

ФЕРРОМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В МНОГОСЛОЙНЫХ И КОМПОЗИТНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ

С.А. Вызулин¹, А.В. Горобинский¹, Е.В. Лебедева², Н.Е. Сырцев²

¹ Кубанский государственный университет, alexvg@bmail.ru

² Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, nss@phys.msu.ru

В работе рассмотрен ферромагнитный резонанс в многослойных и композитных наноструктурах $\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_m + (Al_2O_3)_{100-m}]_x + [\alpha-Si]_y\}_z$. Изучалось влияние размерных параметров: толщины магнитных слоев (x) и немагнитных прослоек (y), количества бислоев (z), концентрации магнитной фазы (m) на спектры ФМР. Исследовалось влияние температуры и типа магнитного упорядочения на спектры ФМР композитных систем $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_m + (Al_2O_3)_{100-m}$.

Заметный рост интереса к изучению композитных магнитных структур начался около 25 лет назад и был связан с существенным прогрессом в технологии их получения. Композитные магнитные системы перспективны для использования в различных областях техники и технологии. Их свойства обладают большим разнообразием и значительно отличаются от свойств массивного материала. Такие эффекты как гигантское магнитосопротивление, антипараллельное упорядочение соседних ферромагнитных слоев, а также возможность получать структуры с требуемой величиной и знаком межслойного обмена позволяют создавать на основе композитных магнитных структур компактные датчики магнитного поля, ячейки энергонезависимой памяти для вычислительной техники, магнитные вентили и т.д.

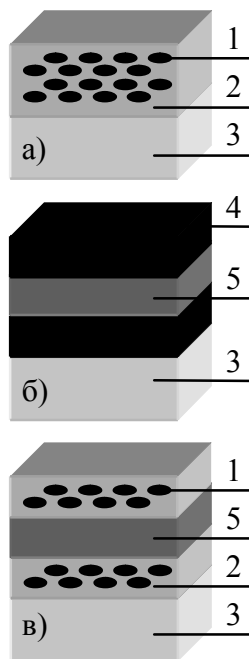


Рис. 1. Типы магнитоупорядоченных структур.

Можно выделить три основных типа пленочных магнитоупорядоченных наноструктур (Рис. 1):

а) гранулированные нанокompозиты с магнитными наногранулами (1), внедренными в немагнитную матрицу (2), расположенную на подложке (3);

б) многослойные системы, состоящие из наноразмерных чередующихся магнитных слоев (4) и немагнитных прослоек (5), нанесенных на подложку (3);

в) комбинированные многослойные системы, состоящие из наноразмерных чередующихся магнитных слоев и немагнитных прослоек (5), расположенных на подложке (3); магнитные слои в таких системах представляют собой гранулированные нанокompозиты, состоящие из магнитных наногранул (1), внедренных в немагнитную матрицу (2).

Свойства материалов с низкоразмерными магнитными включениями исследуются достаточно давно. Они зависят от многих факторов: химического состава, методов синтеза, размера и формы магнитных включений, взаимодействия частиц с соседними частицами и окружающей их матрицей. Показано, что в зависимости от содержания магнитной компоненты магнитная система может находиться в суперпарамагнитном, суперферромагнитном или ферромагнитном состояниях. Переход от суперпарамагнитного состояния в ферромагнитное происходит при некотором значении концентрации магнитной фазы, называемым порогом перколяции. Многие фундаментальные вопросы, относящиеся к области нанокластеров и нанокластерных систем, остаются недостаточно изученными. В частности, не совсем ясны механизмы межкластерных взаимодействий и взаимодействий кластера с матрицей. Влияние температуры на условия реализации перколяционного перехода также остается недостаточно изученным.

Целью настоящей работы является изучение влияния размерных параметров: концентрации магнитных гранул, толщин магнитных слоев и немагнитных прослоек, количества слоев на спектры ФМР; а также влияние типа магнитного упорядочения и температуры образцов на спектры ФМР в окрестности перколяционного перехода.

Целью настоящей работы является изучение влияния размерных параметров: концентрации магнитных гранул, толщин магнитных слоев и немагнитных прослоек, количества слоев на спектры ФМР; а также влияние типа магнитного упорядочения и температуры образцов на спектры ФМР в окрестности перколяционного перехода.

