

08 Концентрационные зависимости параметров ферромагнитного резонанса и структура композитных пленок (CoFeB+SiO₂+N₂), полученных в атмосфере азота

© В.А. Устюгов¹, Л.Н. Котов¹, П.Д. Ковалев¹, Ю.Е. Калинин², А.В. Ситников²

¹ Сыктывкарский государственный университет,
Сыктывкар, Россия

² Воронежский государственный технический университет,
Воронеж, Россия

E-mail: ustyugovva@gmail.com

Поступила в Редакцию 30 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 28 октября 2024 г.

Принята к публикации 30 октября 2024 г.

Приведены результаты статистического анализа изображений магнито-фазового контраста композитных пленок (CoFeB+SiO₂+N₂), напыленных в атмосфере азота. Показана связь структурных особенностей (распределение гранул по эффективному размеру) с концентрацией металлического сплава. Приведены данные по концентрационным зависимостям положения и ширины линии ферромагнитного резонанса. С помощью математической модели показана связь структурных и магнитных характеристик исследуемых композитных пленок. Обнаружен структурный фазовый переход при понижении температуры от 300 до 77 К для пленок с концентрацией металлического сплава $x = 0.45$.

Ключевые слова: композитные металл-диэлектрические пленки, гранулярно-перколяционная структура, ферромагнитный резонанс, статистический анализ.

DOI: 10.61011/FTT.2024.12.59582.6516PA

Гранулированные композитные пленки привлекают большое внимание научных исследователей благодаря обширному спектру их применений (нелинейные фильтры, спинтроника и т.д.) и широким возможностям в области математического и компьютерного моделирования электромагнитных и структурных свойств в рамках приближения микромагнетизма [1–5]. Однако построение структурных моделей гранулированных металл-диэлектрических композитных пленок, позволяющих описывать их как сплошные среды [3], обычно сопряжено со сложностями определения статистических распределений геометрических параметров гранул в составе пленки, особенно при высоких концентрациях металлического сплава. Важнейшим вопросом в области поиска новых составов и возможных приложений магнитных композитных пленок является исследование взаимосвязи структурных статистических параметров пленок и их сверхвысокочастотных магнитных характеристик. В настоящей работе исследованы параметры структуры композитных гранулированных пленок состава (CoFeB+SiO₂+N₂) с толщинами 1.0–2.1 мкм и с концентрациями металлического сплава $x = 0.39–0.59$, изготовленных методом ионно-лучевого напыления в атмосфере аргона с давлением 0.24 Па с добавлением азота с давлением 0.035 Па. При бомбардировке ионами аргона мишеней металлического сплава Co₄₁Fe₃₉B₂₀ и диэлектрика SiO₂ осуществлялось напыление композитных пленок на листы лавсана размером 210 × 297 мм². Толщины и химический состав образцов определялись

с помощью сканирующего электронного микроскопа TESCAN MIRA3. Исследование рельефа поверхности и магнитной структуры поверхности пленок осуществлялось с помощью атомно-силового микроскопа NTEGRA PRIMA (NT-MDT, Россия). Спектры ферромагнитного резонанса (ФМР) пленок были получены на радиоспектротометре РЭ-1306 на частоте переменного поля 9.4 GHz. Постоянное магнитное поле было направлено перпендикулярно переменному магнитному полю и лежало в плоскости пленки.

В работе [6], показано, что наличие азота, применяемого в процессе напыления приводит к появлению в объеме пленки включений немагнитных нитридов, а также к изоляции магнитных гранул из-за образования азотных пор. Последнее обстоятельство приводит к большей устойчивости гранулярной структуры пленок в широком интервале концентраций x , что упрощает внутреннюю структуру пленок и, следовательно, разработку теоретической модели связи структурных и магнитных характеристик для данного химического состава. Химический состав исследуемых образцов приведен в таблице. Во всех образцах сохраняется близкое соотношение концентраций кобальта и железа также, как и для мишени, что говорит о качественном изготовлении пленок. Отметим также, что концентрация атомов азота с ростом концентрации металлического сплава не возрастает, что может свидетельствовать об отсутствии нитридов в веществе пленки. Адсорбированный азот обуславливает наличие пор между металлическими

