

УДК 539.172.3:538.61

© 1992

## МЕССБАУЭРОВСКИЕ И МАГНИТООПТИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТОНКИХ ПЛЕНОК ТЬ—Fe

*В. С. Русаков, Б. С. Введенский, Е. Т. Воропаева, Е. Н. Николаев*

Проведены мессбауэровские исследования (при  $T = 293$  К) магнитооптических (МО) пленок  $Tb_xFe_{100-x}$  ( $10.8 < x < 33.8$  ат.%) толщиной 80 и 160 нм, осажденных высокочастотным (ВЧ) распылением. С помощью оригинальной компьютерной программы DISTR1, основанной на методе регуляризации, восстановлены функции распределения величины сверхтонкого поля  $H_D$  на ядрах  $^{57}Fe$ . Получена концентрационная зависимость среднего значения магнитного момента атома железа  $\mu_{Fe}$ . Установлена взаимосвязь мессбауэровских и магнитооптических данных — зависимостей среднего значения сверхтонкого поля  $H_D$  и угла фарадеевского вращения  $\theta_F$  от концентрации ТЬ в пленке. По соотношениям площадей компонент мессбауэровского спектра вычислены средние значения угла между нормалью к пленке и направлением магнитных моментов  $\mu_{Fe}$ . Наблюдаемое отклонение магнитных моментов железа от нормали рассмотрено в рамках различных физических моделей.

Аморфные магнитооптические пленки состава «редкоземельный металл—переходный металл» (РЗМ—ПМ) активно используются при создании перспективных реверсивных носителей для высокоплотной лазерной записи информации [1]. Одновременно продолжают исследования с целью оптимизации магнитооптических и магнитных характеристик таких сред. В связи с этим представляет интерес изучение магнитной микроструктуры аморфных пленок РЗМ—ПМ и ее взаимосвязи с магнитооптическими свойствами, определяющими эффективность использования таких пленок в качестве носителей информации. Известно, что МО эффекты в РЗМ—ПМ пленках в видимом диапазоне длин волн определяются в основном магнитным состоянием ПМ-подрешетки. В то же время с помощью мессбауэровской спектроскопии (МС) можно получить информацию о величине и направлении магнитных моментов атомов ПМ. В связи с этим возникает задача как поиска корреляции между МО эффектами и параметрами мессбауэровского спектра, так и выяснения особенностей микроструктуры ПМ-подрешетки.

В данной работе для решения указанных задач при исследовании аморфных МО пленок ТЬ—Fe наряду с традиционными магнитооптическими методами использованы методы мессбауэровской спектроскопии на ядрах  $^{57}Fe$ .

### 1. Технология и экспериментальные методы

Образцы пленок  $Tb_xFe_{100-x}$  были приготовлены методом ВЧ-распыления в атмосфере аргона. Толщина пленок составляла 80 и 160 нм. При распылении использовалась составная мишень, обогащенная изотопом  $^{57}Fe$ . Концентрация ТЬ в пленках варьировалась в пределах от  $x = 10.8$  до  $x = 33.8$  ат.%. Для защиты от окисления обе поверхности пленки покрывались слоями  $Si_3N_4$  толщиной  $\sim 85$  нм [2].

Магнитооптические характеристики пленок (эффекты Керра и Фарадея) измерялись на гистериографе ( $\lambda = 0.63$  мкм) в полях до 800 кА/м (10 кЭ).

