Магнитооптические свойства многослойных наногетерогенных структур $[(CoFeB)_{60}C_{40}/SiO_2]_{200}$ и $[(CoFeB)_{34}(SiO_2)_{66}/C]_{46}$

Н. Н. Зубарь, * В. В. Гаршин, Е.А. Ганьшина

Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра магнетизма Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

(Статья поступила 30.09.2020; подписана в печать 27.10.2020)

Магнитные свойства в двух многослойных наноструктурах [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ и [(CoFeB)₃₄(SiO₂)₆₆/C]₄₆ с разным содержанием магнитного сплава CoFeB в металл-композитных слоях и инверсным расположением неметаллических фаз С и SiO₂, в композитных слоях или в прослойках, были исследованы магнитооптическими методами. С помощью спектральных и полевых зависимостей экваториального эффекта Керра установлено, что в обеих многослойных наноструктурах магнитооптический отклик и магнитный порядок определяются составом композитных слоев.

В многослойной наноструктуре [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ с послеперколяционным содержанием металлических кластеров максимальные абсолютные значения экваториального эффекта Керра уменьшаются примерно в 2.5 раза по сравнению с чистым аморфным сплавом CoFeB, в то время как вид полевых зависимостей экваториального эффекта Керра в этой многослойной наноструктуре обладает чертами, характерными для мягких ферромагнетиков.

В другой многослойной наноструктуре [(CoFeB)₃₄(SiO₂)₆₆/C]₄₆ с доперколяционным содержанием металлических кластеров в оксидной матрице SiO₂, спектральные зависимости экваториального эффекта Керра принципиально отличаются от экваториального эффекта Керра исходного аморфного сплава CoFeB как по форме, так и по знаку. Полевые зависимости экваториального эффекта Керра этой многослойной наноструктуры носят линейный характер, свойственный для суперпарамагнетиков.

РАСS: 78.20.Ls УДК: 537.6 Ключевые слова: многослойные магнитные наноструктуры, металл-композитные слои, немагнитные прослойки, экваториальный эффект Керра.

введение

Наногетерогенные системы являются перспективными материалами, применяемыми в таком новом направлении, как спинтроника, а также в качестве упрочняющих покрытий и газочувствительных резистивных пленок. С прикладной точки зрения особенно перспективными представляются спин-туннельные магниторезистивные структуры, в которых получены значения гигантского магнитосопротивления свыше 40% при комнатной температуре. На их основе уже созданы экспериментальные образцы датчиков магнитного поля, которые регистрируют поля порядка 10⁻⁶ Э [1], экспериментальные образцы магниторезистивного запоминающего устройства с произвольной выборкой (MRAM magnetoresistive random access memory) и спинового транзистора [2].

В настоящее время интенсивно исследуется вопрос взаимного влияния состава и микроструктуры на магнитные, магнитооптические и магнитотранспортные свойства наногетероструктур. Несмотря на большое количество работ, до сих пор нет достаточной ясности в понимании процессов, сопровождающих структурную перестройку вещества.

В связи с этим актуальными оказываются оптиче-

ские и магнитооптические (MO) методы, позволяющие получить представление о внутренней структуре таких материалов и особенностях магнитного взаимодействия в них. МО-методы являются наиболее простыми, эффективными и информативными, чувствительны к наличию магнитных неоднородностей, к изменению формы и размера частиц, к их объемному распределению и к появлению новых магнитных фаз [3, 4]. МО-методам присуща уникальная особенность — это динамические методики, которые несут отклик электронной системы на модуляцию вектора спонтанной намагниченности, что обеспечивает высокую чувствительность, характерную для всех дифференциальных методик [5].

В данной работе методы МО-спектроскопии были использованы для исследования двух серий мультислойных структур аморфный ферромагнитный металлдиэлектрик с одинаковым атомным составом, но инверсным расположением неметаллических фаз С и SiO₂ в композитных слоях или прослойках.

