

УДК 537.67

МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ ПЛЕНОК Co_2FeAl НА А-ПЛОСКОСТИ САПФИРА

© 2022 г. Л. А. Фомин^а, *, И. В. Маликов^а, **, В. А. Березин^а

^аИнститут проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН,
Черноголовка, Московская область, 142432 Россия

*e-mail: fomin@iptm.ru

**e-mail: malikov@iptm.ru

Поступила в редакцию 30.11.2020 г.

После доработки 12.01.2022 г.

Принята к публикации 12.01.2022 г.

Методом импульсного лазерного испарения в сверхвысоком вакууме на А-плоскости сапфира с подслоем 10 нм эпитаксиально-выращенного при температуре 450°C вольфрама (110) получены пленки Co_2FeAl (CFA) с одноосной магнитной анизотропией. Ориентация кристаллографических осей в выращенных пленках такая же, как и для роста пленок Fe (110) на той же подложке. Для некоторых пленок обнаружена инверсная зависимость анизотропного магнитосопротивления, что может свидетельствовать о реализации состояния половинного металла. Для других пленок из той же серии инверсная зависимость не наблюдается, так как случайные факторы, такие как искажения параметров решетки, напряжения в ней и различные структурные дефекты, могут приводить к потере свойств половинного металла.

Ключевые слова: спиновый половинный металл, сплав Гейслера, эпитаксиальные пленки, инверсное анизотропное магнитосопротивление.

DOI: 10.31857/S1028096022070044

ВВЕДЕНИЕ

Существование половинных металлов (ПМ), подразумевающих 100%-поляризацию спинов на поверхности Ферми было предсказано в начале 1980-х годов [1]. Их использование может потенциально повысить плотность спин-поляризованного тока в структурах с такими материалами, что должно привести к значительному увеличению магниторезистивных эффектов, используемых в прикладных задачах. Первые попытки реализовать ПМ на основе двойных соединений с предсказанными свойствами половинного металла (таких как Fe_3O_4 , CrO_2) оказались малоуспешными. Сплавы Гейслера рассматриваются в настоящее время как наиболее перспективные материалы для этого [2]. Основная идея таких исследований — увеличить спиновую поляризацию и реализовать электронную структуру ПМ. Для некоторых сплавов (в приборах на их основе) было достигнуто значительное увеличение магниторезистивных эффектов: для сплава $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ эффект гигантского магнитосопротивления (GMR) составил 285% при температуре 10 К и 82% при комнатной температуре [3], а для сплава Co_2MnSi эффект туннельного магнитосопротивления (TMR)

составил 1995% при 4.2 К и 354% при комнатной температуре [4].

Пленки различных сплавов Гейслера толщиной от монослойных до 100 нм выращивались при температурах 20–600°C на неориентированных подложках (например, окисленном кремнии) и на монокристаллических (кремний, GaAs (100) [5], MgO(100) и т.д.). Среди используемых подложек также имеется и А-плоскость монокристаллического сапфира Al_2O_3 (1 1 $\bar{2}$ 0). На ориентированных подложках достигаются свойства, близкие к свойствам объемных сплавов Гейслера.

Кобальтсодержащие сплавы Гейслера хорошо изучены, к ним относится, например, Co_2FeAl (CFA). С его использованием продемонстрировано гигантское магнетосопротивление в магнитных туннельных переходах [6].

Рост пленок CFA как потенциального половинного металла и его транспортные свойства рассматривались в различных работах, в частности, его выращивали на подложках MgO, в том числе и с использованием различных подслоев, например, с подслоем хрома [7]. Пленки на ориентированных подложках, например, А-плоскости монокристаллического сапфира Al_2O_3 (1 1 $\bar{2}$ 0)

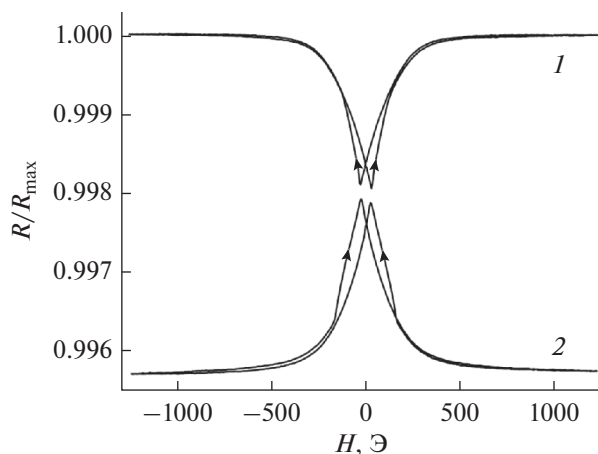


Рис. 1. Характерные зависимости продольного (1) и поперечного (2) магнитосопротивления пленок CFA, выращенных на А-плоскости сапфира с подслоем W.

