Письма в ЖЭТФ, том 99, вып. 9, с. 610 – 613 © 2014 г. 10 мая

Исследование структурных и магнитных характеристик эпитаксиальных пленок $Fe_3Si/Si(111)$

И. А. Яковлев[+1)], *С. Н. Варнаков*[+*], *Б. А. Беляев*[+*×], *С. М. Жарков*[+×], *М. С. Молокеев*[+], *И. А. Тарасов*[+*], *С. Г. Овчинников*[+*×]

[+]*Институт физики им. Киренского СО РАН, 660036 Красноярск, Россия*

[*]*Сибирский государственный аэрокосмический университет им. Решетнева, 660014 Красноярск, Россия*

[×]*Сибирский федеральный университет, 660041 Красноярск, Россия*

Поступила в редакцию 28 марта 2014 г.

Представлены результаты структурных и магнитных исследований эпитаксиальной структуры, полученной при одновременном напылении из двух источников железа и кремния на атомарно чистую поверхность Si(111)7×7 при температуре подложки 150 °C. Методами рентгеноструктурного анализа, просвечивающей электронной микроскопии и дифракции отраженных быстрых электронов эпитаксиальная структура идентифицирована как монокристаллическая пленка силицида Fe_3Si с ориентацией Si[111]‖Fe_3Si[111]. Установлено, что эпитаксиальная пленка Fe_3Si при комнатной температуре обладает магнитной одноосной анизотропией ($H_a = 26$ Э) и имеет сравнительно узкую линию однородного ферромагнитного резонанса ($\Delta H = 11.57$ Э), измеренную на частоте накачки 2.274 ГГц.

DOI: 10.7868/S0370274X14090082

1. Тонкие пленки системы Fe–Si привлекают достаточно большой интерес исследователей из-за их уникальных физических свойств и перспектив их применения в устройствах спинтроники [1–4]. В магнитных металлах, таких, как железо или пермаллой, степень спиновой поляризации электронов составляет около 40–45 %. Уже продемонстрирована возможность создания высокой степени спиновой поляризации электронов в кремнии путем их инжектирования из ферромагнитного металлического электрода. При этом нижний порог поляризации спинов составляет 30 % [5]. Однако из-за неконтролируемого образования различных силицидов на интерфейсе таких структур [6, 7] происходит резкое снижение возможности спинового переноса.

Решением данной проблемы может стать создание высококачественного ферромагнитного силицида Fe_3Si. Согласно расчетам он является ферромагнитным полуметаллом, имеет спиновую поляризацию на уровне 43 % и достаточно высокую температуру Кюри, 577 °C [8]. Наибольший интерес представляет формирование полностью эпитаксиальной структуры на основе кремния. Это обусловлено, с одной стороны, близостью межплоскостных расстояний (111) кремния и силицида железа для эпитаксиального роста ($d_{Si} = 0.3138$ нм (PDF 4+ card # 00-005-0565), $d_{Fe_3Si} = 0.3271$ нм (PDF 4+ card # 04-015-3939), Si[111]‖Fe_3Si[111] [9]). С другой стороны, в монокристаллических туннельных слоях ожидается бóльшая длина свободного пробега электронов, чем в поликристаллических структурах.

Основной целью данной работы являлось определение технологических условий формирования ферромагнитного силицида Fe_3Si и нахождение параметров ферромагнитного резонанса.

2. Структура Fe_3Si была получена методом термического испарения в сверхвысоком вакууме на допированной бором атомарно чистой подложке Si(111) (удельное сопротивление 5–10 Ом · см) на модернизированной установке молекулярно-лучевой эпитаксии "Ангара" [10]. Базовый вакуум в технологической камере составлял $1.3 \cdot 10^{-8}$ Па. Перед синтезом подложка подвергалась химической обработке с последующим термическим отжигом в сверхвысоком вакууме. Химическая обработка, основанная на методике, предложенной в работе [11], включала три этапа: процесс обезжиривания, удаление естественного слоя оксида с подложки Si и формирование пассивационной пленки из оксида SiO_2 толщиной ~ 1.5 нм на поверхности Si. После химической обработки подложка загружалась в сверхвысокий вакуум, где подвергалась термическому отжигу.