Свойства гранулированных нанокомпозитов сильно зависят от объемной концентрации ферромагнитного металла в матрице диэлектрика. Так, например, вблизи критической концентрации $X_{\rm nep}$ металла, называемого порогом перколяции происходит переход металлдиэлектрик. Другими словами при $X < X_{\rm nep}$ композит является диэлектриком, а при $X > X_{\rm nep}$ обладает металлической проводимостью. Область перколяции примечательна не только сильным скачком электрического

^{*}E-mail: zubar.nn16@physics.msu.ru

сопротивления, но и тем, что в ней происходит значительное усиление различных эффектов, наблюдаемых в композитных системах, таких как гигантское магнитосопротивление [6], гигантский аномальный эффект Холла [7], МО-эффекты [8, 9] и др.

Пленочные нанокомпозиты могут быть получены напылением на неподвижную подложку (bulk composites) и послойным напылением (deposited layer by layer) тонкими слоями [10].

Исследования МО-свойств объемных нанокомпозитов аморфный металл-диэлектрик с оксидными матрицами, показали, что изменения МО-свойств во всех системах при увеличении концентрации происходят практически одинаково [11, 12]. Спектры экваториального эффекта Керра (ЭЭК) нанокомпозитов всех систем имели подобные частотные зависимости, отличаясь в деталях, а именно, по величине эффекта, а также по положению максимумов и нулевых значений эффекта.

Концентрационное положение максимума в нанокомпозитах аморфный металл-диэлектрик обусловлено геометрическими особенностями композитов, находящихся вблизи порога протекания - минимальной толщиной диэлектрического барьера, через который осуществляется туннелирование поляризованных электронов между ферромагнитными гранулами. Расчеты МО-спектров в различных приближениях эффективной среды показали, что наблюдаемые изменения в МО-спектрах могут быть описаны с использованием оптических и МО-данных для объемных материалов, но с учетом размера и формы частиц. МО-отклик зависит от формы и размера гранул, а его усиление вблизи порога перколяции обусловлено изменениями оптических и МО-параметров при изменении топологии и микроструктуры нанокомпозитов [13].

Вид спектральных кривых ЭЭК существенно изменяется при переходе к послойно напыленным нанокомпозитам [14]. Изменение полевых зависимостей ЭЭК образцов, напыленных послойно, имеет такую же тенденцию, как в объемном гранулированном нанокомпозите — с ростом концентрации X осуществляется эволюция кривых намагничивания от суперпарамагнитного вида к ферромагнитному. Порог перколяции в послойно напыленных композитах сдвигается в область меньших концентраций ферромагнитной фазы.

На МО-свойствах наноструктур существенно сказывается не только концентрация металлической фазы, но и толщина слоев композита. Толщина пленок задается скоростью вращения подложки вокруг распыляемых мишеней [15]. Исследования влияния технологии изготовления нанокомпозитов на их МО-свойства показывают, что система с самыми тонкими слоями должна иметь порог перколяции при наименьшем X из всех исследованных систем, что и наблюдается экспериментально [14].

Сравнение МО-свойств нанокомпозитов в оксидных матрицах и углеродной матрице показало, что вид спектральных и полевых зависимостей ЭЭК зависит от

типа матрицы и сильно различается для матриц SiO₂ и C, что связано с особенностями формирования нанокомпозитов с углеродной матрицей [16].

данной Целью работы было исслелование МО-свойств двух серий многослойных наноструктур (MHC) [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ и $[(CoFeB)_{34}(SiO_2)_{66}/C]_{46}$ с одинаковым атомным составом, но инверсным расположением неметаллических фаз С и SiO₂ в композитных слоях или прослойках и выявление влияния структурных особенностей МНС на их МО-свойства.

1. ПОЛУЧЕНИЕ ОБРАЗЦОВ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

MHC $[(CoFeB)_{60}C_{40}/SiO_2]_{200}$ (1)серия) и [(CoFeB)₃₄(SiO₂)₆₆/C]₄₆ (2 серия) с разными толщинами бислоев 6 и 8 нм и разными общими толщинами были получены на кафедре твердого тела Воронежского государственного технического университета методом ионно-лучевого распыления [17] (с градиентом по толщине слой/прослойка) на ситаловую подложку из двух мишеней, одна из которых состояла из пластины металлического аморфного сплава со вставками из углерода или кварца [18, 19]. Для создания градиента толщины композитных слоев и прослоек между мишенью и подложками устанавливался V-образный экран. В связи с этим, обе МНС были разделены на 3 части и пронумерованы в соответствии с увеличением толщины слой/прослойка 1, 2 и 3 для 1 серии и 23, 33 и 43 для 2 серии. Напыление проводилось в атмосфере Ar при давлении 5×10^{-4} Торр.

