

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ОБРАЗОВАНИЯ
РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
«СИБИРСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
НАУКИ ИНСТИТУТ ФИЗИКИ ИМ.Л.В. КИРЕНСКОГО
СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ РАН

На правах рукописи



КОБЯКОВ АЛЕКСАНДР ВАСИЛЬЕВИЧ

**СИНТЕЗ И ФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТРЕХСЛОЙНЫХ ПЛЕНОК В
СИСТЕМЕ Co-Ge**

Специальность 01.04.11 – физика магнитных явлений

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор физ. – мат. наук,
профессор Патрин Г.С.

Красноярск – 2016

Работа выполнена в федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Сибирский федеральный университет» (СФУ) и в федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук (ИФ СО РАН).

Научный руководитель:

Патрин Геннадий Семенович, доктор физико-математических наук, профессор, директор Института инженерной физики и радиоэлектроники СФУ.

Официальные оппоненты:

Курляндская Галина Владимировна, доктор физико-математических наук, профессор-исследователь Уральского федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Уральский федеральный университет» имени А. М. Горького.

Логинов Юрий Юрьевич, доктор физико-математических наук, профессор, проректор по научной и инновационной деятельности Сибирского государственного аэрокосмического университета

Ведущая организация:

Научно-исследовательский Институт физики федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Южный федеральный университет».

Защита состоится «_____» июня 2016 года в 14 часов 30 минут на заседании диссертационного совета Д 003.055.02 при ФГБУН Институте физики им. Л.В. Киренского СО РАН по адресу: 660036, Красноярск, Академгородок, 50, строение 38.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФГБУН Институте физики им. Л.В. Киренского СО РАН и на сайте <http://kirensky.ru>.

Автореферат разослан 13 апреля 2016г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
доктор физ.-мат. наук



А.Н. Втюрин

Общая характеристика работы

Актуальность темы. Пленки в системе ферромагнитный металл – полупроводник представляют в последние годы заметный интерес. В таких структурах появляется возможность управления ее магнитными и резистивными свойствами путем подбора полупроводникового материала, способов упаковки и толщины магнитных и немагнитных слоев.

Как известно, обменная связь между магнитными слоями зависит от вероятности переноса поляризованных электронов через немагнитную прослойку и от величины их взаимодействия с ферромагнитными слоями. Таким образом, ясно, что концентрация электронов проводимости в немагнитном слое и степень их поляризации будут здесь определяющими факторами. В случае полупроводника концентрация носителей тока зависит от многих параметров, например, температуры, оптического излучения, легирующих примесей и т.п. Это в свою очередь означает, что и характер межслоевого обменного взаимодействия будет зависеть от внешних воздействий.

Все это дает веские основания ожидать богатого разнообразия сценариев магнитного поведения в многослойных магнитных пленках системы «переходной металл-полупроводник» и появления эффектов перспективных для применения в устройствах спинтроники. К настоящему времени, в пленках с полупроводниковой прослойкой обнаружены: температурно-зависимый межслоевой обмен, необычное поведение межслоевого взаимодействия в зависимости от толщины немагнитной и магнитной прослоек, гигантское магнитосопротивление.

Для пленок системы ферромагнитный металл – полупроводник существует сильная зависимость свойств от особенностей технологии получения. Например [1-4], при получении многослойных пленок $(\text{Fe}/\text{Si})_n$ в зависимости от температуры подложки может реализоваться либо ферро-, либо антиферромагнитное межслоевое взаимодействие. Поэтому проблема отработки технологии получения качественных пленок с заданными свойствами и исследование физических свойств во взаимосвязи с технологическими условиями представляется актуальной задачей.

В данной работе в качестве объектов исследования выбраны трехслойные магнитные пленки $\text{Co}/\text{Ge}/\text{Co}$ с немагнитной полупроводниковой прослойкой из германия, а кобальт выбран в силу высокой степени поляризации электронов проводимости.

Целью работы является отработка технологии получения магнитных пленок Co/Ge/Co и исследование особенностей магнитной структуры в зависимости от технологических условий. Экспериментальное исследование структурных, магнитных и резонансных свойств полученных пленок и изучение механизмов, ответственных за формирование магнитных свойств и межслоевых взаимодействий.

Для достижения этой цели, решаются следующие **задачи**:

- синтез трехслойных магнитных пленок Co/Ge/Co с различной толщиной немагнитного слоя германия, при разных скоростях осаждения слоев и температурах подложки;
- проведение паспортизации полученных образцов методами рентгеноспектрального флуоресцентного анализа и электронной микроскопии. Установление взаимосвязи шероховатости пленок и скорости их напыления методом атомно-силовой спектроскопии. Исследование соотношения магнитных фаз в зависимости от толщины полупроводниковой прослойки по 2^x импульсной методике спин-эхо ЯМР;
- изучение условий формирования фаз германидов кобальта в пленочном состоянии в зависимости от условий отжига;
- исследование магнитопольевых и температурных зависимостей магнитостатических и магниторезонансных характеристик с целью изучения межслоевых взаимодействий.

Научная новизна работы заключается в следующем:

- методом магнетронного напыления отработана технология получения наноразмерных многослойных магнитных пленок в системе Co-Ge с контролируемым соотношением кубической (fcc) и гексагональной (hcp) фаз кобальта;
- обнаружено необычное терромагнитное поведение намагниченности, когда в малых магнитных полях при определенной температуре T_{TM} резко возрастает намагниченность. На основе модифицированной модели Стонера-Вольфорта, когда, гранулы гексагонального кобальта, растворены в матрице кубического кобальта и связаны с ней обменом, рассчитаны особенности температурного поведения намагниченности;
- методом электронного магнитного резонанса (ЭМР) определены параметры межслоевых взаимодействий в зависимости от температуры и толщины немагнитной полупроводниковой прослойки. Установлено, что

параметры имеют антиферромагнитный знак взаимодействия для всех пленок;

Теоретическая значимость работы определяется тем, что для описания гранулярных двухфазных в магнитном отношении систем расширена и применена модель Стонера-Вольфорта. Модифицированная модель пригодна для ситуации, когда в изотропной матрице, описываемой в континуальном приближении, растворены сильно анизотропные гранулы другого материала. Также получено экспериментальное обоснование модели, когда реализуется необычная ситуация, а именно, в многослойной структуре в зависимости от толщины немагнитной прослойки межслоевой обмен не носит знакопеременный характер и имеет исключительно антиферромагнитный знак.

Научная и практическая ценность. Научная ценность диссертации заключается в создании новых пленочных материалов в системе *ферромагнитный металл-полупроводник*, с возможностью управления магнитным фазовым составом. Также обнаружены новые эффекты в поведении намагниченности и спиновой динамики. Практическая значимость работы следует из того, что полученные научные результаты могут иметь прикладную направленность и быть пригодными при разработке спинтронных устройств.

Достоверность результатов обеспечивается применением современных методов исследований и высокоточного экспериментального оборудования. Использование разных методов паспортизации структур дает надежные данные об исследуемых образцах.

