

05

Электрические и магнитные свойства ультратонких поликристаллических пленок Fe, выращенных на SiO₂/Si(001)

© В.В. Балашев^{1,2}, К.С. Ермаков², Л.А. Чеботкевич²,
В.В. Коробцов^{1,2}

¹ Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН, Владивосток, Россия

² Школа естественных наук Дальневосточного федерального университета, Владивосток, Россия
E-mail: balashev@mail.dvo.ru

Поступило в Редакцию 20 марта 2018 г.

Ультратонкие поликристаллические пленки Fe выращены на окисленной поверхности подложки Si(001). Проведено измерение удельного сопротивления и магнитного гистерезиса пленок Fe в диапазоне толщин от 2.5 до 10 nm. На основе анализа полученных данных сделан вывод, что при толщине ~ 6 nm происходит переход к структурно-сплошной пленке. Обнаружено, что данный переход сопровождается появлением у зерен Fe в этой пленке преимущественной ориентации (111).

DOI: 10.21883/PJTF.2018.13.46332.17304

Благодаря своим магнитным свойствам железо является перспективным материалом для современной электроники. Тенденция к миниатюризации электронных устройств и созданию приборов с качественно новыми принципами работы требует исследования свойств различных наноструктур. В связи с этим объектами интенсивного исследования являются как пленки Fe нанометровой толщины [1,2], наноструктурированные пленки Fe [3], так и сами наночастицы Fe [4]. Пленки Fe вызывают интерес с точки зрения их магнитных свойств, а также перспективы использования в гибридных структурах. Так, авторами работы [5] наблюдался гигантский магнеторезистивный эффект в гибридных структурах на основе кремния — Fe/SiO₂/p-Si, толщина пленок Fe в которых составляла 5 nm. Авторами [6] показано, что в случае несплошной пленки Fe толщиной 3 nm можно наблюдать эффект

самоорганизации наночастиц Fe на поверхности Si в результате присутствия между ними обменного взаимодействия. Недавно с помощью метода дифракции быстрых электронов нами было установлено [7], что переход от поликристаллической пленки со случайной ориентацией зерен Fe к пленке с (111)-текстурой происходит в диапазоне толщин 5–6 nm. Исследование электрических и магнитных свойств пленок Fe, выращенных на поверхности Si, в зависимости от их толщины также представляет интерес.

В настоящей работе пленки Fe толщиной от 2.5 до 10 nm были выращены на поверхности подложки Si(001), покрытой ультратонким слоем SiO₂. Детали методики синтеза пленок Fe, а также слоя SiO₂ представлены в ранее опубликованной работе [7]. Исследования электрических и магнитных свойств проводились при комнатной температуре после извлечения образцов из сверхвысоковакуумной камеры, в которой они были выращены. Петли магнитного гистерезиса были получены индукционным методом с использованием вибромагнитометра Lake Shore VSM 7400. Магнитное поле прикладывалось вдоль плоскости пленки в диапазоне ± 1000 Oe. Измерение удельного сопротивления пленок Fe проводилось четырехзондовым методом на образцах размером 4×4 mm с помощью измерительного модуля, входящего в состав вибромагнитометра. Изображение доменной структуры пленок было получено на магнитооптическом керр-микроскопе Evico Magnetics.

На рис. 1 показана зависимость удельного сопротивления пленки Fe (ρ_f) от толщины (d), измеренная четырехзондовым методом. Можно видеть, что ρ_f сильно уменьшается в диапазоне толщин от 2.5 до 6.3 nm, достигая значения $\sim 3 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$. Кроме того, используя метод дифракции быстрых электронов, мы показали [7], что при толщине 6.3 nm наблюдался переход от пленки со случайной ориентацией зерен Fe к пленке с (111)-текстурой. При дальнейшем увеличении толщины до 10 nm удельное сопротивление пленки изменяется медленнее, достигая $9 \cdot 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$, что несколько больше, чем для объемного Fe ($1 \cdot 10^{-7} \Omega \cdot \text{m}$). Высокое значение ρ_f пленок металлов может объясняться рассеянием электронов проводимости шероховатой поверхностью, дефектами пленки, межзеренными границами и неоднородностями на границе раздела пленка/подложка [8,9]. Так, для нанометровых пленок Ni, выращенных на стекле [10], экспериментальная зависимость $\rho_f = f(d)$ хорошо описывается теорией [11] для