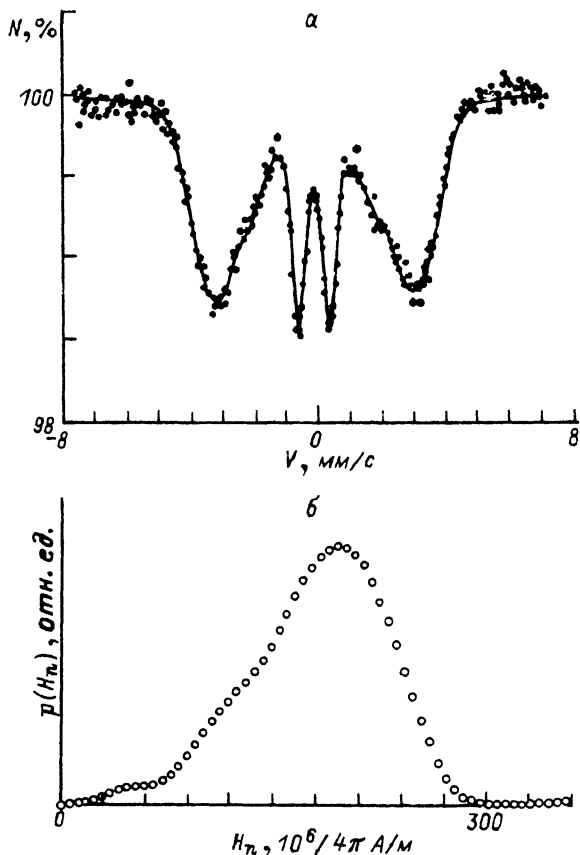


Рис. 1. Мессбауэровский спектр (а) и функция распределения сверхтонкого поля  $H_n$  на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  (б) в аморфной пленке  $\text{Tb}_{28}\text{Fe}_{72}$  при  $T = 293$  К.

Мессбауэровские измерения проводились в традиционной геометрии пропускания при комнатной температуре. Источник —  $^{57}\text{Co}$  в матрице  $\text{Cr}$  — перемещался в режиме постоянных ускорений. Направление пролета  $\gamma$ -квантов совпадало с нормалью к пленке. Мессбауэровские спектры пленок с  $x > 15$  представляли собой сильно уширенные секстеты с практически отсутствующими 2-й и 5-й линиями. Внутренние линии секстета имели существенно меньшую, чем внешние линии, ширину и были хорошо разрешены (рис. 1, а). Ни в одном из спектров не наблюдалось компонент, соответствующих железосодержащим фазам с регулярной структурой ( $\alpha$ -Fe, окислы Fe, соединения Fe и Tb). Для всех спектров характерно распределение параметров, что свидетельствует о том, что исследуемые вещества находились в аморфном состоянии. Следует отметить, что рентгенодифракционные измерения также показали отсутствие кристаллических фаз в пленках.

Для расшифровки мессбауэровских спектров была использована оригинальная программа «DISTRI» [3], основанная на обобщенном методе регуляризации. С помощью этой программы можно получать функцию распределения параметров мессбауэровского спектра: сверхтонкого поля в области расположения ядра  $H_n$  (рис. 1, б), сдвига мессбауэровской линии  $\delta$ , квадрупольного смещения  $\epsilon$ , а также находить характеристики этого распределения — средние значения ( $H_n$ ,  $\delta$ ,  $\epsilon$ ), стандартные отклонения и параметр асимметрии.

## 2. Результаты и обсуждение

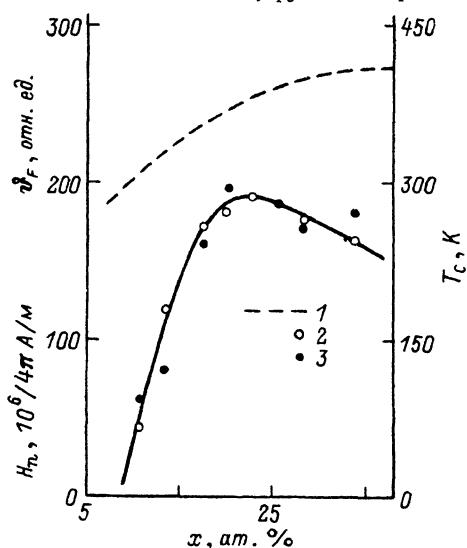
Известно, что сверхтонкое поле  $H_n$  для ядер  $^{57}\text{Fe}$  непосредственно связано с магнитным моментом электронной оболочки атома железа  $\mu_{\text{Fe}}$ . При этом  $H_n = -k\mu_{\text{Fe}}$ , где для аморфных сплавов «редкая земля — железо» [4,5]  $k \cong 158$  кЭ/ $\mu_{\text{B}}$ . Таким образом, величине и направлению сверхтонкого поля  $H_n$  однозначно соответствуют величина и направление магнитного момента железа  $\mu_{\text{Fe}}$ .

На рис. 2 приведена зависимость среднего значения сверхтонкого поля  $H_n$  от концентрации Tb в пленках. Видно, что для пленок с  $x < 23$  величина поля на ядре (а значит, и  $\mu_{\text{Fe}}$ ) резко возрастает с увеличением  $x$ . В то же время при  $x > 23$  поле  $H_n$  (и  $\mu_{\text{Fe}}$ ) практически линейно уменьшается. Если учесть характер зависимости температуры Кюри  $T_C$  от состава пленок (рис. 2), то становится понятным поведение  $H_n$  (и  $\mu_{\text{Fe}}$ ) в этой области концентраций Tb.

