

На правах рукописи

ГОЙХМАН АЛЕКСАНДР ЮРЬЕВИЧ

**МАГНИТНЫЕ И СТРУКТУРНЫЕ СВОЙСТВА
НАНОРАЗМЕРНЫХ СЛОЕВ ФЕРРОМАГНЕТИК-ИЗОЛЯТОР-
ФЕРРОМАГНЕТИК НА ОСНОВЕ FeSi_x И FeO_y**

01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Автор

Москва 2010

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете
«МИФИ»

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор
Неволин Владимир Николаевич

Научный консультант: кандидат физико-математических наук
Зенкевич Андрей Владимирович

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук, профессор
Троян Виктор Иванович, НИЯУ МИФИ
доктор физико-математических наук, профессор
Лейцин Владимир Нояхович, РГУ им. И. Канта

Ведущая организация: Научно-исследовательский институт ядерной физики им Д.В. Скобельцина Московского государственного университета, г. Москва

Защита диссертации состоится «30» июня 2010 года в 15.00 часов на заседании Диссертационного совета Д212.130.04 при Национальном исследовательском ядерном университете МИФИ по адресу:
115409, Москва, Каширское шоссе, д. 31

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ «МИФИ»

Автореферат разослан «27» мая 2010 года

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в одном экземпляре, заверенном печатью организации, по адресу НИЯУ «МИФИ».

Ученый секретарь диссертационного совета,
доктор физико-математических наук,
профессор

И.И. Чернов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы.

В элементе магнитной памяти, основанном на квантовом туннелировании и состоящем из структуры ферромагнетик-изолятор-ферромагнетик (ФМ-И-ФМ), ориентация намагниченности одной из ферромагнитных обкладок изменяется приложением внешнего магнитного поля, величина которого подбирается так, чтобы ориентация намагниченности второй ферромагнитной обкладки не менялась. Изменение вероятности туннелирования при изменении относительной ориентации намагниченности ферромагнитных обкладок приводит к изменению «гигантского» магнитосопротивления $R_{GM}=(R_{\uparrow\uparrow}-R_{\uparrow\downarrow})/R_{\uparrow\uparrow}$ тонкопленочной структуры ФМ–И–ФМ, и может быть использовано для создания элементов памяти произвольного доступа (Random Access Memory, RAM).

Среди возможных материалов электрода в элементах магнитной памяти особый интерес представляет использование полуметаллов, которые, согласно теории, должны иметь только одну заполненную спиновую подзону на уровне Ферми, что потенциально может давать значения спиновой поляризации электронов, близкие к 100%. Однако, для получения наибольшего эффекта магнитосопротивления, который, в конечном счете, и определяет функциональность такого рода структур для использования в элементах энергонезависимой памяти, критически важна комбинация материалов ферромагнитных электродов и туннельного изолятора, а также границ раздела ФМ/И

Полученные результаты экспериментов по формированию и исследованию структур ФМ-И-ФМ показали перспективность применения выбранных материалов Fe_3Si , Fe_3O_4 , MgO и SiO_2 и их комбинаций в качестве функциональных структур магнитных туннельных переходов.

Цель работы.

Целью диссертационной работы явилась разработка оптимальных условий формирования и выявление структурных, химических, фазовых и функциональных магнитных свойств тонкопленочных наноразмерных слоев ФМ-И-

ФМ с использованием ферромагнитных силицидов FeSi_x и оксидов FeO_y железа в качестве ферромагнитных электродов, а оксидов магния MgO и кремния SiO_2 – в качестве изолирующих слоев.

Для достижения поставленной цели в работе решены следующие задачи.

1. Разработаны механизмы формирования тонкопленочных слоев Fe_3Si и Fe_3O_4 , обладающих заданными магнитными и структурными свойствами, способы формирования сверхтонких (~ 2 нм) туннельно-прозрачных изолирующих слоев MgO и SiO_2 в контакте с ферромагнитными слоями.

2. Установлены оптимальные условия ориентированного (эпитаксиального) роста тонкопленочных слоев ферромагнитных полуметаллических силицида Fe_3Si и оксида Fe_3O_4 на монокристаллических подложках MgO .

3. Разработан способ формирования поликристаллических и ориентированных структур $\text{FeO}_y/\text{MgO}/\text{FeSi}_x$, обладающих независимым переключением намагниченностей в ферромагнитных слоях при сверхтонком изолирующем слое (~ 3 нм).

4. Разработана диагностическая методика исследования функциональных магнитных свойств структур ФМ-И-ФМ.

Научная новизна.

- Впервые для поликристаллического тонкопленочного ферромагнитного оксида железа Fe_3O_4 обнаружен эффект усиления магнитных свойств при использовании подслоя Fe.
- Впервые обнаружено влияние взаимного расположения слоев Fe и Fe_3O_4 на проявление эффекта усиления магнитных свойств тонкопленочных наноразмерных слоев магнетита.
- Впервые с применением метода ферромагнитного резонанса для анализа магнитного состояния ферромагнитных слоев в структурах ФМ-И-ФМ установлена взаимосвязь между кристаллическими и магнитными свойствами ферромагнитных слоев Fe_3Si и Fe_3O_4 .

- Разработан новый способ формирования бислойных структур $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2$ (2 нм) в одном вакуумном цикле путем проведения твердофазной реакции в системе Fe-Si с предварительным окислением в атмосфере активированного кислорода.
- Разработан новый способ ориентированного (эпитаксиального) роста тонкопленочных слоев ферромагнитных полуметаллических силицида Fe_3Si и оксида железа Fe_3O_4 на монокристаллической подложке MgO методом импульсного лазерного осаждения с применением компонентных мишеней заданного стехиометрического состав.
- Предложена новая комбинация материалов и разработан способ формирования структур $\text{FeO}_y/\text{MgO}/\text{FeSi}_x$, обладающих независимым переключением намагниченностей в ферромагнитных слоях при сверхтонком изолирующем слое (~ 3 нм).

Теоретическая и практическая ценность.

