

ЭВОЛЮЦИЯ ФЕРРОМАГНЕТИЗМА ПЛЕНОК Mn_xSi_{1-x} ($x \approx 0.5$), ПОЛУЧЕННЫХ ЛАЗЕРНЫМ СИНТЕЗОМ НА ПОДЛОЖКАХ САПФИРА *c*- И *r*-СРЕЗОВ, ПРИ ИЗМЕНЕНИИ ПЛОТНОСТИ ЭНЕРГИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА МИШЕНИ

Л. С. Паршина^{a}, А. Б. Дровосеков^b, О. А. Новодворский^a, О. Д. Храмова^a,*
Д. С. Гусев^a, Е. А. Черебыло^a, А. С. Баркалова^{b,c}, К. Ю. Черноглазов^d,
А. С. Веденеев^e, В. В. Рыльков^{d,e}

^a ИПЛИТ РАН — филиал ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» Российской академии наук
140700, Шатура, Московская обл., Россия

^b Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
119334, Москва, Россия

^c Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики»
101000, Москва, Россия

^d Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

^e Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова
Российской академии наук
141190, Фрязино, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 28 апреля 2020 г.,
после переработки 12 мая 2020 г.
Принята к публикации 14 мая 2020 г.

Методом импульсного лазерного осаждения в бескапельном режиме на подложках сапфира *c*- и *r*-срезов получены тонкие пленки Mn_xSi_{1-x} ($x \approx 0.5$) при различных плотностях энергии лазерного излучения E на мишени. Исследованы их магнитные, электрические и рентгеноструктурные свойства в зависимости от величины E и ориентации подложки. Установлено, что при $E \geq 6$ Дж/см² высокотемпературная ферромагнитная фаза в пленках проявляется сильнее, чем при $E \approx 4 - 5$ Дж/см², когда преобладает низкотемпературная ферромагнитная фаза и отсутствует влияние ориентации подложки сапфира. Достигнутая температура Кюри T_C составила 330 К при $E \approx 7.4$ Дж/см² для пленок Mn_xSi_{1-x} , полученных на подложках сапфира *c*- и *r*-срезов. При этом намагниченность пленок Mn_xSi_{1-x} , полученных при $E \geq 6$ Дж/см² на сапфире *c*-среза, выше, чем на сапфире *r*-среза, и, наоборот, ниже, когда $E \leq 5.5$ Дж/см². В этих условиях наблюдается также изменение соотношения амплитуд диффузного сигнала в рентгеновских спектрах для пленок, выращенных на разных подложках. Такое коррелированное поведение с намагниченностью объясняется существованием нанокристаллитов ε -MnSi оптимального размера, которые, с одной стороны, обусловливают возникновение диффузного сигнала рентгеновских спектров, с другой, — определяют высокотемпературный ферромагнетизм пленок. Концентрация таких нанокристаллитов и характер распределения дефектов в пленках контролируются типом подложки и плотностью энергии на мишени.

DOI: 10.31857/S0044451020100132

1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитные полупроводниковые системы на основе элементарных полупроводников типа Si, в частности, тонкопленочные сплавы Mn_xSi_{1-x} , привлека-

* E-mail: ParshinaLiubov@mail.ru

тельны для создания элементов спинtronики, легко интегрируемых в существующую микроэлектронную технологию [1]. С точки зрения формирования однородных (без фазовой сегрегации) магнитных $Mn-Si$ -систем, наиболее перспективными представляются нестехиометрические сплавы Mn_xSi_{1-x} с составом, близким к моносилициду ε -MnSi, в которых при небольшом избытке Mn ($x \approx 0.52-0.55$) сравнительно недавно был обнаружен высокотемпературный ферромагнетизм (ФМ) с температурой Кюри T_C около 300 К [2, 3] (для ε -MnSi со структурой B20 $T_C \approx 30$ К).

Высокотемпературный ферромагнетизм объяснялся в работах [2, 3] формированием дефектов типа Si-вакансий с локализованными магнитными моментами (ЛММ) и их непрямым обменом через парамагнитные флуктуации спиновой плотности дырок по механизму [4]. Существование дефектов в сплавах Mn_xSi_{1-x} с ЛММ было подтверждено численными расчетами в рамках метода функционала электронной плотности. Оказалось, что при $x \approx 0.51-0.53$ средний магнитный момент на атом Mn в основном состоянии $m_{Mn} = (1.1-1.5)\mu_B$, что хорошо совпало с результатами эксперимента $m_{Mn} \approx 1.1\mu_B/Mn$ [2, 3] (для ε -MnSi $m_{Mn} \approx 0.4\mu_B$ [5]).

