ЖЭТФ, 1999, том 115, вып. 2, стр. 689-703

МАГНИТНАЯ АНИЗОТРОПИЯ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК ЖЕЛЕЗА НА МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПОДЛОЖКАХ ИЗ MgO(001) И Al₂O₃(1120)

Ю. В. Горюнов, И. А. Гарифуллин

Казанский физико-технический институт Казанского научного центра Российской академии наук 420029, Казань, Россия

Т. Мюге*, Х. Цабель†

Рурский университет D-44780 Бохум, Германия

Поступила в редакцию 19 июня 1998 г.

Проведены измерения ферромагнитного резонанса и намагниченности тонких (27-100 Å) монокристаллических пленок железа, выращенных в кристаллографической ориентации (110), в интервале температур 20-400 К. Пленки получались методом молекулярно-лучевой эпитаксии на монокристаллических сапфировых подложках Al₂O₃(11Ž0) с буферным слоем Nb(110). Обнаружено, что угловая зависимость параметров спектра ферромагнитного резонанса при вращении направления постоянного магнитного поля в плоскости образца имеет 180-градусный характер. Установно, что эту угловую зависимость удается описать в предположении, что искажения кристаллической решетки носят тригональный характер. Сравнительный анализ полученных ранее данных для пленок Fe(001) с данными для пленок Fe(110) показал, что источником поправок к кубической константе анизотропии является характерное распределение деформаций по толщине пленок.

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее десятилетие проявляется огромный интерес к многослойным системам, состоящим из чередующихся тонких слоев ферромагнитных и немагнитных металлов. Он обусловлен как перспективой практического использования таких систем, так и обнаружением в них необычных эффектов — осциллирующего в зависимости от толщины слоя немагнитного металла обменного взаимодействия ферромагнитных слоев [1] и гигантского магнитосопротивления [2]. Гигантское магнитосопротивление наблюдается при антиферромагнитной взаимной ориентации магнитных моментов соседних ферромагнитных слоев. Этот эффект может быть использован при создании исключительно чувствительных магнитных сенсоров или магнитных головок для считывания информации. Для реализации той или иной взаимной ориентации намагниченностей необходимо, чтобы энергия взаимодействия слоев превышала энергию магнитной анизотропии в каждом ферромагнитном слое. Таким образом, для понимания магнитных и транспортных свойств многослойных магнитных систем помимо изучения взаимодействия

*Th. Mühge. [†]H. Zabel. ©*1999*

ферромагнитных слоев чрезвычайно важным оказывается знание источников магнитной анизотропии тонких ферромагнитных пленок.

В настоящее время имеется немало примеров тому, какое сильное влияние оказывают поверхностные и интерфейсные эффекты на магнитную анизотропию пленок. Классическим образцом такого влияния является так называемая неелевская анизотропия [3], возникающая вследствие нарушения симметрии внутрикристаллического электрического поля на поверхности пленки или интерфейсе. Благодаря этому эффекту намагниченность пленок толщиной порядка нескольких атомных слоев стремится принять направление, нормальное к поверхности пленки. На интерфейсную анизотропию оказывают также влияние возмущения кристаллического поля и гибридизация зон на интерфейсе. Шероховатость поверхности пленки также дает вклад в магнитную анизотропию пленки, приводя к уменьшению размагничивающего фактора в перпендикулярной ориентации намагниченности по отношению к плоскости пленки. Среди различных механизмов, дающих вклад в магнитную анизотропию, интерфейсные эффекты, возникающие вследствие различия периодов кристаллических структур прилегающих друг к другу слоев подложки и пленки (эпитаксиальное несоответствие $\eta = (a_d - a_s)/a_s$, где a_d и a_s — постоянные решеток соответственно пленки и подложки), оказываются определяющими в целом ряде случаев [4-6]. Так, в ультратонких пленках Fe на монокристаллических подложках из Ag, Au, Cu и Pd с толщинами до 15 A, выращенных в ориентации (001), эпитаксиальное несоответствие вызывает однородную деформацию кристаллической решетки, приводя к поправкам 4-го порядка к константам кубической анизотропии, а также к возникновению перпендикулярной анизотропии 2-го порядка [4]. Анализ экспериментальных данных по магнитной анизотропии сэндвичей Au/Co/Au с толщинами пленки Со в пределах от 12 до 80 A был также проведен с учетом эпитаксиального несоответствия [5]. При этом полагалось, что пленки толщиной, меньшей некоторой критической величины L_c, полностью сопрягаются с подложкой, т.е. деформация решетки $\varepsilon = -\eta$. При больших толщинах L состояние идеальной эпитаксии становится метастабильным и появляются эпитаксиальные дислокации. При этом релаксация деформаций происходит по закону $\varepsilon \simeq -\eta L_c/L$. Оценки показали, что вклад в магнитную анизотропию сэндвичей Au/Co/Au и Cu/Co/Cu, пропорциональный L^{-1} , удается объяснить, учитывая данный закон релаксации деформаций, приводящих к изменению магнитной анизотропии за счет спонтанной магнитострикции. Что же касается более толстых ферромагнитных пленок, то качественный анализ экспериментальных данных по магнитным свойствам эпитаксиальных пленок Fe с толщинами до 200 Å на подложках из GaAs дал основание предположить, что вклад в магнитную анизотропию, обусловленный эпитаксиальным несоответствием, является доминирующим и для них [6]. Несмотря на наличие ряда работ, посвященных изучению роли эпитаксиального несоответствия в магнитных свойствах ферромагнитных пленок, четкого понимания того, каким образом эпитаксиальное несоответствие влияет на магнитную анизотропию, не существует.

