

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 537.622.4:539.213.27:53.096:53.098

СВОЙСТВА АНСАМБЛЕЙ ПЕРИОДИЧЕСКИХ МИКРОЭЛЕМЕНТОВ НА ОСНОВЕ ПЛЕНОК ПЕРМАЛЛОЯ

© 2022 г. А. В. Свалов^а, Н. А. Бузников^б, Г. Ю. Мельников^{а, *}, С. М. Багат^с,
А. Ларраньяга^д, Г. В. Курляндская^{а, д}

^аУральский федеральный университет, ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002 Россия

^бНаучно-исследовательский институт природных газов и газовых технологий – Газпром ВНИИГАЗ,
Развилка, Московская обл., 142717 Россия

^сУниверситет Мерленда, Колледж Парк, 20742 США

^дУниверситет Страны Басков, Лейоа, 48940 Испания

*e-mail: grisha2207@list.ru

Поступила в редакцию 22.10.2021 г.

После доработки 09.11.2021 г.

Принята к публикации 13.11.2021 г.

Были разработаны, получены и экспериментально исследованы тонкие пленки FeNi толщиной 100 нм и ансамбли периодических квадратных микроэлементов (размеры отдельных элементов 50, 70 и 300 мкм), расположенных в одной плоскости. Сравнительно анализируются структура, статические магнитные свойства и особенности ферромагнитного резонанса пленочных ансамблей, созданных методом ионно-плазменного распыления с использованием масок. Предполагается, что подобные магнитные структуры могут входить в состав многослойных сенсорных элементов с высоким гигантским магнитным импедансом, повышая их чувствительность к магнитному полю.

Ключевые слова: ионно-плазменное распыление, пленки пермаллоя, ансамбли микроэлементов, магнитные свойства, ферромагнитный резонанс, магнитный импеданс, магнитные сенсоры

DOI: 10.31857/S001532302207018X

ВВЕДЕНИЕ

Магнитные свойства и особенности процессов намагничивания пленочных элементов привлекают к себе особое внимание как с точки зрения фундаментальных вопросов магнетизма, связанных с особенностями процессов их перемагничивания, так и с точки зрения практических приложений наноматериалов в виде пленочных структур [1, 2]. Одно из таких приложений – магнитная запись информации, высокая плотность которой достигается при использовании массива упорядоченных однодоменных ферромагнитных наночастиц, полученных на основе тонкой пленки [3]. Ранее процессы перемагничивания массива частиц пермаллоя квадратной формы, сформированных на поверхности стеклянной подложки, исследовали с точки зрения влияния механических напряжений [4]. Авторы использовали медную сетку в качестве маски. Размер ячеек составлял или 25×25 мкм (расстояние между квадратами 8 мкм), или 8×8 мкм (расстояние между квадратами 5.5 мкм). Толщина пленок в различных сериях варьировалась от 20 до 50 нм. Одним из наиболее востребованных приложений пленочных элементов являются детекторы слабых маг-

нитных полей, применяемые в автоматических системах, устройствах неразрушающего контроля, биосенсорах и т.д. Среди различных эффектов, используемых для создания детекторов слабых полей, следует особо упомянуть гигантский магнитный импеданс (ГМИ) [5]. Наиболее детально исследованы симметричные пленочные ГМИ-элементы [6, 7], хотя известны и экспериментальные, и теоретические работы для случаев несимметричных ГМИ-структур типа ферромагнетик/проводник/ферромагнетик. Ферромагнитные слои магнитомягких материалов в несимметричных ГМИ-структурах до и после проводящего слоя могут отличаться друг от друга [8, 9].