Проведенные экспериментальные исследования магнитных и фазовых свойств наноразмерных слоев ферромагнитных силицидов и оксидов железа, а также сверхтонких слоев оксидов магния и кремния продемонстрировали перспективность выбранной материаловедческой системы с точки зрения применения её для создания магнитных туннельных переходов – основных элементов энергонезависимой памяти нового поколения. Проведена оптимизация условий формирования отдельных слоев, бислойных и многослойных структур ферромагнетик-изолятор-ферромагнетик, обладающих высоким качеством границ раздела, заданными фазовым составом и магнитными свойствами, что позволило сформировать образцы структур магнитных туннельных переходов, обладающих независимым переключением намагниченностей ферромагнитных слоев. На разработанные способы роста структур ФМ-И-ФМ на основе ферромагнитного полуметалла Fe_3Si получен патент на изобретение.

Полученные результаты по формированию тонкопленочных наноразмерных слоев полуметаллических ферромагнитных силицидов и оксидов железа

FeSi_x и FeO_y , а также сверхтонких изолирующих слоев MgO и SiO_2 , легли в основу разработанного способа формирования структур ФМ-И-ФМ, обладающих свойствами независимого переключения намагниченностей в ФМ слоях, при туннельно-прозрачных толщинах изолирующих слоев. При этом предложенные способы роста отдельных слоев и бислойных структур оптимизированы для формирования поликристаллических и аморфных структур, как наименее требовательных с точки зрения технологического процесса создания магнитных туннельных переходов. Результаты работы могут быть применены в технологических процессах при создании энергонезависимой магниторезистивной памяти произвольного доступа на основе магнитных туннельных переходов.

Основные положения, выносимые на защиту.

1. Установленный эффект усиления магнитных свойств поликристаллического тонкопленочного ферромагнитного оксида железа Fe_3O_4 при использовании подслоя Fe и результаты экспериментальных исследований условий фазообразования в тонкопленочной бислойной системе Fe/ FeO_x .

2. Обнаруженная впервые зависимость проявления эффекта усиления магнитных свойств тонкопленочных слоев магнетита от взаимного расположения слоев Fe и Fe_3O_4 и возможное ее объяснение: в последовательности $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Fe}$ усиления не происходит в отличие от последовательности Fe/ Fe_3O_4 , в которой намагниченность магнетита возрастает в 3÷5 раз, а петля гистерезиса приобретает прямоугольную форму.

3. Результаты экспериментальных исследований магнитного состояния ферромагнитных слоев в структурах ФМ-И-ФМ, впервые примененным для этих целей методом ферромагнитного резонанса: установлена взаимосвязь между кристаллическими и магнитными свойствами ферромагнитных слоев Fe_3Si и Fe_3O_4 .

4. Разработанный способ формирования бислойных структур $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2$ (2 нм) в одном вакуумном цикле путем проведения твердофазной реакции в системе Fe-Si с предварительным окислением в атмосфере активированного кислорода и экспериментально установленные температуры активации твердо-

фазной реакции Fe-Si, оптимальные для формирования необходимого фазового состава ФМ слоев и границ раздела ФМ/И, а также параметров шероховатости изолирующего слоя SiO₂, играющих критическую роль в функциональных структурах ФМ-И-ФМ.

5. Экспериментальные результаты по выявлению оптимальных условий ориентированного (эпитаксиального) роста тонкопленочных слоев ферромагнитных полуметаллических силицида Fe₃Si и оксида Fe₃O₄ на монокристаллической подложке MgO методом импульсного лазерного осаждения с применением компонентных мишеней заданного стехиометрического состава.

6. Разработанный способ формирования поликристаллических и ориентированных структур FeO_y/MgO/FeSi_x, обладающих независимым переключением намагниченностей в ферромагнитных слоях при сверхтонком изолирующем слое (~ 3 нм).

Достоверность научных положений, результатов и выводов.

Полученные экспериментальные результаты и разработанные методики подтверждаются известными теоретическими моделями. Достоверность результатов обеспечивается использованием современного исследовательского оборудования для анализа магнитных и структурных свойств, фазового состава, морфологических свойств. Результаты, полученные разными методами исследования, согласуются между собой. Опубликованные результаты согласуются с рядом экспериментальных результатов других авторов. Полученные результаты подтверждены патентом на изобретение.

Личный вклад соискателя.

Соискатель принимал непосредственное участие в обсуждении и постановке задачи по разработке новой материаловедческой системы на основе полуметаллов для создания магнитных туннельных переходов. Все экспериментальные результаты по формированию и исследованию наноразмерных структур на основе FeSi_x и FeO_y, представленные в работе, получены соискателем лично, либо в соавторстве при его непосредственном участии.

Объем и структура работы.

Диссертация состоит из введения, пяти глав, выводов и списка литературы. Работа изложена на 141 странице, содержит 53 рисунка, 10 таблиц и список цитируемой литературы из 87 наименований.

Апробация работы.

Основные результаты и положения диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих международных симпозиумах и конференциях: European Material Research Society Symposium, Strasbourg, May 2008; Moscow International Symposium on Magnetism, Moscow, June 2008; International Conference on Magnetism ICM-2009, Karlsruhe, Germany, August 2009; International Conference on Superconductivity and Magnetism, Antalya, August 2008; International Symposium on the Industrial Applications of Mössbauer Effect, Budapest, August 2008; Meeting 50 Years After – the Mössbauer Effect Today and in the Future, München, October 2008; Euro-Asian Symposium “Magnetism on nanoscale”, Kazan, August 2007; International Conference “Micro- and nanoelectronics” Zvenigorod October 2007; ежегодная научная сессия НИЯУ МИФИ в 2007, 2008, 2009 и 2010 годах; Национальная конференция по росту кристаллов, Москва, ноябрь 2008; 5-ая зимняя школа-конференция «Магнитный резонанс и его приложения», Санкт-Петербург, декабрь 2008; 14-ая Всероссийская межвузовская научно-техническая конференция «Микроэлектроника и информатика - 2007», Зеленоград, апрель 2007; ежегодная Международная конференция по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами ФВЗЧК в 2008 и 2009 годах, Москва.

Публикации.