Кроме того, достоверность результатов подтверждается тем, что экспериментальные данные, полученные разными методами, совпадают. Также наблюдается удовлетворительное согласие эксперимента с теоретическими расчетами.

Положения, выносимые на защиту:

1. Разработка технологии получения тонких магнитных пленок Co/Ge/Co.
2. Результаты исследования структуры и состава тонких магнитных пленок Co/Ge/Co методами атомно-силовой микроскопии, рентгеновской, электронно-микроскопической и ЯМР-спектроскопии.

3. Результаты исследований магнитных статических свойств и данных электронного магнитного резонанса магнитных пленок Co/Ge/Co.
4. Результаты теоретического моделирования температурных и полевых зависимостей намагниченности пленок Co/Ge/Co.

Апробация работы. Основные результаты работы были представлены на следующих конференциях и симпозиумах:

- Международном симпозиуме «Упорядочение в минералах и сплавах» (ОМА) (Ростов-на-Дону-пос. Лоо, 2007, 2009, 2014).
- Moscow International Symposium on Magnetism (MISM) (Russia, Moscow, 2008, 2011, 2014);
- Международной конференции “Trends in Nanomechanics and nanoengineering”. (Russia, Krasnoyarsk, 2009);
- International Symposium «Spin Waves» (Russia, Saint Petersburg, 2009);
- Euro-Asian Symposium «Trends in magnetism». (EASTMAG). (Russia, Ekaterinburg, 2010; Vladivostok, 2013);
- Международной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах» (НМММ) (Москва, 2009);

Личный вклад автора диссертации состоит в том, что он принимал участие в постановке задачи. Он лично отработывал технологию получения и синтезировал тонкие магнитные пленки Co/Ge/Co. Проводил измерения и обрабатывал результаты, полученные на СКВИД-магнитометре и атомно-силовом микроскопе. Также проводил обработку спектров магнитного резонанса (ЯМР, ЭМР).

Публикации. По материалам диссертационной работы опубликовано 13 работ: 4 статьи в рецензируемых научных изданиях, рекомендованных ВАК, и 9 публикаций в материалах международных и всероссийских конференций.

Работа выполнена в рамках следующих программ и проектов:

- Программа фундаментальных научных исследований государственных академий наук, проект № П.7.2.3, рег. номер 01201001339;
- Проект Президиума РАН № 24.33;
- Партнерский интеграционный проект ИФ СО РАН-СФУ № 102
- Гранты РФФИ № 11-02-00675-а, 14-02-00238-а.

Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы. Объем диссертации составляет ~ 112 страниц, включая 51 рисунок и 4 таблицы. Список литературы содержит 100 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ

Во введении обоснована актуальность темы исследования. Кратко описано состояние проблемы на текущий момент. Показаны: научная новизна и практическая значимость результатов исследований.

Первая глава содержит краткий обзор литературных источников по тематике диссертации: многослойные магнитные пленки с немагнитной прослойкой из полупроводниковых материалов. Во-первых, рассмотрены системы с прослойкой из однокомпонентного полупроводника (на примере магнитных пленок $(\text{Fe}/\text{Si})_n$, $(\text{Fe}/\text{Ge})_n$, $(\text{Co}/\text{Si})_n$ и на других образцах) [1-4]. Во-вторых, системы с прослойкой из двухкомпонентных полупроводников ($[(\text{ZnTe})_x/(\text{MnTe})_y]$, EuS/PbS и другие). В-третьих, системы с редкоземельными слоями $(\text{Co}/\text{Si}/\text{Gd}/\text{Si})$. Описаны магнитные и электрические исследования пленок в зависимости от технологий их получения, толщин магнитных и немагнитных слоев, температуры образцов и др. Рассмотрены вопросы формирования структуры межслойных интерфейсов. Кроме того, рассмотрен вопрос применения систем *переходный металл/полупроводник*. В конце первой главы сформулирована цель работы и поставлены задачи.

Вторая глава посвящена описанию оборудования для синтеза магнитных пленок $\text{Co}/\text{Ge}/\text{Co}$ и методикам исследований структурных, магнитных и резонансных свойств магнитных пленок. Для измерений были использованы установки:

- Атомный силовой микроскоп Veeco MultiMode NanoScope IIIa SPM System для контроля качества поверхности пленок (разрешение ~ 0.3 нм, Размер области сканирования 100x100 мкм);
- Рентгеновская аппаратура для определения толщины слоев и состава пленок;
- Электронный микроскоп для определения структуры пленок и фазового состава слоев (ПРЭМ-200);
- ЯМР-спектрометр 2^x -импульсного спин-эхо для определения магнитного состояния кобальта (длительность импульса 0.1-1.0 мкс,

расстояние между импульсами 4 – 5 мкс чувствительность $10^{14} - 10^{15}$ спинов);

- СКВИД-магнетометр MPMS XL для измерения магнитных параметров (чувствительность – 10^{-8} э.м.е., температура $T=2 - 400$ К, диапазон магнитных полей $H=0 - 50$ кЭ);
- ЭПР-спектрометр «Bruker E 500 CW EPR», действующий на частоте $\omega_{MWF} = 9.2$ GHz.

Третья глава посвящена технологии синтеза тонких магнитных пленок Co/Ge/Co. Описаны оригинальные узлы, а именно, разработанная система заслонок, процесс приготовления подложки и непосредственно процесс напыления образцов. Установлено, что магнитная структура образцов зависит как от скорости напыления слоев, так и от температуры подложки.

Толщины магнитных слоев t_{Co} выбиралась из соображений, во-первых, чтобы при неконтролируемых изменениях толщины магнитного слоя намагниченность кобальтового слоя была стабильной и, во-вторых, чтобы зеемановское взаимодействие было по возможности малым и не затушевывало межслоевое взаимодействие (см. рисунок 1).

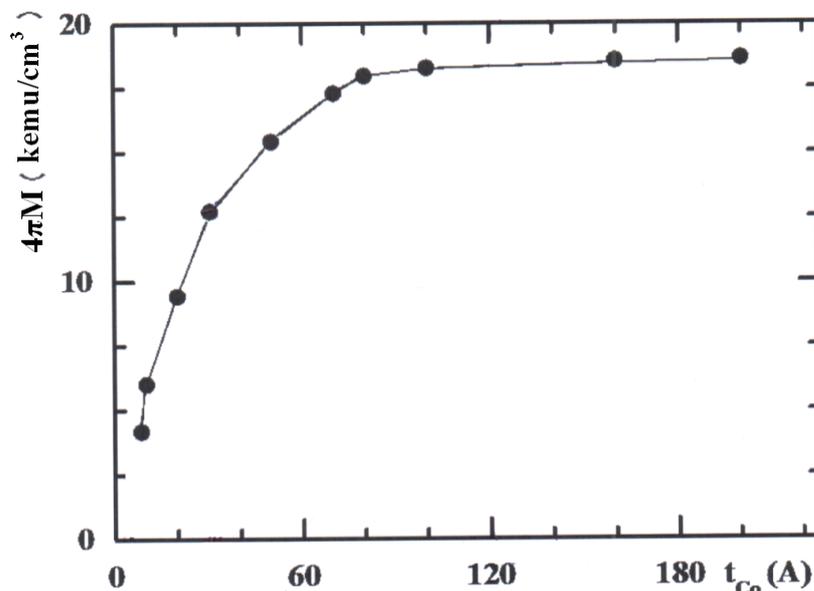


Рисунок 1. Зависимость намагниченности пленки кобальта от её толщины.