Существующие методы синтеза магнитных материалов позволяют получать пленочные структуры с периодическим рельефом, глубина которого сравнима с толщиной магнитной пленки (профилированные структуры). Подобные материалы могут быть использованы в качестве магнитных кристаллов [10], либо сенсорных элементов слабых магнитных полей. В недавно опубликованной теоретической работе [11] было показано, что создание периодической ферромагнитной многослойной структуры над проводящим централь-

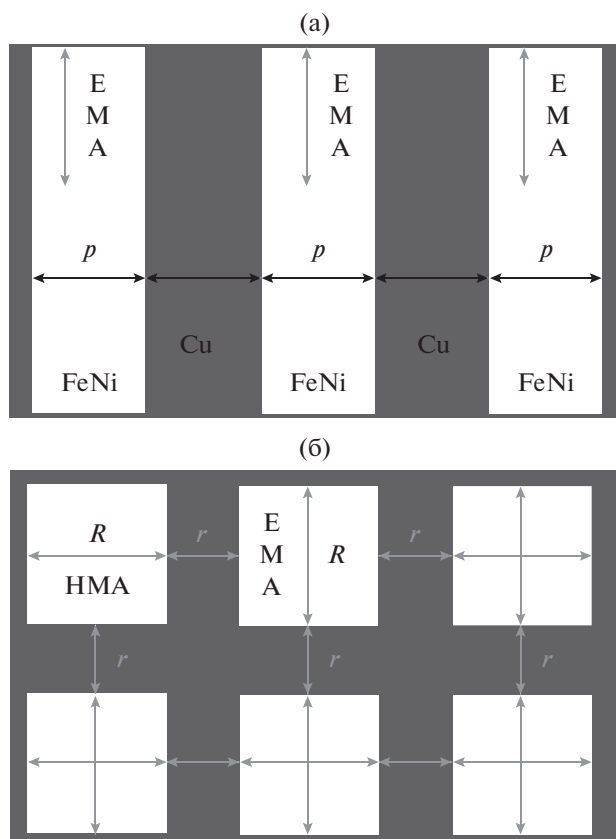


Рис. 1. Схематическое изображение профилированной пленочной структуры в виде прямоугольных элементов, расположенных на медном токовом слое (а). Схематическое изображение ансамбля периодических квадратных микроэлементов на основе пленок пермаллоя. R – размер сторон квадратных микроэлементов; r – расстояние между ближайшими элементами; ЕМА – ось легкого намагничивания, НМА – ось трудного намагничивания (б).

ным слоем ГМИ элемента может привести к формированию поперечной магнитной анизотропии и повышенным, по сравнению с симметричной структурой, значениям динамической магнитной проницаемости таких элементов. Высказывали предположение о том, что такие материалы могут играть важную роль при магнитном детектировании полей рассеяния магнитных наночастиц в составе биокмозитов. Модельные расчеты эффекта ГМИ в структурах с профилированной верхней частью над проводящим центральным медным слоем проведены для случаев с различными геометрическими параметрами профилированной части (рис. 1а), представляющей собой периодическую микроструктуру в виде массива параллелепипедов с периодом p , созданную на основе многослойной пленки с теми же параметрами, что и структура, расположенная под проводящим слоем. При этом длина отдельного парал-

лелепипеда совпадала с шириной всего пленочного элемента [11].

Создание ГМИ-профилированных пленочных структур с высокой динамической магнитной проницаемостью – это сложная технологическая задача, поскольку речь идет о контроле целого ряда геометрических параметров, влияющих на особенности эффективной магнитной анизотропии на мезо-, микро- и наномасштабах в случае общего размера прямоугольного ГМИ-элемента, размеров элементов ячеек ансамбля и толщины различных слоев и прослоек. При этом, ввиду важности скин-эффекта для получения высокой чувствительности эффекта ГМИ при частотах ниже 50 МГц, общая толщина каждой из трех основных составляющих структуры типа ферромагнетик/проводник/ферромагнетик обычно близка к 0.5 мкм, а толщина магнитных субслоев многослойной пленочной структуры находится в интервале от 25 до 170 нм [2, 6, 8].

Целью настоящей работы является сравнительное исследование структуры и магнитных свойств и особенностей ФМР тонких пленок пермаллоя и ансамблей периодических квадратных микроэлементов на основе пленок FeNi.

ОБРАЗЦЫ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

Пленочные структуры двух основных типов (сплошные однослойные пленки и ансамбли периодических квадратных микроэлементов на основе пленок FeNi) были получены методом ионно-плазменного распыления сплавной мишени Fe₂₀Ni₈₀ на стеклянные подложки (Corning glass). Состав пленок был близок к составу мишени. Во время получения образцов для создания наведенной магнитной анизотропии использовали внешнее технологическое магнитное поле величиной 250 Э, которое создавали системой постоянных магнитов и ориентировали в плоскости подложки. При получении образцов использовали следующие технологические параметры: предварительный вакуум в системе составлял 1×10^{-7} мбар, рабочее давление Ag составляло 3.8×10^{-7} мбар. Ансамбли периодических квадратных микроэлементов на основе пленок FeNi получали с помощью медных масок в виде сеток, обеспечивающих получение образцов с различными размерами как самих микроэлементов (R – сторона квадрата), так и расстояния между ними (r) (рис. 1б).

