае имеем систему уравнений, определяющую равновесное положение магнитного момента пленки и резонансного поля:

$$MH \sin(\varphi - \varphi_H) - K_{2\parallel} \sin(2(\varphi - \delta)) + \frac{K_{4\parallel}}{2} \sin 4\varphi = 0;$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = M^{-2} \left( MH \cos(\varphi - \varphi_H) - 2K_{2\parallel} \cos(2(\varphi - \delta)) + 2K_{4\parallel} \cos 4\varphi \right) \times$$

$$\times \left( MH \cos(\varphi - \varphi_H) + 4\pi M^2 - 2K_{2\perp} - 2K_{2\parallel} \cos^2(\varphi - \delta) + \frac{K_{4\parallel}}{2} (3 + \cos 4\varphi) \right). \quad (4)$$

Аналогично тому, как были получены уравнения (4), легко получить (предполагая, что  $\varphi_0 = \varphi_H = \delta$ ) для  $\theta$  – зависимости резонансного поля

$$MH \sin(\theta - \theta_H) - (2\pi M^2 - K_{2\perp} - K_{2\parallel}) \sin 2\theta + 2K_{4\perp} \cos^3 \theta \sin \theta - K_{4\parallel} \sin^3 \theta \cos \theta = 0,$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left( H \cos(\theta - \theta_H) + \left( -4\pi M_{\text{eff}} + \frac{2K_{2\parallel}}{M} + \frac{K_{4\perp}}{M} - \frac{K_{4\parallel}}{2M} \right) \cos 2\theta + \left( \frac{K_{4\perp}}{M} + \frac{K_{4\parallel}}{2M} \right) \cos 4\theta \right) \times$$

$$\times \left( H \cos(\theta - \theta_H) + \left( -4\pi M_{\text{eff}} + \frac{2K_{2\parallel}}{M} + \frac{K_{4\parallel}}{M} \right) \cos^2 \theta + \left( \frac{2K_{4\perp}}{M} + \frac{K_{4\parallel}}{M} \right) \cos^4 \theta - \frac{2K_{2\parallel}}{M} - \frac{2K_{4\parallel}}{M} \right).$$

Решение уравнений (4) и (5) позволяет найти полярную и азимутальную угловую зависимости резонансного поля. Данная процедура реализуется численно с помощью программы Maple 13.

### Моделирование экспериментальных результатов

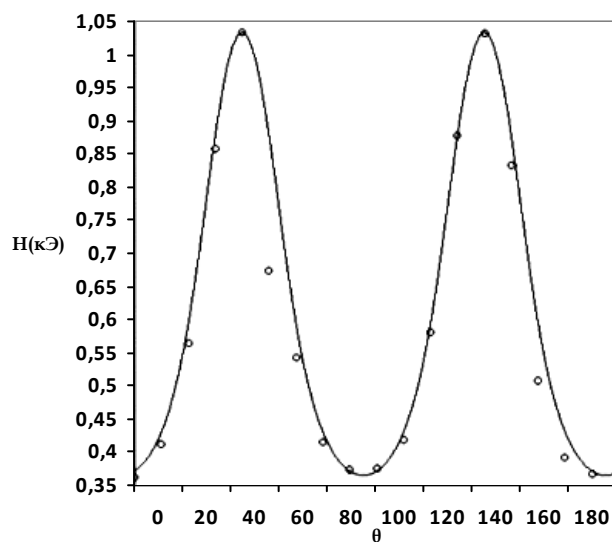
На рисунках 1, 2 представлены результаты численного моделирования (сплошная линия) экспериментальных данных (кружки) для исследованных образцов.

Анализ показывает, что значения намагниченности, полученные путем моделирования, зависят от метода формирования структуры, содержания кремния и толщины сформированного слоя. Так, значение намагниченности образца 2322 – наибольшее и оценивается в  $1120 \text{ emu/cm}^3$ , в то время как для образца 2332, имеющего более высокий уровень содержания Si, но одинаковую толщину с образцом 2322, намагниченность значительно меньше  $842 \text{ emu/cm}^3$ . Для образца 2550 толщиной в  $26,5 \text{ nm}$  намагниченность достигает величины  $1040 \text{ emu/cm}^3$ . Значения констант анизотропии зависят как от условий формирования, так и от концентрации Si.