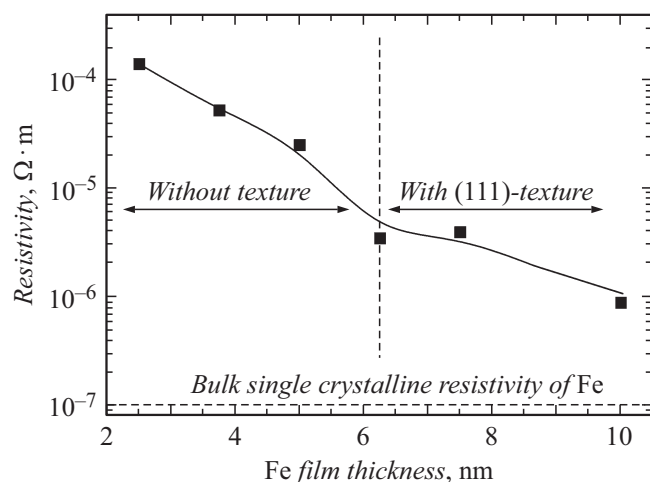


Рис. 1. Зависимость удельного сопротивления поликристаллических пленок Fe от их толщины.

пленок толщиной более ~ 7 nm с использованием таких подгоночных параметров, как ρ_{∞} объемного материала и $l_{\infty}h^2$ — произведение длины свободного пробега электрона на квадрат высоты шероховатости поверхности. Обнаружено, что в интервале толщин менее 7 nm, соответствующем более быстрому спаду ρ_f , пленки Ni не являются сплошными. Полученная нами зависимость $\rho_f = f(d)$ для пленок Fe характеризуется медленным спадом для значений толщин более ~ 6 nm. Мы предполагаем, что в данном диапазоне толщин пленки Fe с (111)-текстурой являются структурно-сплошными, а постепенное уменьшение ρ_f с толщиной связывается с уменьшением шероховатости поверхности.

На рис. 2 приведены петли магнитного гистерезиса пленок Fe. Измерение петель гистерезиса в зависимости от азимутального угла показало, что все пленки являются изотропными. Обнаружено, что при увеличении толщины пленки от 2.5 до 10 nm намагниченность насыщения (M_s) пленки увеличивается в 22 раза (вставка на рис. 2). Из приведенных петель магнитного гистерезиса видно, что пленки толщиной 2.5 nm можно рассматривать как совокупность островков-зародышей, не связанных друг с другом. Зависимость $M = f(H)$ в

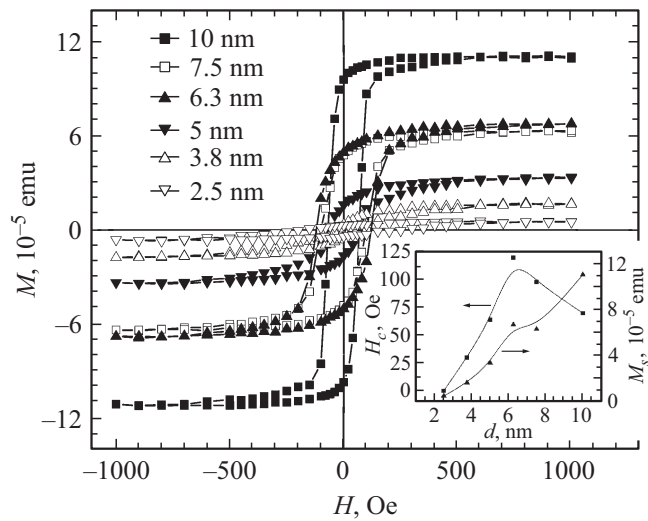


Рис. 2. Петли магнитного гистерезиса, полученные от пленок Fe разной толщины. На вставке показаны зависимости коэрцитивной силы H_c и намагниченности насыщения M_s от толщины пленок.

такой пленке подобна присущей парамагнетикам. Полученная величина намагниченности насыщения для пленки толщиной 10 nm составляла 690 emu/cm^3 , что в 2.5 раза меньше, чем у объемного Fe ($\sim 1700 \text{ emu/cm}^3$).

Исследование зависимости $H_c = f(d)$ (вставка на рис. 2) показало, что при увеличении толщины до 6.3 nm коэрцитивная сила возрастает, а затем при $d > 6.3 \text{ nm}$ уменьшается. Наблюдаемое в нашем случае поведение H_c в диапазоне толщин 2–10 nm можно объяснить следующим образом. При толщине $d < 6.3 \text{ nm}$ пленки являются структурно-неплотными (что подтверждает зависимость ρ_f от толщины). В этом случае зерна не связаны друг с другом и являются однодоменными. Мы полагаем, что при увеличении толщины пленок Fe до 6.3 nm происходит рост размера зерен Fe и шероховатости поверхности пленок. Это приводит к возрастанию коэрцитивной силы. В таких пленках процессы перемагничивания осуществляются вращением вектора намагничивания в каждом зерне. Так, используя метод атомно-силовой микроскопии,