[8], проявляют свойства близкие к свойствам объемных сплавов Гейслера.

Как было показано ранее [11], высокосовершенные пленки Fe(100) можно получить на А-плоскости сапфира с подслоем Мо или W. Монокристаллический сапфир в свою очередь является отличным материалом для использования в качестве подложки для получения пленок с большими, а иногда и рекордными для пленок длинами свободного пробега, свидетельствующими об их высоком совершенстве [12].

Для CFA характерна решетка $L2_1$. Также возможно существование и неупорядоченных фаз. Расчеты показывают, что данное вещество является половинным металлом с параметром решетки, $a = 0.570$ нм и температурами Кюри 1050, 840 и 890 К для структур с решетками $L2_1$, $B2$ и $A2$ соответственно [9].

Таким образом, целью настоящей работы было получение пленок CFA с одноосной магнитной анизотропией на А-плоскости сапфира с использованием зарекомендовавшей себя ранее методики роста на подслое тугоплавкого металла (W), а также исследование магнитосопротивления таких пленок для проверки достижения ими свойств половинного металла.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Пленки сплава Гейслера CFA толщиной 100 нм были выращены методом импульсного лазерного испарения в сверхвысоком вакууме с базовым вакуумом 10^{-10} Торр на А-плоскости монокристаллического сапфира при $T = 270^\circ\text{C}$ с подслоем эпитаксиально выращенного при 450°C вольфрама с ориентацией (011) и толщиной 10 нм. Был реализован подход, использованный ранее

при получении эпитаксиальных пленок железа высокого качества [13], для которых подслоем W (Мо) задает “правильную” ориентацию роста пленок. Указанный в работе [10] экспериментально найденный параметр решетки используемого сплава Гейслера $a_0 = 0.573$ нм практически в точности равен удвоенному значению параметра решетки для Fe ($a = 0.2866$ нм). Такие значения параметров решеток должны также обеспечить и подобие эпитаксиального роста пленок в рассматриваемом случае.

Для магнитотранспортных измерений были изготовлены структуры в виде мостиков размером 200×900 мкм напылением через маску. Сопротивление мостиков измерялось по четырехточечной схеме как функция внешнего магнитного поля, разворачиваемого от -5000 до 5000 Э.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Исследование сопротивления пленок в магнитном поле, лежащем в плоскости пленки и направленном параллельно (перпендикулярно или под углом) к продольной оси мостика CFA дает характерные для анизотропного магнитосопротивления магнитополевые зависимости сопротивления для пленок CFA, выращенных на А-плоскости сапфира с подслоем W(110). Пример таких магнитополевых зависимостей (продольное и поперечное магнетосопротивление) приведен на рис. 1. При этом величина магнитного поля в максимуме или минимуме такой зависимости может быть отождествлена с величиной коэрцитивной силы H_c (в зависимости от величины угла между направлением протекающего тока и направлением магнитного поля), т.е. для заданного кристаллографического направления пленки. По результатам измерения кривых магнитосопротивления была построена угловая зависимость H_c .

Экспериментальное исследование магнитосопротивления пленок CFA, выращенных на А-плоскости сапфира, показали, что имеет место четко выраженная одноосная ростовая анизотропия (рис. 2). Ориентация осей полностью соответствует характерной ориентации для роста пленок железа на поверхности А-сапфира с подслоем Мо [14], т.е. направление $[1 \bar{1} 1]$ Co_2FeAl направлено перпендикулярно $[0001]$ сапфира. Кроме того для пленок Fe на А-плоскости сапфира с подслоем Мо характерна эпитаксия Fe(110) с направлением $[100]$, лежащем в плоскости пленки и направленном под углом около 35° относительно направления $[0001]$ сапфира [14]. Ранее мы уже отмечали, что CFA имеет удвоенный параметр решетки по сравнению с Fe.

