

06

Термически иницированная модификация структуры и магнитных свойств пленочных нанокompозитов, содержащих бислои Ta/Ni и FeMn/Ni

© В.О. Васьковский,^{1,2} А.А. Быкова,¹ А.Н. Горьковенко,¹ Н.А. Кулеш,¹ В.Н. Лепаловский,¹
Е.В. Кудюков,¹ Н.В. Селезнева¹

¹ Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б.Н. Ельцина,
620062 Екатеринбург, Россия

² Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН,
620108 Екатеринбург, Россия
e-mail: a.n.gorkovenko@urfu.ru

Поступило в Редакцию 4 октября 2024 г.

В окончательной редакции 17 февраля 2025 г.

Принято к публикации 17 февраля 2025 г.

Исследовано влияние термомагнитной обработки на структуру и магнитные свойства пленочных систем, содержащих слои Ni в соседстве со слоями Ta или антиферромагнитным слоем FeMn. Показано, что отжиг при температурах до 300 °С существенно влияет на характер наведенной анизотропии в ферромагнитном слое, что приводит к вариации анизотропии коэрцитивной силы в пленках типа Ta/Ni или анизотропии поля обменного смещения в пленках типа FeMn/Ni. Отжиг при более высокой температуре вызывает резкий рост коэрцитивной силы для пленок Ta/Ni и увеличение результирующей намагниченности для пленок FeMn/Ni при сохранении в них эффекта обменного смещения. С привлечением данных рентгенофлуоресцентного анализа, полученных на модельных образцах, сделано заключение о связи изменений магнитных свойств при высокотемпературном воздействии с неравномерной межслойной диффузией элементов, которая распространяется на глубину не менее 5 nm.

Ключевые слова: отжиг, обменное смещение, диффузия, анизотропия, антиферромагнетик.

DOI: 10.61011/JTF.2025.06.60462.311-24

Введение

Многослойные магнитные пленки относятся к числу функциональных сред, нашедших реальное техническое применение, которое обуславливает повышенный интерес исследователей к технологии и физике подобных материалов [1]. Среди них значительное место занимают композиты типа ферромагнетик/антиферромагнетик, на основе которых функционируют спиновые клапаны, элементы памяти MRAM и другие устройства магнитной сенсорики и спинтроники [2–4]. Присутствие антиферромагнитного слоя в составе композитов при наличии межслойного обменного взаимодействия приводит к так называемому магнитному (обменному) смещению, обеспечивающему стабилизацию однородной магнитной структуры в ферромагнитном слое. Естественно, что для эффективного обеспечения своей функции антиферромагнетик в пленочном состоянии должен обладать температурой Нееля, превышающей комнатную температуру. К числу таких антиферромагнетиков потенциально относится целый ряд сплавов на основе Mn. Несмотря на то, что сам по себе равновесный при комнатной температуре α -Mn не удовлетворяет указанному условию, в составе сплавов он может формировать высокоустойчивую антиферромагнитную структуру. Наиболее известными бинарными системами, проявляю-

щими высокотемпературный антиферромагнетизм в пленочном состоянии, являются Ir–Mn, Pt–Mn, Pd–Mn, Ni–Mn, Cr–Mn, Fe–Mn [5,6]. На сегодняшний день именно слои Ir–Mn входят в состав ответственных элементов спинтроники [7]. Да и пленки сплавов Mn с другими металлами платиновой группы показывают высокие функциональные свойства, обеспечивая в прилегающих ферромагнитных слоях необходимый уровень и хорошую температурную стабильность гистерезисных свойств. В то же время экономический аспект оставляет нишу для применения менее дорогих антиферромагнитных сплавов, например, FeMn [8]. Единственным недостатком этого антиферромагнетика является относительно низкая температура Нееля (~ 500 K), приводящая к повышенной температурной чувствительности свойств пленочных структур на его основе, с которой, впрочем, можно бороться аппаратным путем.

Антиферромагнетизм Mn в бинарных сплавах обеспечивает как функциональность прецизионных технических элементов, так и возможность оптимизации их свойств для конкретных задач. В то же время известно, что в Mn-содержащих пленочных структурах при нагреве до относительно невысоких температур наблюдается необратимая деградация исходных магнитных свойств, которая, в первую очередь, связана с повышенной склонностью Mn к миграции из объема „своего“ слоя на по-

верхность или в прилегающие слои, не содержащие Mn. Такое обобщающее заключение вытекает из результатов ряда работ, посвященных изучению данного вопроса на пленках с большим количеством слоев, приближенных к реальным спин- клапанам средам [9–14], или на их несколько упрощенных аналогах [15,16]. В них, в том числе, указано на преимущественную миграцию Mn по границам зерен, а также вдоль градиента по кислороду и вариацию последнего за счет введения барьерного окисного слоя. При этом информация о толщинных профилях элементного состава в большинстве случаев получена с использованием ионного травления пленок в рамках методов масс-спектрометрии вторичных ионов (SIMS) [11,13], фотоэлектронной спектроскопии (XPS) [14] или оже-спектроскопии (AFS) [14,15], и описывает результаты разовых отжигов.

Настоящая работа рассматривается, как продолжение такого рода исследований с целью получения более детальной и систематической информации о связи макроскопических магнитных свойств со структурно-композиционными изменениями в Mn-содержащих многослойных системах в условиях варьирования термического воздействия. Для этого выбраны относительно простые объекты на основе бислоев FeMn/Ni и неразрушающая методика профильного анализа элементного состава — рентгенофлуоресцентная спектроскопия на полном внутреннем отражении. Указанный вариант слоистой структуры рассматривается, в первую очередь, как модельный, что предопределило выбор его компонентов. С одной стороны, он не содержит одинаковых элементов в разных слоях, с другой — имеет максимально простой суммарный элементный состав, и, наконец, в пленках сплава FeMn относительно просто реализуется антиферромагнитное состояние. В то же время подобная структура может представлять и самостоятельный практический интерес как тензотермометрическая среда. Известно, что Ni обладает значительной отрицательной магнитострикцией и анизотропией магнитосопротивления, которые являются определяющими характеристиками указанных сред, но оптимальным образом данное сочетание реализуется в структуре с магнитным смещением [17].