В процессе термического отжига пластина Si(111) постепенно нагревалась в течение 3 ч до 650 °C со

[1)]e-mail: yia@iph.krasn.ru

скоростью 4 град/мин и выдерживалась при этой температуре 15 мин. При этом давление в камере не поднималось выше $5.6 \cdot 10^{-7}$ Па. Далее осуществлялся резкий нагрев подложки до 800 °C, с 30-секундной выдержкой. Затем температура снова снижалась до 650 °C. Данные "импульсы" производились до тех пор, пока на дифракционной картине отраженных быстрых электронов (ДОБЭ) не появлялись дополнительные рефлексы от реконструированной поверхности Si(111)7×7, что свидетельствовало о получении атомарно чистой поверхности кремния. После этого температура подложки снижалась до 150 °C и сохранялась перед напылением 60 мин.

Одновременное напыление железа и кремния осуществлялось методом термического испарения из двух эффузионных ячеек Кнудсена, изготовленных из высокотемпературного нитрида бора. Скорости осаждения отдельных материалов были откалиброваны методом лазерной эллипсометрии. При этом обеспечивалось стехиометрическое для Fe_3Si соотношение скоростей Si:Fe ≈ 0.57. Процесс формирования структуры контролировался *in situ* быстродействующим лазерным эллипсометром ЛЭФ-751М [12] и методом дифракции отраженных быстрых электронов.

На представленной на рис. 1 картине ДОБЭ от поверхности после осаждения структуры присутствуют рефлексы в виде точек, которые вытянуты в вертикальном направлении. Это свидетельствует о наличии на поверхности структуры, состоящей из монокристаллических эпитаксиально сформированных островков, высота которых меньше, чем размер основания. Из предварительной идентификации картины ДОБЭ были получены значения межплоскостных расстояний $d = 0.192 \pm 0.010$ и 0.143 ± 0.010 нм. Они близки к значениям межплоскостных расстояний для объемной фазы Fe_3Si [9], $d_{(220)} = 0.20028$ нм и $d_{(400)} = 0.14162$ нм.

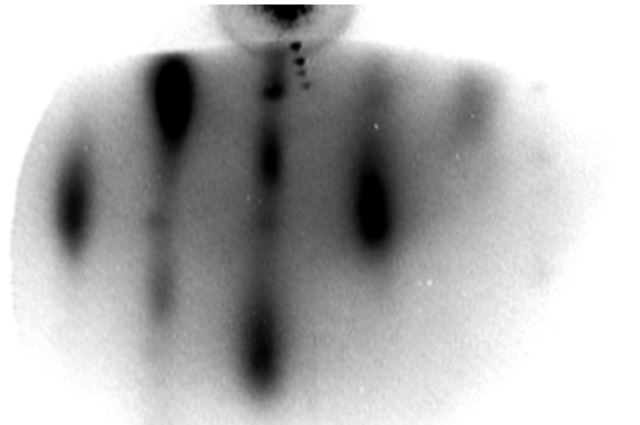

Рис. 1. Картина ДОБЭ от поверхности после осаждения структуры Fe_3Si/Si(111)

3. Определение *ex situ* структурного совершенства и фазового состава образцов осуществлялось методами просвечивающей электронной микроскопии на микроскопе JEOL JEM-2100 [13] и рентгеноструктурного анализа (РСА) на порошковом дифрактометре D8 ADVANCE (Cu K_α-излучение, Ni фильтр) с линейным детектором VANTEC. Исследование магнитных свойств было проведено на сканирующем спектрометре ферромагнитного резонанса [14] на частоте накачки 2.274 ГГц.