Позднее было обнаружено, что ферромагнетизм поликристаллических слоев Mn_xSi_{1-x} с одинаковым значением $x = 0.51-0.52$ и одинаковой кристаллической структурой типа B20 может сильно зависеть от размеров и формы кристаллитов [6-8]. В частности, в случае вытянутых кристаллитов с поперечным размером около 50 нм величина $T_C \approx 46$ К, тогда как в слоях с окружной формой кристаллитов при их малых размерах (около 5 нм) значение T_C может заметно превышать 300 К [6, 7]. Столь сильное влияние структурных особенностей пленок Mn_xSi_{1-x} на их ФМ-свойства объяснялось геттерированием Mn-дефектов (в частности, атомов Mn в междуузельном положении, где они являются «магнитомертвыми») на границах кристаллических зерен и, как следствие, сильным возрастанием величины ЛММ на этих границах. В работе [6] был развит подход [4] на случай формирования ЛММ на границах зерен и показано, что при малых размерах зерен, около 5 нм, в условиях, когда их радиус $r_0 \ll \zeta$, может реализовываться высокотемпературный ФМ с $T_C \sim 100-400$ К (здесь ζ — корреляционная длина ФМ).

Следует отметить, что при используемом в работах [6, 7] методе теневого импульсного лазерного осаждения (ИЛО) получаемые пленки являлись

сильно магнитонеоднородными и содержали как низкотемпературный, так и высокотемпературный ФМ-слои. При этом вопрос о возможности получения однородных магнитных пленок с высокими T_C остался открытым. Не ясен вопрос об оптимальном избытке Mn в поликристаллических слоях Mn_xSi_{1-x} и размерах кристаллитов для достижения максимальных значений T_C при магнитной однородности пленок Mn_xSi_{1-x} . Последнее представляется весьма важным, поскольку в условиях аморфизаций слоев Mn_xSi_{1-x} происходит подавление их ФМ [9].

Наконец, недавно нами были выполнены исследования ферромагнитного резонанса (ФМР) пленок Mn_xSi_{1-x} , которые позволили выявить необычный характер магнитной анизотропии — наличие существенной анизотропии второго порядка типа легкая плоскость и анизотропии четвертого порядка типа легкая ось, нормальная к пленке [10]. Существенно, что обнаруженные особенности анизотропии также объясняются поликристалличностью пленок и упругими деформациями, возникающими на границе с подложкой и на границах кристаллитов.

В свете отмеченных выше проблем дальнейшие исследования поликристаллических пленок Mn_xSi_{1-x} , нацеленные на достижение магнитной однородности данных систем при использовании метода ИЛО и детализацию механизма их ФМ-упорядочения, в том числе с использованием измерений ФМР, представляются, безусловно, интересными.

Изменение энергетического спектра эрозионного факела за счет изменения плотности энергии на мишени в методе ИЛО открывает перспективы гибкого управления свойствами выращиваемых пленок. Как и другие процессы, включающие фазовые переходы, все газовые методы осаждения имеют неравновесную природу. Поэтому свойства полученных пленок зависят от условий синтеза, ключевую роль в котором играет энергия осаждаемых частиц [11]. На основании проведенных нами предварительных исследований пленок Mn_xSi_{1-x} , полученных методом ИЛО, было экспериментально подтверждено влияние плотности энергии лазерного излучения E на мишени [12, 13], а также давления буферного газа в процессе роста [14] на ФМ-свойства осаждаемых пленок. Полученные данные указывали, что предпочтительным условием для формирования фазы высокотемпературного ферромагнетизма является использование высоких значений плотности энергии лазерного излучения на мишени [12, 13]. При этом, однако, не были изучены структурные особенности пленок, в частности, рентгеновскими методами, способные прояснить природу ферромагнетизма пле-

нок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$. До сих пор не проводилось исследований влияния ориентации подложки сапфира на магнитные свойства пленок, выращенных при различных плотностях энергии E . Рассогласование параметров кристаллической решетки пленки и подложки может сильно сказываться на свойствах выращиваемых методом ИЛО тонких пленок [6].