1. Технологические аспекты

Для комплексного решения поставленной задачи исследовались пленочные образцы со слоистой структурой трех видов glass/Ta(5)/Ni(40)/Ta(5), glass/Ta(5)/Fe₂₀Ni₈₀(5)/FeMn(20)/Ni(40)/Ta(5), Si/FeMn(5)/Ni(5). В приведенных структурных формулах наклонные линии символизируют слоистость, а цифры в скобках — толщины слоев в nm. Все пленки получены методом магнетронного распыления на установке Oton-8 на покровных стеклах Corning или пластинах монокристаллического кремния при следующих общих технологических параметрах: давление остаточных газов $5 \cdot 10^{-7}$ mm · Hg; дав-

ление рабочего газа аргона 10^{-3} mm · Hg; наличие электрического смещения на подложке мощностью 14 W; наличие в плоскости подложки технологического магнитного поля напряженностью 250 Oe. Для распыления использовались мишени из чистых материалов или сплавов, выполненные в виде двухдюймовых дисков. Тонкие слои Ta, присутствующие в двух видах образцов, в основном выполняли защитную функцию, но для структуры, содержащей FeMn, приподложечный слой Ta несет еще и структурообразующую функцию [8]. В ходе эксперимента пленки подвергались накапливаемому ступенчатому отжигу при температурах от 200 до 400 °C. Отжиг проводился в вакууме при давлении остаточных газов $5 \cdot 10^{-7}$ mm · Hg и в присутствии магнитного поля, сонаправленного с технологическим полем. Его продолжительность на каждой ступени составляла 1 h.

Для достижения целей исследования были выбраны несколько вариантов пленочных структур. Пленки glass/Ta/Ni/Ta рассматривались как вспомогательные и использовались для выяснения изменений в свойствах слоя Ni при отжиге, не связанных с наличием прилегающего слоя FeMn. Ожидалось, что тугоплавкий слой Ta будет препятствовать межслойной диффузии, обеспечивая изучение свойств слоя Ni в изоляции. Пленки glass/Ta/Fe₂₀Ni₈₀/FeMn/Ni/Ta являлись основным объектом изучения магнитных свойств, причины необратимого изменения которых при отжиге выяснялись в работе. Из формулы видно, что в них присутствует тонкий слой пермаллоя, наличие которого напрямую не способствует решению поставленной задачи. Однако он благодаря эпитаксиальному действию позволяет зафиксировать в эквивалентном сплаве FeMn неравновесную при комнатной температуре ГЦК кристаллическую структуру, в которой и реализуется антиферромагнитное состояние [18]. И, наконец, пленки Si/FeMn/Ni предназначались для прямого изучения толщинного профиля элементного состава с использованием рентгенофлуоресцентного анализатора Nanohunter. На этом приборе реализована методика полного внешнего отражения скользящего рентгеновского пучка, который проникает в материал на глубину не более 10–20 nm. Этим, в частности, обусловлено отсутствие всех вспомогательных слоистых элементов и малые толщины основных слоев в данных образцах. Кроме того, для исключения в результирующем флуоресцентном спектре „засоряющего“ эффекта от элементов, присутствующих в стекле, последнее заменено на монокристаллический кремний.

Наряду с упомянутым выше флуоресцентным анализатором при выполнении исследований использовались стилусный профилометр Dektak-150 и дифрактометр Bruker D8 для аттестации пленок по толщине и структуре соответственно. При этом дифрактометрия проводилась в излучении CuK_α и в геометрии „θ/2θ“. Магнитные измерения выполнялись на вибромагнитометре LakeShore.

2. Аттестация слоев Ni в составе пленок Ta/Ni/Ta

Сам по себе Ni при комнатной температуре характеризуется невысокой спонтанной намагниченностью, относительно слабой четырехосной кристаллической анизотропией и отрицательной магнитострикцией. В совокупности это создает предпосылки для широкой вариабельности магнитных и иных свойств, сопутствующих наличию магнитного упорядочения в зависимости от условий получения пленок, материала подложки, последующих обработок, присутствия сопряженных слоев [19]. На рис. 1 приведены дифрактограммы, характеризующие структуру образца Ta/Ni/Ta на разных стадиях отжига. (Здесь и далее наличие стеклянной подложки в структурной формуле не прописывается, но она присутствует как первый (левый) составляющий элемент). На них имеется единственная дифракционная линия, свидетельствующая о наличии в поликристаллическом слое Ni сильной кристаллической текстуры типа (111), т.е. преимущественной ориентации атомных плоскостей (111) параллельно плоскости пленок, причем вне зависимости от интенсивности термического воздействия. Присутствие слоев Ta на дифрактограммах не отображается, вероятно, из-за малой толщины и высокой дисперсности структуры. Литературные источники [20] указывают на типичность такого рода текстурированности для пленок с ГЦК структурой, осажденных на Ta. К этому в соответствии с рис. 1 можно добавить заключение о ее высокой стабильности, которая, по-видимому, наследуется от буферного слоя Ta, играющего ключевую роль в данном текстурообразовании.

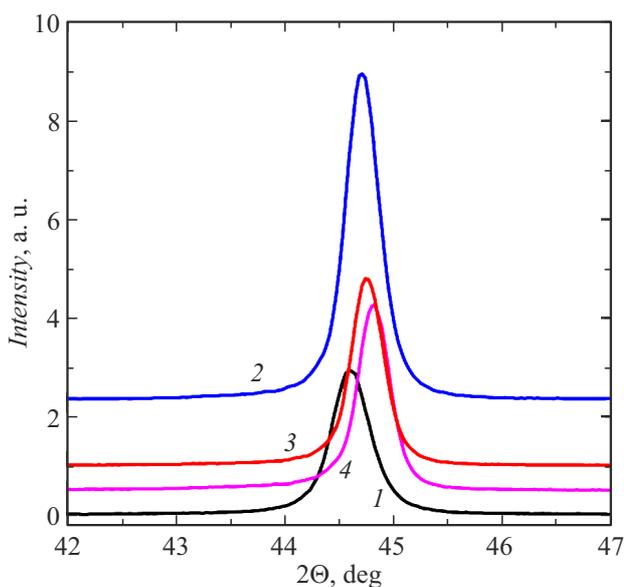


Рис. 1. Дифрактограммы образца Ta/Ni/Ta, измеренные после отжига при различных температурах: 1 — исходное состояние; 2 — 200 °С; 3 — 300 °С; 4 — 400 °С.

