## 05,13

# Влияние окисленных прослоек на магнитные свойства многослойных пленок на основе нанокомпозитов аморфный ферромагнетик—диэлектрик

© H.S.M. Al'Azzavi, А.Б. Грановский, Ю.Е. Калинин, В.А. Макагонов, А.В. Ситников, О.С. Тарасова

Воронежский государственный технический университет, Воронеж, Россия

E-mail: oksanchik2603@mail.ru

(Поступила в Редакцию 27 августа 2015 г.)

Методом ионно-лучевого распыления получены пленки композитов  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}$ ,  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$  и многослойных гетерогенных структур композит—композит  $\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}] / [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}] / [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}] / [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}] / [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x} + O_2]\}_n$ ,  $\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x} + O_2]\}_n$  и  $\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x} + O_2]\}_n$  и  $\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(SiO_2)_{100-x}] / [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x} + O_2]\}_n$  и  $\{[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x} + O_2]\}_n$  и  $\{[(Co_{41}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / [(Co_{41}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / [(Co_{41}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / [(Co_{41}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x} + O_2]\}_n$  и  $\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}] / [(Co_{45}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / [(Co_{45}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x$ 

Работа выполнена при финансовой поддержке РНФ (грант № 15-12-20002).

#### 1. Введение

Аморфные металлические сплавы на основе переходных металлов обладают ярко выраженными магнитомягкими свойствами благодаря отсутствию магнитокристаллической анизотропии [1-3]. Для аморфных металлических сплавов основными видами магнитной анизотропии, влияющими на магнитные свойства, являются анизотропия формы, анизотропия парного упорядочения атомов, магнитоупругая анизотропия, наведенная магнитная анизотропия [4]. Для магнитных материалов, применяемых в аппаратуре для записи и воспроизведения информации, устройств автоматики, поглотителей электромагнитного излучения и т.д. наиболее важны их высокочастотные магнитные свойства. Одним из ограничений применения аморфных металлических сплавов в области ВЧ- и СВЧ-диапазонов является низкое удельное электрическое сопротивление. Для повышения этого важного параметра в последние годы ферромагнетики с аморфной и кристаллической структурой вводят в диэлектрическую матрицу [5-6], что способствует повышению рабочей частоты ферромагнетика до значений, лежащих в области ВЧ- и СВЧ-диапазонов [7-8].

Особое место среди композитов ферромагнетик диэлектрик занимают нанокомпозиты с аморфной структурой наногранул, обладающие ярко выраженными магнитомягкими свойствами [9–10]. Это обусловлено как значительным удельным электрическим сопротивлением  $\rho$  гетерогенных структур, так и наномасштабным размером структурных неоднородностей. Для таких нанокомпозитов наличие аморфной структуры ферромагнитных гранул приводит к снижению значений магнитной анизотропии гранул по сравнению с характерной для композитов, обладающих кристаллической магнитной фазой [11]. Вместе с тем магнитная анизотропия аморфных нанокомпозитов остается достаточно высокой по сравнению с аналогичной величиной для гомогенных аморфных сплавов, что обычно связывается со значительным вкладом в эффективную анизотропию гранулы анизотропии формы, возникающей при росте пленки в результате процессов самоорганизации.

Так, в работах [12,13] сообщается о перпендикулярной магнитной анизотропии композитов некоторых составов, расположенных выше порога перколяции. Это обусловлено значительной структурной анизотропией пленок. Проведенный анализ причин формирования ростовой структурной анизотропии при конденсации пленки из паровой фазы позволил качественно объяснить наблюдаемую перпендикулярную плоскости пленки магнитную анизотропию в нанокомпозитах (Co<sub>45</sub>Fe<sub>45</sub>Zr<sub>10</sub>)<sub>x</sub> (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>100-x</sub>, (Co<sub>84</sub>Nb<sub>14</sub>Ta<sub>2</sub>)<sub>x</sub> (SiO<sub>2</sub>)<sub>100-x</sub> и отсутствие последней в пленках (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>x</sub> (SiO<sub>2</sub>)<sub>100-x</sub> [14].

Исследование гетерогенных систем, полученных при напылении в среде с активными газами, показало, что в этом случае происходит доокисление диэлектрической матрицы и образование оболочки из оксидов металлов на поверхности металлических частиц [15,16]. Наличие на поверхности металлических наногранул оксидной оболочки препятствует непосредственному контакту проводящих частиц и, как следствие, увеличивает удельное электрическое сопротивление гетерогенной системы, а также снижает вероятность формирования столбчатой структуры пленки.