мы установили [7], что среднеквадратичная (rms) шероховатость увеличивается от 0.5 nm для $d = 2.5$ nm до 1.4 nm для $d = 5$ nm. Напротив, при увеличении толщины пленки от 6.3 до 10 nm rms-шероховатость уменьшается до ~ 0.9 nm. Зависимость коэрцитивной силы H_c от шероховатости поверхности пленки можно оценить с помощью выражения [12]

$$H_c = 9.8 \frac{M_s h}{L^{4/3}} d^{1/3},$$

где M_s — намагниченность насыщения, h и L — среднеквадратичная шероховатость и период шероховатости. Наибольший вклад в изменение H_c будет вносить величина шероховатости h , в то время как период шероховатости L , связанный с расстоянием между зёрнами, не должен существенно изменяться в диапазоне толщин от 6 до 10 nm. Как видно из приведенного выше выражения, H_c слабо зависит от толщины — $d^{1/3}$. Подставляя значения $M_s = 1710$ G для пленок Fe, $h = 1.4$ nm для $d = 6.3$ nm и $h = 0.9$ nm для $d = 10$ nm при $L = 80$ nm, получим $H_c = 125$ Oe для $d = 6.3$ nm и $H_c = 94$ Oe для $d = 10$ nm. Изменение коэрцитивной силы в зависимости от толщины, оцененное по формуле, хорошо согласуется с экспериментальными данными: 120 и 70 Oe. Незначительное расхождение связано с тем, что не учтено изменение размера зёрен Fe.

При толщине $d > 6.3$ nm пленка Fe становится структурно-сплошной, а зёрна становятся связанными друг с другом обменно в пределах длины магнитной корреляции

$$\lambda_{ex} \sim \sqrt{A/K},$$

где A — обменная константа, K — энергия анизотропии. В локальных областях пленки, соизмеримых с λ_{ex} , реализуется доменная структура. Электрическая проводимость между зёрнами увеличивается, а процесс перемагничивания осуществляется посредством зарождения и смещения доменных границ.

Увеличение H_c в диапазоне толщин от 2.5 до 6.3 nm может быть связано с изменением не только шероховатости, но и размера зёрен Fe. Исследование магнитных свойств наночастиц Fe, полученных разными методами [13,14], показало, что наибольшая величина H_c наблюдается при переходе от ансамбля, состоящего из суперпарамагнитных частиц Fe, к ансамблю однодоменных частиц со стабильным магнитным моментом.

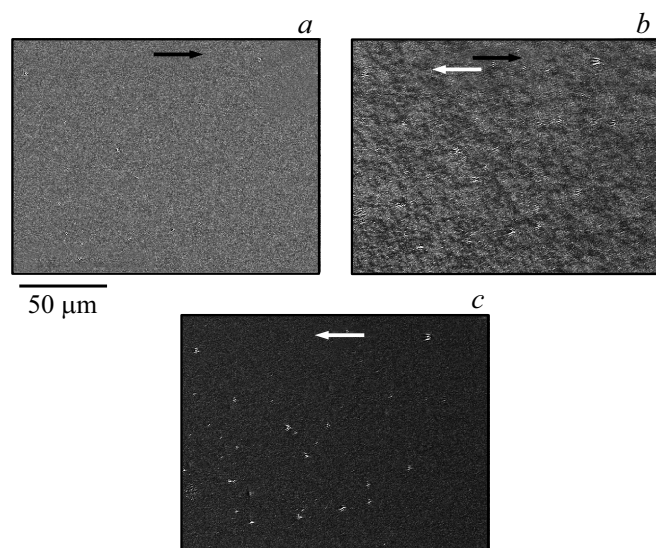


Рис. 3. Изображения доменной структуры, полученные от поликристаллической пленки Fe с (111)-текстурой ($d = 7.5$ nm) методом магнитооптической керр-микроскопии при значениях напряженности магнитного поля $H = 500$ (a), -46 (b) и -500 Oe (c). Стрелками указаны направления намагниченности в пленке железа.

На рис. 3 в качестве примера приведены изображения доменной структуры пленки Fe толщиной 7.5 nm, полученные с помощью керр-микроскопии в зависимости от величины внешнего магнитного поля (H). Вначале пленка намагничивалась до насыщения в поле $H = H_s$ (500 Oe), а затем поле постепенно уменьшалось до нуля и прикладывалось в обратном направлении. Однородное светлое изображение, полученное от пленки Fe для $H = 500$ Oe (рис. 3, a), указывает на то, что вектор намагниченности в домене (черная стрелка) ориентирован по направлению поля H . Из рис. 3, b можно видеть, что для $H = -46$ Oe на изображении помимо светлых областей присутствуют темные, соответствующие доменам с противоположной ориентацией вектора намагниченности (стрелка белого цвета). При возрастании поля H число и размеры доменов с обратной намаг-

ниченностью (темные области) увеличиваются. Однородное темное изображение при $H = -500$ Ое на рис. 3, с свидетельствует о том, что вектор намагниченности доменов меняет знак на обратный для всей пленки Fe. С увеличением толщины rms-шероховатость структурно-сплошных пленок уменьшается, что приводит к уменьшению коэрцитивной силы.