В таблице приведены некоторые количественные данные, характеризующие структуру исследуемого образца, а именно значения среднего размера кристаллитов D , определенные по формуле Шерера [21], и расстояния h между атомными плоскостями типа (111), рассчитанные с использованием программного пакета FullProf Suite [22]. Из этих данных можно заключить, что пленка имеет высокодисперсную (нанокристаллическую) структуру. С увеличением T_a величина D имеет тенденцию к росту. Однако до $T_a \leq 300$ °С эта тенденция, скорее всего, не является результатом рекристаллизации, а отражает релаксацию упругих напряжений и дефектов кристаллической решетки. Более информативным здесь является поведение параметра h при термообработке. Уже в исходном состоянии его величина меньше табличного значения, которое по [23] составляет 0.2038 nm, и при увеличении T_a это различие только возрастает. Наблюдающееся сжатие кристаллической решетки вдоль нормали можно трактовать как отражение ее растяжения в плоскости пленки, которое, в свою очередь, может возникать из различия в коэффициентах термического расширения пленки и подложки.

Магнитный гистерезис является одним из наиболее чувствительных индикаторов структурной и композиционной модификации. На рис. 2, *a* приведены петли гистерезиса образца Ta/Ni/Ta, измеренные на разных стадиях отжига вдоль оси приложения технологического поля. Их вид позволяет заключить, что эффект отжига обнаруживает себя как в низкотемпературном ($T_a = 200$ °С), так и в высокотемпературном ($T_a = 400$ °С) вариантах. В первом случае изменяется форма петли и несколько уменьшается коэрцитивная сила H_c , во втором — имеет место кардинальное изменение характера перемагничивания, в том числе пятикратное увеличение H_c . Более детальную информацию об изменениях гистерезисных свойств, происходящих при термомагнитной обработке, можно почерпнуть из угловых зависимостей коэрцитивной силы $H_c(\varphi)$, представленных на рис. 2, *b*. Величина φ соответствует углу в плоскости пленки между осью технологического поля и осью перемагничивания. Как видно, для пленок в исходном состоянии такая зависимость характеризуется наличием двух локальных максимумов при углах $\varphi = 0^\circ$ и 90° . Это указывает на двухосный характер магнитной анизотропии в плоскости пленок, который, согласно [24], формируется в результате суперпозиции двух механизмов, отражающих особенности дефектной структуры пленок. С одной стороны, это магнитостатический механизм [25], предполагающий анизотропное распределение дефектов по границам кристаллитов и образование оси легкого намагничивания (ОЛН) вдоль оси приложения технологического магнитного поля. С другой стороны, это магнитоупругий механизм, исходящий из анизотропии упругих напряжений в плоскости, которая, в свою очередь, является следствием анизотропии дефектной структуры. При отрицательной магнитострикции и анизотропной релаксации растяжи-

Средний размер кристаллитов, определенный по формуле Шерера [21], и межплоскостное расстояние типа (111) для слоев Ni и FeMn в образцах двух видов после термомагнитной обработки при разных температурах отжига

Вид пленочной структуры	glass/Ta/Ni/Ta		glass/Ta/Fe ₂₀ Ni ₈₀ /FeMn/Ni/Ta			
	Ni		Ni		FeMn	
Состав слоя	Ni		Ni		FeMn	
Параметры структуры	<i>D</i> , nm	<i>h</i> , nm	<i>D</i> , nm	<i>h</i> , nm	<i>D</i> , nm	<i>h</i> , nm
As-deposited	20	0.2032	28	0.2026	19	0.2071
<i>T_a</i> = 200 °C	24	0.2027	29	0.2030	19	0.2078
<i>T_a</i> = 300 °C	25	0.2025	28	0.2028	19	0.2077
<i>T_a</i> = 400 °C	26	0.2022	32	0.2025	–	–

Примечание. Систематические погрешности в определении приведенных величин *D* и *h* составляют ±1 nm и ±0.0001 nm соответственно.

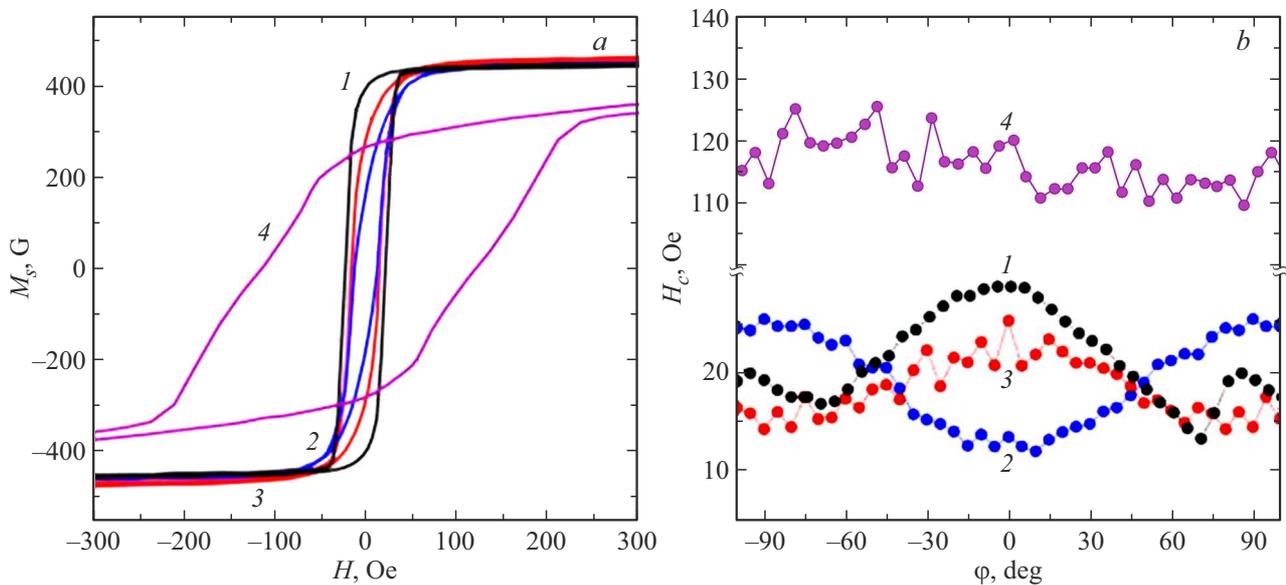


Рис. 2. Петли гистерезиса, измеренные вдоль оси технологического поля ($\varphi = 0^\circ$) (a) и угловые зависимости коэрцитивной силы пленок Ta/Ni/Ta, подвергнутых термомагнитной обработке при температурах: 1 — исходное состояние; 2 — 200 °C; 3 — 300 °C; 4 — 400 °C (b).