Для обоснованного выбора толщины квадратных микроэлементов первоначально были получены образцы и исследованы свойства однослойных пленок FeNi различной толщины (табл. 1). Структуру образцов исследовали с помощью рентгенофазового анализа. Экспериментальные данные были получены с помощью дифрактометра

DISCOVER D8 (Bruker) в режиме 40 кВ – 40 мА в CuK_α излучении (длина волны $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$). Средний размер зерна рассчитывали по известной методике Шеррера [12].

Магнитные свойства и особенности магнитной доменной структуры при перемагничивании в плоскости пленочных образцов (как вдоль оси легкого намагничивания (ЕМА), так и вдоль оси трудного намагничивания (НМА)) исследовали с помощью Evisio Керр микроскопа, работающего с использованием магнитооптического эффекта Керра (МОКЕ). В результате анализа формы петель магнитного гистерезиса определены значения коэрцитивной силы (H_c) для всех образцов.

Исследования ферромагнитного резонанса (ФМР) проводили с помощью стандартной методики гомодинного детектирования в прямоугольном резонаторе при фиксированной частоте $f = 9.95 \text{ ГГц}$. Подробное описание данной методики дано в наших предыдущих работах [13, 14]. При приложении внешнего магнитного поля H в плоскости пленки величину поля ФМР обозначали как H_{\parallel} , что соответствовало углу $\alpha = 0^\circ$. При приложении внешнего поля вдоль направления, перпендикулярного плоскости пленки, величину поля ФМР обозначали как H_{\perp} , что соответствовало углу $\alpha = 90^\circ$. На основе величин H_{\parallel} и H_{\perp} по известной формуле рассчитывали значения эффективной намагниченности $4\pi M_{\text{eff}}$ [14]. Особенности микроволнового поглощения P , как и остальные свойства пленочных структур исследовали при комнатной температуре без применения модуляции. Под шириной пика ФМР понимали ширину линии ФМР (ΔH) на половине высоты при измерении функции $P(H)$.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Для экспериментального определения оптимальной толщины пленочных структур были получены однослойные пленки FC1–FC6. Результаты их магнитных и микроволновых исследований показаны на рис. 2. Хорошо видно, что для толщин меньше 200 нм величина H_c почти не меняется, соответствуя типичной коэрцитивной силе магнитомягких пленок пермаллоя. При толщинах выше 200 нм наблюдается переход в “закритическое” состояние [15, 16], сопровождающийся ростом H_c . Однако анализ ширины линии ФМР показал, что ее увеличение происходит при еще более низких толщинах: резкий скачок наблюдается для толщин выше 100 нм. Поэтому толщину $t = 100 \text{ нм}$ и использовали для получения ансамблей квадратных микроэлементов на основе пленок FeNi.

На рис. 3 показаны результаты структурных исследований пленочных образцов. Во всех случаях наблюдали дифрактограмму, соответствующую

Таблица 1. Геометрические параметры исследованных пленочных структур

Структура	Тип	Толщина t , нм	R , мкм	r , мкм
FC1	Пленка	25	—	—
FC2	Пленка	50	—	—
FC3	Пленка	100	—	—
FC4	Пленка	125	—	—
FC5	Пленка	200	—	—
FC6	Пленка	400	—	—
F	Пленка	100	—	—
PF1	Ансамбль	100	50	20
PF2	Ансамбль	100	70	30
PF3	Ансамбль	100	300	20

щую гранецентрированную кубическую решетке, с интенсивным пиком (111) и слабовыраженным пиком (200). Интенсивность пика (111) в случае F (образцы, подготовленные без масок) наиболее ярко выражена, указывая на существование острой кристаллографической текстуры. При этом средний размер зерна для пленки F составил примерно $30 \pm 5 \text{ нм}$, а для всех ансамблей эта величина близка к $20 \pm 3 \text{ нм}$.