Целью настоящей работы является детальный анализ влияния плотности энергии лазерного излучения на мишени в методе ИЛО и ориентации подложки сапфира на структурные, электрические и ферромагнитные свойства пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ ($x \approx 0.5$) методом ФМР и рентгеноструктурного анализа.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Серия тонких пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ ($x \approx 0.5$) была получена методом ИЛО в бескамельном режиме [15] на подложках сапфира *c*- и *r*-срезов при аблации мишени излучением второй гармоники YAG:Nd³⁺-лазера ($\lambda = 0.532$ мкм). Напыление пленок проводилось в высоком вакууме ($\sim 10^{-7}$ Торр) из поликристаллической мишени MnSi чистотой 99.0 ат. % (FHR, Германия) при температуре подложки 320 °C. Между мишенью и подложкой сапфира (10×10 мм²), расположенными на расстоянии 70 мм, размещался механический сепаратор, пропускающий в процессе роста пленки быстро летящие атомы и ионы, и одновременно устраняющий попадание крупных капель на растущую пленку, наличие которых является главным фактором снижения качества получаемых пленок при ИЛО. Плотность энергии лазерного излучения E на мишени изменялась для разных образцов в диапазоне от 4.2 до 7.4 Дж/см². При этом пленки, полученные при $E \leq 4$ Дж/см², оказываются довольно неоднородными по толщине, тогда как при $E \geq 6$ Дж/см² содержание Mn слабо зависит от толщины и составляет около $x \approx 0.52$ [13]. Пороговое значение E при аблации мишени излучением второй гармоники YAG:Nd³⁺-лазера равно примерно 2.6 Дж/см². Толщины синтезированных пленок MnSi, измеренные с помощью оптического интерферометра МИИ-4 ($\lambda = 543$ нм), составляли 50–100 нм. Структурные характеристики пленок исследовались с помощью рентгеновского дифрактометра D2 Phaser ($\lambda = 0.1541$ нм) в широком диапазоне углов. Электрическое сопротивление пленок исследовалось в криостате замкнутого цикла CCS-150 в интервале температур от 10 К до 300 К.

Магнитные свойства изучались методом ФМР на частоте 17.3 ГГц в диапазоне температур 4–300 К в магнитном поле до 10 кЭ, приложенном в плоскости пленки [10].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Структурные особенности

Рентгеноструктурные исследования полученных пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ показали рентгеноаморфную структуру, связанную, вероятно, с нанокристалличностью пленок из-за значительного рассогласования параметров решетки MnSi и подложек сапфира *c*- и *r*-ориентаций. В случае *c*-сапфира поверхность подложки имеет гексагональную структуру; при этом нанокристаллам ε -MnSi с кубической симметрией (постоянная решетки $a = 4.56$ Å [5]) выгодно расти в направлении [111], при котором достигается рассогласование решеток в 9.5 % [6]. Однако структура поверхности *r*-сапфира близка к квадратной ($a = 4.756$ Å, $b = 5.127$ Å [16]), что делает предпочтительным рост ε -MnSi в направлении [100], при котором рассогласование решеток достигает 12.5 %.

Принципиальной особенностью нанокристаллических материалов типа $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ является чрезвычайно высокая плотность дефектов, связанных с нестехиометрией пленок ($N_d = 3.4 \cdot 10^{21}$ см⁻³ при $x \approx 0.52$) и наличием границ нанокристаллитов. При этом нанокристаллическое состояние вещества в отношении явления дифракции может проявлять коллективные свойства ансамбля частиц (дефектов) и приводить к появлению диффузного рассеяния рентгеновского излучения, не характерного для идеальных кристаллов или кристаллов с малой концентрацией дефектов [17, 18]. Наличие нанокристаллитов оптимального размеров в больших концентрациях должно приводить к увеличению диффузного рассеяния, а рост кристаллитов и уменьшение их концентрации, наоборот, к ослаблению рассеянного излучения. При уменьшении размеров кристаллитов и появлении дополнительной аморфизированной фазы также следует ожидать ослабление рассеянного излучения.

При всех исследуемых плотностях энергии лазерного излучения на мишени на рентгенограммах пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ наблюдается диффузный сигнал рассеяния, причем зависимость максимальной амплитуды сигнала от плотности энергии на мишени для пленок на сапфире *r*- и *c*-срезов различна (см. рис. 1). На рис. 1 видно, что при минимальной плотности энергии лазерного излучения на мишени ам-