На рис. 2 представлено электронно-микроскопическое изображение поперечного сечения Fe_3Si/Si(111), полученное на просвечивающем электронном микроскопе с высоким разрешением. Анализ изображения подтверждает эпитаксиальную структуру пленки Fe_3Si с ориентацией Si[111]||Fe_3Si[111]. На рис. 2 показаны атомные плоскости Si(111) и Fe_3Si(111). Определенное межплоскостное расстояние на подложке Si составило 0.32 нм, что близко к Si(111) = 0.314 нм (PDF 4+ card # 00-005-0565). Межплоскостное расстояние системы Si–Fe составило 0.33 нм, что близко к Fe_3Si(111) = 0.327 нм (PDF 4+ card # 04-015-3939) [9].

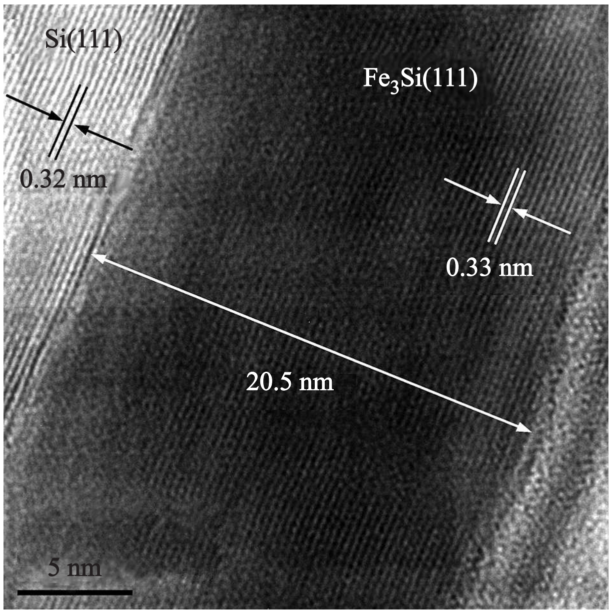

Рис. 2. Электронно-микроскопическое изображение высокого разрешения (поперечное сечение) структуры Fe_3Si/Si(111)

Перечисленные результаты подтверждаются данными, полученными рентгеноструктурным анализом. По ним было определено, что исследуемая структура обладает кубической симметрией $Fm{-}3m$ с параметром элементарной ячейки 0.564(3) нм, близким к значению для объемного кристалла Fe_3Si, составляющему 0.567 нм (PDF 4+ card # 04-015-3939) [9].

Анализ данных РСА (см. рис. 3) показывает наличие рефлексов от подложки, а также одного ре-

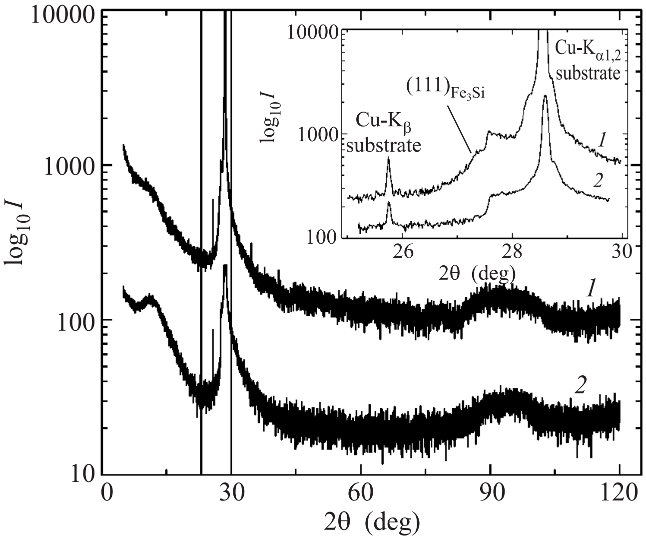

Рис. 3. Рентгенограммы от Fe_3Si/Si(111) (*1*) и Si(111) (*2*)

флекса с координатой $2\theta = 27.3^\circ$ от полученной пленки, что соответствует плоскости (111) фазы Fe_3Si. Отсутствие других рефлексов фазы Fe_3Si свидетельствует о том, что текстура для этой пленки на плоскость (111) равна 100%. Причиной наличия скачка на рентгенограммах в области $2\theta = 27.5^\circ$ является использование Ni фильтра для ослабления K_β излучения. Анализ полуширины рефлекса показал, что минимальный размер кристаллического слоя Fe_3Si равен 20 нм. Это значение как раз сопоставимо с толщиной пленки.