По теме диссертации было опубликовано 26 работ в научных журналах и сборниках трудов Международных и Российских конференций и симпозиумов, в том числе 4 статьи в реферируемых журналах из перечня ВАК, и 1 патент.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность разработки тонкопленочных наноразмерных слоев ФМ-И-ФМ с использованием ферромагнитных силицидов и оксидов железа в качестве ферромагнитных электродов, а оксидов магния и кремния – в качестве изолирующих слоев; сформулированы цель работы и решаемые задачи, указаны научная новизна и практическая значимость, изложены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе приведен литературный обзор и анализ состояния исследований, проводимых в России и за рубежом, по направлению спинтроники, в частности, в приложениях магнитных туннельных переходов и спиновых клапанов. Проанализированы результаты исследований функциональных свойств тонкопленочных наноразмерных слоев оксидов и силицидов железа, оксидов магния и кремния и других перспективных материалов, опубликованные в ведущих международных и российских журналах в последние годы. Приведено подробное рассмотрение и анализ проведенных по состоянию на начало 2010 года экспериментальных исследований и теоретических расчетов структурных свойств и фазового состава функциональных магнитных и транспортных свойств разрабатываемых материалов. По результатам анализа литературы обоснована актуальность темы диссертационной работы.

Во второй главе приводится описание используемого метода формирования образцов тонкопленочных структур – импульсного лазерного осаждения (ИЛО). Рассмотрены экспериментальные установки, в которых реализован используемый метод: приведены схемы экспериментальных установок и представлены основные характеристики лазерной системы по формированию наноразмерных тонкопленочных слоев. Отдельно рассмотрена используемая в данной работе установка, реализованная на базе исследовательского комплекса XSAM-800, в камере препарирования которого смонтирована система импульсного лазерного осаждения, что позволило проводить анализ химических и структурных свойств создаваемых наноразмерных слоев *in-situ*, то есть в про-

цессе роста. Приведен краткий обзор физических принципов работы используемых методик анализа структурных, химических, морфологических свойств, фазового состава и магнитного состояния исследуемых образцов. Дано описание таких методов, как рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия (РФЭС), спектроскопия рассеяния медленных ионов, оже-электронная спектроскопия, резерфордовское обратное рассеяние, атомно-силовая микроскопия, спектроскопия комбинационного рассеяния, мессбауэровская спектроскопия конверсионных электронов, вибрационная магнитометрия и ферромагнитный резонанс.

В третьей главе приведены основные экспериментальные результаты по формированию и исследованию тонкопленочных функциональных слоев ферромагнетиков и изоляторов, а также бислойных структур ФМ-И.

Подробно описаны результаты экспериментов по определению оптимальных условий формирования бислойных структур $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2$ в одном вакуумном цикле.

На рис. 1 приведены рентгеновские фотоэлектронные (РФЭ) спектры основного уровня $\text{Si}2p$ для сформированных образцов $\text{Fe}/\text{Si}/\text{SiO}_2$, снятые *in-situ* после проведения процедуры окисления верхнего слоя Si в плазме тлеющего разряда кислорода и последующего вакуумного отжига, активирующего твердофазную реакцию силицидообразования (до начала вакуумного отжига слой Fe находился под слоем Si/SiO₂ ниже предельной глубины, с которой регистрируются нерассеянные фотоэлектроны с уровня $\text{Fe}2p_{3/2}$ (> 5 нм), и соответствующий пик на спектре $\text{Fe}2p_{3/2}$ отсутствует). Исходный спектр $\text{Si}2p$ состоит из линии Si^{4+} (энергия связи $E_b \approx 103,1$ эВ), соответствующей диоксиду кремния на поверхности, и Si^0 ($E_b \approx 99,2$ эВ), от слоя неокисленного кремния (нижний спектр на рис. 1). По соотношению площадей этих пиков, используя известную методику была рассчитана толщина оксидного слоя, которая оказалось равной $d \approx 2$ нм. Следующие спектры РФЭ были сняты на различных стадиях последовательного (по 10 мин) вакуумного отжига бислойной системы Fe/Si при температуре $T = 350 \div 600$ °С. Начиная с $T = 500$ °С относительная интенсивность линий в спектрах с учетом фактора относительной чувствительности соответ-

вует соотношению $\text{Fe}:\text{Si} = 3:1$. Анализ асимметрии линии $\text{Fe}2p_{3/2}$ (параметр асимметрии $\alpha = 0,37$) дополнительно подтверждает формирование обогащенной железом силицидной фазы Fe_3Si уже при $T = 500^\circ\text{C}$. Таким образом, *in-situ* РФЭС анализ позволил определить диапазон температур ($450\text{--}550^\circ\text{C}$), при которых происходит формирование конечной обогащенной железом (ферромагнитной) фазы силицида Fe_3Si в структурах $\text{Fe}/\text{Si}/\text{SiO}_2$.