Действительно, резкое возрастание  $H_n$  (и  $\mu_{\text{Fe}}$ ) как функции  $x$  в области малых концентраций в первую очередь связано с заметным увеличением  $T_C$  при непосредственной близости ее значений к комнатной температуре — температуре проведения мессбауэровского эксперимента (рис. 2). Отметим, кроме того, что, по данным мессбауэровских измерений, в пленке состава  $x = 10.8$  около 50% всех атомов Fe находится в парамагнитном состоянии из-за вариации концентрации атомов Tb.

Что же касается составов с  $x > 23$ , то изменение  $T_C$  с концентрацией практически не влияет на зависимость  $H_n(x)$  (и  $\mu_{\text{Fe}}(x)$ ). В этом случае уменьшение величины поля  $H_n$  (и  $\mu_{\text{Fe}}$ ) связано, по-видимому, с дополнительной гибридизацией 5d-и 6s-электронов Tb с 3d-электронами Fe [7] при увеличении концентрации Tb. В этой области концентраций  $\partial\mu_{\text{Fe}}/\partial x \cong -19.8 \cdot 10^{-3} \mu_{\text{B}}/\text{ат.}\%$ , что находится в хорошем согласии с данными [4] для пленок толщиной  $\cong 500$  нм при  $T = 4.2$  К.

На рис. 2 в соответствующем масштабе представлены также данные магнитооптических измерений — зависимость угла фарадеевского вращения  $\nu$  (в поле  $\sim 10$  кЭ), нормированного на число атомов железа, от концентрации Tb в пленке. Отметим качественное совпадение двух экспериментальных зависимостей. При этом, однако, необходимо учесть, что в отличие от поля  $H_n$ , которое пропорционально магнитному моменту железа, угол вращения  $\nu_F$  пропорционален проекции момента  $\mu_{\text{Fe}}$  на направление распространения лазерного излучения



[8], совпадающее в нашем случае с нормалью к пленке  $\pi$ . Это означает, что в исследуемой области концентраций не наблюдается резкого изменения среднего значения угла между  $\mu_{\text{Fe}}$  и  $\pi$ . Отметим также, что магнитооптические измерения проводятся в присутствии магнитного поля. Следовательно, значение магнитного момента железа, проекцию которого «чувствует» фарадеевский угол, вообще говоря, отличается от значения  $\mu_{\text{Fe}}$  в случае спонтанной намагниченности (мессбауэровский эксперимент).

Рис. 2. Зависимость температуры Кюри  $T_C$  (1) (по данным работ [4, 6]), среднего значения сверхтонкого поля  $H_n$  (2) и угла фарадеевского вращения  $\nu_F$  (3) от концентрации Tb в пленках  $\text{Tb}_x\text{—Fe}_{100-x}$ .

Обработка мессбауэровских спектров позволила установить среднее значение величины квадрупольного смещения  $\epsilon$ . Оно оказалось в пределах ошибки измерения ( $\alpha_e = 0.01$  мм/с) равным нулю для всех исследуемых составов. Этот факт подтверждает аморфность исследованных пленок, так как для кристаллических соединений Tb—Fe с учетом их большой константы магнитной кристаллографической анизотропии [<sup>9</sup>], а также большой величины константы квадрупольного взаимодействия (см., например, [<sup>10</sup>]), наблюдались бы значения  $\epsilon > 0.1$  мм/с.

Одним из параметров спектра, определяемых с помощью программы «DISTRI», является отношение площадей компонент зеemanовского секстета  $p$  (с оценкой статистических ошибок  $\alpha_p$ ). В случае «тонкого образца» [<sup>11</sup>] параметр  $p$  пропорционален отношению вероятностей соответствующих  $\gamma$ -переходов  $\{p_{ij}\}$ , которые по-разному зависят от угла  $\alpha$  между направлением поля  $H_n$  и волновым вектором регистрируемых  $\gamma$ -квантов (совпадающим в нашем случае с нормалью к пленке  $n$ )

$$p_{1,6} : p_{2,5} : p_{3,4} = 3(1 + \cos^2 \alpha) : 4(1 - \cos^2 \alpha) : (1 + \cos^2 \alpha) = 3 : p : 1. \quad (1)$$

Полученные значения  $p$  (см. таблицу) свидетельствуют о том, что сверхтонкое поле  $H_n$  (а следовательно, и магнитный момент  $\mu_{Fe}$ ) для исследованных образцов не перпендикулярно плоскости пленки ( $\alpha = 0$ ,  $p = 0$ ), но и не лежит в ней (в этом случае  $\alpha = 90$ ,  $p = 4$ ).