В настоящей работе рассматривается возможность подавить перпендикулярную магнитную анизотропию в пленках композитов  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}, (Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}$  и  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$ 

Номер образца	Партия	$t_1, s$	$P_{\rm Ar}, 10^{-4}$ Torr	<i>t</i> <sub>2</sub> , s	$P_{\rm Ar}, 10^{-4}$ Torr	$\begin{array}{c} P_{\mathrm{O}_{2}(\mathrm{N}_{2})},\\ \mathrm{Torr} \end{array}$	n
1	$(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$	18000	6	_	_	_	1
2	$(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$			18000	6	0.2	1
3	$(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$			18000	6	0.24	1
4	$\{[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x} + O_2]\}_n$	47	6	15	6	0.24	176
5	$\{[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}+O_2]\}_n$	47	6	15	6	0.32	178
6	$\{[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x} + O_2]\}_n$	47	6	15	6	0.63	176
7	$\{[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x} + O_2]\}_n$	47	6	15	6	1	176
8	$(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}$	15000	8				1
9	$\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x}]/[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x}+N_{2}]\}_{n}$	47	8	15	8	0.65	300
10	$\{[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}]/[(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}+O_2]\}_n$	47	8	15	8	0.2	300
11	$(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x)(SiO_2)_{100-x}$	18000	9.2				1
12	$(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x)(SiO_2)_{100-x}$			18000	9.2	0.32	1
13	$\{[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x)(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}+O_2]\}_n$	47	9.2	15	9.2	0.5	335
14	$\{[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x)(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x} + O_2]\}_n$	47	9.2	15	9.2	1.4	290
15	$\{[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x)(SiO_2)_{100-x}]/[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}+O_2]\}_n$	53	9.2	55	9.2	3.2	290

Примечание.  $t_1$  — время напыления пленки в инертной среде,  $t_2$  — время напыления пленки в реактивной среде,  $P_{Ar}$  — давление аргона,  $P_{\Omega_2(N_2)}$  — давление реактивного газа (кислорода или азота).

за счет формирования многослойной гетерогенной структуры, где слой композита, полученного в инертной атмосфере, чередуется с композиционной прослойкой, полученной в среде, содержащей активный газ.

# 2. Методика получения и исследования

Пленки гетерогенных систем  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}, (Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}$  и  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$  получены ионно-лучевым распылением составных мишеней в широком диапазоне концентраций металлической фазы по методике, описанной в статье [9].

Получение многослойных гетерогенных структур на основе композитов аморфный ферромагнитный сплав-композит:

$$\{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x} + N_{2}] \}_{n}, \\ \{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x} + O_{2}] \}_{n}, \\ \{ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{x}(SiO_{2})_{100-x}] / \\ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{x}(SiO_{2})_{100-x} + O_{2}] \}_{n} \}_{n} \}$$

И

{

$$\begin{split} [(\text{Co}_{84}\text{Nb}_{14}\text{Ta}_2)_x(\text{SiO}_2)_{100-x}] \Big/ \\ [(\text{Co}_{84}\text{Nb}_{14}\text{Ta}_2)_x(\text{SiO}_2)_{100-x} + \text{O}_2] \}_n \end{split}$$

было осуществлено по следующей технологии. В течение 47 секунд производилось напыление композита в атмосфере аргона, затем в течение 15 секунд
в атмосфере аргона с добавлением кислорода (азота)

при тех же условиях, что и для объемных композитов. Время установления номинального давления реактивных газов после включения клапана натекателя составляло 4 s, а время их откачки при выключении клапана натекателя — 8 s. По скорости и времени напыления композитов были оценены толщины слоев многослойной структуры, которые для прослойки композитов, осажденных в атмосфере аргона, составили ~ 8–14 nm, а в атмосфере Ar + O<sub>2</sub> (Ar + N<sub>2</sub>) — ~ 3–5 nm. Индекс *n* в формуле многослойной структуры означает количество бислоев, реализованных в процессе напыления.

В результате были получены пленки композитов и многослойных структур, представленные в таблице. Элементный состав пленок определен с помощью энергодисперсионной рентгеновской приставки Oxford INCA Energy 250 на сканирующем электронном микроскопе JEOL JSM-6380 LV.