вающих упругих напряжений этот механизм дает ОЛН, перпендикулярную технологическому полю.

После низкотемпературной термомагнитной обработки ($T_a = 200^\circ\text{C}$) характер анизотропии изменяется — она фактически становится одноосной с ОЛН и перпендикулярной оси приложения технологического поля. Это может быть следствием усиления растягивающих упругих напряжений (см. выше комментарий к зависимости $h(T_a)$, приведенной в таблице), приводящего к доминированию магнитоупругого механизма. При $T_a = 300^\circ\text{C}$ ситуация снова меняется, и ход зависимости $H_c(\varphi)$ становится похож на исходный вариант. Вероятно, такая термомагнитная обработка интенсифицировала направленную миграцию дефектов, что вывело на первый план магнитоэлектрический механизм. Представленная интерпретация магнитных свойств свидетельствует в пользу того, что до $T_a = 300^\circ\text{C}$ включительно струк-

турные преобразования локализованы непосредственно в слое Ni и прямо не связаны с наличием прилегающих металлических слоев. Их фактор, по-видимому, становится принципиально значимым при $T_a = 400^\circ\text{C}$. Как отмечалось выше, такой отжиг приводит к резкому увеличению H_c , которое можно связать с некоторым межслойным перемешиванием и образованием интерфейсов Ni-Ta, отличающихся высоким магнитным гистерезисом и препятствующих перемагничиванию всего слоя Ni. Считая, что эти интерфейсы ответственны за пологие участки петли гистерезиса (кривая 4 на рис. 2, a), и принимая во внимание, что величина намагниченности насыщения при отжигах практически не меняется ($M_s = (440 \pm 10)$ G), можно найти их толщину. Соответствующая оценка показывает, что суммарно на двух поверхностях слоя Ni она составляет около 8 nm. Заметим также, что указанная величина M_s несколько

меньше табличного значения для Ni (485 G [26]). Но это свойственно тонким пленкам, в первую очередь, из-за пониженной плотности.

3. Структура и магнитные свойства пленок Ta/Fe₂₀Ni₈₀/FeMn/Ni/Ta

Представление об исходной структуре пленок Ta/Fe₂₀Ni₈₀/FeMn/Ni/Ta и ее изменениях при термомагнитной обработке дают дифрактограммы, приведенные на рис. 3, а. Как видно, все они при $T_a \leq 300^\circ\text{C}$ содержат по две линии, которые идентифицируются как результат отражений от плоскостей типа (111) ГЦК решеток слоев FeMn (левый рефлекс) и Ni (правый рефлекс). Отсюда следует, что слой γ -FeMn, несущий антиферромагнетизм, в пленочной структуре присутствует и что он, как и слой Ni, обладает сильной кристаллической текстурой, необходимой для создания магнитного смещения в прилегающем ферромагнитном слое. Вспомогательный слой пермаллоя на дифрактограммах не идентифицируется, вероятно, из-за своей малой толщины. Количественная характеристика структурного состояния слоев представлена в таблице. При этом разделение частично перекрывающихся дифракционных рефлексов, по которым определялись структурные параметры, выполнено с использованием программного пакета FullProf Suite. Приведенные данные показывают, что при $T_a \leq 300^\circ\text{C}$ слой Ni в новом окружении обладает большей стабильностью величины D и межплоскостного расстояния h , которая, вероятно, наследуется от нижележащего слоя FeMn, проявляющего малую чувствительность этих характеристик к отжигу. При этом, судя по величине h , в слое Ni, как и в предыдущем случае, присутствуют растягивающие напряжения в плоскости. Вероятно, есть они и в слое FeMn, поскольку h , хотя и незначительно, но все же ниже равновесного значения, которое по [27] составляет 0.281 nm. К выраженным структурным изменениям приводит отжиг при 400°C . На дифрактограмме линия, соответствующая γ -FeMn, фактически исчезла, но в больших углах дифракции возник новый рефлекс, причем асимметрию его формы, а также размытие и смещение линии Ni можно трактовать как результат нарушения четкой элементной локализации в рамках всей слоистой структуры. Заметим также, что в области расположения асимметричного рефлекса не лежат линии, соответствующие простым фазам типа Fe, Mn, α -FeMn, γ -FeNi.

Магнитометрия в целом подтверждает сделанные заключения о композиционных преобразованиях в слоистой структуре. Это следует из сравнения петель гистерезиса образца Ta/Fe₂₀Ni₈₀/FeMn/Ni/Ta на разных стадиях отжига, измеренных вдоль оси технологического поля и показанных на рис. 3, б. До $T_a = 300^\circ\text{C}$ включительно петли имеют двухступенчатый вид и смещены по оси магнитного поля. Фактически они являются

суперпозицией петель гистерезиса слоя Ni (большая ступень) и вспомогательного слоя пермаллоя (малая ступень), каждая из которых демонстрирует наличие магнитного смещения, реализующегося на разных поверхностях антиферромагнитного слоя. Некоторое различие в размахе петель гистерезиса слоев Ni в двух типах пленок может быть связано с погрешностью в определении парциальных толщин слоев, а также частичной вовлеченностью части слоя Ni в межслойный ферро-антиферромагнитный интерфейс с веерной магнитной структурой. Отжиг при $T_a = 400^\circ\text{C}$ приводит к бесступенчатой петле с амплитудой большей, чем та, которую обеспечивало перемагничивание обоих ферромагнитных слоев на предыдущих стадиях термомагнитной обработки. При этом магнитное смещение остается. Очевидно, что отсутствие частной петли от слоя пермаллоя и увеличение намагниченности насыщения образца может быть связано только с композиционными преобразованиями и, в первую очередь, в слое FeMn. Вслед за авторами работы [16], можно считать, что в его объеме формируется субслой, богатый Fe, с большой намагниченностью. Наблюдающееся на эксперименте приращение размаха петли составляет около 440 G. Для его обеспечения толщина чистого α -Fe, если бы таковое присутствовало, должна достигать не менее 6 nm, что составляет почти треть от номинальной толщины слоя FeMn (20 nm). Однако рентген наличие ОЦК-железа не регистрирует. Кроме того, данный эксперимент не дает ответа на вопросы о том, какая композиция возникла в месте исходной локализации слоя пермаллоя и диффундировал ли Mn в соседние слои или сконцентрировался в пределах исходного слоя, а также не возникло ли перемешивание Fe с Ni из основного ферромагнитного слоя. Некоторую косвенную информацию на этот счет можно, в частности, искать в анализе гистерезисных свойств слоя Ni.