Были изготовлены несколько серий образцов, однако основное внимание было сосредоточено на следующих:

Серия I — $t_{Co} = 13 \pm 0.3$ нм, толщина германия переменная, для кобальта скорость составляла 9 нм/мин, а для германия около 7.2 ± 1.2 нм/мин.

Серия II — $t_{Co} = 15.0 \pm 0.3$ нм, а толщина германия переменная, для кобальта скорость составляла 0.9 нм/мин, а для германия около 0.72 ± 0.12 нм/мин.

В четвертой главе описаны результаты структурных и магнитных исследований. Глава состоит из шести разделов:

А) Электронная микроскопия.

В случае пленок I^{го} типа получено, что микродифракции от разных областей полностью идентичны, как по набору дифракционных рефлексов, так и по их интенсивностям. Из электронно-микроскопических данных, подробно представленных в работе [5], установлено, что каждый слой кобальта представляют собой смесь кубической и гексагональной фаз. Такой вывод делается на основании сосуществования рефлексов присущих, каждой из этих фаз. Причем микроанализ показал, что гексагональная фаза находится в гранулярном состоянии с размерами менее 100А. Германий, во всех пленках с различной толщиной, находится в кубической фазе или есть смесь аморфных и кубических состояний для пленок малых толщин (≤ 2.5 нм). Из детального анализа, полученных рефлексов следует, что присутствие каких-либо фаз германидов не обнаружено.

В случае пленок II^{го} типа кобальтовый слой представляет собой преимущественно полный набор рефлексов, характерный для (hcp) фазы кобальта со структурой $R\bar{6}_3/mmc$, с очень мелкими размерами кристаллитов (об этом чуть ниже) и ситуация пограничная с рентгеноаморфной, либо кубической в зависимости от условий напыления. Для германиевого слоя четко идентифицируется кубическая α -фаза со структурой $Fm\bar{3}m$ (параметр решетки $a = 5.6576 \text{ \AA}$).

Б) Образование фаз германидов кобальта.

С целью выяснения условий появления фаз германидов мы провели целенаправленное исследование в зависимости от режимов отжига. Получение соединений кобальта и германия было осуществлено методом твердофазной реакции.

Исходные Ge/fcc-Co(001) и Ge/hcp-Co(110) плёночные структуры изготавливались методом термического испарения на монокристаллическую MgO(001) подложку. В экспериментах использовались образцы с атомным отношением, близким к 3Ge:2Co. Толщина слоя каждого материала была в

пределах 50÷100 нм. Для предотвращения твёрдофазной реакции между Ge и Co пленка Ge осаждалась при комнатной температуре. Полученные образцы отжигались в вакууме через 25° С в течение 20 минут от 100° С до 350° С. Для идентификации образующихся фаз проводились рентгеноструктурные измерения. Рентгеноспектральный флуоресцентный метод использовался для определения химического состава и толщины плёнок.

Сильное и единственное дифракционное отражение (002)_{fcc-Co} подтверждает формирование эпитаксиального fcc-Co(001) слоя. Лёгкие оси намагничивания плёнки fcc-Co совпадали с направлениями [110] и [1-10] подложки MgO(001), что указывает на существование ориентационных соотношений [100](001)_{fcc-Co}||[100] (001) MgO при эпитаксиальном росте кубического кобальта на поверхности MgO(001). Эти два фактора показывают кристаллическое совершенство исходных fcc-Co(001) слоёв, полученных в данных технологических условиях.

Эпитаксия Co на поверхности MgO(001) радикально меняется, если осаждение проводится при температурах ~ (370-400)°С. Дифракционные отражения этих образцов показывают, что hcp-Co кристаллиты плоскостью (110) растут на (001) поверхности MgO (рис. 2а).

Дифрактограммы после отжига образцов при температуре 300° С имеют рефлексы, принадлежащие CoGe₂ и Co₅Ge₇ фазам. Слабый пик (222) Co₅Ge₇ после отжига при 350° С исчезает, что предполагает уменьшение содержания Co₅Ge₇ фазы в продуктах реакции. Только рефлексы, принадлежащие CoGe₂ фазе, остаются при температуре отжига 350° С.

Из дифракционных пиков, используя формулу Шеррера, были определены средние размеры Co₅Ge₇ и CoGe₂ кристаллитов. Для Ge/fcc-Co(001) и для Ge/hcp-Co(110) образцов размер кристаллитов был в диапазоне 17÷30 нм.

Низкоэнергетические различия полиморфных fcc-Co и hcp-Co модификаций кобальта не изменяют температуры инициирования и фазовую последовательность. Данные эксперименты свидетельствуют, что в используемой нами технологии получения многослойных пленок Co/Ge/Co фаз германидов кобальта не образуется.

В) Атомная силовая микроскопия

На рисунке 3 приведены снимки верхней поверхности слоя кобальта сразу после напыления для пленок обоих типов. Видно, что в зависимости от скорости напыления шероховатость, а соответственно и размеры гранул, существенно различаются. В случае пленок I^{го} типа размеры

неоднородностей примерно на 1 – 2 порядка больше, чем для пленок P^{Co} типа.

Для пленок P^{Co} типа подтвердилось, что при малых скоростях осаждения слоя неоднородности, состоят из мелких гранул.

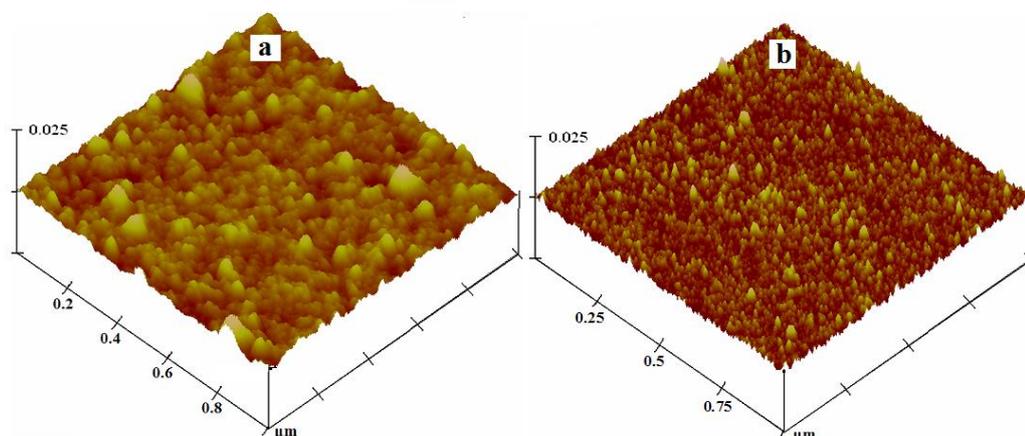


Рисунок 3 Атомно-силовая микроскопия пленок Co/Ge/Co. **a** – высокая скорость осаждения (серия I), **b** – малая скорость осаждения (серия II)