Целью данных исследований являлось выяснение характера влияния ростовых искажений, возникающих вследствие эпитаксиального несоответствия пленки и подложки, на магнитную анизотропию ферромагнитных пленок. В качестве объектов исследований были выбраны пленки железа, выращенные на подложках из MgO(001) и Al₂O₃(1120). Этот выбор обусловлен тем, что железо является материалом, широко используемым для приготовления сверхрешеток. В связи с этим понимание природы магнитной анизотропии тонких слоев железа является весьма важным. MgO(001) был вы-

690

бран в качестве материала подложки в связи с тем, что для пленок Fe(001), выращенных методом радиочастотного распыления в аргоне на подложки из MgO(001), имеются результаты исследования распределения деформаций, полученные методом малоуглового рентгеновского рассеяния с применением синхротронного излучения [7]. В отличие от пленок железа на подложках из MgO(001), плоскость которых совпадает с кристаллографической плоскостью (001), плоскость пленок железа, выращенных на подложках из canфира Al₂O₃(11 $\overline{20}$) с буферным слоем Nb(110), оказывается ориентированной параллельно кристаллографической плоскости (110).

На первом этапе наших исследований [8,9] мы провели измерения ферромагнитного резонанса (ФМР) и намагниченности пленок Fe(001) толщиной от 25 до 500 Å на подложках из MgO(001). Анализ полученных данных показал, что поправки к кубической константе анизотропии и константа перпендикулярной одноосной анизотропии сильно зависят от толщины пленок L, меняясь как 1/L при $L \ge 50$ Å и имея тенденцию к насыщению при L < 50 Å. Интерпретация полученных результатов построена на том, что доминирующий вклад в магнитную анизотропию исследованных пленок дает эпитаксиальное несоответствие пленки и подложки.

В данной работе представлены экспериментальные результаты исследований ферромагнитного резонанса и намагниченности пленок Fe(110), выращенных на сапфировых подложках с буферным слоем Nb(110). Сравнительный анализ данных для пленок Fe(001) и Fe(110) показал, что поправки к кубической константе анизотропии в пленках Fe(001) и константы анизотропии, вызванной тригональными искажениями в пленках Fe(110), обусловлены одним и тем же механизмом: характерным (отличным от идеального) распределением по толщине пленок деформаций, вызванных эпитаксиальным несоответствием.

Данная статья построена следующим образом. В разд. 2 мы описываем приготовление и характеристики образцов. Экспериментальные результаты по ФМР представлены в разд. 3, а их последующий анализ — в разд. 4. Обсуждение результатов по константам анизотропии дано в разд. 5.

2. ОБРАЗЦЫ

2.1. Приготовление пленок

Пленки Fe выращивались методом молекулярной эпитаксии на сапфировых подложках $Al_2O_3(11\overline{2}0)$ с буферным слоем Nb. Рабочий вакуум в камере составлял ~ 10^{-10} мбар. Монокристаллические подложки $Al_2O_3(11\overline{2}0)$ обезгаживались и непосредственно перед напылением отжигались при 1000°C в течение часа. Ниобий испарялся при электронно-лучевом нагреве из тигля объемом 14 см³. Во время напыления ниобия температура подложки поддерживалась вблизи 900°C. Скорость осаждения ниобия измерялась в процессе испарения оптическим методом и ее величина 0.5 Å/с оказалась оптимальной с точки зрения получения высококачественных монокристаллов Nb(110). Толщина пленок Nb в исследованных нами образцах была в пределах от 100 до 600 Å. После завершения процесса напыления ниобия проводился кратковременный отжиг при 950°C в течение 15 мин. Железо о́саждалось из испарительной ячейки, производящей поток с высокой стабильностью. Пленка железа выращивалась со скоростью 0.1 Å/с, и ее толщина оценивалась по времени, а впоследствии уточнялась по данным малоуглового рентгеновского рассеяния. При напылении железа температура подложки опускалась до 100°C. Поскольку испарительная ячейка для железа была расположена под углом относительно держателя подложки, для обеспечения одинаковости толщины по образцу осуществлялось вращение держателя подложки. Поверх слоя железа наносились тонкие защитные слои ниобия и палладия толщиной по 30 Å каждый. Качество каждого слоя контролировалось во время его роста *in citu* посредством регистрации малоугловой дифракции электронов.

2.2. Малоугловое рассеяние рентгеновских лучей

Эксперименты по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей были выполнены с применением 18-киловольтного рентгеновского источника с медным анодом. Эти измерения проводились с целью определения толщины слоев в образцах, а также параметров шероховатости поверхности и интерфейсов. Типичные угловые зависимости интенсивности малоуглового рентгеновского рассеяния обнаруживали четкие осцилляции, связанные с интерференцией рентгеновских лучей, отраженных от поверхности пленок и интерфейса пленка-подложка. Подгонка полученных угловых зависимостей с применением формализма Паррата [10] дала значение шероховатости интерфейса менее 6 Å для пленок, полученных обоими методами. Толщины пленок, полученные из этой подгонки рентгеновских спектров, в дальнейшем использовались в качестве окончательных значений толщин слоев железа.