В табл. 1 приведены значения номинальных толщин слоев и бислоев МНС, рассчитанных из технологических параметров, и экспериментальные толщины бислоев, полученные из оценки толщины МНС по данным электронной микроскопии.

Структурные особенности данных образцов были исследованы в Воронежском государственном университете с использованием неразрушающих методов рентгеновской дифракции (РД), малоугловой рентгеновской дифракции (МУРД), ультрамягкой рентгеновской эмиссионной спектроскопии (УМРЭС) и инфракрасной (ИК) спектроскопии, моделирования эмиссионных спектров и метода рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) и XANES К-краев Fe и Co [19, 20, 21].

В данной работе для исследования МО-свойств МНС был использован МО-эффект Керра в экваториальной геометрии, который заключается в изменении интенсивности линейно поляризованного света, отраженного образцом, намагниченным перпендикулярно плоскости падения света [5]. Отношение (δ) разности интенсивностей света, отраженного образцом в намагниченном (I) и размагниченном (I_0) состояниях, к ин-

	[(CoFeB) ₆₀ C ₄₀ /SiO ₂] ₂₀₀			[(CoFeB) ₃₄ (SiO ₂) ₆₆ /C] ₄₆		
Номера образцов	1	2	3	23	33	43
Металлокомпозитный слой	3.3	4.0	4.6	5.9	6.4	6.5
Прослойка	1.7	2.0	2.4	1.2	1.4	1.6
Бислой	5	6	7	7.1	7.8	8.1
Толщина бислоя из данных						
по электронной микроскопии	5.44	6.44	6.57	7.35	8.15	8.43

Таблица 1: Номинальные и экспериментальные толщины бислоев (металлокомпозитный слой + прослойка) образцов МНС двух типов (нм)

тенсивности света І0 определяет величину и знак ЭЭК:

$$\delta = (I - I_0)/I_0 = \Delta I/I_0$$

Измерения ЭЭК проводились динамическим методом, при котором исследуемый образец находится в переменном магнитном поле. Чувствительность измерения ЭЭК на данной установке составляет 2×10^{-5} , а погрешность измерений оценивается не более чем в 5%.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для изучения МО-свойств были получены спектральные и полевые зависимости ЭЭК. На рис. 1, 2 представлены спектральные и полевые зависимости ЭЭК для изучаемых 1 и 2 серии МНС.



Рис. 1: Спектральная зависимость ЭЭК аморфных МНС с разными толщинами образцов: [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ — 1, 2 и 3 и [(CoFeB)₃₄(SiO₂)₆₆/C]₄₆ — 23, 33 и 43

Представленные спектральные зависимости 1 и 2 серии показывают, что ЭЭК в них отличается по знаку. При этом максимальные абсолютные значения ЭЭК в МНС примерно в 2.5 раза меньше, чем в пленке аморфного сплава СоFeB. Следует отметить, что знак спектральных зависимостей ЭЭК в обеих МНС соответствует знаку спектральных зависимостей ЭЭК от пленочных композитов $(CoFeB)_x(SiO_2)_{100-x}$ и $(CoFeB)_xC_{100-x}$, идентичных по составу с композитными слоями соответствующих МНС и полученных на той же установке, что и исследуемые МНС (рис. 3 и 4) [16]. Тот факт, что МНС и композиты, составляющие композитные слои МНС, имеют подобные по общему виду спектральные зависимости, позволяет сделать вывод, что в обеих МНС МО-отклик и магнитный порядок определяются композитным слоем.