Г) ЯМР данные

Наши ЯМР исследования показали, что спектр ЯМР синтезированных пленок серия I представляет собой сложную несимметричную линию, которую можно рассматривать как суперпозицию линий лоренцевского типа. Как известно, каждая фаза кобальта имеет свой индивидуальный спектр ЯМР. Так, в зависимости от условий синтеза и структурных особенностей, фаза fcc имеет линию в диапазоне $\omega_{\text{HF}} = 210 \div 213$ МГц, фаза hcp – в диапазоне $\omega_{\text{HF}} = 215 \div 217$ МГц, а аморфная фаза имеет поглощение при частотах $\omega_{\text{HF}} < 210$ МГц. Исходя из таких частотных интервалов, мы разложили экспериментально наблюдаемые кривые ЯМР на составляющие, и результаты подгонки представлены на рисунке 4. Спектр fcc-фазы - кривая 1, спектр hcp-фазы - кривая 2.

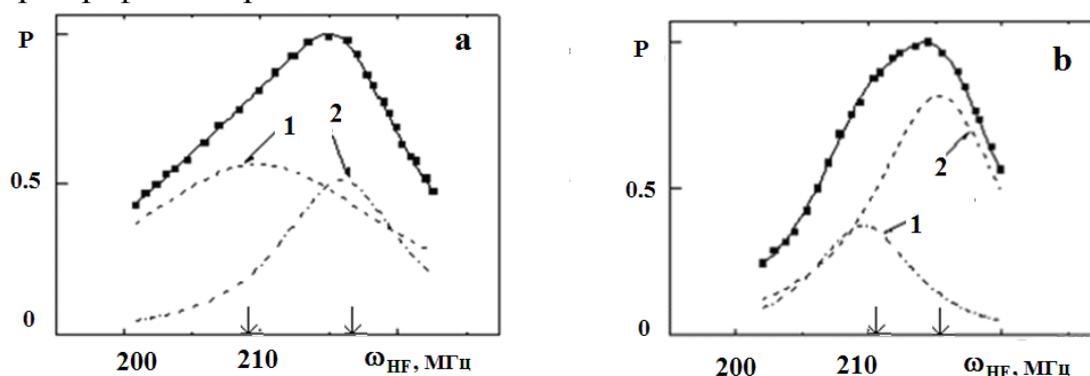


Рисунок 4. ЯМР спектры пленок Co/Ge/Co. $t_{\text{Ge}} = 7.5$ нм, **a** - $t_{\text{Co}}=13.0$ нм, **b** – $t_{\text{Co}}=15.0$ нм, Точки – эксперимент, линии – результат подгонки.

ЯМР эксперименты подтверждают выводы электронно-микроскопических исследований о наличии нескольких магнитных фаз в пленках I^{Γ^0} типа. При малых толщинах кобальта и германия в пленках преобладают неравновесные фазы. Для кобальта таковыми являются аморфная и кубическая фазы, для германиевой пленки – аморфная. При увеличении толщины слоев начинают преобладать равновесные фазы, для кобальта таковой является гексагональная фаза, а для германиевой пленки – кубическая. Эта закономерность наблюдается и в случае более толстых пленок.

Для пленок II^{Γ^0} типа наблюдается либо hcp фаза, либо fcc фаза (в зависимости от условий напыления), немного смещенная в область низких частот.

Д) Магнитные свойства

На рисунке 5 приведены температурные зависимости намагниченности ($M(T)$) пленок с $t_{Co} = 13$ нм и $t_{Ge} = 2.5$ нм, измеренные в разных магнитных полях. Все зависимости были получены в режиме ZFC. Видно, что для всех исследованных толщин немагнитной прослойки температурные зависимости намагниченности пленок носят термоактивационный характер. В малых магнитных полях существует температура (T_{TM}), ниже которой намагниченность близка к нулю. И только при превышении некоторой температуры, зависящей от поля измерения, начинается заметный рост намагниченности. Намагниченность выходит на уровень, соответствующий величине намагниченности на полевой зависимости для данного значения магнитного поля.

Петли намагничивания пленок с разной толщиной также зависят от толщины германиевой прослойки, так при $t_{Ge} = 2.5$ нм поле насыщения $H_s \sim 400$ Э, а в случае больших толщин, $t_{Ge} = 5.8$ нм, насыщение достигается в полях ~ 1600 Э. Эти данные указывают на изменение содержания фаз кобальта при изменении толщины германия.

Для пленок серии II, при изменении температуры поведение намагниченности подчиняется закону « $T^{3/2}$ », а полевая зависимость соответствует поведению материала кобальта.

Для всех пленок обеих серий величина насыщения намагниченности единицы площади имеет одно и то же значение ($\sim 2 \times 10^{-2}$ emu/cm²).

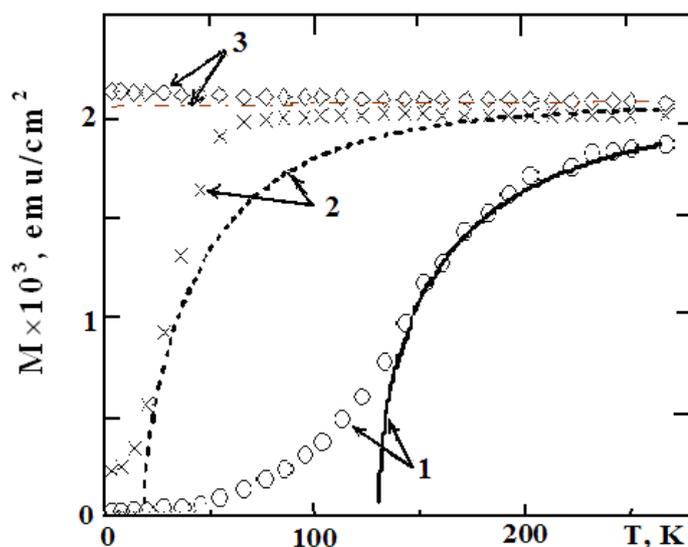


Рисунок 5. Температурные зависимости намагниченности пленки Co/Ge/Co. $t_{Co} = 13.0$ нм, $t_{Ge} = 2.5$ нм. 1 - $H = 50$ Э, 2 - $H = 200$ Э, 3 - $H = 800$ Э.

Е) Модельное описание магнитного поведения системы

Как следует из данных ЯМР для пленки серии I с $t_{Ge} = 2.5$ нм, доля гексагонального кобальта является небольшой ($< 10\%$) и поэтому эту фазу можно рассматривать в примесном пределе и считать, что гранулы между собой не взаимодействуют. Для такой ситуации предложена модель, когда в изотропной матрице распределены сильно анизотропные частицы, которые связаны с матрицей обменным взаимодействием. По-сути это является модифицированной моделью Стонера-Вольфорта [6].