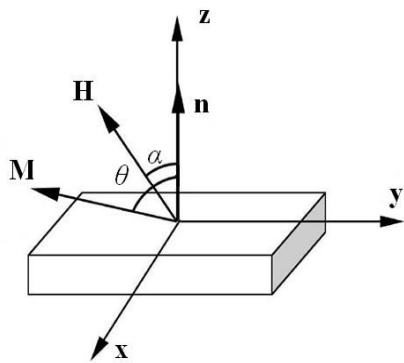


Рис. 2. Положение образца по отношению к внешнему магнитному полю.

Спектры ФМР регистрировались при помощи ЭПР спектрометра JEOL FA-300 на частоте 9.13 ГГц с использованием обычной модуляционной техники (записывались производные сигналов поглощения). Измерения проводились при разной ориентации постоянного магнитного поля **H** – от параллельной относительно плоскости пленки ($\alpha=90^\circ$, α – угол между внешним магнитным полем **H** и нормалью к поверхности образца **n**) до перпендикулярной ($\alpha=0$) (Рис 2). Для всех типов колебаний определялись значения резонансных полей $H_{рез}$ и ширины линий поглощения ΔH .

Исследованы 5 серий образцов.

1. Мультислойные структуры, состоящие из магнитных слоев $Co_{45}Fe_{45}Zr_{10}$ и полупроводниковых прослоек из аморфного α -Si ($m=100$ ат.%; $1.23 < x < 1.94$ нм; $0.23 < y < 2.76$ нм; $z=6$).

2. Мультислойные структуры аналогичные по составу серии 1 с $1.5 < x < 2.3$ нм; $0.57 < y < 4.97$ нм; $z=40$.

3. Мультислойные структуры аналогичные по составу серии 1 с $1.98 < x < 2.99$ нм; $0.57 < y < 4.97$ нм; $z=40$.

4. Комбинированные системы, состоящие из магнитных слоев, выполненных в виде гранулированных нанокмозитов с магнитными гранулами $Co_{45}Fe_{45}Zr_{10}$ размером $2 \div 7$ нм, внедренными в диэлектрическую матрицу Al_2O_3 и немагнитных прослоек из аморфного α -Si ($z=40$, $1.6 < x < 2.3$ нм, $0.6 < y < 5.7$ нм). Параметр m был порядка 46 ат. %, что выше перколяционного значения ($m_p \approx 45$ ат. %) наблюдаемого в гранулированных системах.

5. Нанокмозиты, состоящие из наноразмерных аморфных кластеров $Co_{45}Fe_{45}Zr_{10}$ размером $2 \div 7$ нм, внедренных в диэлектрическую аморфную матрицу Al_2O_3 . Концентрация гранул m менялась от 31 до 64 %.

Спектры при разных значениях толщины магнитного слоя x для образцов серии 1 ($x=1,95$ нм), 2 ($x=2,1$ нм), 3 ($x=2,8$ нм) но, при одинаковой толщине немагнитной прослойки ($y=1,98$ нм) приведены на рисунке 3 (а) – для случая $\alpha=90^\circ$, б) для $\alpha=0$). Цифры на графиках обозначают номер серии.