2.3. Брэгговская дифракция рентгеновских лучей

Измерения брэгговской рентгеновской дифракции в направлении, перпендикулярном плоскости пленки, показали, что железо на подложках из $Al_2O_3(11\overline{2}0)$ с буферным слоем Nb(110) растет в ориентации (110). При этом структурная длина когерентности оказывается сравнимой с толщиной пленок. Эти измерения в направлении, параллельном поверхности пленки, позволили определить эпитаксиальные соотношения компонентов наших образцов. Было установлено, что пленка железа вырастает как продолжение структуры ниобия, т.е. оси [001] Nb и Fe параллельны. При этом оси [111] Nb и Fe оказываются ориентированными параллельно оси *с* подложки из $Al_2O_3(11\overline{2}0)$.

Более подробно упомянутые процедуры приготовления образцов и их характеризация рентгеновскими методами изложены в работах [11, 12].

2.4. Измерения намагниченности

Измерения намагниченности были проведены с помощью СКВИД-магнитометра в температурном диапазоне от 4.2 до 300 К. Для того чтобы исключить влияние полей размагничивания, полевые зависимости магнитного момента образцов измерялись в продольном относительно плоскости пленки магнитном поле величиной до 5 кЭ. При температурах ниже 100 К парамагнитный вклад неконтролируемых примесей материала подложки в магнитный момент образца становился сравнимым с ферромагнитным моментом пленки. В связи с этим при низких температурах величины магнитных моментов насыщения получались линейной экстраполяцией полевой зависимости магнитного момента образцов из высоких полей к нулевому полю. Для более точного учета вклада подложки в магнитный момент образца магнитные моменты подложек были измерены отдельно после удаления пленок железа. Оценки показывают, что такая коррекция может дать ошибку получаемой величины магнитного момента пленок не более чем 10%. Другой источник ошибок в определении величины магнитного момента пленок — это шероховатость поверхности пленок. Как уже указывалось выше, степень шероховатости поверхности наших пленок была меньше 6 Å. Для пленки толщиной 100 Å это может привести к дополнительной ошибке порядка 3%. Таким образом, общая ошибка в определении момента насыщения для изучаемых пленок ожидается меньше 13%.

В таблице представлены результаты измерений намагниченности пленок Fe(110) на сапфировых подложках с буферным слоем Nb при 20 К. Наблюдаемая небольшая толщинная зависимость намагниченности была объяснена ранее [14] наличием немагнитного слоя железа толщиной порядка 5 Å на границе железо — ниобий. Этот слой возникает вследствие взаимной диффузии Fe и Nb на интерфейсе Fe/Nb.

Образец	<i>L</i> , Å	4π <i>M</i> , кГс
Fe(110)	100	20.1
Fe(110)	48	18.8
Fe(110)	27	17.6
Массивный образец [13]	(21.9

Значения намагниченности насыщения при T = 20 К для исследованных образцов

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ПО ФЕРРОМАГНИТНОМУ РЕЗОНАНСУ

Измерения ФМР были выполнены на спектрометре BE-R 418^S фирмы Bruker в прямоугольном резонаторе TE_{102} на частоте 9400 МГц в диапазоне температур от 4.2 до 400 К. Измерения угловых зависимостей параметров спектра ФМР относительно направления постоянного магнитного поля проводились при расположении постоянного и сверхвысокочастотного магнитных полей параллельно плоскости пленки. Направление постоянного магнитного поля для пленок Fe(110) задавалось углом θ_H относительно оси [001] пленки железа, лежащей в плоскости пленки. Детектируемый сигнал ФМР соответствовал производной поглощаемой микроволновой мощности по магнитному полю. Резонансные поля H_0 брались как среднее между величинами полей, соответствующих экстремумам в производной поглощения. Оценка неопределенности ширины линии от пика до пика ΔH_{pp} составляла 10%, и, таким образом, ошибка в определении резонансного поля была порядка $0.1\Delta H_{pp}$. Точность определения ориентации магнитного поля была не хуже 2°. Величина магнитного поля определялась с помощью ЯМР-магнитометра.

На рисунке 1 представлены спектры ФМР для пленки железа толщиной 100 Å в направлении постоянного магнитного поля, соответствующего различным углам θ_H при двух температурах, а на рис. 2 — угловые зависимости резонансного поля при тех же температурах. При высоких температурах, T > 340 K, при любых направлениях постоянного магнитного поля наблюдалась одиночная линия, а при низких температурах наблюдались две резонансные линии в окрестности оси [110] пленки железа. Эти линии сближались и исчезали при отклонении направления постоянного магнитного поля примерно на 25 градусов от этой оси. Для более тонких образцов петлеобразная угловая зависимость H_0 наблюдалась во всем исследованном интервале температур.



Рис. 1. Спектры ФМР для пленки Fe(110) с толщиной L = 100 Å в направлении постоянного магнитного поля, соответствующем различным углам θ_H , при двух температурах T = 365 K (*a*) и T = 295 K (*b*)



Рис. 2. Угловые зависимости резонансного поля для образца Fe(110) толщиной L = 100 Å при T = 365 K (a) и T = 295 K (b)

Ширина линии как функция θ_H так же, как и в случае пленок Fe(001), принимала наибольшие значения при углах, соответствующих максимальным значениям $|\partial H_0/\partial \theta_H|$. Это наблюдалось при обоих типах угловой зависимости H_0 .

4. АНАЛИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для анализа результатов по ФМР мы будем использовать уравнение Сула [15], определяющее условие ФМР:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{(M\sin\theta)^2} \left[\frac{\partial^2 F}{\partial\theta^2} \frac{\partial^2 F}{\partial\phi^2} - \left(\frac{\partial^2 F}{\partial\theta\partial\phi}\right)^2\right].$$
 (1)

Здесь $\gamma = g\mu_B/\hbar$, а g — g-фактор, F — магнитная часть плотности свободной энергии, θ и ϕ — полярный и азимутальный углы, определяющие направление намагниченности

Магнитная анизотропия...

М. Равновесное направление намагниченности, определяемое углами θ_0 и ϕ_0 , дается нулями первой производной свободной энергии.

Магнитная часть плотности свободной энергии состоит из зеемановской энергии, энергии размагничивания и энергии магнитной анизотропии.

Внешнее магнитное поле вносит в свободную энергию пленки зеемановскую энергию

$$F_Z = -\mathbf{M}\mathbf{H}.\tag{2}$$

Для пленок необходимо также учитывать анизотропию, обусловленную формой образца и определяемую энергией размагничивания

$$F_D = 2\pi M_\perp^2, \tag{3}$$

где M_{\perp} — компонента момента насыщения, перпендикулярная поверхности пленки.

Для идеального кубического кристалла вклад в плотность свободной энергии, обусловленный кристаллической анизотропией, записывается в виде

$$F_{A} = -\frac{1}{2}K_{1}(\alpha_{x}^{4} + \alpha_{y}^{4} + \alpha_{z}^{4}).$$
(4)

Здесь K_1 — константа кубической анизотропии, α_i — направляющие косинусы намагниченности.

Для тонких пленок необходимо также учитывать вклад второго порядка в энергию анизотропии, возникающий вследствие нарушения симметрии кристаллического поля на поверхности пленки или интерфейсе (так называемый неелевский вклад [3]). Этот вклад имеет ту же угловую зависимость, что и вклад от энергии размагничивания. В связи с этим обычно в уравнениях для ФМР его учитывают в комбинации с размагничивающим членом, вводя эффективную намагниченность M_{eff} [16]:

$$4\pi M_{eff} = 4\pi M - 2K_n/M,\tag{5}$$

где K_n — константа одноосной анизотропии, зависящая в случае чисто поверхностной природы этого вклада от толщины L как 1/L, а M — величина равновесной намагниченности.

Для пленок Fe(110) данные ФМР удобнее анализировать в системе координат, в которой θ — полярный угол, определяющий отклонение вектора намагниченности **M** от оси [001], а ϕ — азимутальный угол, измеряемый от оси [110] железа в плоскости xy. Внешнее магнитное поле прикладывается под углом θ_H к направлению [001] и углом ϕ_H относительно оси [110]. В наших экспериментах ϕ_H равно 0.

Описанные выше вклады в свободную энергию, обусловленные магнитной анизотропией, справедливы лишь для пленок с идеальной кубической структурой. В действительности же кристаллическая решетка эпитаксиальных пленок оказывается искаженной. Вследствие эпитаксиального несовпадения кристаллических решеток пленки и подложки возникают внутриплоскостные деформации, вызывающие, в свою очередь, перпендикулярные плоскости пленки пуассоновские деформации.

Пленки с кубической структурой, выращенные вдоль кристаллографического направления [001], имеют, как правило (см., например, [16]), тетрагональные искажения.

Для пленок Fe(110) ростовые искажения, вызванные эпитаксиальным несоответствием, имеют в основном тригональный характер. Это связано с тем, что ось [111] железа совпадает с осью с сапфировой подложки, кристаллическая решетка которой имеет аксиальную симметрию. Используя теорию кристаллического поля (см., например, [17]), мы проанализировали вклады в свободную энергию, появляющиеся из-за внутриплоскостных тригональных искажений слоя железа. Эти вклады в общем виде имеют сложный вид и содержат множество параметров. Однако численные оценки этих параметров позволили нам пренебречь малыми членами. Скомбинировав различные члены с одинаковыми угловыми зависимостями, мы получили, что в нашем случае главные вклады в энергию кристаллической анизотропии, помимо чисто кубического вклада (4), могут быть записаны в виде $F_{trig} = K_u \sin^2 \theta + K'_u \sin^4 \theta$. Этот вывод согласуется с предположением, принятым в работе [18].