На рис. 4 показаны МОКЕ петли магнитного гистерезиса, измеренные вдоль направления, совпадающего с направлением технологического по-

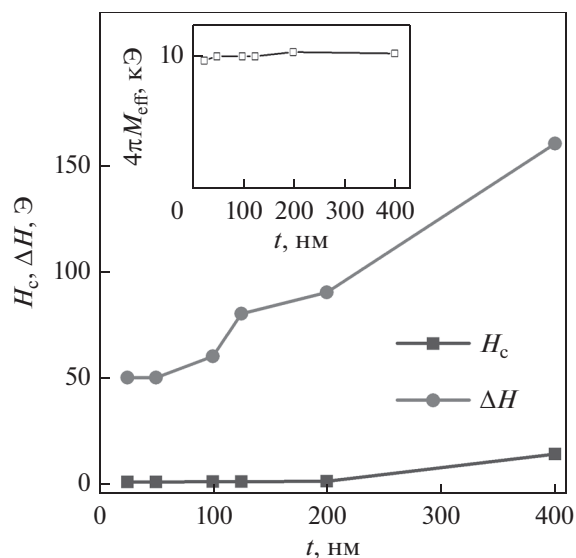


Рис. 2. Зависимость коэрцитивной силы H_c и ширины линии ФМР, измеренной для частоты $f = 9.95 \text{ ГГц}$ для пленок FeNi различной толщины t . На вставке показана зависимость эффективной намагниченности $4\pi M_s$ от толщины, рассчитанная из данных полей ФМР при приложении внешнего поля в плоскости пленки и перпендикулярно ей.

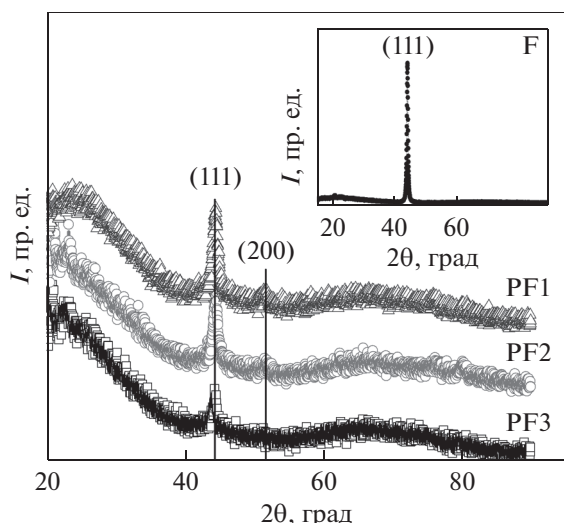


Рис. 3. Результаты рентгенофазового анализа ансамблей квадратных микроэлементов FeNi. На вставке показаны результаты рентгенофазового анализа непрофилированной пленки F.

ля, используемого во время напылений, и в направлении, ему перпендикулярном. Условно эти направления называются ЕМА и НМА соответственно. Как и следовало ожидать, непрофилированная пленка пермаллоя представляет собой магнитомягкий ферромагнетик с хорошо выраженной одноосной магнитной анизотропией и низкой $H_c \approx 2$ Э. Для ансамблей микроэлементов наблюдается зависимость параметров петель гистерезиса от линейного размера единичного элемента. В частности, при увеличении R наблюдается: 1) снижение степени прямоугольности петли магнитного гистерезиса и некоторое увеличение H_c при перемагничивании вдоль ЕМА; 2) изменение формы петли гистерезиса при перемагничивании вдоль НМА, что свидетельствует о переходе от перемагничивания путем чистого вращения к более сложным схемам перемагничивания; 3) идентичности направлений ЕМА-НМА при перемагничивании ансамбля PF3. Все это свиде-