Структурные особенности гетерогенных пленок исследованы методом просвечивающей электронной микроскопии в центре коллективного пользования Белгородского государственного университета. Магнитные свойства измерены с помощью вибрационного магнитометра.

#### 3. Структура композитов

Анализ результатов исследования структуры композитов показал, что в зависимости от состава композита структурная неоднородность может быть выражена в большей или меньшей степени. Так, в случае композита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{60}(SiO_2)_{40}$  можно выделить слабовыраженную анизотропию распределения металлических гранул в направлении роста пленки (рис. 1, *a*). Наиболее выраженная структурная анизотропия характерна для композита  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$ , структуру пленки которого в направлении роста можно определить как "столбчатую" (рис. 1, *b*).



**Рис. 1.** Микрофотографии поперечного разреза пленок наногранулированных композитов  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{60}(SiO_2)_{40}$  (*a*) и  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$  (*b*).



**Рис. 2.** Микрофотография и электронограмма гранулированного композита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{52}(SiO_2)_{48}$  в плоскости пленки.



Рис. 3. Микрофотография поперечного разреза пленки многослойной структуры  $[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{60}(SiO_2)_{40}]/[(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{60}(SiO_2)_{40} + O_2]_{176}$ , полученной при циклическом напылении в атмосфере Ar с давлением  $6 \cdot 10^{-4}$  Torr в течение 47 s и смешанной атмосфере (Ar с давлением  $6 \cdot 10^{-4}$  Torr и  $O_2$  с давлением  $2.4 \cdot 10^{-5}$  Torr) в течение 15 s.

В плоскости пленки исследования с помощью просвечивающей электронной микроскопии не выявили существенной анизотропии гетерогенной структуры. Например, для композита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{52}(SiO_2)_{48}$  металлические гранулы, размер которых составляет 6–7 nm, хаотически распределены в плоскости образца (рис. 2). Гало на электронограмме свидетельствует о том, что структура ферромагнитных гранул аморфная.

Микрофотография поперечного сечения пленки многослойной гетерогенной структуры

$$\begin{split} \{ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{60}(SiO_2)_{40}] \big/ \\ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{60}(SiO_2)_{40} + O_2] \}_{176} \end{split}$$

показывает наличие наноразмерных параллельных плоскости пленки слоев, что существенно затрудняет образование цепочек гранул, выстроенных перпендикулярно поверхности подложки (рис. 3).

#### 4. Магнитные свойства

Исследования магнитных свойств объемных композитов показали, что они в существенной степени зависят от состава пленок. На рис. 4 представлены кривые намагничивания композитов  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{65}(SiO_2)_{35}$ ,  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$  и  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$ . Несмотря на близкую концентрацию аморфной ферромагнитной фазы данных композитов, кривые намагничивания заметно различаются. Пленка (Co<sub>41</sub>Fe<sub>39</sub>B<sub>20</sub>)<sub>65</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>35</sub> имеет низкое значение коэрцитивной силы  $(H_C \approx 4 \,\mathrm{Oe})$  и поле выхода кривой намагничивания в насыщение  $(H_{\rm BH} \sim 30 \,{\rm Oe})$  (рис. 4, кривая 1).

{



Рис. 4. Кривые намагничивания, измеренные в плоскости пленки параллельно ее оси для композитов  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{65}(SiO_2)_{35}$  (1),  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$  (2) и  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$  (3).



Рис. 5. Кривые намагничивания композитов и многослойных структур на основе композита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{65}(SiO_2)_{35}$ . Кривые 1-3 соответствуют композитам, полученным при условиях распыления составной мишени, приведенных в таблице для образцов № 1 (1), 2 (2) и 3 (3); кривая 4 соответствует многослойной структуре, полученной при условиях, приведенных в таблице для образца № 7.

В то же время композиционные пленки  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$ И значениями характеризуются сопоставимыми коэрцитивного поля и более высокими значениями поля выхода кривой намагничивания на насыщение. Так, для композитов (Co<sub>45</sub>Fe<sub>45</sub>Zr<sub>10</sub>)<sub>60</sub>(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>40</sub> и  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$   $H_C \approx 24 \text{ Oe}$  a  $H_{BH} \sim 2000 \text{ Oe}$ (кривые 2 и 3 на рис 4). Излом на кривой намагничивания композита  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$ при  $H \approx 35 \,\mathrm{Oe}$  (кривая 2) свидетельствует о наличии азимутальной составляющей вектора намагничивания данного образца относительно плоскости пленки.