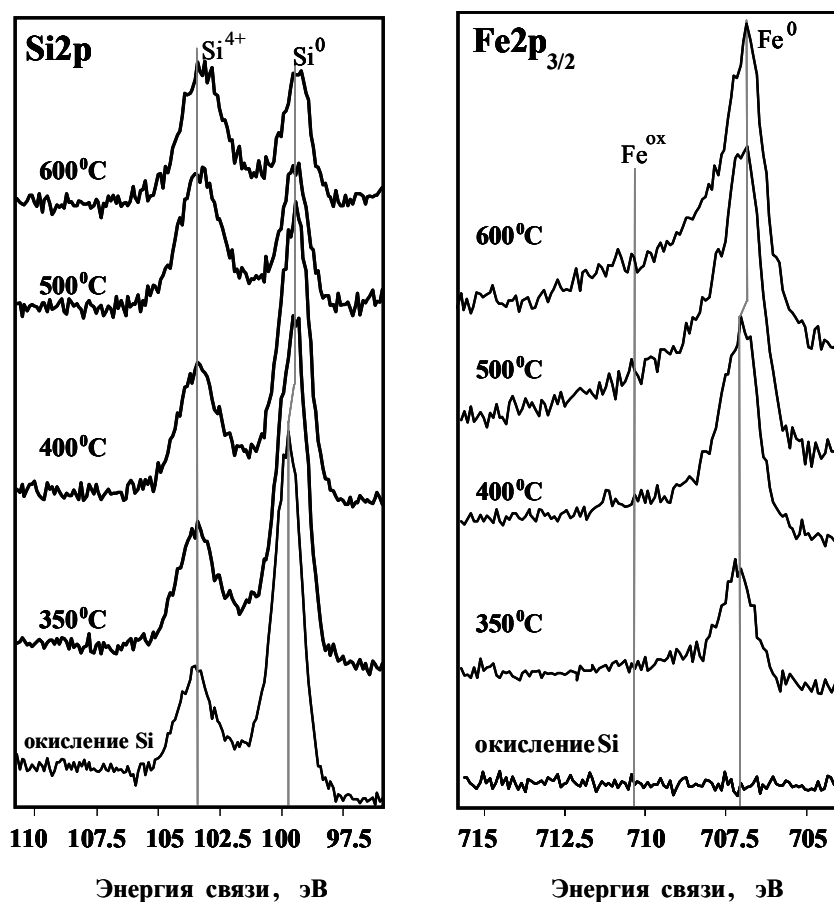


Рис. 1. РФЭС спектры линий $\text{Fe}2p_{3/2}$ и $\text{Si}2p$, снятые *in situ* в процессе последовательного (по 10 минут) вакуумного отжига структур $\text{Fe}/\text{Si}/\text{SiO}_2$.

Проведены эксперименты по формированию наноразмерных слоев Fe_3Si и Fe_3O_4 методом импульсного лазерного осаждения из компонентных стехиометрических мишеней, в том числе и на монокристаллических подложках MgO . В силу близости параметров решетки MgO , Fe , Fe_3Si и Fe_3O_4 возможным оказалось получение эпитаксиальных наноразмерных слоев данных материалов. Анализ результатов исследования сформированных структур методом каналирования ионов при резерфордовском обратном рассеянии показал правильную

стехиометрию сформированных слоев и качество эпитаксии, которое для слоев Fe_3O_4 и Fe_3Si составило соответственно $\chi \sim 9\%$ и $\sim 20\%$ разориентации решеток тонкой пленки.

Приведены результаты исследования фазового состава формируемых слоев методом мессбауэровской спектроскопии, показывающие состояние локального окружения атомов Fe^{57} в решетках Fe_3Si и Fe_3O_4 . Данные результаты подтверждают правильность стехиометрического состава на локальном уровне и позволяют сделать выводы о правильном фазовом составе наноразмерных слоев Fe_3Si и Fe_3O_4 .

Приведенные в главе результаты исследования магнитных свойств сформированных слоев и бислойных структур позволили определить функциональные свойства разрабатываемых материалов. При этом исследования показали неудовлетворительное качество магнитных свойств отдельных поликристаллических слоев Fe_3O_4 , в связи с чем был предложен способ улучшения функциональных магнитных параметров Fe_3O_4 путем введения дополнительного ферромагнитного подслоя Fe.

Серия образцов, отличающихся расположением слоев Fe/ Fe_3O_4 и Fe_3O_4 /Fe с толщинами слоев 12 и 45 нм для Fe и Fe_3O_4 соответственно, была сформирована методом ИЛО на подложке Si/SiO₂ при комнатной температуре роста с последующим вакуумным отжигом при температурах до $T = 500$ °C. Исследования методом ферромагнитного резонанса (ФМР) показали, что для образца со структурой Fe_3O_4 /Fe наблюдались два резонансных сигнала: узкий интенсивный сигнал в области $B_{\text{рез}} = 336$ мТ, с шириной линии $\Delta B = 18$ мТ, не зависящей от расположения образца, и широкий слабый сигнал, интенсивность которого на порядок ниже, а резонансное поле и ширина линии которого зависят от угла θ . Такое поведение сигналов указывает на существование двух магнитных фаз: преобладающей парамагнитной и слабой ферромагнитной. На Рис. 2а приведены угловые зависимости резонансных полей $B_{\text{рез}}$, отвечающие этим двум состояниям Fe и Fe_3O_4 , (геометрия "out of plane"). Данные ФМР согласуются с полученной гистерезисной кривой намагничивания, которые приведены на встав-

как к рис. 2. Для образца с обратным порядком расположения слоев Fe/Fe₃O₄ наблюдаются два близко расположенных сигнала, положение и ширина линии которых зависят от ориентации образца (рис. 2б). Изменение магнитного состояния образца с подслоем железа подтверждается полученной гистерезисной кривой намагничивания.

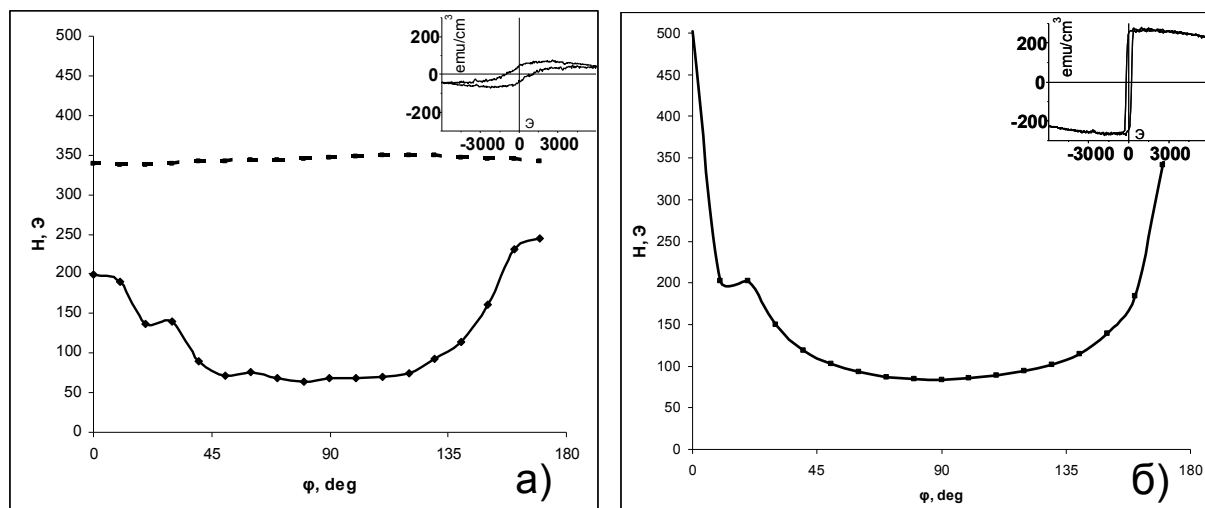


Рис. 2. Зависимость резонансного магнитного поля ФМР от угла между направлением силовых линий постоянного магнитного поля и плоскостью пленки: а) образец со структурой Fe₃O₄/Fe; б) образец со структурой Fe/Fe₃O₄.