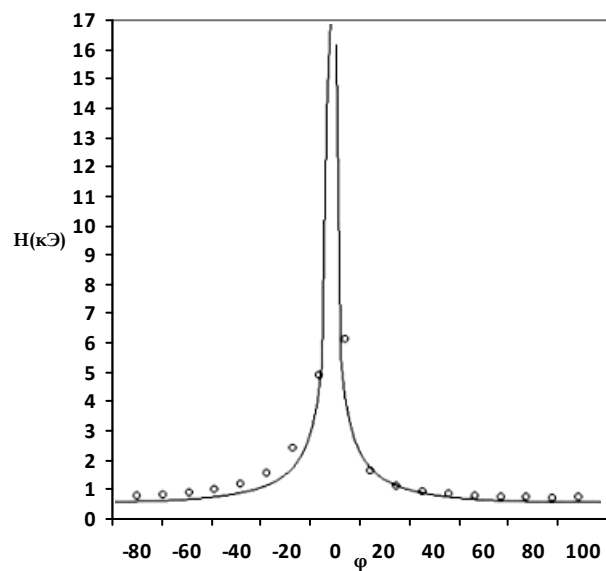
Данные оже-микроанализа, проведенного в режиме ионного профилирования, показали, что отношение концентраций Si сформированных образцов 2322 и 2332 составляет порядка 1,8. Константа  $K_{2\parallel}$  равна нулю с хорошей точностью (этому соответствует одинаковая вели-



чина максимумов резонансного поля). Довольно велико значение константы  $K_{4\parallel}$ , что обусловлено большой разницей между максимальным и минимальным значениями резонансного поля (для образца 2322 раз-ница достигает 0,65 кЭ, что соответствует максимальному значению  $K_{4\parallel}$  из всех имеющихся образцов).

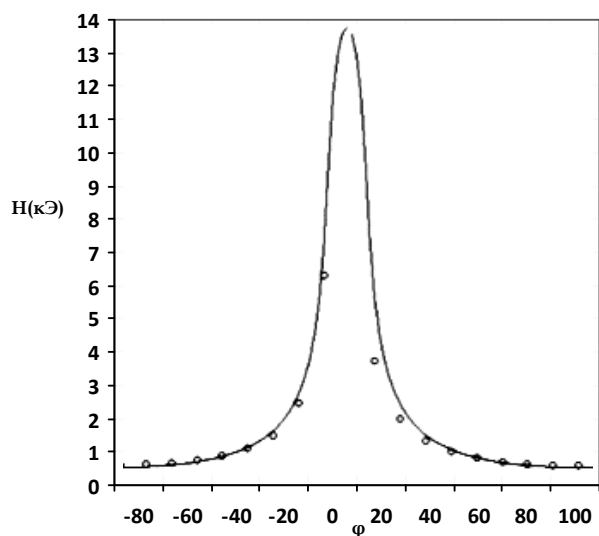


*a*

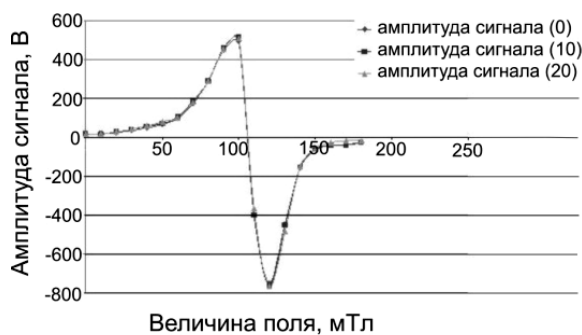


*б*

Рис. 1. Зависимости резонансного сигнала ФМР для образца 2322:  
*a* – азимутальная; *б* – полярная