В выбранной системе координат плотность полной свободной энергии записывается в виде:

$$F = -MH(\cos\theta\cos\theta_H + \sin\theta\sin\theta_H\cos\phi) + 2\pi M_{eff}^2 \sin^2\theta\sin^2\phi + \frac{1}{4}K_1(\sin^22\theta + \sin^4\theta\cos^22\phi) + K_u\sin^2\theta + K'_u\sin^4\theta.$$
 (6)

Общее условие Сула для ферромагнитного резонанса (1) дает

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^{2} = \left[H\cos(\theta_{0} - \theta_{H}) + \frac{1}{2}\frac{K_{1}}{M}(\cos 2\theta_{0} + 3\cos 4\theta_{0}) + 2\frac{K_{u}}{M}\cos 2\theta_{0} + 2\frac{K'_{u}}{M}(\cos 2\theta_{0} - \cos 4\theta_{0})\right] \times \left[H\cos(\theta_{0} - \theta_{H}) + 4\pi M_{eff} + \frac{1}{8}\frac{K_{1}}{M}(3\cos 4\theta_{0} + 16\cos 2\theta_{0} - 3)\right].$$
(7)

Уравнение (7) совместно условием равновесия

$$H\sin(\theta_0 - \theta_H) = -\frac{1}{4} \frac{K_1}{M} \sin 2\theta_0 (1 + 3\cos 2\theta_0) - \frac{K_u}{M} \sin 2\theta_0 - \frac{1}{2} \frac{K'_u}{M} (2\sin 2\theta_0 - \sin 4\theta_0)$$
(8)

определяет H_0 как функцию угла θ_H , эффективной намагниченности $4\pi M_{eff}$ и констант анизотропии K_u и K'_u . Константа K_1 бралась равной ее значению для массивного Fe [13].

Анализ показал, что для определенных соотношений между эффективной намагниченностью $4\pi M_{eff}$ и полями анизотропии могут реализовываться два вида угловых зависимостей: раскрытая и в виде петли, как это и наблюдается в эксперименте (рис. 2). Влияния параметров $4\pi M_{eff}$ и K_u в этих двух случаях несколько различаются. В первом случае, когда ФМР наблюдается при всех ориентациях внешнего магнитного поля, влияние $4\pi M_{eff}$ сводится к изменению среднего положения линии над осью абсцисс. Параметр K_u определяет амплитуду вариации H_0 . Во втором случае (в случае замкнутой петли), когда ФМР наблюдается только вблизи тяжелой оси намагничения, наоборот, параметр K_u определяет положение центра петли над осью абсцисс, тогда как параметр $4\pi M_{eff}$ задает амплитуду петли. Что же касается параметра K'_u , то его величина в обоих случаях определяет глубину провала вблизи тяжелой оси в угловой зависимости H_0 .

Магнитная анизотропия...



Рис. 4. Зависимость $4\pi M_{eff}$ для пленок Fe(110) при T = 300 K от их толщины. На вставке показана температурная зависимость $4\pi M_{eff}$ для образца с L = 100 Å

Типичные результаты подгонки угловых зависимостей резонансных полей H_0 для g = 2.09 [13]) показаны на рис. 2. Они находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными. Эти расчеты дали нам величины констант анизотропии K_u , K'_u и эффективной намагниченности $4\pi M_{eff}$, которые представлены на рис. 3 и 4.

На рисунке 5 для сравнения приведены зависимости поправок к кубической анизотропии $K_t = K_1 - K_1^b$ для пленок Fe (001) на подложках из MgO от их толщины. Они обусловлены тетрагональными искажениями пленок вдоль кристаллографической оси [001] и вычислены из данных, приведенных на рис. 4 работы [9]. В качестве K_1^b взяты



Рис. 5. Зависимость поправки к константе кубической анизотропии K_t для пленок Fe(001) при T = 300 K от их толщины. На вставке показана температурная зависимость K_t для образца с L = 100 Å

значения кубической константы анизотропии для массивных образцов железа [13]).

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для достижения поставленной в данных исследованиях цели, а именно, для выяснения характера влияния эпитаксиального несоответствия пленки и подложки на магнитную анизотропию ферромагнитных пленок, необходимо обсудить весь наш экспериментальный материал по исследованию пленок железа, включая и экспериментальные данные, представленные нами в работе [9]. Такое обсуждение может позволить сделать выводы относительно взаимосвязи характера роста ферромагнитных пленок вообще и их магнитной анизотропией.

5.1. Поправка К_t к константе кубической анизотропии

Экспериментально определенная в образцах Fe(001)/MgO поправка к константе кубической анизотропии K_t сильно зависит от толщины образца (рис. 5). При T = 300 К в области толщин от 80 Å до 500 Å эта зависимость может быть описана как

$$\frac{K_t}{M} = -\frac{7.3}{d} \, \kappa \Im, \tag{9}$$

где d — толщина пленки, выраженная в монослоях (для ОЦК Fe d = L/1.433). Качественно эта зависимость подобна зависимости, полученной ранее [4] для тонких (< 15 Å) пленок Fe(001) на подложках из монокристаллического Ag(001), у которых поправка к кубической константе анизотропии $K_t = -1.25/d$ связывается с поверхностным вкладом четвертого порядка. Отрицательный знак этого вклада в случае образцов Fe(001)/Ag(001) указывает на то, что энергия поверхностной анизотропии имеет ось легкого намагничивания, параллельную кристаллографическому направлению {110}. Это