Анализ экспериментальных данных показывает, что введение дополнительного слоя Fe на подложку Si/SiO₂ приводит к существенному изменению магнитных свойств Fe₃O₄.

Впервые обнаружено влияние взаимного расположения слоев Fe и Fe₃O₄ на проявление эффекта усиления магнитных свойств тонкопленочных слоев магнетита: в последовательности Fe₃O₄/Fe усиления не происходит в отличие от последовательности Fe/Fe₃O₄, в которой намагниченность магнетита возрастает в 3÷5 раз, а петля гистерезиса приобретает прямоугольную форму. Обнаружено, что намагниченность, измеренная в плоскости поликристаллической пленки Fe₃O₄, выращенной на Si/SiO₂, не насыщалась в полях до 15 кЭ. Сходное поведение наблюдалось и в ориентированных пленках, выращенных различными методами на подложках MgO и Al₂O₃. Причем, монокристаллические пленки на MgO насыщались более медленно, чем пленки на Si/SiO₂ (не насыщались в по-

лях до 21 кЭ). Более того, отжиг образцов пленок при разных температурах и разных режимах не оказывал существенного влияния на процесс насыщения. Установлено, что введение подслоя Fe приводит к тому, что насыщение намагниченности наступает при более низких полях, зависящих от температуры отжига. При этом абсолютное значение намагниченности в Fe/Fe₃O₄ значительно выше (при температуре отжига 500 °С, $M_s = 1300 \text{ emu/cm}^3$, $1 \text{ emu} = 1 \text{ эрг/Гс} = 10^{-3} \text{ А*м}^2$), чем в Fe₃O₄ ($M_s = 480 \text{ emu/cm}^3$ для объемного образца).

При исследовании методом спектроскопии комбинационного рассеяния процесса фазообразования при вакуумном отжиге структур Fe/Fe₃O₄, сформированных на аморфных подложках Si/SiO₂, показано, что вакуумный отжиг бислойной структуры Fe/FeO_x при температурах ~ 450 °С приводит к формированию монофазного оксида железа Fe₃O₄ в бислойной структуре Fe/Fe₃O₄.

Таким образом, анализ показывает, что введение дополнительного буферного слоя Fe на подложку Si/SiO₂ позволяет использовать Fe₃O₄ в качестве магнитожесткого слоя магнитных туннельных переходов. В структурах Fe/Fe₃O₄ локальное магнитное поле, создаваемое слоем Fe, индуцирует некоторый порядок, оказывающий влияние на дальнейший рост слоя Fe₃O₄. Объяснением данному эффекту может служить предположение об образовании зародышей поликристаллического роста на границе Fe/Fe₃O₄, которые при вакуумном отжиге системы играют ключевую роль в формировании фазы Fe₃O₄ (кристаллизации). Таким образом, вакуумный отжиг системы Fe/Fe₃O₄ приводит к созданию единой ферромагнитной фазы, которая регистрируется при ферромагнитном резонансе единственной линией поглощения, которая значительно сужается по сравнению с линией, зарегистрированной в образце, содержащем только Fe₃O₄. Обратный порядок следования слоев не обнаруживает подобных свойств. В недавно опубликованных работах усиление магнитных свойств объясняется изменением плотности антифазных границ (АФГ). При этом важную роль играет внутреннее давление, вызванное несоответствием решеток подложки из MgO и буферного слоя Fe. В данном случае буферный слой наносится на аморфную поверхность Si/SiO₂. На основе данных по просвечивающей электронной мик-

роскопии среза авторами упомянутых работ было доказано существование АФГ и показано, что плотность антифазных границ оказывает существенное влияние на магнитные свойства пленок Fe_3O_4 , выращенных на поликристаллических структурах. Можно предположить, что в изученных образцах $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ отжиг, приводящий к кристаллизации, изменяет плотность антифазных границ, что оказывает существенное влияние на формирование магнитного состояния.

В четвертой главе предложены альтернативные способы синтеза сверхтонких изолирующих слоев оксида кремния и магния, установлена сплошность этих слоев при толщинах 1–2 нм.

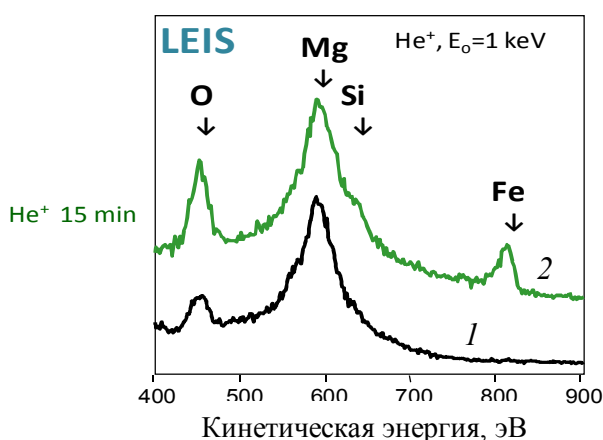


Рис. 3. Спектры СРМИ, полученные после осаждения методом ИЛО MgO толщиной 1,5 нм (1) и последующей бомбардировки ионами He^+ в течение 15 мин (2).