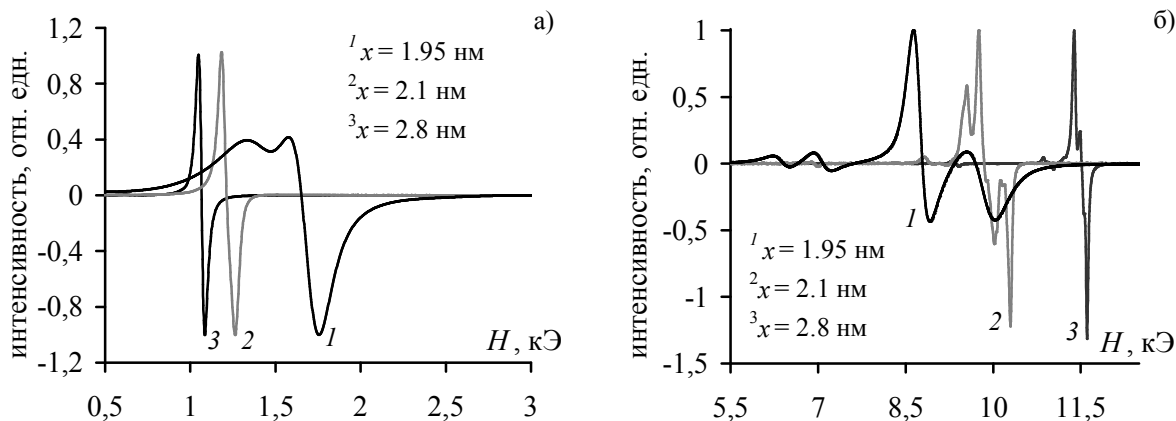


Рис. 3. Спектры ФМР образцов серии 1, 2, 3 с $y=1,99$ нм, при $\alpha=90^\circ$ (а), $\alpha=0$ (б)

Видно, что при $\alpha=90^\circ$ уменьшение толщины магнитного слоя приводит к увеличению значения резонансного поля $H_{рез}$. В данных спектрах заметно влияние количества слоев в образцах. Для серий 2 и 3 с 40 слоями увеличение x на 0,7 нм приводит к уменьшению $H_{рез}$ на 160 Э. Для серий 1 и 2 с 6 и 40 слоями, соответственно, увеличение x всего на 0,15 нм приводит к умень-

шению $H_{рез}$ на 420 Э. Кроме того, в спектре образца серии 1 наблюдается уширение и деформация формы линии поглощения, по сравнению с образцами серий 2 и 3.

При нормальном подмагничивании с увеличением толщины магнитного слоя наблюдается рост резонансного поля. Спектр шестислойного образца отличается более широкими линиями поглощения: для серии 1 $\Delta H \approx 300$ Э, для серии 2 – $\Delta H < 100$ Э, для серии 3 – $\Delta H \approx 100$ Э.

Спектры при разных значениях толщины немагнитной прослойки y для образцов серии 1 ($y=1,99$ нм), 2 ($y=1,99$ нм), 3 ($y=0,7$ нм) но, при одинаковой толщине магнитного слоя ($x \approx 1,98$ нм) приведены на рисунке 4 (а) – для случая $\alpha=90^\circ$, б) для $\alpha=0$).

При $\alpha=90^\circ$ с ростом толщины немагнитной прослойки наблюдается рост $H_{рез}$. Образцы серий 1 и 2 имеют одинаковые значения толщины немагнитной прослойки, но величины $H_{рез}$ для шестислойного образца больше чем для образца с 40 слоями на ~ 600 Э. Рост y приводит к уширению линий поглощения: при $y=0,7$ нм $\Delta H=70$ Э, при $y=1,99$ нм $\Delta H=90$ Э. Как и в случае с фиксированным y , спектр шестислойных образцов имеет более широкие линии поглощения: $\Delta H=90$ Э для серий 3; $\Delta H \approx 180$ Э для серии 1.

В случае нормального подмагничивания рост толщины немагнитной прослойки приводит к уменьшению значения $H_{рез}$. Образец с шестью слоями (серия 1) имеет $H_{рез}$ меньше чем $H_{рез}$ образца с 40 слоями (серия 2) и тем же значением y . Так же как и при $\alpha=90^\circ$ рост y приводит к увеличению ΔH .