На рис. 4 приведены угловые зависимости поля обменного смещения $H_e(\varphi)$ и коэрцитивной силы $H_c(\varphi)$. Под H_e здесь понимается поле удаления центра петли гистерезиса от нулевой отметки, а под H_c — полуширина петли гистерезиса. Видно, что отжиг не вносит качественных изменений в характер зависимостей $H_c(\varphi)$ слоя Ni. На всех его стадиях коэрцитивная сила имеет выраженный максимум при $\varphi = 0$, что типично для сред с однонаправленной анизотропией. Этим данный вариант пленочной структуры разительно отличается от пленок Ta/Ni/Ta (рис. 2, б), коэрцитивная сила которых чувствительна к нюансам магнитной анизотропии Ni, изменяющимся при отжиге. Фактически она подавляется дополнительной и достаточно сильной однонаправленной анизотропией. В то же время количественные изменения в коэрцитивную силу отжиг привносит. Как видно, с увеличением T_a максимальное значение коэрцитивной силы уменьшается вдвое. И если в исходном состоянии она значительно превышала H_c образца Ta/Ni/Ta, то при $T_a = 300^\circ\text{C}$ достигла его уровня. Причиной повышенного гистерезиса обменно-связанного слоя Ni,

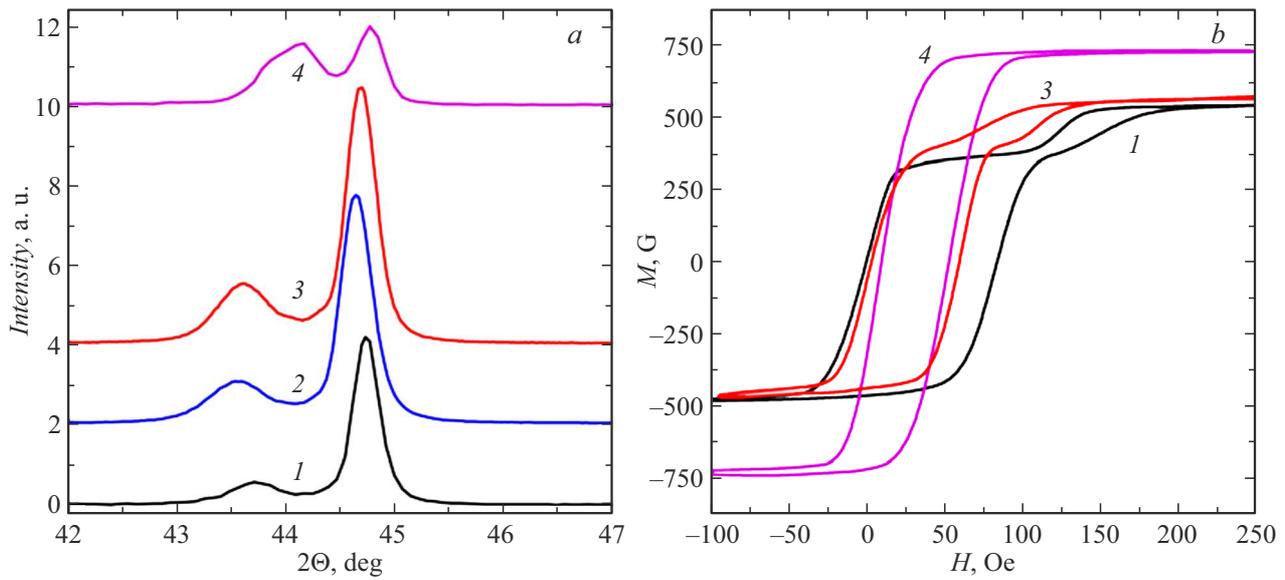


Рис. 3. Дифрактограммы (а) и петли гистерезиса (b) образца Ta/Fe₂₀Ni₈₀/FeMn/Ni/Ta, измеренные вдоль оси технологического поля после отжига при различных температурах: 1 — исходное состояние; 2 — 200 °С; 3 — 300 °С; 4 — 400 °С.