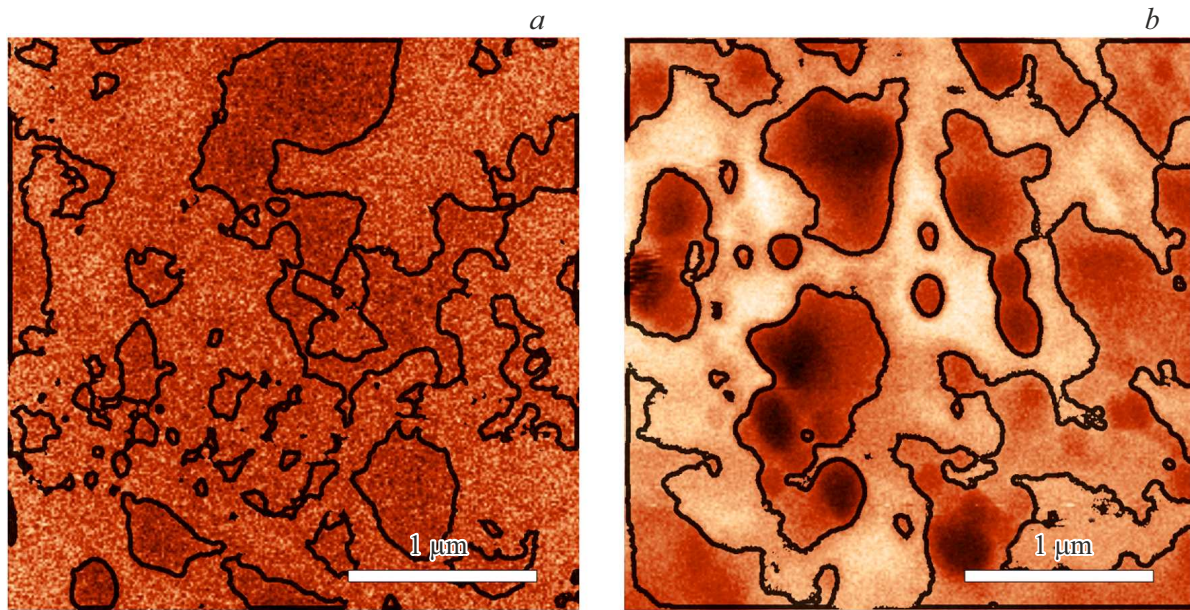


Рис. 1. Топографическая и магнитная структура (контуры топографических возвышенностей выделены черной линией) пленок $[\text{CoFeB}+\text{SiO}_2+\text{N}_2]$ при концентрации металлического сплава $x = 0.4$ (a) и 0.6 (b).

Химический состав композитных пленок $[\text{CoFeB}+\text{SiO}_2+\text{N}_2]$

	Co, at.%	Fe, at.%	B, at.%	Si, at.%	O, at.%	N, at.%	x , at.%
1	31.58	24.48	3.53	11.15	22.31	6.94	59.60
2	29.80	23.50	4.12	11.02	22.05	9.50	57.43
3	27.67	21.52	6.18	11.74	23.48	9.41	55.37
4	23.82	19.11	4.14	14.48	28.96	9.48	47.07
5	21.91	17.50	3.11	16.04	32.08	9.37	42.52
6	21.18	16.71	2.13	16.65	33.30	10.04	40.01
7	20.58	16.32	2.05	16.86	33.72	10.47	38.95

частицами и способствует образованию гранулярной структуры.