Рассмотрим четыре физические модели, при которых может наблюдаться некоторый, не равный нулю, эффективный угол между магнитным моментом атома Fe и нормалью к плоскости пленки.

Модель планарного слоя. Можно предположить, что в процессе напыления (а тем более старения) пленки на ее поверхности образуется окисленный слой. В нем, как известно [<sup>12</sup>, <sup>13</sup>], магнитный момент железа  $\mu_{Fe}$  лежит в плоскости пленки. Если предположить, что относительное число таких магнитных моментов равно  $r$ , то

$$p = 4r / (2 - r). \quad (2)$$

Как видим (см. таблицу), окисленный слой должен составлять при таком рассмотрении 10—32% (с  $\alpha_r \sim 5\%$ ) от общего объема пленки Tb—Fe. Однако такая ситуация представляется маловероятной по нескольким причинам.

Ориентация магнитного момента атомов железа  $\mu_{Fe}$  в пленках Tb—Fe

	x, ат. %							
	10.8	13.5	17.6	20.2	23.0	25.6	28.3	33.8
$p$	0.59	0.29	0.40	0.21	0.37	0.32	0.40	0.75
$\alpha_p$	0.17	0.15	0.06	0.06	0.07	0.05	0.08	0.13
$r$	0.26	0.14	0.18	0.10	0.17	0.15	0.18	0.32
$\alpha_r$	0.07	0.07	0.03	0.03	0.03	0.02	0.03	0.05
$s$	0.38	0.21	0.27	0.15	0.25	0.23	0.27	0.47
$\alpha_s$	0.10	0.10	0.04	0.04	0.04	0.04	0.05	0.07
$\varphi^\circ$	30	22	25	18	24	23	25	34
$\alpha_\varphi$	4	6	2	3	2	2	3	3
$\psi^\circ$	44	31	36	26	35	33	36	50
$\alpha_\psi$	7	8	3	4	3	3	4	4

Во-первых, железосодержащая часть окисленного слоя сильно отличается по составу от основного объема пленки [12, 13]. В этом случае ближайшее окружение атомов Fe должно быть существенно иным, чем в основном слое, что непременно нашло бы свое отражение в мессбауэровском спектре.

Во-вторых, рабочий слой наших пленок в процессе напыления был покрыт с обеих сторон защитными слоями  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , практически гарантирующими пленку РЗМ—ПМ от окисления.

И наконец, магнитооптические измерения показали, что гистерезисные петли Керра и Фарадея идентичны и, следовательно, окисленный слой в наших пленках практически отсутствует.

Таким образом, модель планарного слоя можно исключить из дальнейшего рассмотрения.

Модель доменных стенок. Для магнитооптических пленок РЗМ—ПМ с перпендикулярной магнитной анизотропией характерна сквозная доменная структура. В случае 180-градусной доменной границы легко оценить вклад доменной стенки в наблюдаемое отклонение магнитных моментов железа  $\mu_{\text{Fe}}$  от нормали  $n$ . Пусть  $s$  — отношение объема стенки к объему собственно домена. Тогда в предположении о равномерном в пространстве угловом распределении моментов  $\mu_{\text{Fe}}$  в доменной стенке значение  $p$  для всей пленки равно

$$p = 4s / (3 - s). \quad (3)$$

Отметим, что, исходя из экспериментально определенных значений  $p$  для исследуемых пленок, значение  $s$  должно быть заключено в интервале 15—47% (см. таблицу).

В работе [14] с учетом значений константы однонаправленной анизотропии и энергии обменного взаимодействия толщина доменной стенки для пленок Tb—Fe оценивается в 8 нм. В то же время данные работы [15], а также наши данные [16] показывают, что минимальный размер доменов для пленок Tb—Fe различных составов в интересующей нас области концентраций составляет ~550 нм. В этом случае соотношение  $s$  не должно превышать нескольких процентов.