4. Исследование магнитных свойств пленки Fe_3Si методом ферромагнитного резонанса (ФМР) показало наличие у нее не только одноосной (H_a), но и небольшой однонаправленной (H_{ua}) анизотропии. На рис. 4 представлена угловая зависимость резонансного поля $H_R(\varphi)$, ориентированного в плоскости пленки, снятая с шагом 2° на сканирующем спектрометре ФМР [14] на частоте накачки 2.274 ГГц.

Для определения основных магнитных параметров исследуемой пленки из угловых зависимостей по-

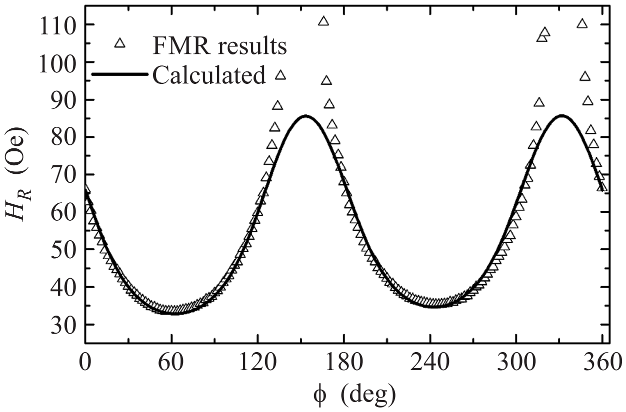

Рис. 4. Угловая зависимость резонансного поля $H_R(\varphi)$ для структуры Fe_3Si/Si(111)

ля ферромагнитного резонанса использовалась феноменологическая модель, в которой плотность свободной энергии имеет вид [14]

$$F = F_Z + F_m + F_a + F_{ua},$$

где $F_Z = -(\mathbf{MH})$ – плотность энергии Зеемана, $F_m = \frac{1}{2}(\mathbf{M}\overleftrightarrow{\mathbf{N}}\mathbf{M})$ – плотность магнитостатической энергии, $F_a = -\frac{(\mathbf{MH}_a)^2}{2M_s^2}$ – плотность энергии магнитной одноосной анизотропии, $F_{ua} = -(\mathbf{MH}_{ua})$ – плотность энергии магнитной однонаправленной анизотропии, $\mathbf{H}$ – вектор постоянного магнитного поля, $\mathbf{M}$ – вектор намагниченности, $\overleftrightarrow{\mathbf{N}}$ – тензор размагничивающих коэффициентов, M_s – намагниченность насыщения.

Из решения уравнения Ландау–Лифшица для такой модели несложно получить теоретическую зависимость поля ФМР от угла направления магнитного поля развертки φ. В результате итерационного процесса, подгоняя магнитные параметры пленки так, чтобы теоретическая зависимость $H_R(\varphi)$ с заданной точностью совпадала с экспериментально измеренной [14], можно определить намагниченность насыщения ($M_s = 875$ Гс), поле анизотропии ($H_a = 26$ Э) и поле однонаправленной анизотропии ($H_{ua} = 0.9$ Э). Важно отметить, что намагниченность насыщения в нашем случае выше, чем для Fe_3Si, выращенного на Si(111) (∼ 650 Гс) в работе [8], и для Fe_3Si, выращенного на GaAs(001) (∼ 790 Гс) в работе [15], но ниже, чем намагниченность насыщения для объемного Fe_3Si (∼ 1270 Гс) [16]. Кроме того, были измерены ширина линии ФМР ($\Delta H = 11.57$ Э) и коэрцитивная сила ($H_c = 12.3$ Э). Полученные магнитные характеристики сравнимы с магнитными характеристиками пленочных материалов, которые находят применение в датчиках слабых магнитных полей [17] и могут использоваться в качестве активного материала в различных электрически управляемых устройствах микроволнового (СВЧ) диапазона (например, в фильтрах, амплитудных и фазовых модуляторах, в ограничителях мощности [18, 19]). При синтезе пленочных материалов для таких устройств требуются высокая магнитная проницаемость и малые потери СВЧ-мощности. Поэтому основная борьба разворачивается за увеличение намагниченности насыщения M_s и уменьшение ширины линии ферромагнитного резонанса ΔH.