Исследование изображений рельефа и магнитофазового контраста композитных пленок, полученных с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ), показывает, что выбранный химический состав в совокупности с напылением пленок в атмосфере азота, позволяет получить гранулированную структуру в большем объеме пленки и для больших интервалов концентраций, по сравнению с ранее исследованными композитными пленками [3,7]. На рис. 1 показано наложение черных контуров топографических возвышенностей поверхности пленки на изображение областей магнитного контраста для концентраций металлического сплава $x = 0.4$ и $x = 0.6$. Видно, что в обоих случаях на поверхности имеется четко просматриваемая гранулярная структура, размеры гранул при этом сопоставимы, но при большей

концентрации металла гранулы имеют более правильную форму с преобладанием крупного размера. По изображениям магнитного контраста можно утверждать, что при высокой концентрации металла топографическим возвышенностям соответствуют именно металлические области с высокой намагниченностью. При низкой концентрации x магнитная структура просматривается слабо.

Автоматизированный анализ изображений атомно-силового микроскопии композитных пленок на различных масштабах был проведен с использованием свободного программного обеспечения Gwyddion. Погрешность определения средних радиусов автоматически выделенных на изображении гранул (гранулы аппроксимированы эллипсоидами) составляла $\sim 5\%$. Исследование показало, что характерным свойством образцов является сохранение параметров статистических распределений гранул при различных концентрациях металла. Мелкие гранулы срастаются в крупные агрегаты, но исключается их сплавление в сложные лабиринтоподобные структуры.

На рис. 2, a показано распределение относительной плотности высот точек поверхности, характеризующее шероховатость. Из графика видно, что для образцов с концентрацией металлического сплава $x = 0.4$ характерна высокая однородность поверхности (узкий пик распределения), причем наиболее вероятной высотой точки на поверхности пленки является $h = 20$ nm над выбранным нулевым уровнем. Для этой же концентрации металла на рис. 2, b показано распределение гранул на поверхности пленки по размерам (формы гранул аппроксимированы эллипсоидами), причем наиболее вероятное

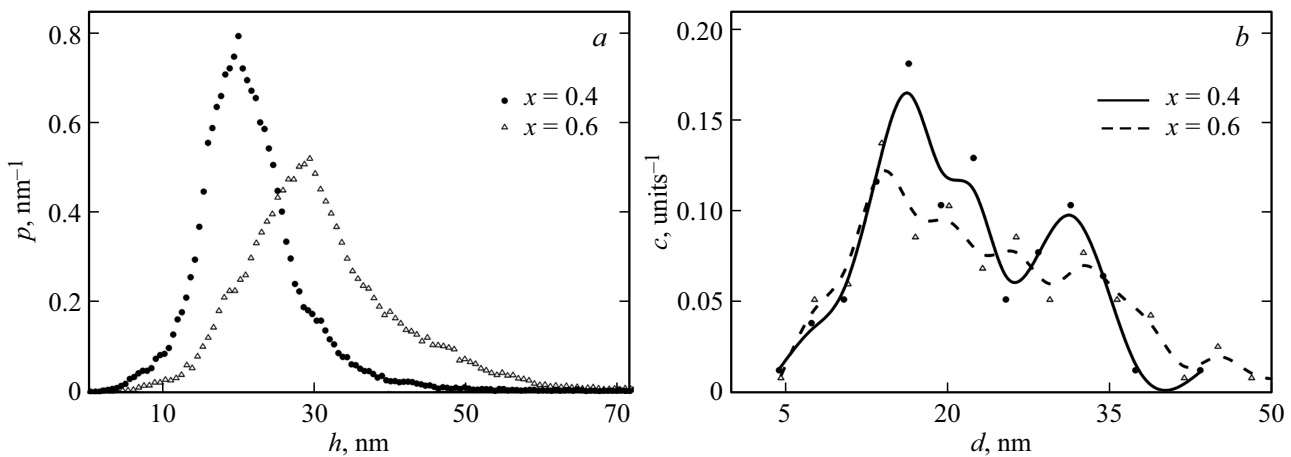


Рис. 2. Распределение относительной плотности высот точек поверхности (a) и эффективных размеров гранул (b) на поверхности пленок $[\text{CoFeB}+\text{SiO}_2+\text{N}_2]$ при различных концентрациях металлического сплава.