На рис. 3 приведены данные исследования методом спектроскопии рассеяния медленных ионов (СРМИ) сверхтонкой пленки MgO толщиной 1,5 нм сразу после осаждения на поверхность тонкопленочного слоя Fe . На спектре обратно рассеянных ионов гелия с начальной энергией $E_0 = 1000$ эВ наблюдаются только линии Mg и O . Пик Fe появляется только после бомбардировки поверхности MgO ионами He^+ в течение 15 мин. По затенению сигнала Fe слоем MgO , в частности, путем сравнения интенсивности линии $\text{Fe}3p$ в РФЭ спектрах (здесь не приведены) до и после травления слоя MgO , можно рассчитать толщину сплошного слоя MgO , которая составила $\sim 1,5$ нм. Таким образом, измерения РФЭС/СРМИ указывают на то, что формируемые методом ИЛО сверхтонкие слои MgO на самых ранних стадиях осаждения при толщинах $\geq 1,5$ нм являются

сплошными. Полученные данные о сплошности слоя MgO подтверждаются результатами исследования трехслойных структур Fe₃O₄/MgO/Fe₃Si методом просвечивающей микроскопии среза, в которых наблюдаются равномерный сплошной слой MgO толщиной 3,5 нм.

Результаты проведенных экспериментальных исследований по формированию сверхтонких сплошных слоев SiO₂ показывают, что контролируемый процесс окисления кремния в атмосфере реактивного кислорода позволяет создавать слои SiO₂ толщиной 2 нм. Сплошность этих наноразмерных слоев подтверждается результатами РФЭ исследований.

В пятой главе приведены результаты формирования и исследования многослойных структур ФМ-И-ФМ, продемонстрирована функциональность и перспективность предложенной материаловедческой системы. В данной главе предложена новая диагностическая методика исследования магнитной фазы отдельных ФМ слоев в многослойных структурах ФМ-И-ФМ методом ФМР.

Формирование поликристаллической трехслойной структуры Fe-Fe₃O₄/MgO/Fe₃Si на аморфных подложках предварительно окисленного кремния Si/SiO₂ проводилось на основе разработанных методик роста индивидуальных слоев Fe, Fe₃O₄, Fe₃Si и MgO. Таким образом, методика роста данной трехслойной структуры типа ФМ/И/ФМ в одном вакуумном цикле состоит в следующем.

- На подготовленную аморфную поверхность подложки SiO₂ методом ИЛО осаждается подслоем Fe толщиной 10 нм при комнатной температуре.
- Осаждением из стехиометрической мишени при комнатной температуре формируется слой Fe₃O₄ толщиной 10 нм.
- Производится вакуумный отжиг бислойной структуры Fe/Fe₃O₄, активизирующий кристаллизацию слоя Fe₃O₄. Целесообразность кристаллизации слоя магнетита рассмотрена и доказана в главе 3, и заключается образовании единой магнитной фазы в слоях Fe/Fe₃O₄ при кристаллизации Fe₃O₄, которая приводит к усилению магнитных свойств магнетита.

- Формирование изолирующего слоя MgO производится посредством осаждения Mg в атмосфере кислорода при низком ($\sim 10^{-6}$ Па) давлении на поверхность ФМ слоя Fe_3O_4 в одном вакуумном цикле. Были выявлены оптимальные параметры скорости осаждения ($\sim 0,05$ монослоя/с) и давления кислорода, а также температура последующего отжига формируемого эпитаксиального слоя.
- Формирование верхнего поликристаллического ФМ слоя Fe_3Si проводилось осаждением из стехиометрической мишени Fe_3Si с последующим вакуумным отжигом ($T_{отж} = 400$ °С)

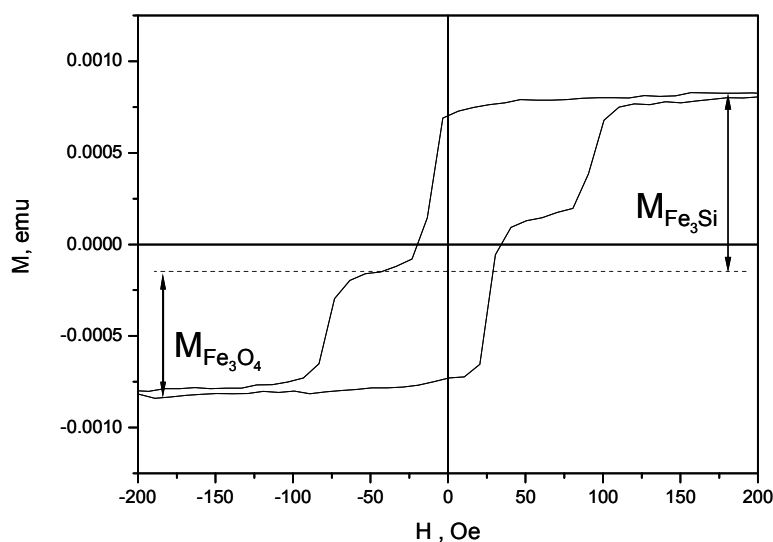


Рис. 4. Петля гистерезиса исследуемого образца поликристаллической структуры Fe- Fe_3O_4 /MgO/ Fe_3Si . Намагниченности слоев, рассчитанные по обозначенным на графике магнитным моментам M , с учетом толщин слоев, составляют $I_{Fe_3O_4} \approx 1200 \pm 200$ emu/cm³ и $I_{Fe_3Si} \approx 1600 \pm 250$ emu/cm³

Данные вибрационной магнитометрии (рис. 4) показали, что в диапазоне полей $-25 \div +25$ Э наблюдается узкая петля гистерезиса, характерная для Fe_3Si , переходящая в широкую петлю Fe_3O_4 в диапазоне $-100 \div 100$ Э. Таким образом, в исследуемой структуре наблюдается независимое переключение намагниченностей отдельных ФМ слоев, что является важнейшим критерием функциональности трехслойной структуры. Анализ экспериментальных данных вибрационной магнитометрии позволил определить значения магнитного момента

ФМ слоев трехслойной структуры: в силу независимости магнитных состояний Fe/Fe₃O₄ и Fe₃Si наблюдается последовательное переключение магнитных моментов, как показано на рис. 4. Рассчитанные значения намагниченностей составили 1200±200 и 1600±250 *emu/cm³* для слоев Fe/Fe₃O₄ и Fe₃Si соответственно. Полученные значения в пределах погрешности совпадают со значениями экспериментально установленных намагниченностей отдельных слоев Fe/Fe₃O₄ и Fe₃Si, сформированных при тех же условиях, что и в данной трехслойной структуре.