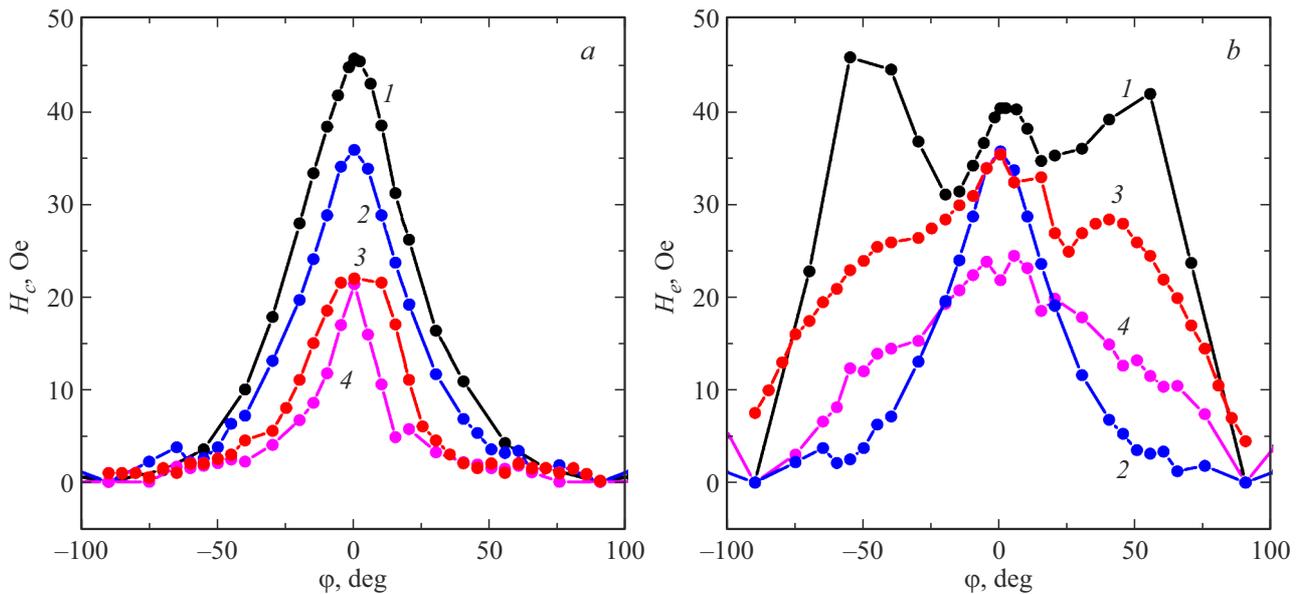


Рис. 4. Угловые зависимости коэрцитивной силы (а) и поля обменного смещения (b) образца Ta/Fe₂₀Ni₈₀/FeMn/Ni/Ta после отжига при различных температурах: 1 — исходное состояние; 2 — 200 °С; 3 — 300 °С; 4 — 400 °С.

в частности, может быть наличие и изменение при отжиге дополнительной составляющей от ультрамелких антиферромагнитных кристаллитов FeMn, которые не дают вклада в обменное смещение, но увеличивают H_c [28]. Отметим также большое различие в H_c пленок двух видов после отжига при 400 °С. Оно косвенно подтверждает высказанное выше предположение о том, что anomalно высокая коэрцитивная сила Ni в присутствии смежных слоев Ta связана с частичным перемешиванием слоев и образованием магнитотвердых интерфейсов типа Ni–Ta.

В противоположность коэрцитивной силе, угловая зависимость поля обменного смещения обнаруживает качественные изменения при термомагнитной обработке. Сравнивая рис. 4, b и рис. 2, b, можно заключить, что термомагнитная обработка взяла на себя роль индикатора особенностей магнитной анизотропии слоя Ni в пленках с обменным смещением. В исходном состоянии кривая $H_e(\varphi)$ имеет довольно сложный вид, который существенно упрощается на первом шаге отжига ($T_a = 200$ °С), затем ($T_a = 300$ °С) кривая в значительной степени восстанавливает свой ход, но в конечном

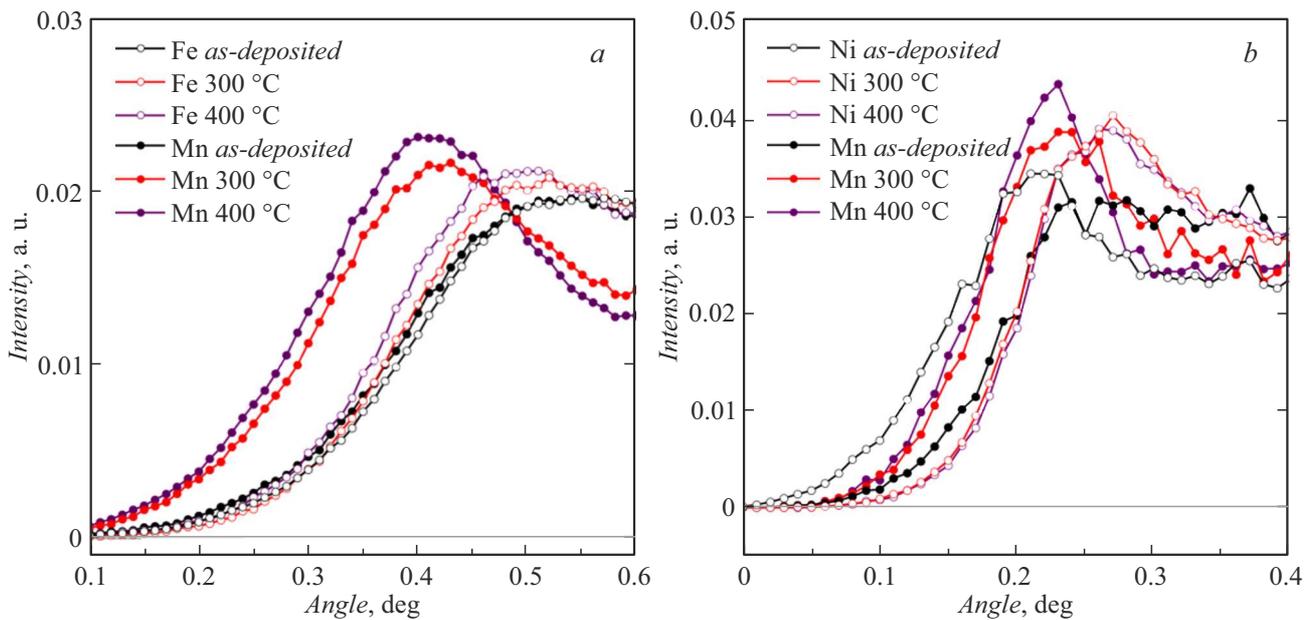


Рис. 5. Зависимости флуоресцентного сигнала от угла скольжения рентгеновского пучка для элементов, составляющих образец FeMn/Ni в парах Fe–Mn (a) и Ni–Mn (b) после отжига при различных температурах.

варианте ($T_a = 400^\circ\text{C}$) опять приходит к относительно простому виду. В работе [29] путем несложного моделирования было показано, что вид $H_e(\varphi)$ сильно зависит от соотношения величин наведенной и однонаправленной анизотропии и, в частности, могут реализовываться зависимости, подобные тем, которые воспроизводятся кривыми 1, 3 и 2, 4 на рис. 4. Изложенный выше анализ свойств пленок Ta/Ni/Ta показал, что в них, вероятно, имеет место конкуренция двух механизмов наведенной магнитной анизотропии — магнитоэлектрического и магнитоэластического, и их роль меняется в зависимости от температуры термомагнитной обработки, приводя к двуслоному или однослоному вариантам анизотропии. Эти изменения, скорее всего, и нашли отражение в вариациях хода $H_e(\varphi)$.