Рис. 2: Нормированные полевые зависимости ЭЭК аморфных МНС с разными толщинами образцов: [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ — 1, 2 и 3 и [(CoFeB)₃₄(SiO₂)₆₆/C]₄₆ — 23, 33 и 43

На рис. 2 представлены полевые зависимости ЭЭК для 1 и 2 серии, нормированные на величину эффекта в максимальном поле. Поскольку величина ЭЭК пропорциональна намагниченности образца, то изучая зависимость ЭЭК от приложенного магнитного поля, можно судить о том, какой магнитный порядок реализуется в образце.

УЗФФ 2020

Вид полевых зависимостей ЭЭК в 1 серии, также как для послойно напыленных нанокомпозитов (CoFeB) $_x$ C_{100-x} (рис. 5) обладает чертами, характерными для ферромагнетиков. Резкое возрастание намагниченности всех исследуемых образцов (1, 2 и 3) до намагниченности насыщения говорит о том, что данная МНС является магнитомягким материалом с коэрцитивной силой не превышающей нескольких эрстэд. Для образцов (1, 2, 3) наблюдается небольшое различие в величине эффекта. Это различие соотносится с толщиной образцов закономерным образом, эффект растет с увеличением толщины композитного слоя, т.е. с ростом объема ферромагнитной фазы.

Для серии 2 отчетливо видно, что зависимость ЭЭК от величины поля имеет линейный характер, что свойственно материалам с суперпарамагнитным характером намагниченности. В структурах с малой концентрацией ферромагнетика ($X \le 35$ ат.%) металлическая часть нанокомпозита представляет собой отдельные, не взаимодействующие между собой области с поведением, близким к суперпарамагнетику. Для этих МНС мы наблюдаем, что с увеличением толщины композитного слоя модуль величины ЭЭК уменьшается и наибольший отрицательный эффект ЭЭК наблюдается для МНС с наименьшей толщиной композитного слоя (кривая 23 на рис. 1). Толщина слоев влияет на размер и форму ферромагнитных гранул, что, в свою очередь, влияет на МО-свойства. Как показано в работе [14] размер гранул в послойно напыленных образцах меньше, чем характерный размер в объемном композите и вероятность контактов гранул между собой больше при меньших размерах самих гранул. Т.е., для системы с более тонкими слоями порог перколяции сдвигается в область меньших концентраций X, что должно приводить к росту ЭЭК в области отрицательного максимума, что и наблюдается в нашем эксперименте для МНС с матрицей SiO₂ в композитных слоях.

Нормированные на величину эффекта в максимальном поле зависимости ЭЭК(H)/ ЭЭК(H_{макс}) на рис. 2 показывают полное совпадение кривых для образцов с разными толщинами в каждой из двух серий МНС. Этот факт свидетельствует о том, что небольшое изменение толщин образцов не влияет на магнитный порядок, реализуемый в структурах: ферромагнитный в 1 серии и суперпарамагнитный во 2 серии.

Различие в поведении магнитооптических свойств двух МНС хорошо коррелирует с данными структурных исследований.

Ранее, используя методы XANES и EXAFS К-краев поглощения Fe и Co и XPS было установлено, что в 1 серии сохраняются кластеры исходного аморфного сплава CoFeB [20, 21], что коррелирует с данными спектральных зависимостей ЭЭК и объясняет подобие форм спектров MHC 1 серии и исходного сплава.

Также при исследовании структурных особенностей данных образцов [21] было установлено, что обе МНС имеют аморфную структуру, при этом в образце с про-



Рис. 3: Спектральная зависимость ЭЭК для послойно напыленных нанокомпозитов (CoFeB)_x(SiO₂)_{100-x} с различной концентрацией ферромагнитных гранул [16] и аморфного сплава CoFeB



Рис. 4: Спектральная зависимость ЭЭК для послойно напыленных нанокомпозитов (CoFeB)_xC_{100-x} с различной концентрацией ферромагнитных гранул [16] и аморфного сплава CoFeB

слойками из SiO₂ и углеродом в составе композитных слоев, наблюдается лучшая планарность интерфейсов. Используя метод ИК-спектроскопии для 1 серии МНС было подтверждено наличие связей В-С (самая интенсивная мода) и Si-C, относящейся к интерфейсным связям композитный слой/прослойка. Во 2 серии МНС углерод, находясь в прослойках между композитными слоями, значительно меньше взаимодействует с атомами бора композитных слоев, чем в случае МНС с углеродом в композитных слоях.