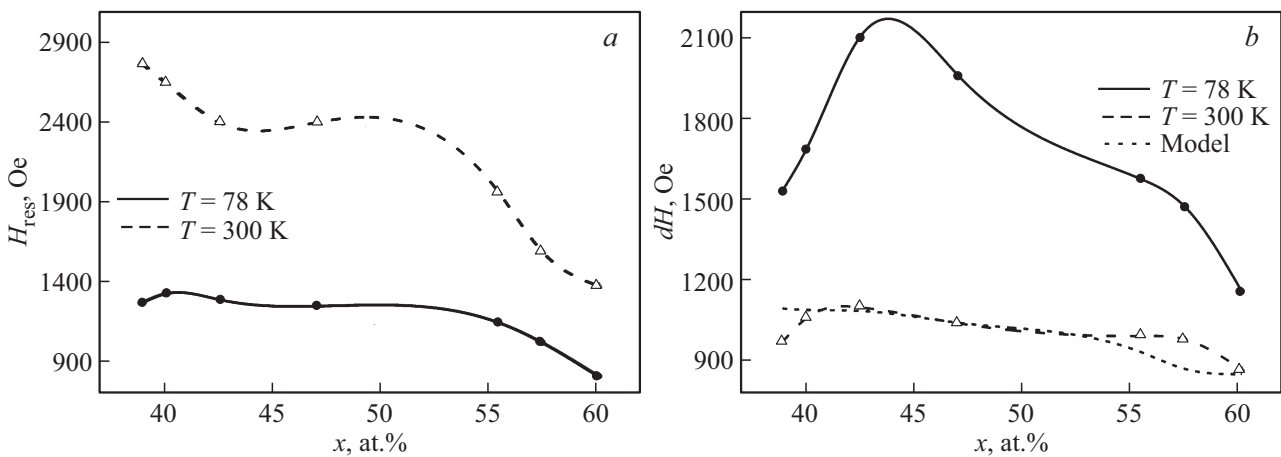


Рис. 3. Зависимость положения (a) и ширины (b) линии ФМР пленок $[\text{CoFeB}+\text{SiO}_2+\text{N}_2]$ от концентрации металлического сплава x при температурах $T = 300, 77$ К.

значение диаметра частицы составило $d = 18$ nm. Таким образом, гранулы на поверхности пленки могут быть успешно описаны как эллипсоиды вращения, близкие по соотношению полуосей к сфере. С ростом концентрации металла ($x = 0.6$), как видно также из рис. 2, происходит незначительное смещение распределений в сторону более крупных частиц, на поверхности появляются точки с высотами, не наблюдавшимися ранее. Однако радикальных изменений в гранулярной структуре пленок ни визуально, ни по результатам автоматизированного анализа не прослеживается. Это делает пленки данного состава удобным инструментом для построения и проверки математических моделей связи структурных и магнитных свойств.

Исследование магнитных характеристик композитных пленок выявило (рис. 3), что ширина линии ферромагнитного резонанса при комнатной температуре слабо зависит от концентрации металла, так как основное влияние на ширину линии оказывает разброс размагничивающих факторов отдельных гранул, который, как

показано выше, слабо зависит от концентрации. Однако, с ростом концентрации x отмечается незначительное монотонное уменьшение ширины линии ФМР, которое можно связать с увеличением однородности вещества и приближению формы гранул к сферической форме, что также фиксируется и по изображениям АСМ рельефа пленки. Исследование ширины линии ФМР образцов при температуре жидкого азота $T = 77$ К (рис. 3, b) позволяет зафиксировать структурный фазовый переход при концентрации металлического сплава $x = 0.45$. При данной температуре происходит существенное увеличение длины свободного пробега электронов в веществе между гранулами пленки, вследствие чего возрастает обменное взаимодействие между гранулами. Это обуславливает уменьшение ширины линии ФМР, начиная с указанной концентрации металла.