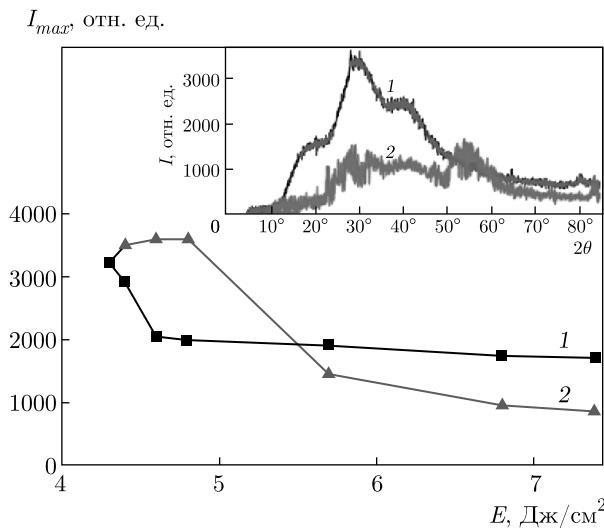


Рис. 1. Зависимость максимальной величины сигнала диффузного рассеяния рентгеновского излучения от плотности энергии лазера на мишени E для пленок Mn_xSi_{1-x} /сапфир: 1 — c -срез; 2 — r -срез. На вставке приведены рентгенограммы пленок в исследованном диапазоне углов 2θ от 43° до 70°

плитуды сигналов диффузного рассеяния от пленок Mn_xSi_{1-x} на подложках сапфира c - и r -срезов близки, но с увеличением E максимальная величина сигнала для пленок на сапфире c -среза вначале резко падает, тогда как для пленок на r -сапфире заметно возрастает. При энергиях $E > 4.8 \text{ Дж}/\text{см}^2$ величина диффузного рассеяния для пленок на обоих типах ориентации сапфира убывает, причем при $E > 5.5 \text{ Дж}/\text{см}^2$ амплитуда сигнала рассеяния от пленки на сапфире r -среза становится меньше, чем от пленки на сапфире c -среза.

Это может быть связано как с текстурированностью пленочных образцов $Mn_xSi_{1-x}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$ [6], так и с формированием в значительных концентрациях кристаллитов оптимальных размеров в сравнении с образцами $Mn_xSi_{1-x}/r\text{-Al}_2\text{O}_3$, в которых из-за большего рассогласования решеток и особенностей роста образуется дополнительная аморфизированная фаза Mn_xSi_{1-x} . Другим важным фактором может являться сегрегация дефектов (вакансий кремния и междуузельных атомов Mn) на границах кристаллитов для пленок $Mn_xSi_{1-x}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$ [6], что может имитировать в рентгенограммах дополнительное увеличение размеров кристаллитов (помимо текстурированности роста), а также способствовать в этом случае большему диффузному сигналу рассеяния (рис. 1, кривые 1 и 2).

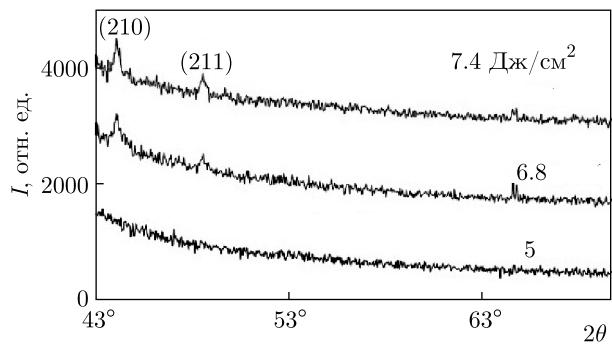


Рис. 2. Рентгенограммы пленок Mn_xSi_{1-x} , полученных на сапфире c -среза при разных E в диапазоне углов 2θ от 43° до 70°

Рентгенограммы пленок Mn_xSi_{1-x} на сапфире c -среза в зависимости от плотности энергии лазерного излучения на мишени представлены на рис. 2.

При $E \geq 6.8 \text{ Дж}/\text{см}^2$ на рентгенограммах пленок Mn_xSi_{1-x} на c -сапфире появляются рефлексы $\epsilon\text{-MnSi}$ (210) и (211) при углах 2θ соответственно 44.15° и 48.6° [6]. Причем для пленок Mn_xSi_{1-x} на сапфире r -среза такие рефлексы становятся заметными только при $E = 7.4 \text{ Дж}/\text{см}^2$. Более яркое проявление рефлексов на диффузных рентгенограммах в пленочных образцах $Mn_xSi_{1-x}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$ подтверждает наличие в них более крупных нанокристаллитов и/или их текстуры, чем в случае образцов $Mn_xSi_{1-x}/r\text{-Al}_2\text{O}_3$ с аморфизированной фазой.

Согласно данным по диффузному рассеянию (рис. 1), размеры кристаллитов в случае пленок $Mn_xSi_{1-x}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$ оказываются более оптимальными, чем для пленок $Mn_xSi_{1-x}/r\text{-Al}_2\text{O}_3$, при условии, что эти пленки выращены при энергиях $E \geq 6 \text{ Дж}/\text{см}^2$. Однако при $E \leq 5.5 \text{ Дж}/\text{см}^2$ ситуация изменяется на обратную — эффективные размеры кристаллитов оказываются более оптимальными для пленок Mn_xSi_{1-x} , выращенных на Al_2O_3 r -среза, чем для c -среза. Последнее, по-видимому, связано с ростом в этих условиях кристаллитов MnSi относительно больших размеров ($> 10 \text{ нм}$), при которых может и уменьшаться сигнал диффузного рассеяния, и ослабляться ферромагнетизм (см. ниже, а также работу [6]).