4. Элементный профильный анализ пленок FeMn/Ni

Для увеличения аргументационной базы в интерпретации результатов изучения структуры и магнитных свойств слоистых пленок нами был поставлен модельный эксперимент по прямому определению профилей элементного состава образцов FeMn/Ni на разных стадиях отжига. Для этого использовался рентгеновский анализатор, позволяющий за счет прецизионного варьирования угла падения скользкого рентгеновского излучения изменять глубину слоя, участвующего в формировании флуоресцентного сигнала. Данная методика, реализованная на приборе Nanohunter, дает достоверную информацию с глубины не более 10 nm, что наложило

ограничение на толщины слоев в модельном образце (по 5 nm).

На рис. 5 приведены зависимости интенсивностей сигналов флуоресцентного излучения элементов Ni, Fe и Mn от угла скольжения рентгеновского пучка для разных стадий отжига. Для наглядности они сгруппированы в две пары элементов Fe–Mn и Ni–Mn, а также опущены кривые для $T_a = 200^\circ\text{C}$, которые мало отличаются от кривых, соответствующих исходному состоянию. Отметим также, что измерения в паре Fe–Mn выполнены на рентгеновской трубке с медным анодом, дающей более интенсивный флуоресцентный отклик для данных элементов, а для пары Ni–Mn — с молибденовым анодом, поскольку первая трубка не перекрывает флуоресцентный спектр Ni. Полезная информация, характеризующая элементный профиль образца, содержится в относительном позиционировании представленных кривых на шкале углов: чем левее кривая, тем ближе к поверхности образца залегает формирующий ее элемент. В соответствии с этим принципом, сопоставляя рис. 5, a и b, можно заключить, что в исходном состоянии Ni находится поверх Mn, а Fe залегает примерно на одинаковой глубине с Mn, т.е. тоже ниже Ni. Таким образом, номинальная структура FeMn/Ni качественно воспроизводится верно.

Низкотемпературный отжиг ($T_a = 200^\circ\text{C}$) не меняет описанную картину. Но на его следующем шаге наблюдается значительное перераспределение в порядке следования кривых разных элементов. При $T_a = 300^\circ\text{C}$ кривые Mn на обоих рисунках заняли крайнюю левую позицию, которая еще более укрепилась после финального отжига. Иными словами, в результате отжига в

слое FeMn произошла сегрегация элементов, и Mn мигрировал из него через слой Ni к поверхности образца. Параллельная магнитометрия показала, что указанное перераспределение элементов сопровождается примерно двукратным ростом магнитного момента образца. Это подтверждает факт высвобождения Fe, которое, судя по флуоресцентным кривым, может частично перемешиваться с Ni, образуя слой переменного состава с повышенным магнитным моментом.

Конечно, результаты, полученные в данном эксперименте, нельзя напрямую перенести на пленки с большими толщинами слоев. В частности, на дифрактограмме, показанной на рис. 3, рефлекс Ni после отжига при $T_a = 400^\circ\text{C}$ явно присутствует, хотя его интенсивность значительно меньше, чем на более ранних стадиях отжига. В то же время можно утверждать, что определяющим эффектом от высокотемпературного отжига является неравномерная элементная диффузия, которая распространяется вглубь слоев не менее чем на 5 nm.

Заключение

Выполненное исследование на примере пленочных структур, содержащих слои Ni, показало двухуровневый характер термического воздействия на структурные и магнитные свойства подобных объектов. При отжиге при температурах менее 300°C определяющую роль, по видимому, играют анизотропия в распределении точечных дефектов по границе кристаллитов и растягивающие напряжения, формирующиеся на поверхности раздела диэлектрическая подложка–металлическая пленка. Их вариация приводит к изменению соотношения между магнитостатическим и магнитоупругим механизмами наведенной магнитной анизотропии, которое специфическим образом отражается на анизотропии коэрцитивной силы в пленках типа Ta/Ni или анизотропии поля обменного смещения в пленках типа FeMn/Ni. Отжиг при высоких температурах вызывает межслойную диффузию, подтвержденную как измерениями элементного состава, так и анализом магнитных свойств. Характер этой диффузии и ее влияние на свойства пленок, как и в случае низкотемпературного отжига, зависят от вида пленочной структуры. В пленках Ta/Ni она, вероятно, сводится к ограниченной делокализации слоев и образованию магнитотвердого интерфейса, обуславливающего значительное увеличение коэрцитивной силы образцов в целом. В пленках FeMn/Ni имеет место преимущественная и значительная миграция Mn вплоть до выхода его части на поверхность пленок. Это приводит к увеличению магнитоактивного объема, составляемого твердым раствором Fe–Ni переменного по толщине состава, которое выражается в росте результирующей намагниченности. Но при этом часть Mn остается в рамках системы FeMn, обеспечивая наличие антиферромагнетизма и связанное с ним магнитное смещение.