означает, что существует определенная толщина, при которой наблюдаемая константа анизотропии $K_{1\parallel} = K_1 + K_t$ меняет свой знак, т.е. ось легкого намагничивания переключается с направления {100} на {110}. Если мы предположим, что в нашем случае зависимость K_t от толщины имеет вид, согласующийся с уравнением (9) вплоть до самых малых толщин, то изменение знака константы анизотропии пленки должно произойти при L = 36 Å ($K_1/M = 0.29$ кЭ при T = 300 К [13]). Однако, как видно из рис. 5, этого не происходит. Это с большой вероятностью указывает на то, что в нашем случае источник вклада K_t не является чисто поверхностным. Можно предположить, что наблюдаемый нами вклад К_t в магнитную анизотропию обусловлен эпитаксиальным несоответствием пленки и подложки. Из экспериментов по малоугловому рентгеновскому рассеянию [7] известно, что пленки Fe растут на подложках из MgO (001) до толщин порядка 10 атомных слоев в виде островков. При последующем увеличении толщины пленки островки, первоначально содержащие малые деформации, смыкаются друг с другом. В этот момент наблюдается максимальная величина деформаций. Затем величина деформации начинает быстро уменьшаться. Деформации, локализованные вблизи области интерфейса, могут изменить константу магнитной анизотропии в этих приграничных слоях за счет магнитострикции. Изменение константы анизотропии области вблизи интерфейса может повлиять на магнитную анизотропию пленки в целом следующим образом.

Хорошо известно [16], что для пленок с толщиной, меньшей так называемой обменной длины $\lambda_{ex} = (A/2\pi M^2)^{1/2}$, поле анизотропии, измеренное с помощью метода ФМР, может быть представлено как комбинация вклада объемной анизотропии и вклада поверхностной анизотропии, обратно пропорционального толщине пленки L. Так как при комнатной температуре коэффициент спиновой жесткости железа $A \simeq 2 \times 10^{-6}$ эрг/см и намагниченность насыщения $M \simeq 1700$ Гс, получаем $\lambda_{ex} \simeq 50$ Å. Ранее считалось [19], что для пленок с $L \ge \lambda_{ex}$ константа анизотропии зависит от вклада поверхностной анизотропии более сложным образом, нежели в виде L^{-1} . Однако расчеты, проведенные Тагировым в работе [9], показали, что для случая, когда внешнее поле лежит в плоскости пленки, ферромагнитная пленка может рассматриваться как «динамически тонкая» пленка вплоть до толщин порядка 10³ А. В связи с этим вклад поверхностной анизотропии для таких пленок, измеренный в ФМР, оказывается усредненным по всему образцу точно так же, как и в случае пленок с толщиной $L < \lambda_{ex}$ (т.е. пропорциональным L^{-1}). Данный вывод относится не только к чисто поверхностному вкладу в магнитную анизотропию. Благодаря существованию длинноволновых процессов передачи намагниченности источник интерфейсной анизотропии, локализованный в граничном слое конечной толщины, $\delta L \ll L$, вблизи интерфейса, будет выглядеть как поверхностный / вклад в анизотропию, зависящий от толщины пленки как L^{-1} . Очевидно, что как только толщина пленки L достигает толщины δL граничного слоя, зависимость константы анизотропии от толщины должна насыщаться.

Итак, мы полагаем, что деформации, возникающие вследствие эпитаксиального несоответствия на интерфейсе пленка-подложка, приводят к изменению параметра магнитной анизотропии приграничного слоя. Как было установлено методом малоуглового рентгеновского рассеяния в системе Fe(001)/MgO(001), эти деформации кристаллической решетки оказываются сосредоточенными в слое толщиной порядка 30 монослоев вблизи интерфейса. Однако на основании имеющихся экспериментальных данных построить детальный вид распределения деформаций не представляется возможным. Для грубого анализа полученных нами экспериментальных данных по магнитной анизотропии предположим простейшее распределение деформаций в виде ступеньки, которое приводит к следующему распределению соответствующего вклада в константу анизотропии:

$$K_t(z) = \begin{cases} 0 & \text{при} \quad 0 \le z \le L - \delta L \\ K_t^0 & \text{при} \quad L - \delta L < z \le L \end{cases}$$
(10)

Тогда магнитоупругий вклад, усредненный по толщине пленки, может быть записан как

$$K_t = \frac{1}{L} \int_0^L K_t(z) dz = \begin{cases} (\delta L/L) K_t^0 & \text{при} \quad L > \delta L \\ K_t^0 & \text{при} \quad L \le \delta L \end{cases}$$
(11)

До тех пор пока $L > \delta L$, выражение (11) обеспечивает вклад в магнитную анизотропию, зависящий от толщины как L^{-1} . Как только величина L оказывается меньше δL , K_t насыщается, вызывая отклонения от закона (9) и не допуская изменения знака поля анизотропии. Очевидно, что в реальности имеется некое гладкое распределение величины K_t , которое и приводит к наблюдаемому поведению K_t с непрерывным переходом от зависимости L^{-1} к насыщению при малых толщинах. Подгоняя экспериментальные данные по K_t к зависимости от толщины, определяемой выражением (11), мы получили параметры $K_t^0 \sim -4 \times 10^5$ эрг/см³ и $\delta L \sim 45$ Å. Полученная оценка толщины деформированного слоя прекрасно согласуется с данными, полученными методом малоуглового рентгеновского рассеяния [7], откуда следует, что резкое уменьшение деформаций кристаллической решетки пленок происходит на толщинах порядка 30 монослоев. К сожалению, корректных оценок самой величины K_t , вызванной эпитаксиальными деформациями, провести не удается вследствие отсутствия микроскопической теории магнитной анизотропии ферромагнетиков.