3.2. Температурная зависимость проводимости

Измерения температурной зависимости удельного электрического сопротивления ρ показали, что все пленки Mn_xSi_{1-x} , полученные при $E > 5.5 \text{ Дж}/\text{см}^2$, обладают металлическим типом

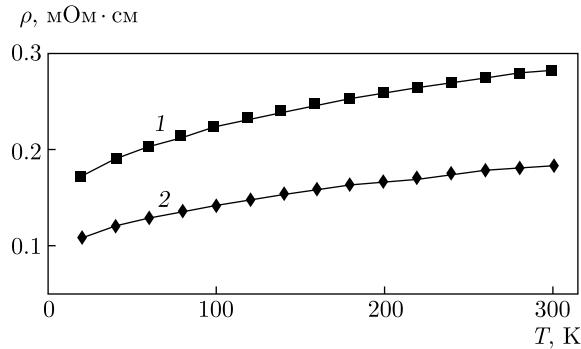


Рис. 3. Зависимость удельного сопротивления от температуры для пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, полученных на подложках сапфира r -среза (кривая 1) и c -среза (кривая 2) при $E = 7.4 \text{ Дж}/\text{см}^2$

проводимости в диапазоне температур 10–300 К. При этом пленки $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$ обладают меньшим удельным сопротивлением, чем пленки $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}/r\text{-Al}_2\text{O}_3$, в частности, в ≈ 1.5 раза при синтезе пленок при $E \approx 7.4 \text{ Дж}/\text{см}^2$ (рис. 3).

Различие в величине удельного сопротивления пленок, полученных на подложках сапфира c - и r -срезов, по-видимому, связано с особенностями протекания тока в поликристаллических пленках $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, ориентация и размер кристаллитов в которых могут различаться при синтезе на подложки сапфира различного среза. Существенную роль могут играть такие факторы, как нестехиометрия и размеры кристаллитов, которые при определенных размерах в силу подавления (предположительно) спин-поляронных резонансов могут приводить к сильному увеличению подвижности носителей заряда μ (почти десятикратном увеличению μ при $T \sim 100 \text{ K}$ по сравнению с $\varepsilon\text{-MnSi}$) [2, 6].

Пленки $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, полученные при $E < 5.5 \text{ Дж}/\text{см}^2$, демонстрируют относительно слабые температурные зависимости сопротивления, как с положительным, так и с отрицательным температурными коэффициентами сопротивления $d\rho/dT$.

3.3. Магнитные свойства

Магнитные свойства полученных пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$ исследовались методом ФМР. На рис. 4 приведены спектры ФМР в интервале температур 4.2–320 К для пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, выращенных при высокой и низкой плотностях энергии лазерного излучения на мишени ($E = 7.4$ и $E = 4.6 \text{ Дж}/\text{см}^2$) на подложках c - и r -сапфира.

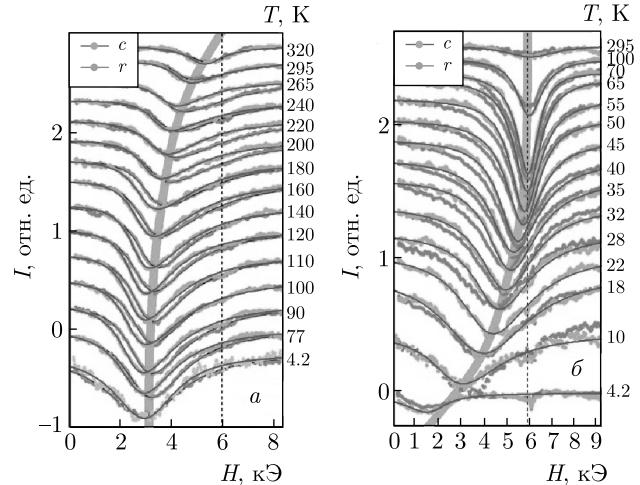


Рис. 4. Спектры ферромагнитного резонанса в интервале температур 4.2–320 К для пленок $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, выращенных при $E = 7.4 \text{ Дж}/\text{см}^2$ (а) и $4.6 \text{ Дж}/\text{см}^2$ (б) на подложках сапфира c - и r -срезов при $f = 17.3 \text{ ГГц}$ в поле, параллельном плоскости. Для наглядности жирная линия иллюстрирует температурное смещение максимума поглощения. Пунктирная линия соответствует расчетному полю парамагнитного резонанса