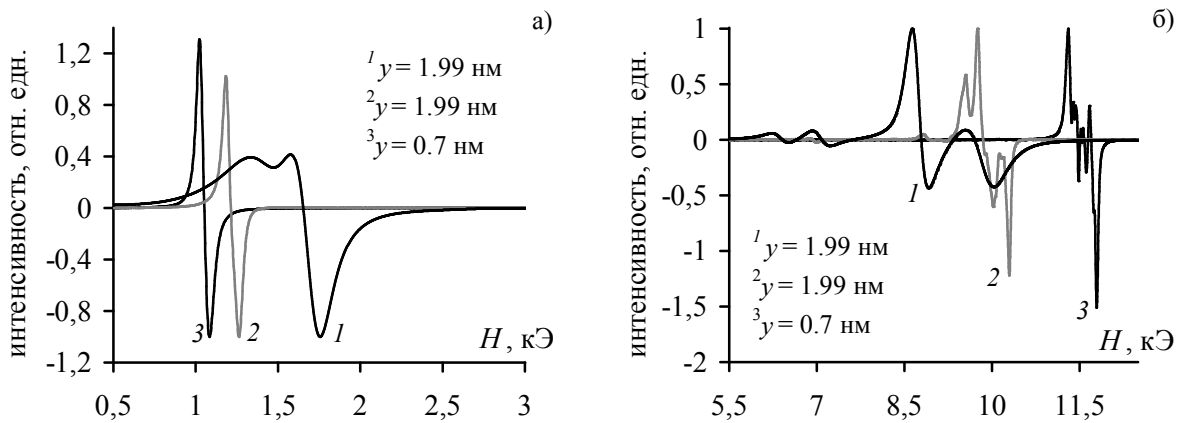


Рис. 4. Спектры ФМР образцов серии 1, 2, 3 с $x \approx 1,98$ нм, при $\alpha=90^\circ$ (а), $\alpha=0$ (б)

На рисунке 5 приведены спектры ФМР для образцов серии 2 ($x=2,0$ нм; $y=1,4$ нм) и серии 4 ($x=2,0$ нм; $y=1,4$ нм). Спектры приведены при касательном ($\alpha=90^\circ$) и нормальном ($\alpha=0$) подмагничивании. Цифры на графике обозначают номер серии.

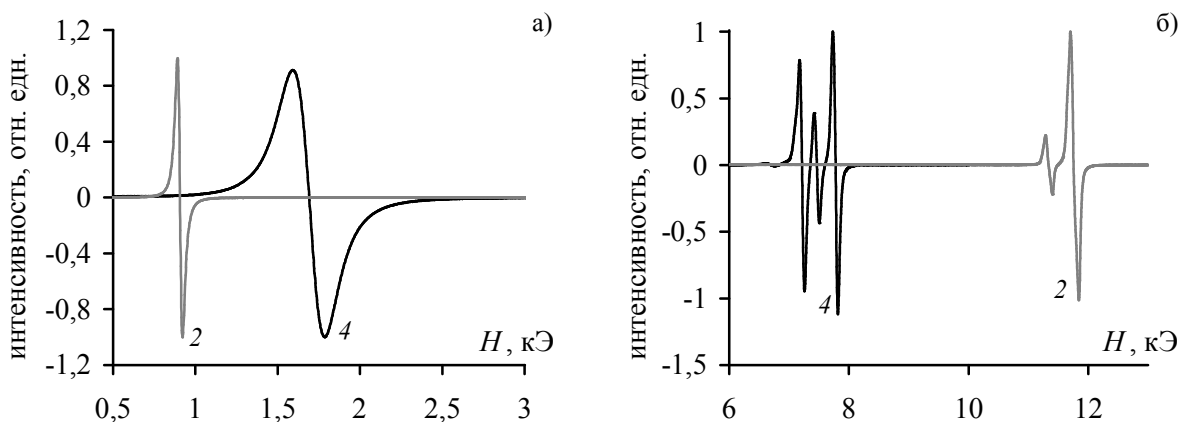


Рис. 5. Спектры ФМР образцов серии 2, 4 с $y \approx 1,4$ нм, при $\alpha=90^\circ$ (а), $\alpha=0$ (б)

В случае касательного подмагничивания при одинаковых толщинах магнитных и немагнитных слоев (серия 2 и 4) спектр образцов серии 4 с композитными слоями характеризуется более высокими значениями $H_{рез}$, чем образцы со сплошными магнитными слоями. Спектр образцов серии 4 имеет более широкие линии поглощения: $\Delta H \approx 30$ Э для серий 2; $\Delta H \approx 190$ Э для серии 4. Количество слоев в данных образцах одинаково, поэтому различия в спектрах можно объяснить только различием структуры магнитных слоев.

При нормальном подмагничивании спектры образцов серии 4 имеют меньшие значения $H_{рез}$, чем у образцов серии 2. Ширины линий поглощения существенно не различаются и составляют примерно 120 Э.

На рисунке 6 показаны спектры образцов серии 4 с $m \approx 46$ ат. %, $x \approx 2,22$ нм, $y \approx 3,36$ нм и серии 5 с $m \approx 45$ ат. % при $\alpha = 90^\circ$ (а), $\alpha = 0$ (б). Видно, что спектр композитов существенно отличается от спектра комбинированных структур.