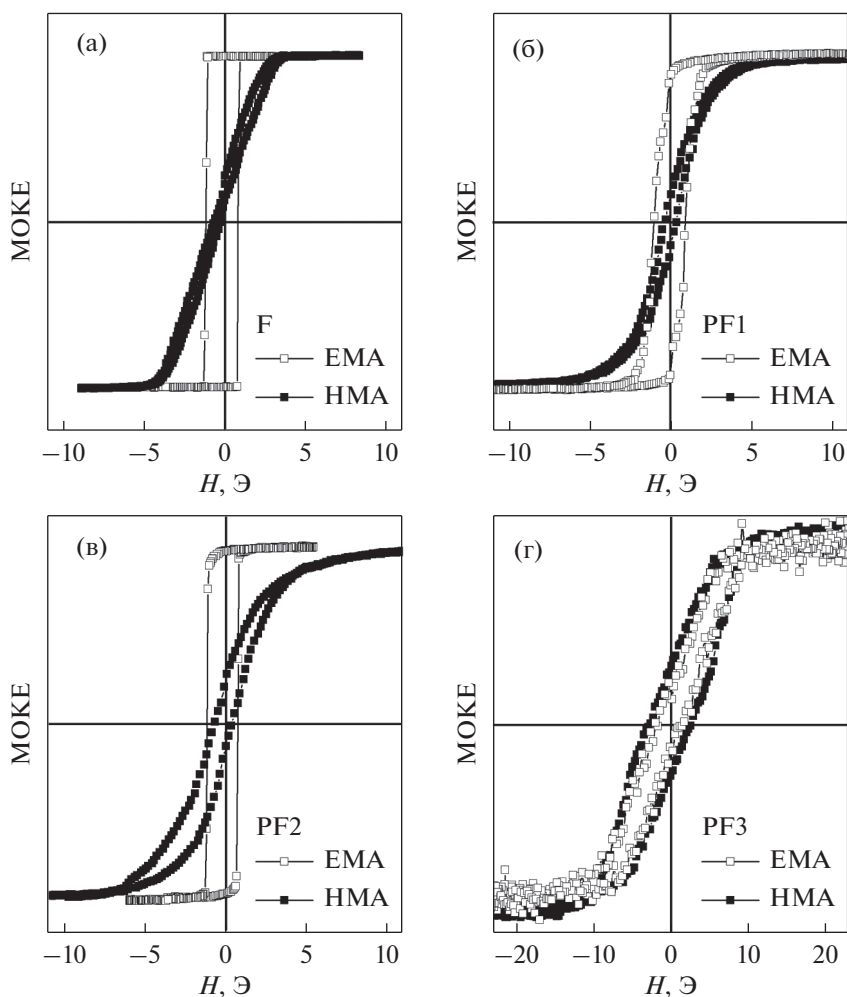


Рис. 4. Петли магнитного гистерезиса, измеренные вдоль и поперек направления, совпадающего с направлением технологического поля, используемого во время напылений: (а) непрофилированная пленка F; ансамбли квадратных микроэлементов FeNi (б) PF1, (в) PF2, (г) PF3.

тельствует о влиянии размеров элементов на особенности эффективной магнитной анизотропии ансамбля элементов.

На рис. 5 показаны некоторые особенности магнитной доменной структуры пленки *F* и ансамблей квадратных микроэлементов FeNi. Полученные изображения элементов позволяют оценить особенности их формы. Геометрические параметры элементов хорошо совпадают с параметрами, оцененными на основе размеров масок. В то же самое время видно, что форма образцов PF2 несколько отличается от квадратной – углы срезаны.

Во всех случаях внешнее магнитное поле было приложено в плоскости пленочных образцов. Хотя экспериментальные данные были получены в интервале внешних полей от +30 до –30 Э, на рис. 5 приводятся лишь наиболее важные характерные изображения в малом положительном, близком к нулю и в малом отрицательном полях, отражающие основные особенности процессов перемагничивания. Прежде всего следует отметить, что наблюдаемые особенности процессов перемагничивания во всех случаях хорошо согласуются с особенностями магнитооптических петель гистерезиса. Для пленки *F* перемагничивание вдоль ЕМА рис. 5а–5в происходит путем смещения доменных границ, а вдоль НМА преимущественно путем вращения вектора спонтанной намагниченности (рис. 5г–5е). Для ансамблей PF1 (рис. 5ж–5и) и PF2 (рис. 5н–5п) перемагничивание вдоль ЕМА осуществляется путем смещения границ полосовых доменов. Перемагничивание вдоль НМА для PF1 (рис. 5к–5м) приводит к формированию сложных замкнутых конфигураций с образованием классической 4-доменной структуры, с одинаковыми по размерам доменами, ранее наблюдаемой для частиц пермаллоя близких размеров [4].