Таким образом, резкое уменьшение ρ_f пленки при 6.3 nm, а также появление спада H_c при дальнейшем увеличении толщины осажденного Fe свидетельствуют о формировании сплошной пленки. Кроме того, нами наблюдалось возникновение у пленки (111)-текстуры [7]. Причиной этого может быть обменное взаимодействие между частицами Fe в результате их сближения друг с другом таким образом, что направление [111] их решетки совпадает с нормалью к поверхности. В работе [6] была обнаружена самоорганизация наночастиц Fe на вицинальной окисленной поверхности кремния, в результате которой они располагались определенным образом относительно друг друга. Авторами работы установлено, что величина обменного взаимодействия пропорциональна площади контакта между наночастицами. Согласно теоретическому расчету [15], наночастицы Fe в форме ромбододекаэдра с гранями (110) являются наиболее стабильными. Интересно отметить, что у наночастицы Fe с формой ромбододекаэдра шесть граней (110) располагаются с шести сторон, параллельно друг другу и оси [111]. В том случае, если наночастица Fe на поверхности стремится к контакту с соседними наночастицами этими гранями, ось [111] будет нормальна к плоскости поверхности. Возможно, что этим можно объяснить преимущественную ориентацию (111) зерен в поликристаллических пленках Fe, полученных в этой работе.

Проведено измерение удельного сопротивления и магнитного гистерезиса ультратонких поликристаллических пленок Fe, выращенных на поверхности SiO₂/Si(001). Установлено, что при толщине 5–6 nm происходит переход от островковой к структурно-сплошной пленке с (111)-текстурой. Сделано предположение, что возникновение (111)-текстуры при данном переходе является результатом обменного взаимодействия между наночастицами Fe.

Работа частично поддержана Комплексной программой фундаментальных исследований ДВО РАН „Дальний Восток“ на 2018–2020 гг. (№ 18-3-022 (0226-18-0031)).

Список литературы

- [1] *Komogortsev S.V., Varnakov S.N., Satsuk S.A., Yakovlev I.A., Ovchinnikov S.G.* // J. Magn. Magn. Mater. 2014. V. 351. P. 104–108.
- [2] *Cao Y., Jiang W., Droubay T., Ramuhalli P., Edwards D., Johnson B.R., McCloy J.* // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 395. P. 361–375.
- [3] *Felix J.F., Figueiredo L.C., Mendes J.B.S., Morais P.C., de Araujo C.I.L.* // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 395. P. 130–133.
- [4] *Tang H., Zhan X., Wu Z., Du Y., Talbi A., Pernod P.* // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 377. P. 472–476.
- [5] *Volkov N.V., Tarasov A.S., Gustajcev A.O., Volkova O.N., Varnakov S.N., Ovchinnikov S.G.* // Trans. Nonferrous Met. Soc. China. 2014. V. 24. N 10. P. 3158–3163.
- [6] *Dos Santos M.C., Geshev J., Pereira L.G., Alves M.C.M., Schmidt J.E., Allongue P.* // Phys. Rev. B. 2004. V. 70. N 10. P. 104420.
- [7] *Балашев B.B., Коробилов B.B.* // ЖТФ. 2018. Т. 88. В. 1. С. 75–79.
- [8] *Angadi M.A.* // J. Mater. Sci. 1985. V. 20. N 3. P. 761–796.
- [9] *Moraga L., Arenas C., Henriquez R., Bravo S., Solis B.* // Physica B. 2016. V. 499. P. 17–23.
- [10] *Reiss G., Hastreiter E., Bruckl H., Vancea J.* // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. N 6. P. 5176–5179.
- [11] *Tesanovic Z., Jaric M.V., Maekawa S.* // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 57. N 21. P. 2760–2763.
- [12] *Li S.P., Samad A., Lew W.S., Xu Y.B., Bland J.A.C.* // Phys. Rev. B. 2000. V. 61. N 10. P. 6871–6875.
- [13] *Luborsky F.E., Paine T.O.* // J. Appl. Phys. 1960. V. 31. N 5. P. 68S–70S.
- [14] *Gong W., Li H., Zhao Z., Chen J.* // J. Appl. Phys. 1991. V. 69. N 8. P. 5119–5121.
- [15] *Wu Y.-N., Huang R., Zeng X.M., Wen Y.H.* // Phys. Lett. A. 2016. V. 380. N 5-6. P. 739–744.