а



б

Рис. 2:

- а – полярная зависимость резонансного поля для образца 2332;
- б – фрагмент ФМР-спектра при различной ориентации плоскости пленки относительно магнитного поля

Следует отметить, что в образце 2332 вообще не наблюдалось изменение положения резонансного сигнала при вращении образца в плоскости линий внешнего магнитного поля, менялась лишь амплитуда резонансного сигнала (рис. 2). Это может случиться из-за того, что в процессе синтеза сформировалась ось легкого намагничивания, лежащая перпендикулярно плоскости пленки. Как показывают вычисления, если ось анизотропии перпендикулярна плоскости пленки, то угловой зависимости сигнала ФМР в плоскости пленки не наблюдается [12]. Такая ситуация может возникнуть из-за напряжений в решетке, вызванных несоответствием параметров решеток MgO и пленки Fe<sub>3</sub>Si, эффектами на интерфейсе и по-



верхности. Однозначно на вопрос об ориентации и формировании оси можно было бы ответить, если бы удалось измерить точную величину значения резонансного поля при перпендикулярном расположении пленки относительно внешнего постоянного магнитного поля. Однако эти значения выходят за пределы допустимых магнитных полей, создаваемых магнитом спектрометра «Радиопан». Другой причиной может оказаться низкое качество эпитаксии сформированной структуры.

О сходных закономерностях сообщается в ряде работ [11–15], авторы которых отмечают значительный разброс данных по намагниченности и константам анизотропии в зависимости от условий приготовления образцов, вида подложки, концентрации железа и толщин образцов. В статье [11] представлены результаты изучения структуры типа  $Fe_3Si / GaAs (001)$ . Образец А с содержанием кремния ~25 % обладал намагниченностью 790, а образец В, обогащенный железом, — 1050  $emu/cm^3$  (содержание кремния ~16 %).

Кроме того, при исследовании в работе [17] эпитаксиальных структур  $Fe_3Si / MgO (001)$  с высоким содержанием Si (20, 25, 30 %) и толщинами 4, 8 и 40 нм отмечалась намагниченность порядка 800  $emu/cm^3$ , слабая кристаллическая анизотропия в плоскости, величина которой была на порядок ниже, чем у объемного железа, и зависела от теплового режима приготовления образцов. С другой стороны, авторы статьи [16], изучая магнитную анизотропию эпитаксиальных пленок  $Fe_{100-x}Si_x$  на  $MgO (001)$  при низком содержании Si, пришли к выводу, что магнитно-кристаллическая анизотропия из-за индуцированных напряжений в кристаллической решетке приводит к формированию оси легкого намагничивания, однако ее направление зависит от концентрации Si. Так, в образце  $Fe_{94.5}Si_{5.5}$  ось находится в плоскости пленки, в то время как для  $Fe_{75}Si_{25}$  она ориентирована перпендикулярно плоскости. Они также получили, что значение намагниченности уменьшается с увеличением концентрации Si. Общие закономерности, найденные в этой работе, и полученные нами значения параметров анизотропии находятся в соответствии с результатами работ [11–17].

*Работа выполнена в рамках федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» ГК 02.740.11.0550.*

### Список литературы

1. Kudrnovský J., Christensen N.E., Andersen O.K. Electronic structures and magnetic moments of  $Fe_{3+y}Si_{1-y}$  and  $Fe_{3-x}V_xSi$  alloys with  $DO_3$ -derived structure // Phys. Rev. 1991. В №43, 5924.
2. Moroni E.G., Wolf W., Hafner J., Podloucky R. Cohesive, structural and electronic properties of Fe-Si compounds // Phys. Rev. 1999. В №59. 12860.
3. Mattson J. E., Kumar S., Fullerton E. E., Lee C. H. S. S. R. et al. Photoinduced anti-ferromagnetic interlayer coupling in Fe/(Fe-Si) superlattices // Phys. Rev. Lett. 1993. №71. 185.
4. Herfort J., Schönherr H.-P., Friedland K.-J., Ploog J. Structural and magnetic investigations of  $Fe_3Si/GaAs(001)$  // Vac. Sci. Technol. 2004. В №22. 2073.