Следует отметить, что в случае перемагничивания вдоль НМА для PF2-структур (рис. 5р–5т) возникают более сложные доменные конфигурации, подобные магнитному вихрю. Однако последнее отличие может быть связано не только с небольшим различием в размерах, но и в форме элементов (для PF2-структур элементы имеют закругленные края), это изменяет вклад анизотропии формы в величину полной энергии отдельного элемента.

Для ансамбля PF3, как и следовало ожидать, принимая во внимание особенности петель гистерезиса (рис. 4г), перемагничивание вдоль ЕМА и НМА осуществляется похожим образом, в основном, путем смещения доменных границ (рис. 5у–5щ). При этом возникающая доменная структура характеризуется наличием границ разной градусности. Подробное исследование с применением модельных расчетов будет следующим этапом работы.

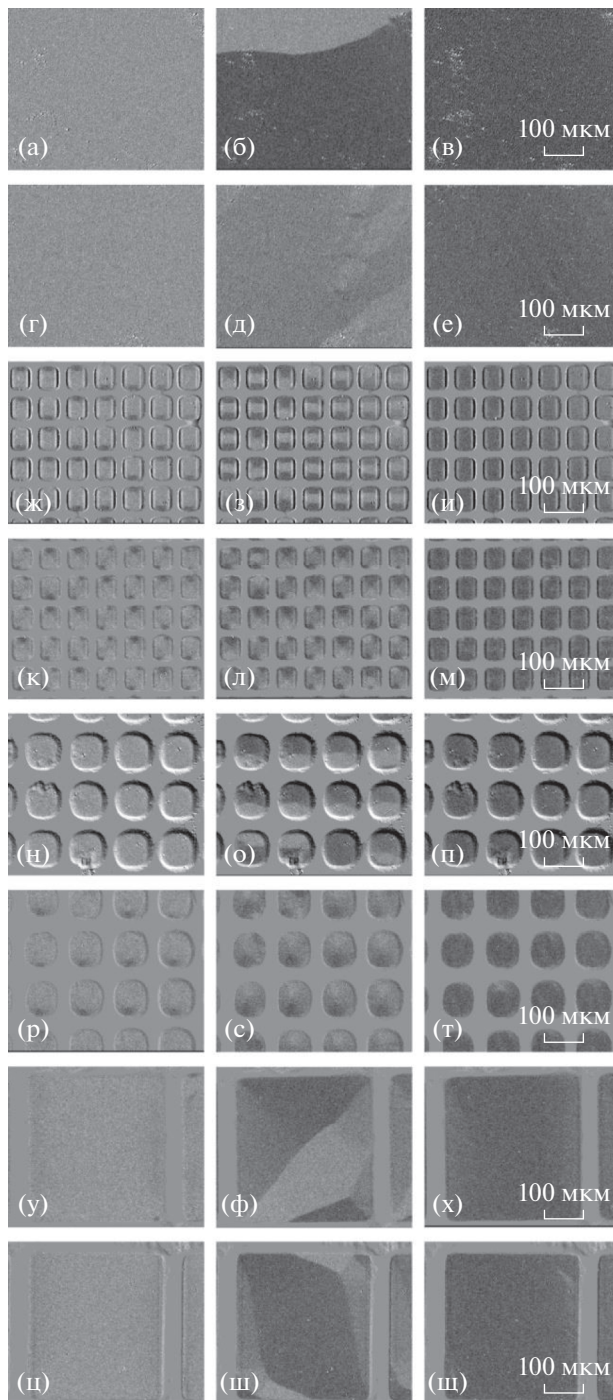


Рис. 5. Особенности магнитной доменной структуры в пленочных образцах FeNi толщиной 100 нм (см. табл. 1). Внешнее магнитное поле приложено в плоскости пленки, в направлении вдоль длинной стороны изображения. (а–в) *F* вдоль ЕМА и (г–е) вдоль НМА; PF1 (ж–и) вдоль ЕМА и (к–м) вдоль НМА; PF2 (н–п) вдоль ЕМА и (р–т) вдоль НМА; PF3 (у–х) вдоль ЕМА и (ц–щ) вдоль НМА. В левом столбце показаны данные для небольших положительных полей, в среднем столбце данные для полей, близких к нулевому, а в правом столбце для небольших отрицательных полей.