Во всем исследуемом интервале температур пленки $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, осажденные на подложках сапфира c - и r -срезов, демонстрируют одну линию поглощения, форма которой близка к лоренцевой. В случае высоких значений $E = 7.4 \text{ Дж}/\text{см}^2$ (рис. 4а) сигнал от пленки $\text{Mn}_x\text{Si}_{1-x}$, выращенной на сапфире r -среза, несколько уширен и смещен в сторону высоких полей по сравнению с образцом, подготовленным на сапфире c -среза. На качественном уровне такое поведение свидетельствует о некоторой редукции намагниченности и более высокой степени магнитной неоднородности пленки, осажденной на сапфире r -среза. При измерениях ФМР в случае низких значений $E = 4.6 \text{ Дж}/\text{см}^2$ (рис. 4б) существенных отличий линии ФМР для пленок, выращенных на разных подложках, не наблюдается.

Для количественной оценки намагниченности образцов мы использовали формулу Киттеля, которая связывает поле ферромагнитного резонанса H_{res} с величиной эффективного поля размагничивания пленок $4\pi M_{eff}$:

$$\omega^2/\gamma^2 = H_{res}(H_{res} + 4\pi M_{eff}), \quad (1)$$

где ω — частота возбуждения резонанса, а γ — гиromагнитное отношение (для сплавов MnSi , согласно [10], $\gamma/2\pi \approx 3.0 \text{ ГГц}/\text{кЭ}$). Рисунок 5 демонстрирует

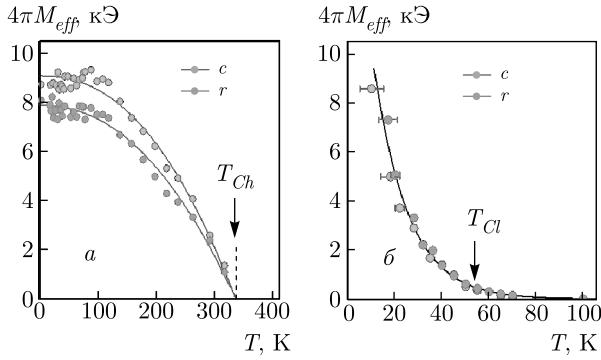


Рис. 5. Температурные зависимости эффективного поля размагничивания $4\pi M_{eff}$ для пленок Mn_xSi_{1-x} , осажденных на подложки сапфира *c*- и *r*-резцов при $E = 7.4$ Дж/см² (а) и $E = 4.6$ Дж/см² (б)

результатирующие температурные зависимости величины $4\pi M_{eff}$, полученные для пленок, осажденных на подложках сапфира *c*- и *r*-резцов при $E = 7.4$ Дж/см² и $E = 4.6$ Дж/см².

Видно, что при больших значениях $E = 7.4$ Дж/см² образцы на обеих подложках показывают одинаково высокую температуру Кюри $T_{Ch} \sim 330$ К. При этом величина $4\pi M_{eff}$ пленки $Mn_xSi_{1-x}/c\text{-Al}_2\text{O}_3$, превышает во всем температурном интервале $4\pi M_{eff}$ для пленки $Mn_xSi_{1-x}/r\text{-Al}_2\text{O}_3$ (рис. 5а). Напротив, для образцов Mn_xSi_{1-x} , выращенных на разных подложках при малых $E = 4.6$ Дж/см², кривые $4\pi M_{eff}(T)$ совпадают и демонстрируют низкую температуру Кюри $T_{Cl} \sim 50$ К (рис. 5б).

Отметим также существенное различие формы кривых $4\pi M_{eff}(T)$ для пленок, полученных при $E = 7.4$ Дж/см² и $E = 4.6$ Дж/см². В первом случае поведение $4\pi M_{eff}(T)$ хорошо описывается упрощенной функцией Бриллюэна $\sim 1 - (T/T_{Ch})^n$, где $n \sim 2$ (сплошные линии на рис. 5а), что характерно для однородной высокотемпературной ФМ-фазы. Во втором случае наблюдается экспоненциальное убывание $4\pi M_{eff}$ с температурой (сплошная линия на рис. 5б), что можно связать с существенной неоднородностью низкотемпературной ФМ-фазы.