5. Herfort J., Schoenherr H.-P., Kawaharazuka A., Ramsteiner M. et al. Epitaxial growth of Fe<sub>3</sub>Si/GaAs(001) hybrid structures for spintronic application // Growth. 2005. №278. 666.
6. Jenichen B., Kaganer V.M., Herfort J., Satapathy D.K. et al. Layer-by-layer growth of thin epitaxial Fe<sub>3</sub>Si films on GaAs(001) // Thin Solid Films. 2007. №515. 5611 – 5614.
7. Гойхман А.Ю. Магнитные и структурные свойства наноразмерных слоев ферромагнетик-изолятор-ферромагнетик на основе FeSi<sub>x</sub> и FeO<sub>y</sub>: дис. ... канд. физ.-мат. наук. М., 2010.
8. Гойхман А.Ю., Куприянова Г.С., Прохоренко Е.Е., Черненко А.О. Магнитно-резонансные свойства тонкопленочных структур с Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> // Вестник Российского государственного университета им.И. Канта. 2010. №4. 81.
9. Rameev B.Z., Yilgin R., Aktas B., Gupta A., Tagirov L.R. FMR Studies of CrO<sub>2</sub> Epitaxial Thin Films // Microelectronic Engineering. 2003. N69. P. 336 – 340.
10. Kawaharazuka A., Ramsteiner M., Herfort J., Schönherr H.-P. et al. Spin injection from Fe<sub>3</sub>Si into GaAs // Appl. Phys. Lett. 2004. N85. 3492.
11. Lenz K., Kosubek E., Baberschke K., Herfort J. et al. Spin dynamics in ferromagnets: Gilbert damping and two-magnon scattering // Phys. Status Solidi. 2006. C N3. P. 122.
12. Ландау Л., Д. Лившиц Д. Теоретическая физика. М., 2003. Т. 8.
13. Lenz K., Kosubek E., Baberschke K., Wende H. et al. Magnetic properties of Fe<sub>3</sub>Si/GaAs(001) hybrid structures // Phys. Rev. 2005. N 72. 144411.
14. Smit J., Beljers H.-G. Ferromagnetic resonance absorption in BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>, a highly anisotropic crystal // Philips Res. Rep. 1955. N10. P. 113.
15. Komoto O. Surface modification, functionalization and bioconjugation of colloidal inorganic nanoparticles // JMMM. 2003. N262. P. 280.
16. Zhang Z. Y., Koppensteiner J., Schranz W., Betts J.B. et al. Microstructure dynamics in orthorhombic perovskites // Phys. Rev. 2010. B N81. 144418.
17. Zakeri Kh., Barsukov I., Utochkina N.K., Römer F.M. et al. Magnetic properties of epitaxial Fe<sub>3</sub>Si/MgO(001) thin films // Phys. Rev. 2007. B N76. 214421.

### Об авторах

Артем Валерьевич Асташенок — канд. физ.-мат. наук, доц., Балтийский федеральный университет им. И. Канта.

Галина Сергеевна Куприянова — д-р. физ.-мат. наук, проф., Балтийский федеральный университет им. И. Канта.

Александр Юрьевич Гойхман — канд. физ.-мат. наук, зав. лаб. ионно-плазменных технологий, Балтийский федеральный университет им. И. Канта.

Андрей Юрьевич Зюбин — асп., Балтийский федеральный университет им. И. Канта.

Анна Николаевна Орлова — студентка, Балтийский федеральный университет им. И. Канта.

### Authors

Artem Astashenok — PhD, I. Kant Baltic Federal University.

Alexander Goihman — PhD, I. Kant Baltic Federal University.

Galina Kupriyanova — Prof., I. Kant Baltic Federal University.

Andrey Zubin — postgraduate student of I. Kant Baltic Federal University.

Anna Orlova — the student of I. Kant Baltic Federal University.