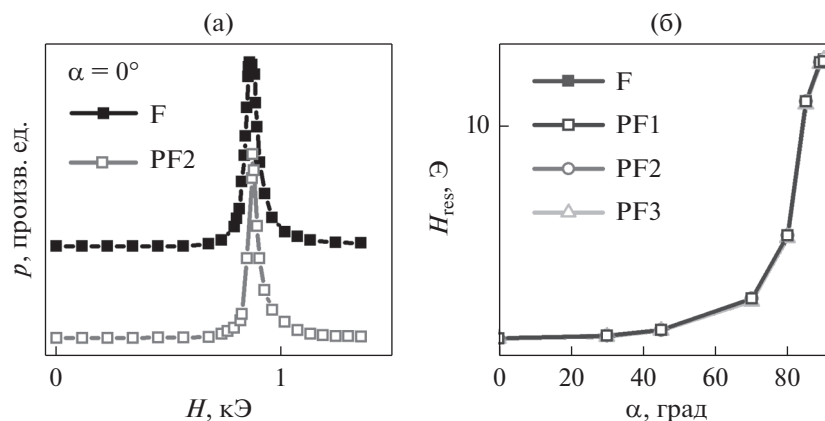


Рис. 6. Особенности линий ферромагнитного резонанса, измеренного на частоте $f = 9.95$ ГГц для пленочных образцов F и PF2 FeNi при толщине $t = 100$ нм и ориентации внешнего поля в плоскости пленки (а). Угловые зависимости поля ФМР (H_{res}) при приложении внешнего поля в интервале углов от положения в плоскости пленки ($\alpha = 0^\circ$) и перпендикулярно ей.

На рис. 6 представлены результаты микроволновых исследований. В качестве примера приведены полевые зависимости микроволнового поглощения, позволяющие сравнить формы ФМР-спектров для пленки и ансамбля PF2 при $\alpha = 0^\circ$ (рис. 5а). Все значимые параметры (H_{\parallel} , H_{\perp} , ΔH , $4\pi M_{\text{eff}}$) как для пленки, так и для ансамблей всех типов близки друг к другу и значениям, типичным для пленок пермаллоя состава $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ с близкой к нулю величиной константы магнитострикции и данной толщины [14, 17].

Поскольку ФМР характеристики полученных ансамблей элементов оказались очень близкими к характеристикам сплошной пленки, то можно ожидать, что их применение в профилированных пленках в ГМИ конфигурации “ферромагнетик/проводник/ферромагнетик” окажется эффективным. При этом ансамбли с размером элементов 50 мкм и 70 мкм кажутся наиболее перспективными, так как обладают особенностями магнитной анизотропии, близкими к востребованным для ГМИ сенсорных элементов. Помимо желаемых электродинамических характеристик, подобные наноматериалы обладают повышенной величиной площади эффективной поверхности, широко востребованной в биодетектировании.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе предложены, получены и сравнительно экспериментально исследованы магнитные наноматериалы: тонкие пленки FeNi и ансамбли периодических квадратных микроэлементов (размеры стороны квадрата 50, 70 и 300 мкм). Показано, что структура и микроволновые свойства ансамблей элементов близки друг к другу и к свойствам сплошных пленок пермаллоя. Предполагается, что магнитные структуры с размером

стороны квадратного элемента 50 и 70 мкм наиболее перспективны для проведения дальнейших исследований для последующего использования в составе многослойных ГМИ-элементов, повышая их чувствительность к внешнему магнитному полю.

Результаты были получены в рамках выполнения государственного задания Минобрнауки России FEUZ-2020-0051. Отдельные измерения были выполнены с помощью SGIKER UPV/EHU.