5. Итак, в настоящей работе была исследована структура, полученная при одновременном напылении из двух источников железа и кремния на атомарно чистую поверхность Si(111)7×7 при температуре подложки 150 °C. Данная структура идентифицирована как монокристаллический силицид Fe_3Si. Установлено, что полученная пленка обладает магнитной одноосной анизотропией ($H_a = 26$ Э) и имеет сравнительно узкую линию однородного ферромагнитного резонанса ($\Delta H = 11.57$ Э), измеренную на частоте накачки 2.274 ГГц.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 13-02-01265), гранта поддержки ведущей научной школы (проект НШ-2886.2014.2) и Министерства образования и науки Российской Федерации (государственный контракт # 02.G25.31.0043; госзадание СФУ в части проведения НИР на 2014 г).

1. S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnar, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, Science **294**, 1488 (2001).
2. S. Datta and B. Das, Appl. Phys. Lett. **56**, 665 (1990).
3. R. R. Gareev, D. E. Bürgler, M. Buchmeier, R. Schreiber, and P. Grünberg, JMMM **240**, 235 (2002).
4. N. V. Volkov, A. S. Tarasov, E. V. Eremin, S. N. Varnakov, S. G. Ovchinnikov, and S. M. Zharkov, J.Appl. Phys. **109**, 123924 (2011).
5. B. T. Jonker, G. Kioseoglou, A. T. Hanbicki, C. H. Li, and P. E. Thompson, Nature Physics **3**, 542 (2007).
6. S. R. Naik, S. Rai, M. K. Tiwari, and G. S. Lodha, J. Phys. D: Appl. Phys. **41**, 115307 (2008).
7. 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).
8. K. Hamaya, K. Ueda, Y. Kishi, Y. Ando, T. Sadoh, and M. Miyao, Appl. Phys. Lett. **93**, 132117 (2008).
9. *Powder Diffraction File (PDF 4+, 2012), Inorganic Phases*, International Center for Diffraction Data, Swarthmore, PA, USA.
10. С. Н. Варнаков, А. А. Лепешев, С. Г. Овчинников, А. С. Паршин, М. М. Коршунов, P. Nevoral, ПТЭ **6**, 125 (2004).
11. A. Ishizaka and Y. Shiraki, J. Electrochem. Soc. **133**, 666 (1986).
12. И. А. Тарасов, Н. Н. Косырев, С. Н. Варнаков, С. Г. Овчинников, С. М. Жарков, В. А. Швец, О. Е. Терещенко, ЖТФ **82**, 44 (2012).
13. С. М. Жарков, Е. Т. Моисеенко, Р. Р. Алтунин, Н. С. Николаева, В. С. Жигалов, В. Г. Мягков, Письма в ЖЭТФ **99**, 472 (2014).
14. B. A. Belyaev, A. V. Izotov, and A. A. Leksikov, IEEE Sens. J. **5**, 260 (2005).
15. K. Lenz, E. Kosubek, K. Baberschke, H. Wende, J. Herfort, H. P. Schönherr, and K. H. Ploog, Phys. Rev. B **72**, 144411 (2005).
16. H. P. J. Wijn, *Magnetic Properties of Metals: D-Elements, Alloys and Compounds*, Springer (1991), 190 p.
17. А. Н. Бабицкий, Б. А. Беляев, А. А. Лексиков, Изв. вузов. Физика **56**(8/2), 275 (2013).
18. B. A. Belyaev, A. V. Izotov, S. Ya. Kiparisov, and G. V. Skomorokhov, Phys. Solid State **50**, 676 (2008).
19. V. G. Myagkov, V. S. Zhigalov, B. A. Belyaev, L. E. Bykova, L. A. Solovyov, and G. N. Bondarenko, JMMM **324**, 1571 (2012).