В заключении приведены результаты анализа функциональных магнитных свойств сформированных многослойных структур, даны объяснения полученных результатов и рекомендации по их применению, формулированы основные выводы работы.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

На основе проведенных экспериментальных исследований магнитных и структурных свойств, анализа фазового состава и морфологических свойств тонкопленочных наноразмерных ФМ слоев FeSi_x и FeO_y и изолирующих слоев SiO₂ и MgO, а так же границ раздела ФМ-И и И-ФМ, сформированных в структурах ФМ-И-ФМ, можно сделать следующие выводы.

1. Впервые для поликристаллического тонкопленочного ферромагнитного оксида железа Fe₃O₄ обнаружен эффект усиления магнитных свойств при использовании подслоя Fe и установлены оптимальные условия фазообразования в тонкопленочной бислойной системе Fe/FeO_x.
2. Впервые обнаружено влияние взаимного расположения слоев Fe и Fe₃O₄ на проявление эффекта усиления магнитных свойств магнетита: в последовательности Fe₃O₄/Fe усиления не происходит в отличие от последовательности Fe/Fe₃O₄, в которой намагниченность магнетита возрастает в 3÷5 раз, а

петля гистерезиса приобретает прямоугольную форму. Дано возможное объяснение наблюдаемой зависимости.

3. Разработана методика синтеза бислойных структур $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2$ (2 нм) в одном вакуумном цикле путем проведения твердофазной реакции в системе Fe-Si с предварительным окислением в атмосфере активированного кислорода. При разработке методики установлены температуры активации твердофазной реакции Fe-Si, оптимальные для формирования необходимого фазового состава ФМ слоев и границ раздела ФМ/И, а также параметров шероховатости изолирующего слоя SiO_2 , играющих критическую роль в функциональных структурах ФМ-И-ФМ.
4. Установлены оптимальные условия ориентированного (эпитаксиального) роста тонкопленочных слоев ферромагнитных полуметаллических силицида и оксида железа Fe_3Si и Fe_3O_4 на монокристаллических подложках MgO методом импульсного лазерного осаждения с применением компонентных мишеней заданного стехиометрического состава.
5. Разработана методика формирования структур $\text{FeO}_y/\text{MgO}/\text{FeSi}_x$, демонстрирующих независимое переключение намагниченностей в ферромагнитных слоях при сверхтонком изолирующем слое (~3 нм)
6. Разработана методика роста на аморфных подложках Si/SiO₂ поликристаллических структур Fe/Fe₃O₄/MgO/Fe₃Si, обладающих независимым переключением намагниченностей
7. Разработана диагностическая методика исследования функциональных магнитных свойств структур ФМ-И-ФМ, в которой впервые применен метод ФМР для анализа магнитного состояния ФМ слоев в данных структурах.

ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Mantovan R., Georgieva M., Fanciulli M., Goikhman A., Barantsev N., Lebedinskii Yu. and Zenkevich A. Synthesis and characterization of $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2$ structures for spintronics. – *Phys. Stat. Sol. (a)*, 2008, v. 205, p. 1753–1757.
2. Хоменко Е.В., Чеченин Н.Г., Гойхман А.Ю., Зенкевич А. В. Обменное смещение в структурах IrMn/Co с альтернативным чередованием антиферромагнитного и ферромагнитного слоев. – *Письма в ЖЭТФ*, 2008, т. 88, с. 693–697.
3. Зенкевич А.В., Лебединский Ю.Ю., Гойхман А.Ю., Неволин В.Н., Черных П.Н., Куликаускас В.С., Мантован Р., Фанчулли М. Формирование и исследование сверхтонких изолирующих слоев SiO_2 и MgO на поверхности ферромагнитных электродов. – *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*, 2009, № 3, с. 5–10.
4. Mantovan R., Wiemer C., Lampereti A., Georgieva M., Fanciulli M., Goikhman A., Barantsev N., Lebedinskii Yu. and Zenkevich A. Mossbauer spectroscopy study of interfaces for spintronics. – *Hyperfine Interactions*, 2009, 191, p. 41-46
5. Гойхман А.Ю., Зенкевич А.В., Прохоренко Е.Е., Черненко А.О., Алиевский А.А., Зюбин А.Ю., Куприянова Г.С. Исследование многослойных структур для магнитных туннельных переходов методом ферромагнитного резонанса. – *Вестник РГУ им. И. Канта*, 2009, вып. 4. с.64-71.
6. Гойхман А.Ю., Куприянова Г.С., Прохоренко Е.Е., Черненко А.О. Магнитно-резонансные свойства тонкопленочных структур с Fe_3O_4 . – *Вестник РГУ им. И. Канта*, 2010, вып. 6, с. 81-88.
7. Гойхман А.Ю., Зенкевич А.В., Лебединский Ю.Ю. Формирование магнитных туннельных переходов на основе наноразмерных структур металл-изолятор-металл и структура магнитного туннельного

перехода для магниторезистивной магнитной памяти произвольного доступа (варианты) / Патент на изобретение, рег. №2367057 от 10.09.2009.