Введение окисленной прослойки в исследованные композиты оказывает влияние на магнитные свойства, которое зависит от состава многослойной структуры. В случае объемных композиционных пленок  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{65}(SiO_2)_{35}$  наличие окисленных прослоек не оказывает сильного влияния на магнитную структуру образцов (рис. 5). Однако следует заметить, что введение композиционной прослойки несколько увеличивает коэрцитивную силу многослойных структур на основе композита  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{65}(SiO_2)_{35}$ .

Окисленные прослойки из композитов, синтезированных в среде с добавлением активных газов в многослойных структурах

$$\frac{\left[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}\right]}{\left[(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}+O_2\right]_n},$$

также не оказывают существенного влияния на магнитные свойства. В качестве примера представлены кривые намагничивания пленок композита  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$  и многослойных структур

$$\{ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}] / \\ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35} + O_2] \}$$

с различным парциальным давлением кислорода (рис. 6). Несколько более низкое поле выхода кривой намагничивания на насыщение обнаружено при давлении кислорода  $3.4 \cdot 10^{-4}$  Torr, что составляет более 30 раг.% от общего давления рабочего газа (рис. 6, кривая 5).

Наиболее сильное влияние прослойки окисленного (азотированного) композита на изменение магнитных



Рис. 6. Кривые намагничивания композитов и многослойных структур на основе композита  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$ . Кривые *1, 2* соответствуют композитам № 11 и 12 соответственно, полученным при различных условиях распыления составной мишени (см. таблицу), а кривые 3-5 — многослойным структурам, полученным при условиях распыления образцов № 13 (3), 14 (4), 15 (5).



Рис. 7. Кривые намагничивания композитов и многослойных структур на основе композита (Co<sub>45</sub>Fe<sub>45</sub>Zr<sub>10</sub>)<sub>60</sub>(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>40</sub>. Кривая *1* отвечает композитам, полученным при условях распыления составной мишени № 8 (см. таблицу), а кривые 2, 3 — многослойным структурам, полученным при условиях распыления, соответствующих образцам № 9 (2) и 10 (3).

свойств проявилось в случае многослойных структур на основе композитов  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}$  в составах, находящихся после порога перколяции. Если в объемном композите  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$  поле выхода кривой намагничивания на насыщение  $H_{BH} \sim 30$  Ое (кривая 1 на рис. 7), то введение прослоек из пленок, синтезированных в атмосфере азота и кислорода, в многослойных структурах

$$\{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40} + N_2] \}_{300}, \\ \{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40} + O_2] \}_{300} \}$$

кардинально изменяет кривые намагничивания (рис. 7, кривые 2 и 3 соответственно).

Так, значительно уменьшается поле выхода намагниченности пленок на насыщение (до 16 Oe) и не наблюдается перегиба на кривых намагничивания представленных образцов. Это свидетельствует об отсутствии перпендикулярной составляющей намагниченности многослойной гетерогенной структуры в случае введения в пленку прослоек измененного реактивными газами композита.

### 5. Обсуждение результатов

В настоящее время известно большое число сочетаний металлической и диэлектрической фаз, которые позволяют получать наногранулированные структуры [9]. При этом если металлическая фаза металлических гранул ферромагнитна, то при малой их концентрации при комнатной температуре они находятся в суперпарамагнитном состоянии, т.е. каждая гранула является монодоменом с магнитным моментом, совершающим под действием тепловой энергии флуктуационные переориентации вдоль локальных осей легкого намагничивании с частотой 10<sup>9</sup>-10<sup>12</sup> Hz [14]. Вблизи порога перколяции нанокомпозиты обнаруживают достаточно высокую намагниченность и большие значения магнитной проницаемости. В этой области концентраций процесс перемагничивания определяется только вращением вектора намагниченности гранул, поскольку движение доменных границ невозможно в результате морфологии их распределения в диэлектрической матрице. Вращение вектора намагниченности происходит с гораздо большей скоростью, чем при движении доменных границ, что способствует сохранению высоких значений магнитной проницаемости в более высокочастотном диапазоне по сравнению со случаем гомогенных ферромагнетиков, в том числе и с аморфной структурой, которые перемагничиваются посредством движения доменных границ.