Пленки, синтезированные при промежуточных значениях E (4.6 Дж/см² $< E < 7.4$ Дж/см²), демонстрируют сложные зависимости $4\pi M_{eff}(T)$, которые свидетельствуют о присутствии в образцах как высокотемпературной, так и низкотемпературной ФМ-фаз (рис. 6). В данном случае экспериментальные кривые $4\pi M_{eff}(T)$ можно описать суммой упрощенной функции Бриллюэна и экспоненциальной зависимости при низких температурах (заштри-

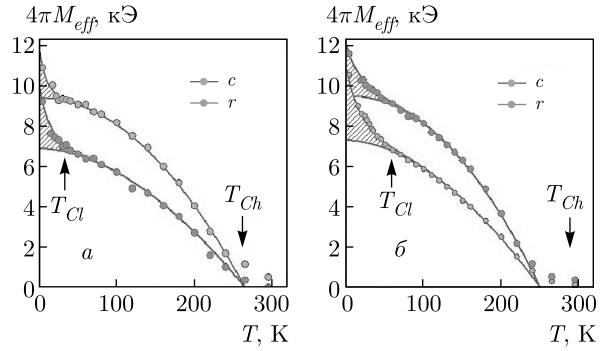


Рис. 6. Температурные зависимости эффективного поля размагничивания $4\pi M_{eff}$ для пленок, осажденных на подложки сапфира *c*- и *r*-резцов при $E = 6.8$ Дж/см² (а) и $E = 5.0$ Дж/см² (б). Стрелками показаны характерные температуры Кюри для высокотемпературной (T_{Ch}) и низкотемпературной (T_{Cl}) ФМ-фаз

хованная область на рис. 6). Отметим, что температура Кюри высокотемпературной фазы, $T_{Ch} \sim 250$ К, в этом случае меньше по сравнению с температурой Кюри для пленки, выращенной при максимальной энергии $E = 7.4$ Дж/см². При этом по-прежнему наблюдается различие величины $4\pi M_{eff}$ для образцов, полученных на разных подложках. Интересно, что при снижении плотности энергии лазерного излучения на мишени с 7.4 Дж/см² до 5.5 Дж/см² сохраняется тенденция большей намагниченности для пленок на сапфире *c*-резца (рис. 6а), однако при $E \leq 5.5$ Дж/см² большей намагниченностью начинают обладать пленки на сапфире *r*-резца (рис. 6б).

Напомним, что в окрестности $E = 5.5$ Дж/см² наблюдается также изменение соотношения амплитуд диффузного сигнала в рентгеновских спектрах для пленок, выращенных на разных подложках (рис. 1). Это свидетельствует об определенной корреляции магнитных и рентгеноструктурных особенностей изучаемых образцов. Более высокие значения $4\pi M_{eff}$ наблюдаются для пленок, демонстрирующих большую амплитуду диффузного сигнала в рентгеновских спектрах. Это указывает на более интенсивный рост в таких образцах нанокристаллитов оптимальных размеров, которые, по-видимому, и определяют возникновение высокотемпературного ферромагнетизма исследуемых пленок. Вместе с тем, другим важным фактором, влияющим на ферромагнетизм пленок, является характер распределения в них локальных дефектов, в частности, «магнитомертвых» примесей внедрения Mn, подавляющих ФМ. Для образцов, приготовленных при

низких энергиях E , характерно, по-видимому, более однородное распределение таких дефектов внутри кристаллитов, что приводит к подавлению высокотемпературного ферромагнетизма. При высоких E рост подвижности осаждаемых атомов Mn, по-видимому, способствует некоторому укрупнению нанокристаллитов и сегрегации дефектов на их границах. В этом случае наблюдается уменьшение диффузного сигнала рентгеновских спектров, проявление более интенсивных рефлексов ε -MnSi и повышение T_C пленок.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом ИЛО в бескальпельном режиме получены тонкие пленки Mn_xSi_{1-x} ($x \approx 0.5$) на подложках сапфира c - и r -срезов. Исследовано влияние плотности энергии лазерного излучения E на мишени и ориентации подложки сапфира на структурные, электрические и ферромагнитные свойства полученных пленок. Установлено, что для подложек обоих типов большие значения $E \geq 6$ Дж/см² способствуют образованию ферромагнитной фазы с высокой температурой Кюри $T_C \approx 330$ К, в то время как при низких значениях $E = 4\text{--}5$ Дж/см², температура Кюри оказывается заметно ниже. При высоких значениях E , когда проявляется существенный вклад высокотемпературной ферромагнитной фазы, величина эффективного поля размагничивания $4\pi M_{eff}$ для пленок на сапфире r -среза оказывается меньше, чем для пленок на сапфире c -среза, что может быть связано с наличием в этом случае аморфизирующей фазы, подавляющей намагниченность. Более высокие значения намагниченности пленок Mn_xSi_{1-x} , полученных при $E \geq 6$ Дж/см² на сапфире c -среза, чем на сапфире r -среза, хорошо коррелируют с данными по диффузному рассеянию рентгеновского излучения. Для таких пленок сигнал диффузного рассеяния больше, что указывает на большие значения концентрации нанокристаллитов оптимальных размеров. Ситуация, однако, изменяется при энергиях аблляции $E \leq 5.5$ Дж/см². В этом случае в пленках Mn_xSi_{1-x}/c -сапфир происходит формирование кристаллитов ε -MnSi относительно больших размеров (> 10 нм), что приводит к подавлению намагниченности. Между тем, для пленок Mn_xSi_{1-x}/r -сапфир содержание аморфизированной фазы в этих условиях уменьшается, а концентрация кристаллитов оптимальных размеров увеличивается, что приводит к большим значениям как намагниченности, так и сигнала диффузного