Как видно из рис. 2, для H_c полученных пленок имеется только одно выделенное направление, т.е. имеет место одноосная магнитная анизотропия. Причем, согласно рисунку, это выделенное

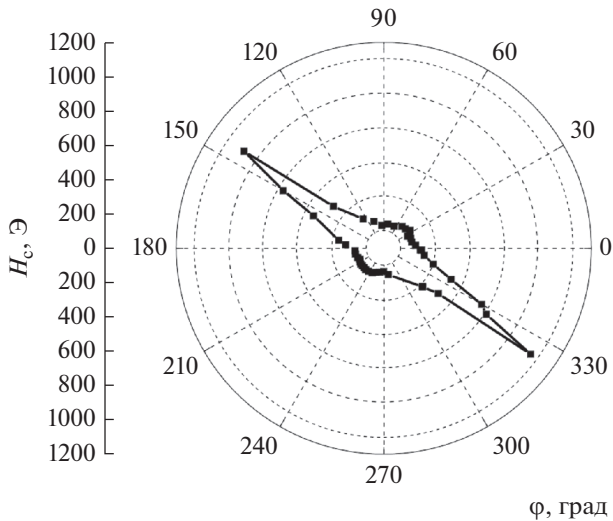


Рис. 2. Зависимость H_c мостика от угла между направлением магнитного поля лежащего в плоскости образца и направлением тока (длинной оси мостика).

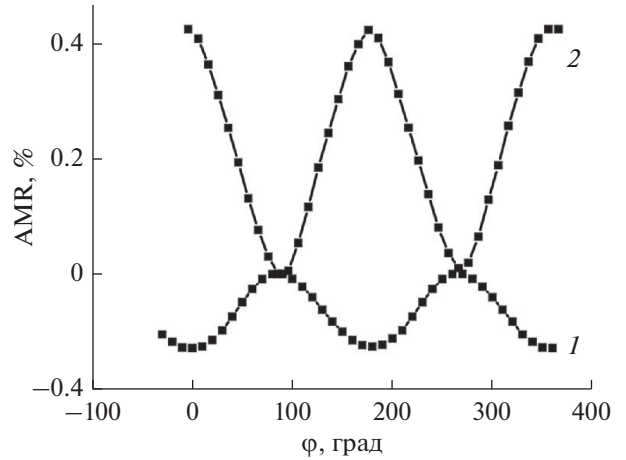


Рис. 3. Зависимость анизотропного магнитосопротивления (AMR) выращенных пленок CFA от угла между направлениями магнитного поля и тока в пленке: 1 – AMR отрицательно, 2 – AMR положительно.

направление совпадает с направлением $[1 \bar{1} 0]$ для подслоя W, однозначно задающего параллельное ему направление роста для Fe $[1 \bar{1} 0]$, а с учетом подобия решеток CFA и Fe, и для пленки CFA должно быть то же самое однозначно определяемое кристаллографическое направление роста. т.е. направление $[111]$ Co₂FeAl перпендикулярно направлению $[0001]$ сапфира. Таким образом, направление $[100]$ находится в плоскости пленки под углом 35° относительно направления $[0001]$ сапфира. Для CFA ось легкого намагничивания, что соответствует направлению $[1 \bar{1} 0]$ CFA, направлена под углом $\sim 35^\circ$ к направлению базового среза подложки. Ось трудного намагничивания направлена при этом по направлению $[001]$ CFA. Как это было установлено ранее [10] для CFA ось легкого намагничивания соответствует именно направлению $[110]$. Такая однозначная магнитная анизотропия пленок CFA должна свидетельствовать и об их хорошем и однозначном кристаллографическом сопряжении с подслоем W и подложкой А-сапфира.

Обнаруженный характер магнитной анизотропии для пленок сплавов Гейслера, выращенных на А-плоскости сапфира, существенно отличается от результатов других исследований [15, 16]. Как было показано в этих и других работах, при выращивании пленок различных сплавов Гейслера (например, Co₂FeSi) на чистой подложке А-сапфира без использования подслоя какого-либо металла наблюдается рост текстурированных пленок типа (110) с 6-осной анизотропией кристаллографических и магнитных свойств в плоскости пленки, чего в нашем случае не наблюдается.