Дополнительное подтверждение правильности предлагаемой модели было получено при проведении измерений ФМР на специально приготовленных пленках Fe(001) толщиной 120, 250 и 500 Å, которые были выращены на подложках из MgO(001) при температуре 470 К. Зависимость от толщины величины K_t этого набора образцов может быть описана эмпирическим соотношением

$$\frac{K_t}{M} = -\frac{4.1}{d} \quad \text{K9.} \tag{12}$$

l

Сравнение K_t для образцов, выращенных при различных температурах подложки, показывает, что произведение $K_t^0 \delta L$ (см. выражение (11)) для образцов, выращенных при 470 К, меньше, чем для образцов, приготовленных при комнатной температуре. Это может происходить вследствие того, что в пленках, выращенных при более высокой температуре подложки, величины эпитаксиальных деформаций меньше, а их релаксация происходит на меньших расстояниях от интерфейса пленка-подложка. Таким образом, полученные нами данные показывают, что поправка 4-го порядка K_t к кубической константе анизотропии в исследованных нами пленках обусловлена деформациями, вызванными эпитаксиальным несоответствием.

5.2. Константы тригональной анизотропии K_u и K'_u

В случае MgO/Fe(001) внутриплоскостная симметрия наведенных подложкой деформаций совпадает с кристаллической симметрией пленки железа. При этом дополнительный член к свободной магнитной энергии имеет симметрию 4-го порядка. Пленки Nb(110) и Fe(110) ориентированы так, что оси [111] пленок оказываются параллельными оси c подложки Al₂O₃(11 $\overline{2}$ 0). Такое эпитаксиальное соотношение с подложкой из Al₂O₃ приводит к появлению тригональных искажений кристаллических решеток Fe и Nb. Эти искажения вызывают необходимость введения поправок в магнитную анизотропию пленок Fe, которые эффективно могут быть учтены в виде констант 2-го и 4-го порядков K_u и K'_u (см. разд. 4). Очевидно, что константы K_u и K'_u должны обращаться в нуль при переходе к массивному материалу, как это и наблюдается в эксперименте (рис. 3). Из этого рисунка также видно, что на рубеже ~ 50Å увеличение констант анизотропии с уменьшением толщины пленки прекращается, т.е. мы снова имеем ту же характерную толщину деформированного слоя, что и в случае Fe(001)/MgO(001).

5.3. Эффективная намагниченность

Результаты наших измерений намагниченности с помощью СКВИД-магнитометра (см. рис. 3 работы [9]) показывают, что величина момента насыщения М пленок Fe(001)/MgO(001) не зависит от толщины пленки железа, тогда как измеренная в данной работе (см. таблицу) величина момента насыщения для пленок $Fe(110)/Nb(110)/Al_2O_3(11\overline{2}0)$ обнаруживает небольшую зависимость от толщины, связанную, как уже указывалось выше, с образованием немагнитного слоя железа на интерфейсе Fe/Nb. Это означает, что для магнитоактивной части пленки Fe(110) также отсутствует зависимость реальной величины момента насыщения от толщины пленки железа. Вместе с тем, зависимости эффективной намагниченности пленок Fe(001) (рис. 5 работы [9]) и пленок Fe(110) (рис. 4) от толщины, полученные из измерений ФМР, оказываются практически идентичными. Полученные зависимости эффективной намагниченности с большой вероятностью определяются константой одноосной анизотропии второго порядка K_n (см. выражение (5)). Такая анизотропия может появляться вследствие магнитострикции или из-за перпендикулярной анизотропии Нееля [3]. Анализ, проведенный в работе [9], показал, что вклад, обусловленный магнитострикцией, приводит к возрастанию величины M_{eff} , что противоречит результатам наших экспериментов. Проведенные оценки неелевского вклада показали, что знак этого вклада верен, но его величина слишком мала, чтобы объяснить наблюдаемое уменьшение намагниченности. Анализ данных, показанных на рис. 3-5, подводит нас к заключению, что зависимости величин K_t , K_u , K'_u и K_n , от толщины подобны: все они сильно меняются при уменьшении L и перестают изменяться ниже определенной толщины. Это, по-видимому, указывает на то, что зависимости всех этих параметров от толщины имеют общую причину. Как показано ранее [9], деформации дают вклад противоположный по знаку экспериментально наблюдаемому. Однако следует заметить, что релаксация деформаций, вызванных эпитаксиальным несоответствием, при толщинах пленок, больших некоторой критической величины $L_c \sim 10$ Å, происходит за счет возникновения эпитаксиальных дислокаций. На линии дислокации симметрия нарушается точно так же, как на поверхности. Оценить величину этого вклада в перпендикулярную одноосную анизотропию достаточно сложно. Вместе с тем, очевидно, что плотность дислокаций, так же как число атомных плоскостей с нарушенной симметрией, экстремально высокая и вызывает быструю релаксацию несоответствия решеток на расстояниях порядка 40-50 А. Мы, следовательно, можем заключить, что неелевский механизм, давая правильный знак K_n , может быть значительно усилен эпитаксиальными дислокациями, и результаты, полученные для Fe(110), качественно не отличаются от результатов для Fe(001).