На рисунке 6 представлена модель структуры пленки магнитного слоя. Направление внешнего магнитного поля выбрано в качестве Z-оси.

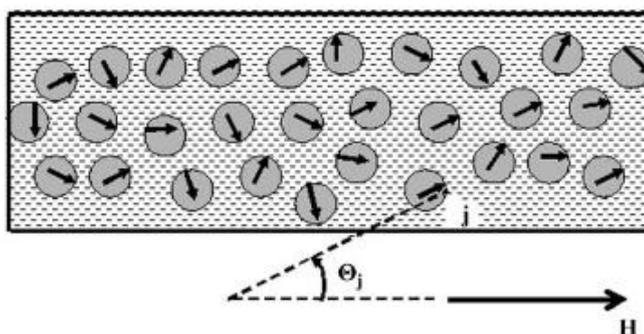


Рисунок 6. Эскиз мезоструктуры магнитного слоя сильно анизотропных гранул (сферы со стрелочками внутри) во внешнем магнитном поле и ориентация осей анизотропии частиц.

В рамках этой модели энергия пленочной системы имеет вид:

$$E = -H \cdot \sum_j \mu_j \cdot \cos \alpha_j - \sum_j D_j \cdot \cos^2(\theta_j - \alpha_j) - \lambda \cdot M_0 \cdot \sum_j \mu_j \cdot \cos(\varphi - \alpha_j) - t \cdot M_0 \cdot H \cdot \cos \varphi \quad (1)$$

где $M_0 = M_0(H)$ – намагниченность в данном магнитном поле, φ – угол, определяющий направление намагниченности,

α_j – угол между магнитным моментом гранулы и внешним полем,
 $\mu_j = \mu_j(H, T)$ – магнитный момент гранулы,
 λ – константа обменного взаимодействия между гранулой и матрицей,
 D_j – константа магнитной анизотропии гранулы,
 t – эффективная толщина магнитного слоя.

Энергия магнитной кристаллографической анизотропии гексагонального кобальта выше, чем у кубического кобальта. Тогда в малых магнитных полях имеем $D_j \gg \{H \cdot \mu_j, \lambda \cdot M \cdot \mu_j\}$, и частицы можно рассматривать как квази-изинговские. В результате получаем выражение для намагниченности:

$$M = 2 \cdot t \cdot M_s \cdot \sqrt{1 - \left(\frac{q \cdot m(T) \cdot \langle \sin \varphi(T, H) \rangle}{(1 - q) \cdot M_0(H)} \right)^2} \quad (2)$$

$$\text{где } \langle \sin \varphi(T, H) \rangle = \frac{1}{\mu_0(T)} \cdot \int_0^{\pi/2} \mu(T, H, \theta) \cdot \sin^2 \theta \cdot d\theta$$

и интегрирование осуществляется на верхней полусфере [7]:

$$\mu_0(T) = m(T) \cdot \frac{4 \cdot \pi}{3} \cdot r^3, \quad q - \text{доля гексагонального кобальта, } r - \text{радиус}$$

гранулы.

Как видно из [8], для реализации конкретных расчетов необходимо знать: долю гексагональной фазы q , радиус зерна r , постоянную обменного взаимодействия λ между зерном и матрицей, зависимость намагниченности материалов зерна $m(T)$ и матрицы $M_0(H)$.

Этот подход был использован для анализа магнитного поведения пленки.

Для $t_{Co} = 13$ нм и $t_{Ge} = 2.5$ нм все параметры кроме r и λ взяты из экспериментальных данных. Значение $q = 0,12$ взято из наших ЯМР экспериментов. Намагниченность матрицы M_s найдена из экспериментальных данных, а r и λ являются подгоночными параметрами.

Результаты численного расчета в сравнении с экспериментальными зависимостями приведены на рисунке 5. (сплошные кривые). Получено, что $\lambda = 0.1$ и $r = 1.91$ нм и, как можно было ожидать $\lambda > 0$. Видно, что наблюдается неплохое согласие эксперимента и теории, за исключением «хвостов» в переходной области температур. Но это связано с грубостью использованного приближения молекулярного поля, где не учитываются неоднородности магнитной структуры.

В случае пленок с большими толщинами прослойки такой хорошей подгонки не получается. В этом случае мы выходим за рамки примесного приближения и, по-видимому, необходимо учитывать образование

конгломератов из гранул гексагонального кобальта за счет слипания гранул и принимать во внимание обменное взаимодействие между гранулами. Наличие ненулевой намагниченности при температурах ниже T_b можно объяснить неравномерным распределением намагниченности в силу неравномерного распределения зерен в объеме пленки и их разбросом по размерам.

Результаты, полученные для пленок серии II, описываются в рамках стандартного подхода, и никаких новых представлений для объяснения привлекать не требуется. Как видно из электронно-микроскопических исследований, структура пленки является столь мелкозернистой, что ее можно рассматривать как сплошную среду. При изменении температуры поведение намагниченности починается закону « $T^{3/2}$ », а полевая зависимость соответствует поведению материала кобальта.

Пятая глава содержит изложение магниторезонансных исследований и определение межслоевых взаимодействий. Получить детальную правильную информацию о межслоевых взаимодействиях в многослойных пленках путем одних только магнитных квазистатических измерений не представляется возможным, поскольку эффекты двухфазности затушевывают все детали особенно при температурах $T < T_{TM}$. Применение метода электронного магнитного резонанса (ЭМР) позволяет решить эту проблему. В процессах магнитной динамики каждая магнитная подсистема имеет собственную частоту колебаний, которые являются чувствительными к изменениям внутренних магнитных полей. В случае пленок Co/Ge/Co с немагнитной германиевой прослойкой спектр электронного магнитного резонанса, при разных температурах, имеет необычный вид (рисунок 7).

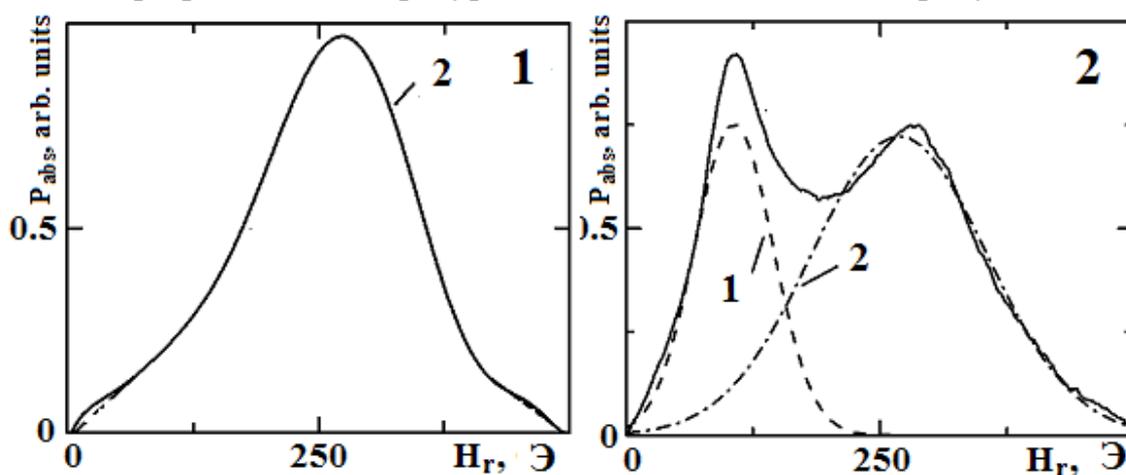


Рисунок 7. Спектры электронного магнитного резонанса для пленки Co/Ge/Co с $t_{Co} = 13$ нм и $t_{Ge} = 9$ нм. 1, 2– $T = 120, 340$ К.