Авторы работы [17] с помощью мессбауэровской спектроскопии на конверсионных электронах также наблюдали отклонение моментов  $\mu_{\text{Fe}}$  от нормали к плоскости пленки  $\text{Tb}_x\text{Fe}_{100-x}$  для трех составов:  $x = 20, 24$  и  $25$  ат. %. При этом эксперимент проводился как с намагниченными, так и с ненамагниченными образцами, т. е. как при наличии, так и в отсутствие доменной структуры в пленках. Наблюдаемое отклонение  $\mu_{\text{Fe}}$  не зависело от намагниченности пленки.

Как видим, модель доменной стенки не может быть принята в нашем рассмотрении за основу. Однако, по-видимому, не следует пренебрегать ею вовсе.

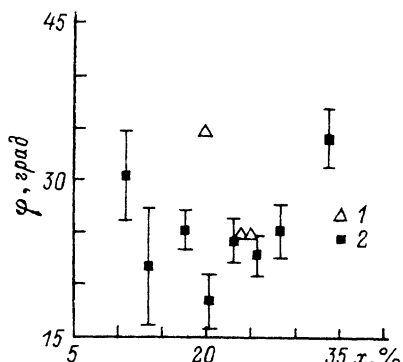
Модель дисперсии магнитной анизотропии. Известно, что магнитная анизотропия в пленках может быть непосредственно связана со столбчатой структурой [18, 19]. В работе [20] с помощью эффекта Холла наблюдалась дисперсия осей легкого намагничивания (ОЛН) в пленках РЗМ—ПМ. Авторы связывают это явление с дисперсией ориентации столбчатой структуры, возникающей в процессе напыления.

Пусть ОЛН в каждом домене направлена по образующей конуса и составляет с нормалью к пленке  $n$  некоторый эффективный угол  $\varphi$ . Если при этом магнитные моменты железа  $\mu_{\text{Fe}}$  коллинеарны друг другу, то

$$p = 4(1 - \cos^2 \varphi) / (1 + \cos^2 \varphi). \quad (4)$$

Вычисление угла  $\varphi$  для исследуемых пленок (см. таблицу) дает  $\varphi = 18 \div 34^\circ$  (с ошибкой  $\alpha_p \sim 3^\circ$ ).

Рис. 3. Концентрационная зависимость угла  $\varphi$  в пленках  $Tb_xFe_{100-x}$  (модель дисперсии магнитной анизотропии).  
1 — по данным работы [17], 2 — наши данные.



Этот результат по порядку величины находится в согласии с результатами [20] (рис. 3). Таким образом, наличие дисперсии ориентации столбчатой структуры может являться причиной наблюдаемого отклонения  $\mu_{Fe}$  от нормали  $n$ .

Модель угловой дисперсии  $\mu_{Fe}$ . Отметим два основных фактора возможного появления локальной флуктуации направления магнитного момента Fe в аморфных пленках РЗМ—ПМ: 1) сперимагнитная структура в случае не равного нулю орбитального момента редкоземельного компонента [21], 2) большой интервал значений константы обменных взаимодействий Fe—Fe [7].

Предположим, что магнитный момент  $\mu_{Fe}$  в сперимагнитной структуре имеет равновероятные направления внутри конуса с углом  $2\psi$  при вершине и с осью, перпендикулярной поверхности пленки. Тогда

$$p = 4(2 - \cos \psi - \cos^2 \psi) / (4 + \cos \psi + \cos^2 \psi). \quad (5)$$

Концентрационная зависимость угла  $\psi$  (с оценкой ошибок  $\alpha_\psi$ ) для пленок Tb—Fe представлена в таблице.

Видно, что в интервале концентраций  $12 < x < 30$  угол  $\psi$  практически не зависит от состава пленки. Что же касается крайних составов, то заметное возрастание угла  $\psi$  связано, по-видимому, с началом отклонения направления ОЛН от нормали пленки к ее плоскости (о чем свидетельствуют и данные магнитооптических измерений).

Краткое рассмотрение возможных причин отклонения  $\mu_{Fe}$  от нормали к пленке  $n$  позволяет остановить в качестве основных две последние из рассмотренных моделей. Для дальнейшего решения вопроса о механизме наблюдаемого отклонения  $\mu_{Fe}$  необходимо провести дополнительные мессбауэровские исследования на пленках, полученных при других условиях напыления (влияние на формирование столбчатой структуры), а также на пленках других составов (влияние на сперимагнитную структуру).