рассеяния рентгеновского излучения по сравнению с пленками Mn_xSi_{1-x}/c -сапфир.

Другим важным фактором, влияющим на ферромагнетизм пленок, является характер распределения в них локальных дефектов, в частности, «магнитомертвых» примесей внедрения Mn, подавляющих ферромагнетизм [6]. При высоких E рост подвижности осаждаемых атомов Mn способствует сегрегации дефектов на межкристаллитных границах, в результате чего качество кристаллитов растет, происходит уменьшение диффузного сигнала рентгеновских спектров, появление более интенсивных рефлексов ε -MnSi и повышение T_C пленок.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» и ФИРЭ РАН в части «лазерного синтеза пленочных структур Mn_xSi_{1-x} ($x \approx 0.5$)/сапфир с использованием прецизионных теневых масок», Российского фонда фундаментальных исследований (гранты №№ 17-07-00615, 18-07-00772, 18-07-00729, 19-29-03032, 19-07-00471, 19-07-00738) в части «исследования электрических и структурных свойств пленочных структур», а также в рамках Программы фундаментальных исследований Президиума РАН «Актуальные проблемы физики низких температур» в части низкотемпературных исследований ФМР-пленок.

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Zhou and H. Schmidt, Materials **3**, 5054 (2010).
2. В. В. Рыльков, С. Н. Николаев, К. Ю. Черноглазов и др., Письма в ЖЭТФ **96**, 272 (2012).
3. V. V. Rylkov, E. A. Gan'shina, O. A. Novodvorskii et al., Europhys. Lett. **103**, 57014 (2013).
4. V. N. Men'shov, V. V. Tugushev, S. Caprara et al., Phys. Rev. B **83**, 035201 (2011).
5. С. М. Стишов, А. Е. Петрова, УФН **81**, 1157 (2011).
6. S. N. Nikolaev, A. S. Semisalova, V. V. Rylkov et al., AIP Advances **6**, 015020 (2016).
7. К. Ю. Черноглазов, С. Н. Николаев, В. В. Рыльков и др., Письма в ЖЭТФ **103**, 539 (2016).
8. B. A. Aronzon, A. B. Davydov, A. L. Vasiliev et al., J. Phys.: Condens. Matter **29**, 055802 (2017).

9. A. Yang, K. Zhang, S. Yan et al., J. Alloys Comp. **623**, 438 (2015).
10. A. B. Drovosekov, N. M. Kreines, A. O. Savitsky et al., J. Magn. Magn. Mater. **429**, 305 (2017).
11. L. S. Parshina, O. D. Khramova, O. A. Novodvorsky et al., Semiconductors **51**, 407 (2017).
12. P. Pandey, A. B. Drovosekov, Y. Wang et al., J. Magn. Magn. Mater. **459**, 206 (2018).
13. А. Б. Дровосеков, А. О. Савицкий, Н. М. Крейнес и др., ФТТ **60**, 2147 (2018).
14. О. А. Новодворский, В. А. Михалевский, Д. С. Гусев и др., ФТП **52**, 1313 (2018).
15. L. S. Parshina, O. A. Novodvorsky, O. D. Khramova et al., Opt. Quant. Electron. **48**, 316 (2016).
16. J. M. Chauveau, P. Vennéguš, M. Laügt et al., J. Appl. Phys. **104**, 073535 (2008).
17. С. В. Цыбуля, С. В. Черепанова *Введение в структурный анализ нанокристаллов*, НГУ, Новосибирск (2008).
18. В. И. Иверонова, Г. П. Ревкевич, *Теория рассеяния рентгеновских лучей*, МГУ, Москва (1978).