При $\alpha = 90^\circ$ спектр комбинированной структуры состоит из четырех линий поглощения шириной порядка 150 Э. Спектр образца серии 5 состоит из одной широкой ($\Delta H \approx 400$ Э) линии поглощения. Спектр образцов серии 4 характеризуется более высокими значениями $H_{рез}$, чем образцы серии 5.

При $\alpha = 0$ спектр комбинированной структуры состоит из семи линий поглощения, ширины линий не превышают 200 Э. Значения $H_{рез}$ находятся в пределах от 4,5 до 9,5 кЭ. Спектр композита состоит из 10 линий поглощения, ширина линий поглощения порядка 150 Э. Значения $H_{рез}$ находятся в пределах от 10 до 12 кЭ. Так как концентрация гранул в данных образцах примерно одинакова, то отличия в спектрах связаны с разным типом магнитного упорядочивания.

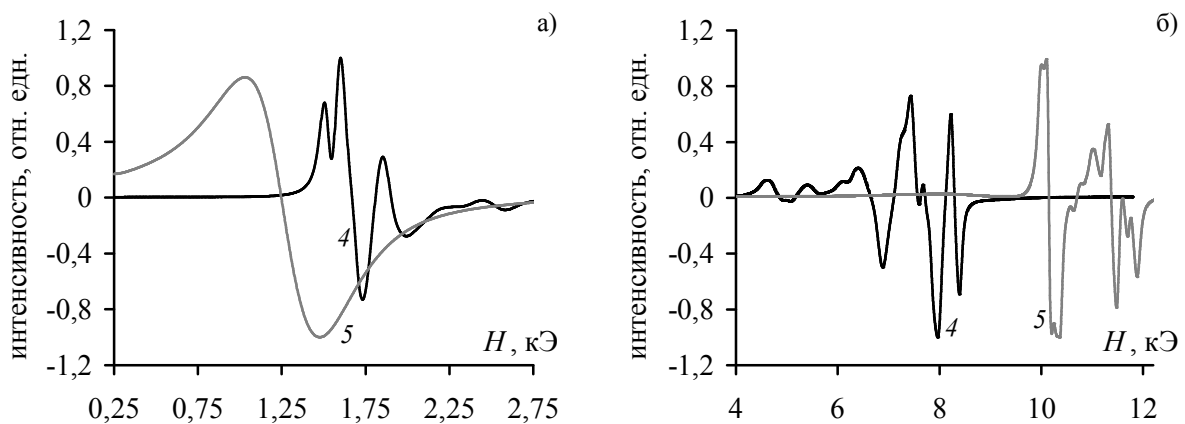


Рис. 6. Спектры ФМР образцов серии 4 с $x \approx 2,22$ нм, $y \approx 3,36$ нм; серии 5 с $m \approx 45$ % при $\alpha = 90^\circ$ (а), $\alpha = 0$ (б)

Для серии 5 проводилось так же исследование влияния температуры (T) на спектры ФМР. При температурах 140, 300 и 470 К измерялись угловые зависимости $H_{рез}$ и ΔH . Установлено, что вид зависимости $H_{рез}(\alpha)$ одинаков для всех температур. Влияние температуры на спектры ФМР исследовалось в интервале значений T от 470 до 140 К с шагом 10 К при $\alpha = 90^\circ$ и $\alpha = 0$. Установлено, что при касательной ориентации магнитного поля с уменьшением температуры наблюдается уменьшение $H_{рез}$. Для нормального подмагничивания с уменьшением температуры $H_{рез}$ увеличивается. С изменением температуры возможно изменение и количественного состава спектра. Появление новых пиков поглощения чаще регистрировалось с уменьшением температуры. Однако, в ряде случаев, при высокой температуре (более 370 К) наблюдалось возникновение широкой линии поглощения, нерегистрируемой ранее при более низкой температуре. Изменение температуры приводит к изменению эффективной намагниченности.

Изотермические концентрационные зависимости ширины линий поглощения в окрестности $m \approx 45$ % существенно изменяются – происходит скачок ΔH . Вариации температуры не приводят к качественному изменению хода кривых $\Delta H(m)$. С понижением температуры величина скачка ширины линий поглощения в области $m \approx 45\%$ уменьшается. На основании этих данных можно

сделать вывод, что влияние температуры на условия реализации порога перколяции в нанокompозитах $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_m (Al_2O_3)_{100-m}$ незначительно.