С помощью метода рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) было обнаружено, что металлические кластеры СоFeB образуют



Рис. 5: Нормированная полевая зависимость ЭЭК для послойно напыленных нанокомпозитов (CoFeB)_x(SiO₂)_{100-x} с различной концентрацией X ферромагнитных гранул [16]



Рис. 6: Нормированная полевая зависимость ЭЭК для послойно напыленных нанокомпозитов (CoFeB)_xC_{100-x} с различной концентрацией ферромагнитных гранул [16]

химические связи, прежде всего на межфазных границах, с элементами окружающей матрицы, преимущественно карбидные/карбо-боридные оболочки в матрице из углерода или преимуществен-

- [1] Tondra M., Wang D., Daughton J. // J. Vacuum Sci. Technol. 1999. N 5.
- [2] Васильева Н.П., Грановский А.Б., Касаткин С.И., Муравьев А. М. // Зарубежная электронная техника. 1995. № 1. С. 32.
- [3] Gan'shina E. A., Granovsky A. B. Gucshin V. S. et.al // Physica A. 1997. 241. P. 45.

но оксидные/окси-боридные/силикатные оболочки в матрице из SiO₂ [21].

В той же работе исследование тонкой структуры XANES К-краев Fe и Co в 1 серии указывает на практически одинаковое локальное окружение атомов разных металлов Co и Fe в результате сохранения в композитных слоях кластеров исходного сплава CoFeB в углеродной матрице, тогда как во 2 серии тонкая структура спектров рентгеновского поглощения Fe и Co различается из-за взаимодействия металлических кластеров с элементами матрицы SiO₂ в композитных слоях этой MHC. Подгонка спектров EXAFS в той же работе подтверждает предположение о сохранении в аморфных композитных слоях кластеров исходного сплава CoFeB в углеродной матрице композитных слоев 1 серии MHC [21].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено исследование МО-свойств двух серий МНС [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ и [(CoFeB)₃₄(SiO₂)₆₆/C]₄₆ с одинаковым атомным составом, но инверсным расположением неметаллических фаз С и SiO₂ в композитных слоях или прослойках и выявлено влияние структурных особенностей МНС на их МО-свойства.

Установлено, что в обеих МНС МО-отклик и магнитный порядок определяются композитным слоем. Показано, что изменение толщины образцов не оказывает существенного влияния на магнитные свойства МНС.

Различие в поведении МО-свойств двух МНС хорошо коррелирует с данными структурных исследований, показавших, что при формировании системы [(CoFeB)₆₀C₄₀/SiO₂]₂₀₀ остаются исходные ферромагнитные кластеры, окруженные соединениями боридов и карбоборидов. Содержания ферромагнитной фазы в ней достаточно для магнитомягкого поведения образцов. Линейный характер зависимости намагниченности от магнитного поля, свойственный суперпарамагнетикам, для МНС с SiO₂ в составе композитного металлосодержащего слоя связан с наличием распространенных в объеме МНС достаточно мелких оксидных, окси-боридных и силикатных соединений переходных металлов и гранул исходного сплава CoFeB, не взаимодействующих между собой.

- [4] Gan'shina, E.A., Granovsky A.B. et.al // J. Magn. Magn. Mater. 2009. 321, N 7. P. 723.
- [5] Krinchik G. S., Gushchin V. S. // JETP. 1969. 29, N 6.
 P. 984.
- [6] Fujimuri H., Mitani S., Ohnuma S. // Mater. Sci. Eng. B. 1995. 13, P. 219.
- [7] Slonczewski J. C. // Phys. Rev. B. 1989. 39. N 10.