Итак, с помощью мессбауэровских и магнитооптических исследований для пленок Tb—Fe 1) получена концентрационная зависимость среднего значения сверхтонкого поля на ядрах  $^{57}Fe$  (и величины магнитного момента атома Fe) при комнатной температуре; 2) установлена корреляция между углом фарадеевского вращения и сверхтонким полем в области расположения ядра  $^{57}Fe$ ; 3) показано, что существует не равный нулю эффективный угол между магнитным моментом атома железа и нормалью к плоскости пленки;

4) проанализированы возможные причины наблюдаемой угловой дисперсии магнитных моментов железа.

#### Список литературы

- [1] Hansen P., Heitman H. // IEEE Trans. Magn. 1989. V. 25. N 6. P. 4390—4404.
- [2] Pokhil T. G., Vvedensky B. S., Nikolaev E. N. // SPIE Proc. 1990. P. 1274.
- [3] Русаков В. С. // Тез. докл. Всес. конф. «Прикладная мессбаурованная спектроскопия». Казань, 1990. 189 с.
- [4] Heitman N., Lee K., Potter R. I. // AIP Conf. Proc. 1976. V. 29. P. 130—135.
- [5] Buschow K. H. J., van der Kraan A. M. // J. Magn. Mater. 1981. V. 22. P. 220—226.

- [6] Hansen P. // *J. Magn. Magn. Mater.* 1990. V. 83. N 1—3. P. 6—12.
- [7] Chappert J., Coey J. M. D., Lienard A., Rebouillat J. P. // *J. Phys. F: Metal Phys.* 1981. V. 11. P. 2727—2744.
- [8] Hansen P., Clausen C., Much G., Rosenkranz M., Witter K. // *J. Appl. Phys.* 1989. V. 66. N 2. P. 756—757.
- [9] Buschow K. H. J. // *Rep. Prog. Phys.* 1977. V. 40. P. 1179—1256.
- [10] Николаев В. И., Русаков В. С., Федоренко И. В. // *Методы мессбауэровских исследований спиновой переориентации.* М., МГУ, 1989. 108 с.
- [11] Николаев В. И., Русаков В. С. // *Мессбауэровские исследования ферритов.* М., МГУ, 1985. 223 с.
- [12] Van Dover R. B., Gyorgy E. M., Frankenthal R. P., Hong M., Siconolfi D. J. // *J. Appl. Phys.* 1986. V. 59. N 4. P. 1291—1296.
- [13] KavaleroV V. G., Vvedensky B. S., Nikolaev E. N. // *Dig. INTERMAG'90 Conf. Brighton, UK, 1990, HR-12.*
- [14] Suits J. C., Geiss R. N., Lin C. J., Rugar D., Bell A. E. // *Appl. Phys. Lett.* 1986. V. 49. N 7. P. 419—421.
- [15] Mimura Y., Imamura N., Kobayashi T., Okada A., Kushiro Y. // *J. Appl. Phys.* 1978. V. 49. N 3. P. 1208—1215.
- [16] Pokhil T. G., Vvedensky B. S., Nikolaev E. N. // *Dig. ISMO'91. Kharkov, 1991.* 24 p.
- [17] Eumery J. P., Fnidiki A., Krishnan R., Tessier M., Vitton J. P. // *Phys. Rev. B.* 1988. V. 38. N 16. P. 11931—11933.
- [18] Hoffman H., Winkler R. // *J. Magn. Magn. Mater.* 1979. V. 13. N 1—2. P. 89—94.
- [19] Yasugi S., Honda S., Ohkoshi M., Kusuda T. // *J. Appl. Phys.* 1981. V. 52. N 3. P. 2298—2300.
- [20] Togami Y., Sato N., Okamoto K. // *J. Appl. Phys.* 1986. V. 60. N 10. P. 3691—3695.
- [21] Coey J. M. D., Chappert J., Rebouillat J. P., Wang T. S. // *Phys. Rev. Lett.* 1976. V. 36. N 17. P. 1061—1064.

Московский государственный университет  
им. М. В. Ломоносова  
Институт энергетических проблем  
химической физики РАН

Поступило в Редакцию  
3 марта 1992 г.