Использовавшиеся ранее тонкие подслои из Au, Cr, V [15–17], как отмечалось неоднократно,

улучшают текстуру пленок, но полностью не убирают многоосную анизотропию в плоскости пленок. В нашем случае многоосной анизотропии в плоскости пленки не наблюдается. Поэтому предположение об использовании подслоя тугоплавкого металла для улучшения однородности свойств в плоскости пленки сплава CFA(110) было верным.

Кроме того, для некоторых пленок CFA обнаружена инверсная зависимость поперечного и продольного магнитосопротивления (рис. 3), что, согласно работе [4], может свидетельствовать о реализации в таких пленках состояния половинного металла. Для другой части пленок инверсная зависимость магнитосопротивления не наблюдается.

Недавно была развита новая теоретическая модель, которая проанализировала эффект анизотропного магнитосопротивления (AMR) для различных ферромагнитных материалов [18, 19]. Величина AMR определяется как $AMR = [(R(\phi) - R_{\perp})/R_{\perp}] \times 100\%$. В рамках новой модели $s-d$ -рассеяние электронов, являющееся причиной AMR, происходит главным образом из состояния $s\uparrow$ в состояние $d\uparrow$ или из $s\downarrow$ в $d\downarrow$ в половинных металлах, что приводит к отрицательному знаку соотношений AMR, т. е. электрическое сопротивление в параллельном состоянии, где \mathbf{M} и \mathbf{I} намагниченность и электрический ток, соответственно, $(\mathbf{M} \parallel \mathbf{I})$ меньше, чем в перпендикулярных условиях $(\mathbf{M} \perp \mathbf{I})$. В случае же положительного значения AMR преобладает $s-d$ -рассеяние с переворотом спина. Угловая зависимость AMR-эффекта имеет вид:

$$AMR^i(\phi_i) = C_0^i + C_2^i \cos(2\phi_i) + C_4^i \cos(4\phi_i) \dots, \quad (1)$$

где φ – угол между направлением тока и намагниченностью образца, i – индекс кристаллографического направления, вдоль которого течет ток. В отличие от обычных ферромагнитных $3d$ -металлов, в половинных металлах коэффициенты разложения C_j^i значительно зависят от кристаллографического направления.

Таким образом, согласно теоретическим представлениям, измерения AMR дают информацию о состоянии половинного металла в исследуемой пленке без каких-либо дополнительных исследований и манипуляций, связанных с микроструктурированием.

Для двух разных пленок были построены зависимости AMR от угла φ между направлением тока и магнитного поля $H = 5000$ Э. Как видно из рис. 3, для кривой 1 величина AMR отрицательна и составляет 0.13% при комнатной температуре, что вполне соответствует результатам других работ как для CFA [20], так и для иных кобальтсодержащих сплавов Гейслера [21, 22].

В соответствии с первопринципными расчетами электронной структуры для сплавов Гейслера на основе кобальта, общий спиновый момент таких соединений в основном подчиняется правилу Слетера–Полинга с полным числом валентных электронов N_v . В работе [20] были проанализированы знак и величина AMR-эффекта для эпитаксиальных пленок сплавов Co_2MnZ и Co_2FeZ в зависимости от N_v . Было найдено, что знак AMR-эффекта является отрицательным, когда N_v находится в интервале 28.2 и 30.3 и становится положительным в случае, когда N_v становится меньше 28.2 или больше 30.3. Для сплава Co_2FeAl $N_v = 29$, что попадает в данный интервал. Для эпитаксиальных пленок CFA, выращенных на подложках $\text{MgO}(001)$, был обнаружен отрицательный AMR-эффект величиной около 0.1% при температуре 300 К.

В нашем случае для пленок CFA также наблюдается отрицательная величина AMR, сравнимая с результатами других работ. Это может свидетельствовать о реализации в пленках состояния половинного металла. Для другой части выращенных нами CFA-пленок в аналогичных условиях AMR имеет положительное значение, что (на первый взгляд) является не очень понятным. Однако, в работе [23] были исследованы изменения AMR эпитаксиальных тонких пленок $\text{Co}_x(\text{Mn}_{0.44}\text{Ga}_{0.56})_{100-x}$ в зависимости от направления тока к оси кристалла и от содержания Co_x . Было найдено, что знак AMR менялся в соответствии с направлением тока. Для $\mathbf{I} \parallel \text{Co}_2\text{MnGa}[100]$ он был положительным, а для $\mathbf{I} \parallel \text{Co}_2\text{MnGa}[110]$ – отрицательным. Величины AMR для обоих случаев были максимальными при значении $x = 50$ ат. %. Результаты расчетов, основанных на теории s – d -рассеяния, с информацией о плотности состояний, полученной из первопринципных

расчетов, соответствовали экспериментальным данным. Таким образом, результаты работы показали, что изменения знака и амплитуды AMR пленок Co_2MnGa можно объяснить s – d -рассеянием, зависящим от направления тока к кристаллографическим осям кристалла.