Исследования проводились при температурах $T > T_{TM}$, когда в малых полях появляется отличная от нуля намагниченность пленок. При малых температурах изначально спектр представляет собой одиночную линию поглощения (рисунок 7, часть 1), а при более высоких температурах он становится сложным (рисунок 7, часть 2). Наблюдаемый спектр хорошо аппроксимируется суперпозицией двух линий лоренцевского типа. Поскольку температурное поведение намагниченности пленок Co/Ge/Co было представлено выше, то намагниченность каждого магнитного слоя в дальнейшем можно считать установленной.

Обращает на себя внимание наличия высокополевой линии во всей области температур, где проводились измерения (линия 2) и тот факт, что линия 1 в ненулевых полях возникает при температурах больше термомагнитных температур T_{TM} .

Для того, чтобы дальше соотнести эти линии к магнитным состояниям, мы использовали тот факт, что для двухслойных пленок Co/Ge существует вклад, который можно объяснить наличием анизотропии на интерфейсе (рисунок 8) [9].

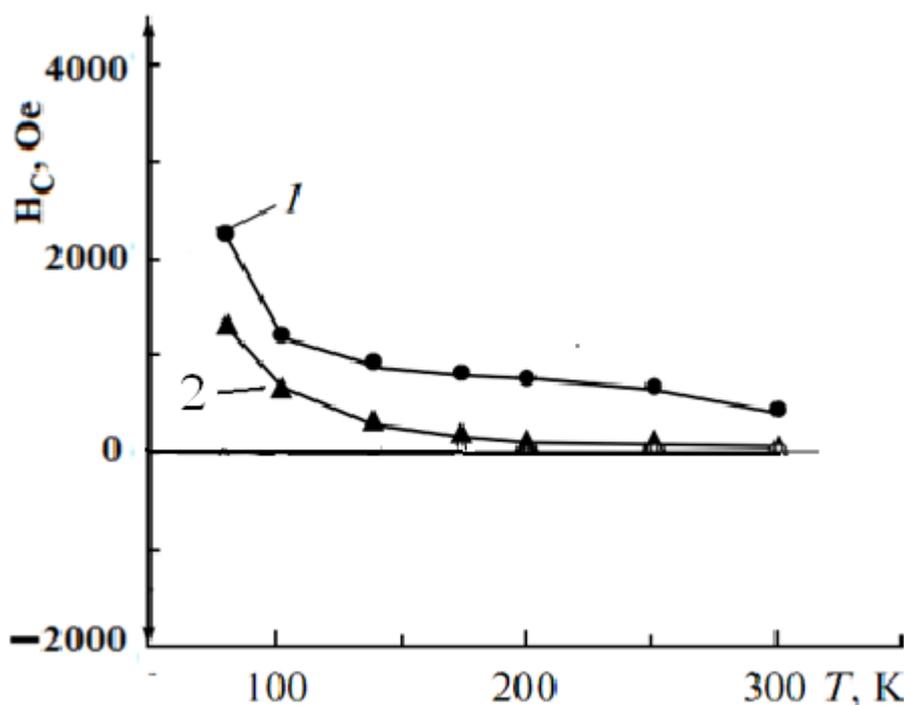


Рисунок 8. Температурные зависимости коэрцитивной силы и поля обменного смещения для пленок Co/Ge: $t_{Ge} = 8$ нм, 1 – $t_{Co} = 7$ нм, 2 – $t_{Co} = 2$ нм. [9]

Тогда выражение для свободной энергии на единицу площади пленки Co/Ge/Co имеет вид [10]:

$$U = -t_{Co} \times \{ \mathbf{H} \times (\mathbf{m}_1 + \mathbf{m}_2) + 2 \times \pi \times [(m_{z1})^2 + (m_{z2})^2] - J \times \cos(\varphi_1 - \varphi_2) + (t_{Co} \times K_A / 2 \times m^2) \times [(m_{z1})^2 + (m_{z2})^2] \}, \quad (3)$$

где J – константа межслоевого взаимодействия, \vec{H} – внешнее магнитное поле, \vec{M}_i – намагниченность $i^{\text{го}}$ ферромагнитного слоя, φ_i – угол намагниченности в плоскости, отсчитываемый от направления внешнего магнитного поля, $i = 1, 2$ – нумерует магнитные слои. Ось Z перпендикулярна плоскости пленки.

Эффективная константа анизотропии K_A добавляется из вышесказанных соображений. Знак K_A не определен. Он будет определяться из подгонки. Если $K_A > 0$, тогда $M_Z = 0$ (анизотропия типа легкая плоскость). Если $K_A < 0$, тогда $M_Z \neq 0$ (анизотропия типа легкая ось).

При таких условиях резонансные частоты даются выражениями [8]:

$$(\omega_1/\gamma)^2 = H \times \{H + (H_A + H_M) \times [H/(2 \times H_J)]\}, \quad (4)$$

$$(\omega_2/\gamma)^2 = 2 \times H_J \times (H_A + H_M) \times [1 - H/(2 \times H_J)^2] \quad (5)$$

где $\sin \varphi = H/(2 \times H_J)$, $H_A = K_A / (2 \times m)$, $H_M = 4 \cdot \pi \cdot M$ и $H_J = J / (t_{Co} \cdot M)$.

$$(6)$$

Выражение для частоты акустической моды (4) в условиях насыщения намагниченности $H/(2 \times H_J) = 1$ переходит в формулу Киттеля, а частота оптической моды (5) зануляется.

В случае, когда линия низкополевого резонанса приписывается акустической моде, а линия 2 – оптической моде мы получаем, что величина H_A должна быть порядка ~ 500 кЭ, что весьма далеко от действительного масштаба величин, наблюдаемых экспериментально. В случае, когда линия низкополевого резонанса идентифицируется как оптическая мода, а высокополевого резонанса определяется как акустическая мода, получено $H_A \sim 30 \div 35$ кЭ, что, по крайней мере, сопоставимо с H_M (10.14 кЭ). Таким образом, именно для этой ситуации мы провели расчет обменных параметров H_J и величины $H_A = [2 \times H_J \times (H_A + H_M)]^{1/2}$, которая характеризует оптическую ветвь в спектре магнитного резонанса. Частотно-полевые зависимости резонанса для пленки с толщиной германия $t_{Ge} = 9$ нм при $T = 300$ К приведены на рисунке 10.