Таким образом, в работе показано наличие сильного влияния эпитаксиального несоответствия пленки и подложки на магнитную анизотропию пленок железа. Поправки к константам внутриплоскостной кубической анизотропии 4-го порядка и константа перпендикулярной анизотропии 2-го порядка, обусловленные эпитаксиальным несоответствием, с уменьшением толщины пленки L меняются пропорционально L^{-1} до некоторой толщины порядка 50 Å. При дальнейшем уменьшении толщины эти величины выходят на насыщение. Обнаруженное поведение констант магнитной анизотропии объясняется наличием в пленках областей толщиной порядка 50 Å вблизи интерфейса, в которых в основном сконцентрированы деформации, возникающие вследствие эпитаксиального несоответствия. Эти деформации изменяют константы магнитной анизотропии в этой области за счет магнитострикции и наличия эпитаксиальных дислокаций. Благодаря существованию длинноволновых процессов передачи намагниченности этот источник анизотропии проявляется как поверхностный вклад в анизотропию пленки, зависящий от толщины пленки как L^{-1} при больших толщинах.

Сравнение результатов проведенных нами исследований с известными данными показывает, что природа магнитной анизотропии тонких пленок сложна и разнообразна. Она определяется особенностями роста пленок. В зависимости от выбранного материала подложки и условий нанесения ферромагнитного слоя рост пленки может происходить слой за слоем с моноатомных толщин или же начинаться с островкового роста с последующим перекрытием островков при достижении определенных толщин. В первом случае применимо модельное распределение деформаций вблизи интерфейса, когда при толщинах, меньших некоторой критической величины L_c , пленки полностью сопрягаются с подложкой, т.е. деформация решетки $\varepsilon = -\eta$, а при больших толщинах состояние идеальной эпитаксии становится метастабильным и появляются эпитаксиальные дислокации. При этом релаксация деформаций происходит по закону $\varepsilon \simeq -\eta L_c/L$. Во втором случае, как было установлено в проведенных нами исследованиях, источником «интерфейсной» анизотропии является обширная область, расположенная вблизи интерфейса. Таким образом, магнитная анизотропия тонких пленок требует детального изучения в каждом конкретном случае. В связи с этим при проверке различных теоретических моделей взаимодействия ферромагнитных слоев в мультислойных системах необходимо иметь в виду реальные величины магнитной анизотропии ферромагнитных слоев, которые могут превышать константы взаимодействия и препятствовать возникновению тех или иных магнитных структур.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 96-02-16332а).

Литература

- 1. P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, and C. H. Sowers, Phys. Rev. Lett. 57, 2442 (1986).
- 2. M. N. Babich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguen Van Dau, and F. Petroff, Phys. Rev. Lett. 61, 2472 (1988).
- 3. L. Néel, Compt. Rend. 237, 1623 (1953).
- 4. B. Heinrich, Z. Celinski, J. F. Cochran, A. S. Arrott, and K. Myrtle, J. Appl. Phys. 70, 5769 (1991).
- 5. C. Chappert and P. Bruno, J. Appl. Phys. 64, 5736 (1988).

- 6. J. J. Krebs, F. J. Rachford, P. Lubitz, and G. A. Prinz, J. Appl. Phys. 53, 8058 (1982).
- 7. B. M. Lairson, A. P. Payne, S. Brennan, N. M. Rensing, B. J. Daniels, and B. M. Clemens, J. Appl. Phys. 78, 4449 (1995).
- 8. Yu. V. Goryunov, G. G. Khaliullin, I. A. Garifullin, L. R. Tagirov, F. Schreiber, P. Bödeker, K. Bröhl, Ch. Morawe, Th. Mühge, and H. Zabel, J. Appl. Phys. **76**, 6096 (1994).
- 9. Yu. Goryunov, N. N. Garif'yanov, G. G. Khaliullin, I. A. Garifullin, L. R. Tagirov, F. Schreiber, Th. Mühge, H. Zabel, Phys. Rev. B 52, 13450 (1995).
- 10. L. G. Parratt, Phys. Rev. 95, 359 (1954).
- 11. Th. Mühge, A. Stierle, N. Metoki, U. Pietsch, and H. Zabel, Appl. Phys. A 59, 659 (1994).
- 12. K. Theis-Bröhl, R. Scheid, Th. Zeidler, F. Schreiber, H. Zabel, Th. Mathieu, C. Mathieu, and B. Hillebrands, Phys. Rev. B 53, 11613 (1996).
- 13. Landolt-Börnstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, New Series, Springer, Heidelberg (1986), Vol. III/19a.
- Th. Mühge, N. N. Garif'yanov, Yu. V. Gorryunov, K. Theis-Bröhl, K. Westerholt, I. A. Garifullin, and H. Zabel, Physica C 296, 325 (1998).
- 15. H. Suhl, Phys. Rev. 97, 555 (1955).
- 16. B. Heinrich and J. F. Cochran, Adv. in Physics 42, 523 (1993).
- 17. С. А. Альтшулер, Б. М. Козырев, Электронный парамагнитный резонанс соединений элементов промежуточных групп, Наука, Москва (1972).
- 18. G. A. Prinz, G. T. Rado, and J. J. Krebs, J. Appl. Phys. 53, 2087 (1982).
- 19. G. T. Rado, Phys. Rev. B 26, 295 (1982); Phys. Rev. B 32, 6061 (1985); J. Appl. Phys. 61, 4262 (1987).