8. Goikhman A.Yu., Lebedinskii Yu.Yu., Zenkevich A.V., Mantovan R., Georgieva M. and Fanciulli M. Fe₃Si as a ferromagnetic electrode in magnetic tunnel junctions. – In: Proc. of European Material Research Society Symposium (E-MRS 2008), Strasbourg, France – 2008, on CD-ROM.
9. Goikhman A., Lebedinskii Yu., Zenkevich A., Mantovan R., Fanciulli M. and Chernykh P. Pulsed laser deposition of epitaxial magnetic thin films. – In: Book of Abstracts of Moscow International Symposium on Magnetism (MISM 2008), Moscow, Russia – 2008, on CD-ROM
10. Goikhman A. and Kupriyanova G. FMR study of sandwiched magnetic structures. – In: Book of Abstracts of Moscow International Symposium on Magnetism (MISM 2008), Moscow, Russia – 2008, on CD-ROM.
11. Goikhman A., Zenkevich A., Mantovan R., Fanciulli M., Samsonova V. and Perov N. Structural and magnetic properties of Fe₃O₄/MgO/Fe₃Si trilayers synthesized by pulsed laser deposition. – In: Abstracts of International Conference on Magnetism (ICM-2009), Karlsruhe, Germany – 2009, on CD-ROM.
12. Goikhman A., Kupriyanova G. and Zenkevich A. Magnetic properties of Fe/Fe₃O₄ bilayers studied by ferromagnetic resonance. – In: Abstracts of International Conference on Magnetism (ICM-2009), Karlsruhe, Germany – 2009, on CD-ROM.
13. Goikhman A., Zenkevich A., Güler S., Rameev B. and Kupriyanova G. FMR study of sandwiched magnetic structures. – In: Book of abstracts International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM), Antalya, Turkey – 2008, on CD-ROM.
14. Mantovan R., Wiemer C., Lamperti A., Georgieva M., Fanciulli M., Goikhman A., Barantcev N., Lebedinskii Y. and Zenkevich A. Mössbauer spectroscopy study of interfaces for spintronics. – In: Abstracts of International

- Symposium on the Industrial Applications of Mössbauer Effect (ISIAME 2008), Budapest, Hungary – 2008, on CD-ROM.
15. Mantovan R., Fanciulli M., Wiemer C., Lamperti A., Georgieva M., Goikhman A., Barantsev N., Lebedinskii Y. and Zenkevich A. Application of conversion Mössbauer spectroscopy to the study of interfaces for spintronics. – In: Proc. of Meeting 50 Years After – the Mössbauer Effect Today and in the Future, München, Germany – 2008, on CD-ROM.
 16. Goikhman A., Barantsev N., Lebedinskii Y., Zenkevich A., Mantovan R. and Fanciulli M. $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Fe}$ functional structures formed by pulsed laser deposition. – In: Abstracts of Euro-Asian Symposium “Magnetism on nanoscale”, Kazan, Russia – 2007, p. 54.
 17. Goikhman A., Barantsev N., Lebedinskii Y., Zenkevich A., Mantovan R. and M. Fanciulli Synthesis and characterization of $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{MgO}$ structures for spintronics. – In: Book of Abstracts International Conference “Micro- and nanoelectronics”, Zvenigorod, Russia – 2007, CD-ROM.
 18. Гойхман А. Ю., Лебединский Ю.Ю., Зенкевич А.В., Неволин В.Н. Формирование функциональных структур $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}$ и $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Fe}$ для магнитных туннельных переходов. – В. сб.: тез. докл. Научной сессии МИФИ, Москва – 2007, т.15, с. 41.
 19. Гойхман А. Ю., Лебединский Ю.Ю., Зенкевич А.В., Неволин В.Н. Формирование функциональных структур $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}$ и $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{MgO}/\text{Fe}(\text{Co})$ для магнитных туннельных переходов. – В. сб.: тез. докл. Научной сессии МИФИ, Москва – 2008, т. 7., с. 174.
 20. Гойхман А. Ю., Лебединский Ю.Ю., Зенкевич А.В., Неволин В.Н. Функциональные структуры магнитных туннельных переходов на основе ферромагнитных полуметаллов. – В. сб.: тез. докл. Научной сессии МИФИ, Москва – 2009, т. 2, с. 84.
 21. Гойхман А. Ю., Зенкевич А.В., Самсонова В.В., Перов Н.С., Неволин В.Н. Исследование формирования магнитной фазы в структуре $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4$. – В. сб.: тез. докл. Научной сессии МИФИ, Москва – 2010, т. 2, с. 170.

22. Гойхман А. Ю., Лебединский Ю.Ю., Зенкевич А. В., Самсонова В. В., Перов Н.С. Многослойные эпитаксиальные структуры для магнитных туннельных переходов. – В. сб.: трудов Национальной конференции по росту кристаллов, Москва – 2008, CD-ROM
23. Гойхман А. Ю., Куприянова Г. С. и Зенкевич А.В. Исследование многослойных магнитных структур методом ферромагнитного резонанса. – В. сб.: тез. докл. 5-й зимней школы-конференции «Магнитный резонанс и его приложения», Санкт-Петербург – CD-ROM
24. Гойхман А. Ю. Разработка физических основ технологии изготовления элементов энергонезависимой памяти на основе магнитных туннельных переходов в структурах ФМ-ГИ-ФМ. – В. сб.: тез. докл. 14-й Всероссийской межвузовская научно-техническая конференция «Микроэлектроника и информатика - 2007», Зеленоград – 2007, с. 29.
25. Черных П.С., Куликаускас В.С., Гойхман А.Ю., Зенкевич А.В. Импульсное лазерное осаждение эпитаксиальных магнитных плёнок. – В. сб.: тез. трудов XXXVIII Международной конференции по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами (ФВЗЧК-2008), Москва – 2008, с. 150.
26. Гойхман А.Ю., Лебединский Ю.Ю., Зенкевич А.В., Черных П.С., Куликаускас В.С., Самсонова В.В., Перов Н.С., Куприянова Г.С. Структурные и магнитные свойства $Fe_3O_4/MgO/Fe_3Si$. – В. сб.: тез. трудов XXXIX Международной конференции по физике взаимодействия заряженных частиц с кристаллами (ФВЗЧК-2009), Москва – 2009, с. 122.
-

Александр Юрьевич Гойхман

**МАГНИТНЫЕ И СТРУКТУРНЫЕ СВОЙСТВА НАНОРАЗМЕРНЫХ
СЛОЕВ ФЕРРОМАГНЕТИК-ИЗОЛЯТОР-ФЕРРОМАГНЕТИК НА
ОСНОВЕ FeSi_x И FeO_y**

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Подписано в печать 24.05.2010 г.

Бумага для множительных аппаратов. Формат $60 \times 90 \frac{1}{16}$.
Гарнитура «Таймс». Ризограф. Усл. печ. л. 1,5. Уч.-изд. л. 1,4.
Тираж 100 экз. Заказ .

Издательство Российского государственного университета им. Иммануила Канта
236041, г. Калининград, ул. А. Невского, 14