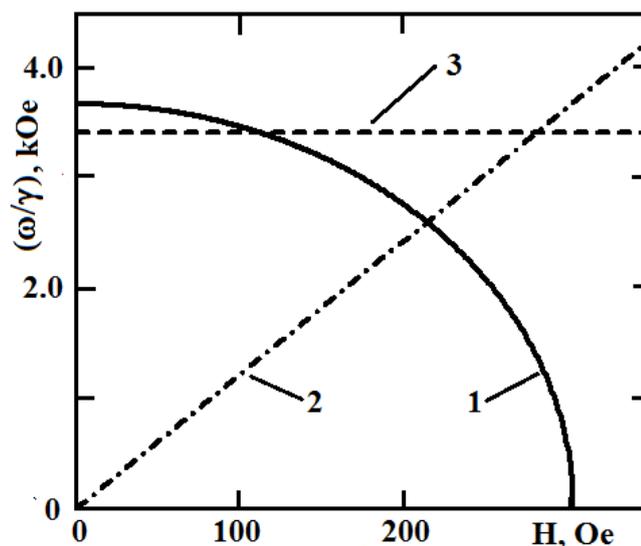


Рисунок 10. Рассчитанные частотно-полевые зависимости магнитного резонанса для пленки Co/Ge/Co. $t_{Co} = 13$ нм, $t_{Ge} = 9$ нм, $T = 300$ К, 1 – оптическая мода для антиферромагнитного межслоевого обмена, расчет по формуле (5) 2 – акустическая мода колебаний, расчет по формуле (4), 3 – резонансная частота в единицах поля (экспериментальное значение).

Результаты подгонки для H_J приведены на рисунке 11. Обращает на себя внимание тот факт, что для всех исследованных пленок обменное поле соответствует антиферромагнитному межслоевому взаимодействию, при этом при фиксированной температуре имеют место небольшие осцилляции величины H_J ($\sim 0.5\%$) в зависимости от толщины немагнитного слоя. При температурах $T > 400$ К значения величин H_J для разных пленок отличаются слабо ($< 0.2\%$) и, видимо, стремятся к величине, близкой к значению для пленки с $t_{Ge} = 18$ нм.

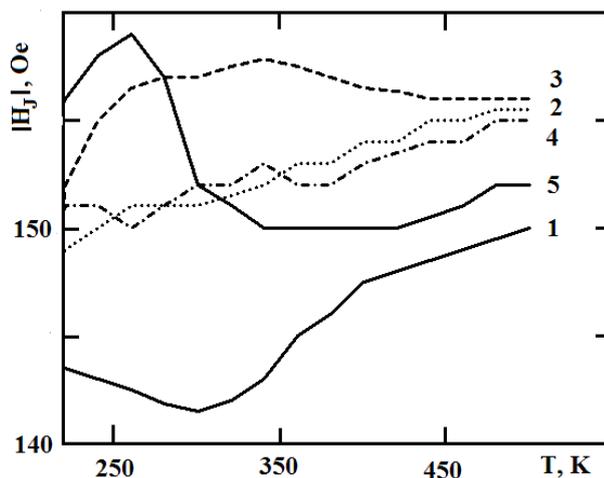


Рисунок 11. Температурные зависимости обменного поля в пленках Co/Ge/Co с антиферромагнитным межслоевым взаимодействием. 1, 2, 3, 4, 5 - $t_{Ge} = 6, 9, 12, 15, 18$ нм, соответственно.

Как известно для межслоевого взаимодействия в многослойных магнитных пленках с немагнитной прослойкой типичным является осциллирующий характер от толщины прослойки. Однако существуют системы и механизмы, когда проявляется неосциллирующий тип

межслоевого взаимодействия [11-12]. В рамках модели [12], когда каждый магнитный слой представляется узкой d-зоной, которые сдвинуты на величины $\Delta^{\uparrow,\downarrow}$ относительно энергии Ферми (ε_F) всей системы, а немагнитный слой представляется зоной свободных электронов проводимости, получено существование двух вкладов в межслоевой обмен. Один из них – это вклад типа РККУ, а второй - антиферромагнитный межслоевой обмен, типа «сверхобмена» имеющего место в магнитных диэлектриках. При условии $\Delta^{\uparrow,\downarrow}/\varepsilon_F \ll 1$, антиферромагнитный обмен является преобладающим и вклад типа РККУ становится пренебрежимо малым. Использование в качестве прослойки полупроводникового материала усиливает условия, когда относительная доля вклада антиферромагнитного взаимодействия возрастает. Германий находится в аморфной фазе, это и приводит к образованию хвостов. При этом электронной плотности оказывается достаточно для переноса взаимодействия между ферромагнитными слоями (подобный сценарий был предложен ранее для описания магнитных свойств в пленках Fe/Si/Fe в низких температурах [13]).

Основной вклад в анизотропию пленочной структуры происходит от интерфейса кобальт-германий и, как это следует из нашего эксперимента, поверхностная анизотропия является анизотропией типа легкая плоскость ($K_A > 0$).

В заключении сформулированы основные выводы данной работы.

1. Отработана технология получения наноразмерных многослойных магнитных пленок в системе *кобальт-германий* с контролируемым соотношением кубической и гексагональной фаз кобальта на установке лабораторного изготовления с возможностями многокомпонентного напыления.
2. Методами электронной микроскопии и ядерного магнитного резонанса установлено, что при увеличении толщины германия он переходит из аморфного состояния (вблизи интерфейса) в кубическое и индуцирует образование неравновесной кубической гранецентрированной фазы кобальта. В fcc фазе в зависимости от скорости напыления и температуры подложки возникают гранулы гексагонального кобальта. Определены условия получения гексагональной и кубической фаз кобальта в пленках в области нанотолщин.
3. Обнаружено необычное термомагнитное поведение намагниченности, когда в малых магнитных полях при определенной температуре T_{TM} резко возрастает намагниченность. Экспериментальные магнитостатические измерения объясняются в рамках модифицированной модели Стонера-Вольфорта, когда кубическая фаза кобальта рассматривается как сплошная среда, в которой растворены сильно анизотропные гранулы гексагонального кобальта обменно связанные с матрицей.

4. Методами электронного магнитного резонанса исследованы межслоевые взаимодействия. Установлено, что обмен между ферромагнитными слоями является антиферромагнитным со слабыми осцилляциями по величине для всех толщин немагнитной полупроводниковой прослойки. Столь необычный результат объясняется в модели, когда обмен осуществляется через электронную зону проводимости, подобно тому, что происходит при механизме «сверхобмена» в диэлектриках.