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ, проект FEUZ-2024-0060.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] D. Sander, S.O. Valenzuela, D. Makarov, C.H. Marrows, E.E. Fullerton, P. Fischer, J. McCord, P. Vavassori, S. Mangin, P. Pirro. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **50**, 36001 (2017). DOI: 10.1088/1361-6463/aa81a1
- [2] B. Lim, M. Mahfoud, P.T. Das, T. Jeon, C. Jeon, M. Kim, T.-K. Nguyen, Q.-H. Tran, F. Terki, C.G. Kim. *APL Mater.*, **10**, 051108 (2022). DOI: 10.1063/5.0087311
- [3] I. Žutic, J. Fabian, S. Das Sarma. *Rev. Mod. Phys.*, **76**, 323 (2004). DOI: 10.1103/RevModPhys.76.323
- [4] Дж. Ханди. *Электронные компоненты*, **3**, 74 (2018).
- [5] K. O'Grady, L.E. Fernandez-Outon, G. Vallejo-Fernandez. *J. Magn. Magn. Mater.*, **322** (8), 883 (2010). DOI: 10.1016/j.jmmm.2009.12.011
- [6] K. O'Grady, J. Sinclair, K. Elphick, R. Carpenter, G. Vallejo-Fernandez, M.I.J. Probert, A. Hirohata. *J. Appl. Phys.*, **128** (4), 040901 (2020). DOI: 10.1063/5.0006077
- [7] D. Xiong, Y. Jiang, K. Shi, A. Du, Y. Yao, Z. Guo, D. Zhu, K. Cao, S. Peng, W. Cai, D. Zhu, W. Zhao. *Fundamental Research*, **2** (4), 522 (2022). DOI: 10.1016/j.fmre.2022.03.016
- [8] В.О. Васьковский, А.Н. Горьковенко, Н.А. Кулеш, В.Н. Лепаловский, П.А. Савин, А.В. Свалов, Е.А. Степанова, Н.Н. Щеголева, А.А. Ювченко. *ЖТФ*, **85** (1), 118 (2015). [V.O. Vas'kovskiy, V.N. Lepalovskij, A.N. Gorkovenko, N.A. Kulesh, P.A. Savin, A.V. Svalov, E.A. Stepanova, N.N. Shchegoleva, A.A. Yuvchenko. *Tech. Phys.*, **60** (1), 116 (2015). DOI: 10.1134/S1063784215010260]
- [9] G.V. Anderson, M. Pakala, Y. Huai. *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 2605 (2000). DOI: 10.1109/20.908530
- [10] M. Takiguchi, S. Ishii, E. Makino, A. Okabe. *J. Appl. Phys.*, **87** (5), 2469 (2000). DOI: 10.1063/1.372204
- [11] S.H. Jang, T. Kang, H.J. Kim, K.Y. Kim. *J. Appl. Phys. Lett.*, **81** (1), 105 (2002). DOI: 10.1063/1.1491605
- [12] R.-T. Huang, F.-R. Chen, J.-J. Kai, W. Kai, I.-F. Tsu, S. Mao. *J. Magn. Magn. Mater.*, **260** (1–2), 28 (2003). DOI: 10.1016/S0304-8853(01)00458-9
- [13] Y.K. Kim, G.-H. Park, S.-R. Lee, S.-H. Min, J.Y. Won, S.A. Song. *J. Appl. Phys.*, **93** (10), 7924 (2003). DOI: 10.1063/1.1540158
- [14] J.S. Kim, S.-R. Lee. *J. Appl. Phys.*, **99**, 08R704 (2006). DOI: 10.1063/1.2172200
- [15] S.W. Kim, J.K. Kim, J.H. Kim, B.K. Kim, J.Y. Lee, S.S. Lee, D.G. Hwang, J.R. Rhee. *J. Appl. Phys.*, **93** (10), 6602 (2003). DOI: 10.1063/1.1557238
- [16] P. Savin, J. Guzmán, V. Lepalovskij, A. Svalov, G. Kurl'yandskaya, A. Asenjo, V. Vas'kovskiy, M. Vazquez. *J. Magn. Magn. Mater.*, **402**, 49 (2016). DOI: 10.1016/j.jmmm.2015.11.027
- [17] К.Г. Балымов, Е.В. Кудюков, В.Н. Лепаловский, Н.А. Кулеш, В.О. Васьковский. *Дефектоскопия*, **7**, 46 (2017).

- [18] K.-Y. Kim, H.-C. Choi, C.-Y. You, J.-S. Lee. *J. Appl. Phys.*, **105**, 07D715 (2009). DOI: 10.1063/1.3068628
- [19] Н.М. Лядов, В.В. Базаров, И.Р. Вахитов, А.И. Гумаров, Ш.З. Ибрагимов, Д.М. Кузина, И.А. Файзрахманов, Р.И. Хайбуллин, В.А. Шустов. *ФТТ*, **63** (10), 1687 (2021). DOI: 10.21883/ФТТ.2021.10.51424.117 [N.M. Lyadov, V.V. Bazarov, I.R. Vakhitov, A.I. Gumarov, Sh.Z. Ibragimov, D.M. Kuzina, I.A. Faizrahmanov, R.I. Khaibullin, V.A. Shustov. *Phys. Solid State*, **63** (10), 1723 (2021). DOI: 10.1134/S1063783421100231]
- [20] K.-C. Chen, Y.H. Wu, K.-M. Wu, J.C. Wu, L. Horng. *J. Appl. Phys.*, **101** (9), 09E516 (2007). DOI: 10.1063/1.2712319
- [21] P. Scherrer. *Nachrichten von der Gesellschaft der Wissenschaften zu Göttingen, Mathematisch-Physikalische Klasse*, **2**, 98 (1918).
- [22] J. Rodríguez-Carvajal. *Phys. B: Condens. Matter*, **192** (1–2), 55 (1993). DOI: 10.1016/0921-4526(93)90108-1
- [23] Н.П. Юркевич, П.Г. Кужир, Р.Л. Тофпенец. *Электронно-микроскопическое исследование структуры кристаллов* (БНТУ, Минск, 2004)
- [24] П.А. Савин, О.А. Аданакова, В.Н. Лепаловский, Е.В. Кудюков, В.О. Васьковский. *Известия РАН. Серия физическая*, **87** (4), 500 (2023). DOI: 10.31857/S0367676522700880 [P.A. Savin, O.A. Adanakova, V.N. Lepalovskij, E.V. Kudyukov, V.O. Vas'kovskiy. *Bull. RAS: Phys.*, **87** (4), 433 (2023). DOI: 10.3103/S1062873822701398]
- [25] A.G. Lesnik. *Induced Magnetic Anisotropy* (Naukova Dumka, Kiev, 1976)
- [26] J.M.D. Coey. *Magnetism and Magnetic Materials* (Cambridge University Press., NY., 2010). DOI: 10.1017/CBO9780511845000
- [27] M. Ekhholm, I.A. Abrikosov. *Phys. Rev. B*, **84**, 104423 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.84.104423
- [28] В.О. Васьковский, А.А. Быкова, А.Н. Горьковенко, М.Е. Москалев, В.Н. Лепаловский. *ЖЭТФ*, **165** (5), 655 (2024). DOI: 10.31857/S0044451024050067
- [29] А.Н. Горьковенко, Н.А. Кулеш, П.А. Панченко, В.О. Васьковский. *Материаловедение*, **7**, 3 (2019). DOI: 10.31044/1684-579X-2019-0-7-3-7 [A.N. Gorkovenko, N.A. Kulesh, P.A. Panchenko, V.O. Vaskovskiy. *Inorg. Mater. Appl. Res.*, **11** (1), 172 (2020). DOI: 10.1134/S2075113320010141]