Кроме того, на реализацию совершенной структуры половинного металла могут оказывать влияние случайные факторы, такие как искажения параметров решетки, напряжения в ней и различные структурные дефекты, которые приводят к потере свойств половинного металла. Так, в работе [24] для четверных кобальтсодержащих сплавов теоретически было показано, что как искажения решетки, так и дефекты, такие как дефицит атомов Co, могут приводить к переходу от половинного металла к состоянию обычного металла. Известно, что при гетероэпитаксиальном росте пленок зачастую проявляются как тетрагональные искажения кристаллической решетки в растущей пленке, (что может приводить к значительным искажениям зонной структуры [25]), так и выявляемые косвенными методами неоднородности свойств пленок для кристаллографически равнозначных направлений, например, магнитных свойств [26].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для пленок CFA, выращенных методом импульсного лазерного испарения на A -плоскости сапфира с подслоем W проявляется одноосная ростовая магнитная анизотропия. Ориентация осей полностью соответствует таковой, характерной для роста пленок железа на поверхности A -сапфира с подслоем Mo . Для ряда пленок обнаружена инверсная зависимость поперечного и продольного магнитосопротивления, что может свидетельствовать о реализации состояния половинного металла. Для другой части пленок такая инверсная зависимость не наблюдается, так как случайные факторы, такие как искажения параметров решетки, напряжения в ней и различные структурные дефекты, приводят к потере свойств половинного металла.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке Государственной программы № 007-00220-18-00.

Конфликт интересов: Авторы подтверждают, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Groot R.A. de, Mueller F.M., Engen P.G. van, Buschow K.H.J. // Phys. Rev. Lett. 1983. V. 50. № 25. P. 2024. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.50.2024>
2. Comtesse D. Dissertation: First-principles investigation of magnetic and electronic transport properties of tran-