Список опубликованных работ по теме диссертации

Статьи в изданиях, рекомендованных ВАК и приравненных к ним:

1. Г.С. Патрин, А.В. Кобяков, И.А. Турпанов, М. Рауцкий, К.Г. Патрин. *Магниторезонансные свойства трехслойных пленок Co/Ge/Co: Межслоевые взаимодействия.* // ФТТ.- 2016, том 58, вып. 5.-С.1000-1006.
2. Г.С. Патрин, И.А. Турпанов, А.В. Кобяков, Д.А. Великанов, К.Г. Патрин, Л.А. Ли, В.К. Мальцев, С.М. Жарков, В.И. Юшков. *Синтез и магнитные состояния кобальта в трехслойных пленках Co/Ge/Co.* // ФТТ.- 2014.-Т.56.-В.2.-С.301-307.
3. A.V. Kobayakov, G.S. Patrin, I.A. Turpanov, L.A. Li, K.G. Patrin, V.I. Yushkov, E. A. Petrakovskaya, and M.V. Rautskii. *Interlayer Coupling in Trilayer Co/Ge/Co Films* // Solid State Phenomena.-2011.-V.168-169.-P.273-276.
4. Vykova L.E., Myagkov V.G., Turpanov I.A., Abylkalykova R.B., Bondarenko G.N., Lee L.A., Kobayakov A.V. *Solid-state synthesis of cobalt germanides in epitaxial Ge/ β -Co(001) and Ge/ α -Co(110) nanofilms* // Journal of Siberian Federal University. Mathematics & Physics.-2010.-V.3.-N.1.-P.48-53.

Публикации в других изданиях

5. Г.С. Патрин, И.А. Турпанов, Л.А. Ли, Д.А. Великанов, В.К. Мальцев, С.М. Жарков, К.Г. Патрин, В.И. Юшков, А.В. Кобяков. *Физические свойства трехслойных пленок Co/Ge/Co.* Сборник трудов. 10^{ый} Международный симпозиум «Упорядочение в минералах и сплавах». (ОМА-10). Ростов-на Дону, п. Лоо, Россия, 2007.-Т.2.-С.105-107.
6. Патрин Г.С., Турпанов И.А., Ли Л.А., Великанов Д.А., Мальцев В.К., Патрин К.Г., Юшков В.И., Кобяков А.В. *Магнитные и электрические свойства трехслойных пленок Co/Ge/Co.* // Сборник трудов XXI Международной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах». Россия, Москва, 2009, С.133-135.
7. G.S. Patrin, I.A. Turpanov, E.A. Petrakovskaya, M.V. Rautsky, K.G. Patrin, A.V. Kobayakov. *Магниторезонансные исследования межслоевых взаимодействий в трехслойных пленках Co/Ge/Co.* // Труды 12^{го}

Международного Симпозиума «Упорядочение в минералах и сплавах». (ОМА-12). Ростов-на-Дону-пос. Лоо, Россия, 2009, Т.2, С.110-113.

8. Г.С. Патрин, И.А. Турпанов, Г.Ю. Юркин, К.Г. Патрин, В.И. Юшков, А.В. Кобяков. *Магнитные и резистивные свойства двухслойных пленок Ge/Co*. // Труды 15^{го} Международного симпозиума «Порядок, беспорядок и свойства оксидов». (ОДРО-15) Россия, Ростов-на-Дону – п. Лоо, 2012.-С.225-226.

9. Г.С. Патрин, И.А. Турпанов, К.Г. Патрин, В.К. Мальцев, А.В. Кобяков, В.И. Юшков, В.Г. Плеханов. // *Магнитные и ЯМР свойства пленок (Co/Ge)_n*. // Труды 17^{го} Международного симпозиума «Упорядочение в минералах и сплавах». (ОМА-17) Россия, Ростов-на-Дону – П. Южный.-2014.-В.17.-Т.1.-С.228-231

10. Patrin G.S., Turpanov I.A., Kobayakov A.V., Patrin K.G., Yushkov B.I., Li L.A., Petrakovskaya E.A., Raurskii M.V. *Physical Properties of Co/Ge/Co films*. // Book of Abstracts. Moscow International Symposium on Magnetism (MISM-2011). Moscow, Russia, 2011, P.104.

11. G.S. Patrin, I.A. Turpanov, E.A. Petrakovskaya, M.V. Rautsky, K.G. Patrin, A.V. Kobayakov. Magnetic resonance investigations of interlayer coupling in Co/Ge/Co trilayer films. // Program & Abstracts. International Symposium «Spin Waves», Saint Petersburg, Russia.-2009.-P.63.

12. Bykova L.E., Myagkov V.G., Turpanov I.A., Bondarenko G.N., Lee L.A., Kobayakov A.V., *Solid-state synthesis of cobalt germanides in epitaxial Ge/ β -Co(001) and Ge/ α -Co(110) nanofilm*. // Book of Abstracts International Conference “Trends in Nanomechanics and nanoengineering”. Krasnoyarsk, Russia.-2009.-P.29.

13. Patrin G.S., Turpanov I.A., Velikanov D.A., Yushkov V.I., Patrin K.G., Kobayakov A.V. *Magnetic and electric properties of trilayer Co/Ge/Co films*. // Book of abstracts. Moscow International Symposium on Magnetism, 2008, p.286.

Список используемой литературы:

- [1] Zubic, J. Fabian, S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.*, 2004, 76, P.R323.
- [2] H. Zabel and S. D. Bader, *Magnetic Heterostructures. Advances and Perspectives in Spinstructures and Spintransport*. Springer, Berlin, Heidelberg, 2008.
- [3] *Nanomagnetism and Spintronics. Fabrication, Materials, Characterization and Applications*. Ed. by F. Nasirpouri & A. Nogaret. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 2011.
- [4] Chaiken, R.P. Michel, & M.A. Wall, *Phys. Rev. B.*, 1996, 53, 5518.
- [5] G.S. Patrin, C.-G. Lee, I.A. Turpanov, et al. *JMMM*, 2006, 306, 218.
- [6] G.S. Patrin, Chan-Gyu Lee, Bon-Heun Koo, Keesam Shin. Peculiarities of temperature behavior of magnetization in Co/Ge/Co films *Phys. Lett. A.*, 2006, 359, 149.
- [7] E. Callen, Y.J. Liu, J.R. Cullen, *Phys. Rev.*, 1977, B 16, 263.
- [8] B.D. Gullity, *Introduction to Magnetic Materials*, Addison–Wesley, Massachusetts, 1972.
- [9] Г. С. Патрин, И. А. Турпанов, К. Г. Патрин, Е. А. Алексейчик, В. И. Юшков, А. В. Кобяков, Магнитные и электрические свойства двухслойных пленок Ge/Co, *Известия РАН. Серия физическая*, 2014, том 78, № 1, с. 44–46.
- [10] A.G. Gurevich, G.A. Melkov. *Magnetization Oscillations and Waves*. CRC Press, Inc. (1996).
- [11] N. Garcia, A. Hernando, *JMMM*, 1991, 99, L 12.
- [12] C. Lacroix, J.P. Gavian, *JMMM*, 1991, 93, 413.
- [13] G.S. Patrin, S.G. Ovchinnikov, D.A. Velikanov, V.P. Kononov. *Phys. Sol. St.*, 2001, 43, P.1712.

Подписано в печать 11,04,2016г.

Тираж 60 экз. Заказ №3

Отпечатано в типографии Федерального государственного
бюджетного учреждения науки

Института физики СО РАН

660036, Красноярск, Академгородок, 50, стр. 38,

ИФ СО РАН