Авторы подтверждают отсутствие конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hubert A., Rührig M. Micromagnetic analysis of thin-film elements (invited) // *J. Appl. Phys.* 1991. V. 69. P. 6072–6077.
2. Kurlyandskaya G.V., Elbaile L., Alves F., Ahamada B., Barrué R., Svalov A.V., Vas'kovskiy V.O. Domain structure and magnetization process of a giant magneto-impedance geometry FeNi/Cu/FeNi(Cu)FeNi/Cu/FeNi sensitive element // *J. Phys.: Condens. Matter.* 2004. V. 16. P. 6561–6568.
3. Sendur K., Challener W. Patterned medium for heat assisted magnetic recording // *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 94. P. 032503-3.
4. Нургазизов Н.И., Бизяев Д.А., Бухараев А.А., Русских И.В., Садчиков Ю.В. Использование планарных пермалловых микрочастиц для детектирования механических напряжений // *ЖТФ.* 2019. Т. 89. № 11. С. 1663–1668.
5. Panina L.V., Mohri K., Uchiyama T., Noda M., Bushida K. Giant magneto-impedance in co-rich amorphous wires and films // *IEEE Trans. Magn.* 1995. V. 31. № 2. P. 1249–1260.
6. Васильковский В.О., Савин П.А., Волчков С.О., Леполовский В.Н., Букреев Д.А., Бучкевич А.А. Эффекты наноструктурирования в магнитомягких пленках и

- пленочных элементах с магнитным импедансом // ЖТФ. 2013. Т. 83. С. 110–116.
7. *Correa M.A., Bohn F., Chesman C., da Silva R.B., Viegas A.D.C., Sommer R.L.* Tailoring the magneto-impedance effect of NiFe/Ag multilayer // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2010. V. 43. P. 295004–7.
 8. *Kurlyandskaya G.V., Chlenova A.A., Fernández E., Lodewijk K.J.* FeNi-based flat magnetoimpedance nanostructures with open magnetic flux: New topological approaches // *J. Magn. Magn. Mater.* 2015. V. 383. P. 220–225.
 9. *Бузников Н.А., Свалов А.В., Курляндская Г.В.* Влияние параметров многослойных пленочных структур на основе пермаллоя на чувствительность эффекта магнитного импеданса // *ФММ.* 2021. Т. 122. № 3. С. 241–247.
 10. *Никитов С.А., Калябин Д.В., Лисенков И.В., Славин А.Н., Барабаненков Ю.Н., Осокин С.А., Садовников А.В., Бегинин Е.Н., Морозова М.А., Шаревский Ю.П., Филимонов Ю.А., Хивинцев Ю.В., Высоцкий С.Л., Сахаров, В.К. Павлов Е.С.* Магнетика – новое направление спинтроники и спинволновой электроники // *Успехи физ. наук.* 2015. Т. 185. № 10. С. 1099–1128.
 11. *Бузников Н.А., Курляндская Г.В.* Магнитный импеданс периодических частично профилированных многослойных пленочных структур // *ФММ.* 2021. Т. 122. № 8. С. 809–815.
 12. *Scherrer P.* Bestimmung der Grosse und der Inneren Struktur von Kolloidteilchen Mittels Rontgenstrahlen // *Nachr. Ges. Wiss. Göttingen.* 1918. V. 26. P. 98–100.
 13. *Kurlyandskaya G.V., Bhagat S.M., Luna C., Vazquez M.* Microwave absorption of nanoscale CoNi powders // *J. Appl. Phys.* 2006. V. 99. P. 104308–6.
 14. *Kurlyandskaya G.V., Bhagat S.M., Svalov A.V., Fernandez E., Garcia-Arribas A., Barandiaran J.M.* FeNi-based film nanostructures for high frequency applications: design and characterization // *Solid State Phenom.* 2011. V. 168–169. P. 257–260.
 15. *Sugita Y., Fujiwara H., Sato T.* Critical thickness and perpendicular anisotropy of evaporated permalloy films with stripe domains // *Appl Phys. Lett.* 1967. V. 10. P. 229–232.
 16. *Свалов А.В., Курляндская Г.В., Хаммер Н., Савин П.А., Тутынина О.И.* Изменение “закритического” состояния пленок $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Cu}_5\text{Mo}_4$, полученных радиочастотным напылением // *ЖТФ.* 2004. Т. 74. № 7. С. 62–65.
 17. *Farle M.* Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers // *Reports on Progress in Physics.* 1998. V. 61. P. 755–826.