- sition metal alloys. Universitat Duisburg-Essen. 2014. P. 247.
3. Jung J.W., Sakuraba Y., Sasaki T.T., Miura Y., Hono K. // Appl. Phys. Lett. 2016. V. 108. № 10. P. 102408. <https://doi.org/10.1063/1.4943640>
 4. Liu H.X., Honda Y., Taira T., Matsuda K.I., Arita M., Uemura T., Yamamoto M. // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 101. № 13. P. 132418. <https://doi.org/10.1063/1.4755773>
 5. Wanga W.H., Przybylski M., Kucha W., Chelarua L.I., Wanga J., Lua Y.F., Barthele J., Kirschner J. // J. Magn. Magn. Mater. 2005. V. 286. P. 336. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2004.09.089>
 6. Wang W., Liu E., Kodzuka M., Sukegawa H., Wojcik M., Jedryka E., Wu G.H., Inomata K., Mitani S., Hono K. // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. № 14. P. 140402. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.140402>
 7. Okamura S., Miyazaki A., Sugimoto S., Tezuka N., Inomata K. // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 86. № 23. P. 232503. <https://doi.org/10.1063/1.1944893>
 8. Schneider H., Herbolt Ch., Jakob G., Adrian H., Wurmehl S., Felser C. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. V. 40. № 6. P. 1548. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/6/S06>
 9. Siakeng L., Rai D.P., Mikhailov G.M. // J. Mat. Chem. C. 2018. V. 6. № 38. P. 10341. <https://doi.org/10.1039/c8tc02530d>
 10. Gabor M.S., Petrisor T., Jr., Tiusan C., Hehn M., Petrisor T. // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. № 13. P. 134413. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.134413>
 11. Malikov I.V., Fomin L.A., Vinnichenko V.Yu., Mikhailov G.M. // Proc. SPIE. 2008. V. 7025. P. 70250U. <https://doi.org/10.1117/12.802420>
 12. Mikhailov G.M., Malikov I.V., Chernykh A.V., Petrashev V.T. // Thin Solid Films. 1997. V. 293. № 1–2. P. 315. [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(96\)08953-5](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(96)08953-5)
 13. Mikhailov G.M., Fomin L.A., Vinnichenko V.Yu., Malikov I.V., Chernykh A.V. // Sol. St. Phenom. 2011. V. 168–169. P. 300. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/SSP.168-169.300>
 14. May U., Calarco R., Hauch J.O., Kittur H., Fonine M., Rudiger U., Guntherodt G. // Surf. Sci. 2001. V. 489. № 1–3. P. 144. [https://doi.org/10.1016/S0039-6028\(01\)01172-4](https://doi.org/10.1016/S0039-6028(01)01172-4)
 15. Gross K., Szary P., Petravic O., Brusing F., Westerholt K., Zabel H. // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. № 5. P. 054456. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.054456>
 16. Belmeguenai M., Zighem F., Roussigné Y., Chérif S-M., Moch P., Westerholt K., Woltersdorf G., Bayreuther G. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. № 2. P. 024419. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.024419>
 17. Geiersbach U., Bergmann A., Westerholt K. // J. Magn. Magn. Mater. 2002. V. 240. P. 546. [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(02\)01091-X](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(02)01091-X)
 18. Kokado S., Tsunoda M., Harigaya K., Sakuma A. // J. Phys. Soc. Jpn. 2012. V. 81. № 2. P. 024705. <https://doi.org/10.1143/JPSJ.81.024705>
 19. Kokado S., Tsunoda M. // J. Phys. Soc. Jpn. 2019. V. 88. № 3. P. 034706. <https://doi.org/10.7566/JPSJ.88.034706>
 20. Sakuraba Y., Kokado S., Hirayama Y., Furubayashi T., Sukegawa H., Li S., Takahashi Y.K., Hono K. // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 104. № 17. P. 172407. <https://doi.org/10.1063/1.4874851>
 21. Yako H., Kubota T., Takanashi K. // IEEE Trans. Mag. 2015. V. 51. № 11. <https://doi.org/10.1109/INTMAG.2015.7156904>
 22. Yang F.J., Sakuraba Y., Kokado S., Kota Y., Sakuma A., Takanashi K. // Phys. Rev. B. 2012. V. 86. № 2. P. 020409(R). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.020409>
 23. Sato T., Kokado S., Tsujikawa M., Ogawa T., Kosaka S., Shirai M., Tsunoda M. // Appl. Phys. Express. 2019. V. 12. № 10. P. 103005. <https://doi.org/10.7567/1882-0786/ab42b4>
 24. Khan E., Johnson D.D., Suresh K. G., Alam A. // Phys. Rev. B. 2016. V. 94. № 18. P. 184102. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.184102>
 25. Zhang X.M., Wang W.H., Liu E.K., Liu G.D., Liu Z.Y., Wu G.H. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. № 7. P. 071901. <https://doi.org/10.1063/1.3625946>
 26. Hirohata A., Kurebayashi H., Okamura S., Kikuchi M., Masaki T., Nozak T., Tezuka N., Inomata K. // J. Appl. Phys. 2005. V. 97. № 10. P. 103714. <https://doi.org/10.3379/jmsjmag.29.124>

Magnetoresistance of Co₂FeAl Films on A-Sapphire Plane

L. A. Fomin^{1, *}, I. V. Malikov^{1, **}, V. A. Berezin¹

¹Institute of Microelectronics Technology and High Purity Materials Russian Academy of Science, Chernogolovka, Moscow region, 142432 Russia

*e-mail: fomin@iptm.ru

**e-mail: malikov@iptm.ru

Co₂FeAl (CFA) films with uniaxial magnetic anisotropy were obtained by pulsed laser evaporation in ultra-high vacuum on the A-plane of sapphire with a 10 nm seed layer of epitaxially grown W(110) at 450°C. The orientation of the crystallographic axes in the grown films is the same as for the growth of Fe(110) films on the same substrate. For some films, an inverse dependence of the anisotropic magnetoresistance was found, which may indicate the realization of the half metallic state. For other films from the same series, an inverse dependence is not observed, since random factors, such as distortions of the lattice parameters, stresses in it, and various structural defects, can lead to the loss of the properties of the half metal.

Keywords: spin half-metal, Heusler alloy, epitaxial films, inverse anisotropic magnetoresistance.