Положение пика резонансного поля ФМР (рис. 3, a) также показывает наличие структурного перехода при концентрации около $x = 0.45$. Отметим, что в силу того, что объединения металлических гранул в случае ис-

следуемого химического состава не происходит, данный структурный переход нельзя считать перколяционным переходом, поскольку так как он проявляется только в отношении статистических характеристик гранул на поверхности пленки.

Оценим вклад случайной структуры ансамбля частиц (гранул) на поверхности пленки в ширину линии ФМР. Согласно известной методике [3] данный вклад составляет

$$\Delta H_{\text{пор}} = 8\pi M_s (\lambda / (1 + \lambda)),$$

где M_s — намагниченность насыщения материала, $\lambda = V_d / (V_d + V_m)$ — пористость, V_d и V_m — объем диэлектрика и металлического сплава соответственно. Рассчитанная согласно данной модели ширина линии ФМР показана на рис. 3, *b* линией с мелким пунктиром. Видно, что имеет место хорошее согласование с результатом эксперимента в исследуемом интервале концентраций металла. При меньших концентрациях металлического сплава x модель не даст удовлетворительного результата, вследствие существенного разброса расстояний между частицами на поверхности пленки и их размеров. При высоких концентрациях металла количество гранул в объеме пленки становится настолько большим, что многие из них начинают контактировать друг с другом. При этом возникает так называемая гранулярно-перколяционная структура, когда сплавления гранул в единую металлическую матрицу не происходит, однако энергия электронов такова, что они могут преодолевать потенциальный барьер между гранулами.

В заключении можно отметить, что в работе были исследованы структурные статистические характеристики композитных металл-диэлектрических пленок состава $[\text{CoFeB} + \text{SiO}_2 + \text{N}_2]$, напыленных в атмосфере азота. Обнаружено, что в исследуемом интервале концентраций металлической фазы x распределения гранул образцов по эффективным размерам слабо зависят от x . Найдена связь сверхвысокочастотных магнитных характеристик пленок с их гранулярной и гранулярно-перколяционной структурой. Обнаружен структурный фазовый переход при охлаждении образцов до 77 К для пленок с концентрацией металлического сплава $x = 0.45$.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 21-72-20048).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] П.Г. Баранов, А.М. Калашников, В.И. Козуб, В.Л. Корнев, Ю.Г. Кусраев, Р.В. Писарев, В.Ф. Сапега, И.А. Акимов, М. Байер, А.В. Щербаков, Д.Р. Яковлев. УФН **189**, 8, 849–880 (2019).

- [2] S. Bandyopadhyay, J. Atulasimha, A. Barman. Appl. Phys. Rev. **8**, 4, 041323 (2021).
- [3] L.N. Kotov, V.A. Ustyugov, V.S. Vlasov, A.A. Utkin, Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov. Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. **87**, 3, 385–388 (2023). DOI: 10.3103/S1062873822701283
- [4] T. Parpiiev, A. Hillion, V. Vlasov, V. Gusev, K. Dumesnil, T. Hauet, S. Andrieu, A. Anane, T. Pezeril. Phys. Rev. B **104**, 22, 224426 (2021). DOI: 10.1103/PhysRevB.104.224426
- [5] V.V. Rylkov, A.V. Emelyanov, S.N. Nikolaev, K.E. Nikiruy, A.V. Sitnikov, E.A. Fadeev, V.A. Demin, A.B. Granovsky, J. Exp. Theor. Phys. **131**, 160–176 (2020). DOI: 10.1134/S1063776120070109
- [6] B.A. Belyaev, V.V. Tyurnev. J. Exp. Theor. Phys. **127**, 4, 608–619 (2018). DOI: 10.1134/S1063776118100114
- [7] L.N. Kotov, V.S. Vlasov P.D. Kovalev, A.A. Utkin, Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, V.A. Ustyugov. 2023 International Conference on Next Generation Electronics (NEleX), Vellore, India, 2023, pp. 1–5. DOI: 10.1109/NEleX59773.2023.10420863

Редактор А.Н. Смирнов