- [8] Ganshina E., Granovsky A., Dieny B. et al. // Physica B. 2001. 299, P. 260.
- [9] Akinaga H., Mizuguchi M., Manado T. et al. // J. Magn. Magn. Mat. 2002. 470, P. 242.
- [10] Ivanov A. V., Kalinin Yu. E., Nechaev V. N. et al. // Physics of the Solid State. 2009. 51. P. 2474.
- [11] Буравцова В.Е., Ганьшина Е.А., Гущин В.С. и др. // Изв РАН, сер. физ. 2003. **67**, № 7. С. 918.
- [12] Buravtsova V. E., Guschin V. S., Kalinin Y. E. et al. // CEJP 2004. 2, N 4. P. 566.
- [13] Gan'shina E.A., Vashuk M.V., Vinogradoy A.N. // JETP. 2004. 98, N 5. P. 1027.
- [14] Buravtsova V., Ganshina E., Kirov S. et al. // Materials Sciences and Applications. 2013. 4, N 4A. P. 16.
- [15] Домашевская Э. П., Буйлов Н. С., Терехов В.А. и др. //

ΦΤΤ. 2017. **59**, № 1. C. 161.

- [16] Gan'shina E., Garshin V. et.al // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2019. 470. P. 135.
- [17] Stognei O. V., Kalinin Yu. E., Zolotukhin I. V. et al.
 // J. Phys.: Condens. Matter. 2003. 15. P. 4267. doi.org/10.1088/0953-8984/15/24/320
- [18] Стогней О.В., Ситников А.В. // ФТТ. 2010. 52, № 12. С. 2356.
- [19] Дунец О. В., Калинин Ю. Е., Каширин М. А., Ситников А. В. // ЖТФ. 2013. **83**, вып. 9.
- [20] Домашевская Э. П., Буйлов Н. С., Терехов В. А. et al. // Неорганические материалы. 2017. 51, № 9. С. 950.
- [21] Домашевская Э. П., Ситников А. В., Лукин А. Н. и др. // Неорганические материалы. 2018. **54**, № 2. С. 153.

Magneto-optical properties of multilayer nanoheterogeneous structures $[(CoFeB)_{60}C_{40}/SiO_2]_{200}$ and $[(CoFeB)_{34}(SiO_2)_{66}/C]_{46}$

N. N. Zubar^a, E. A. Gan'shina, V. V. Garshin

Department of Magnetism, Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia E-mail: ^azubar.nn16@physics.msu.ru

Magnetic properties in two multilayer nanostructures $[(CoFeB)_{60}C_{40}/SiO_2]_{200}$ and $[(CoFeB)_{34}(SiO_2)_{66}/C]_{46}$ with different contents of the CoFeB magnetic alloy in metal-composite layers and an inverted arrangement of nonmetallic phases C and SiO₂, in composite layers or in interlayers were investigated by magneto-optical methods. Using the spectral and field dependences of the transverse Kerr effect (TKE), it was found that in both MNSs the magneto-optical response and magnetic order are determined by the composition of the composite layers. In the MNS $[(CoFeB)_{60}C_{40}/SiO_2]_{200}$ with a post-percolation content of metal clusters, the maximum absolute values of the TKE decrease by about 2.5 times in comparison with the pure amorphous CoFeB alloy, while the form of the field dependences of the TKE in this MNS has features characteristic of soft ferromagnets. In another MNS $[(CoFeB)_{34}(SiO_2)_{66}/C]_{46}$ with a pre-percolation content of metal clusters in the SiO₂ oxide matrix, the TKE spectral dependences fundamentally differ from the TKE of the initial amorphous CoFeB alloy both in shape and sign. The field dependences of the TKE of the initial amorphous CoFeB alloy both in shape and sign.

PACS: 78.20.Ls

Keywords: multi-layer magnetic nanostructure, metal-composite Layers, non-magnetic layers, equatorial effect of time. Received 30 September 2020.

Сведения об авторах

1. Зубарь Николай Николаевич — студент; e-mail: zubar.nn16@physics.msu.ru.

- 2. Гаршин Владимир Валентинович аспирант; e-mail: irving.lambert@mail.ru.
- 3. Ганьшина Елена Александровна доктор физ.-мат. наук, профессор, вед. науч. сотрудник; e-mail: eagan@mail.ru.