В ходе работы нами был произведен расчет резонансных полей для композитных структур. Для расчета использовалась модель эффективной среды в приближении усредненной по объему намагниченности. Из выражения для плотности размагничивающей энергии пластины в приближении сфероидальных гранул (в плоскости пластины) и из условий минимума энергии были найдены формулы для расчета резонансных полей. При $\alpha=90^\circ$ резонансное поле определяется из выражения:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_0 \{H_0 + fM \{(1-f)(N_z - N_y) + 4\pi\}\}, \quad (1)$$

а при $\alpha=0$

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_0 - fM \{(1-f)(N_z - N_y) + 4\pi\}, \quad (2)$$

где f – фактор объемного заполнения гранул в матрице ($0 \leq f \leq 1$), γ – гиромагнитное отношение, ω – частота, N_z, N_y – размагничивающие факторы сфероидальных гранул вдоль оси z и в плоскости пластины соответственно.

Полученные по формулам (1) и (2) теоретические значения $H_{рез}$ хорошо согласуются с эмпирическими данными. На рисунке 7 представлена экспериментальная зависимость $H_{рез}(m)$ и результаты теоретического расчета. Маркерами обозначены опытные данные при $\alpha=90^\circ$ и при $\alpha=0$. Соответствующие теоретические результаты обозначены сплошными кривыми.

Проведенные исследования позволили выявить влияние на спектры ФМР размерных параметров и типа магнитного упорядочивания.

Уменьшение доли ферромагнитных включений до некоторого значения приводит к существенному изменению зависимости $\Delta H(m)$ для основной моды, что может быть интерпретировано как перколяционный переход. Анализ зависимости позволяет определить окрестность значений концентрации, в которой наблюдается структурная перестройка материала.

Установлено, что в многослойных образцах увеличение толщины магнитного слоя при неизменной толщине немагнитной прослойки приводит к уменьшению значений $H_{рез}$ при $\alpha=90^\circ$ и увеличению $H_{рез}$ при $\alpha=0$. Увеличение толщины магнитного слоя приводит к уменьшению ширины линий поглощения как при $\alpha=90^\circ$ так и при $\alpha=0$.

Уменьшения количества слоев при неизменной их толщине приводит к уменьшению значений $H_{рез}$ при $\alpha=90^\circ$ и увеличению $H_{рез}$ при $\alpha=0$, а так же к увеличению ΔH при $\alpha=90^\circ$ и $\alpha=0$.

Замена сплошного магнитного слоя композитом с концентрацией гранул около 46 ат. % приводит к уменьшению значений $H_{рез}$ при $\alpha=90^\circ$ и увеличению $H_{рез}$ при $\alpha=0$, а так же к увеличению ΔH при $\alpha=90^\circ$ и $\alpha=0$.

Спектр композитных материалов и спектр комбинированных структур с примерно одинаковой концентрацией гранул существенно различается. Композитные материалы при $\alpha=0$ характеризуются более высокими значениями резонансных полей.

Для композитных материалов в рамках классического подхода эффективной среды получены соотношения, позволяющие оценить значения резонансных полей в зависимости от объемной концентрации магнитной фазы. Теоретические значения резонансных полей хорошо согласуются с опытными данными.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 08-03-99042-р_офи).

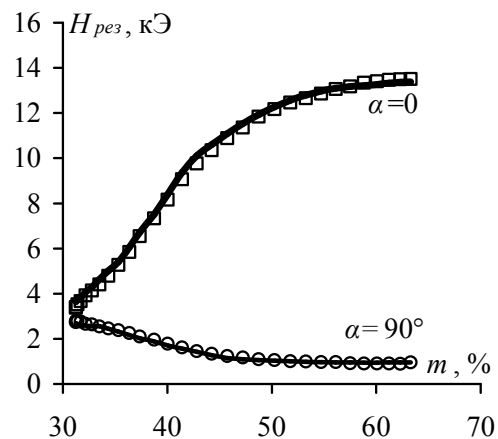


Рис.7. Зависимость $H_{рез}(m)$ при $\alpha=90^\circ$ и $\alpha=0$. Маркерами обозначены опытные данные, сплошными кривыми – результаты теоретического расчета.