Для композитов, расположенных за порогом протекания, возникает нарастающее межгранульное взаимодействие, приводящее к формированию коллективного состояния, магнитные свойства которого начинают доминировать над свойствами отдельных гранул. При этом макроскопические магнитные свойства в существенной степени определяются энергией магнитной анизотропии уже самой композитной пленки. Формирование гетерогенной структуры пленки происходит при ее росте в результате процессов самоорганизации. Самоорганизация гранулированной среды в процессе роста пленки сложный процесс, зависящий от многих технологических параметров. Основным требованием для реализации данного процесса при росте пленки из паровой фазы является отсутствие взаимной растворимости и химических соединений между образующимися фазами [17]. Если учитывать, что в состав фаз гетерогенных систем входят различные атомы и их химические соединения, а распыление происходит ионно-плазменным методом, то моделирование процесса самоорганизации гетерогенной структуры является сложной задачей. Пространственная структура металлических гранул и кластеров зависит от многих параметров, и изотропное их распределение в объемном композите скорее исключение, чем правило. Поэтому однозначное установление природы магнитной анизотропии в тонкопленочных композитах требует не только проведения исследований магнитных свойств, но и анализа данных, полученных с помощью электронной микроскопии и других методов.

На основе проведенных исследований можно предположить, что наиболее вероятной ориентацией намагниченности в нанокомпозитах с аморфной структурой ферромагнитной фазы за порогом перколяции является ориентация в плоскости пленки, поскольку в направлении, перпендикулярном плоскости пленки, возникает большое размагничивающее поле. Именно такую ориентацию вектора намагниченности можно наблюдать в композитах  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$  (рис. 4, 5). Однако небольшая структурная анизотропия в направлении, перпендикулярном плоскости образца (рис. 1, a), приводит к тому, что вектор намагниченности, вероятно, составляет небольшой угол относительно плоскости пленки, о чем свидетельствуют кривые намагничивания исследованных образцов при приближении к насыщению (рис. 5). Это обстоятельство, вероятно, приводит и к наблюдаемым скачкам намагничивания (скачкам Баркгаузена), характерным как для композитов, полученных при различных условиях напыления (кривые 1-3 на рис. 5), так и для многослойной структуры (кривая 4). Поскольку перемагничивание в этом случае происходит путем смещения доменных границ, формирование окисных слоев гранул в случае композитов и окисной прослойки в случае многослойной структуры приводит к последовательному росту коэрцитивного поля, хотя существенных изменений кривых намагничивания не наблюдается.

Введение окисленной прослойки не оказывает существенного влияния на кривые намагничивания и в многослойных структурах

$$\{ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / \\ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x} + O_2] \}_n,$$

где наблюдается перпендикулярная магнитная анизотропия, которая может быть реализована в пленке, если поле магнитной анизотропии превышает поле размагничивания  $I_S/\mu_0$  (рис. 6),  $I_S$  — намагниченность насыщения. Возникновение перпендикулярной магнитной анизотропии в гранулированных аморфных пленках с толщиной, много большей размеров гранул, явление новое, поскольку обычно наблюдается в композитах с кристаллической структурой гранул [18-20]. Основной причиной перпендикулярной анизотропии может быть рост столбчатой структуры в процессе формирования композита, наблюдаемый экспериментально (рис. 1, b). Он может быть связан с особенностями разделения фаз при осаждении атомов. При высокой миграционной подвижности конденсирующихся металлических атомов и значительной разнице в энергии химических связей между компонентами образование столбчатой структуры в композитах  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}$  и  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$  оказывается более вероятным, чем для композитов  $(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}$ . Величину магнитной анизотропии при этом определяет анизотропия формирований в виде цепочек гранул, ось легкого намагничивания которых перпендикулярна плоскости пленки, хотя атомная структура таких ростовых образований аморфная.

Прослойки из композитов, синтезированных в среде с добавлением активных газов, в многослойных структурах

$$\{ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / \\ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x} + O_2] \}_n$$

не устраняют перпендикулярную магнитную анизотропию, о чем свидетельствуют кривые намагничивания пленок композита  $(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}$  и многослойных структур

$$\begin{split} \{ & [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35}] \big/ \\ & [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_{65}(SiO_2)_{35} + O_2] \} \end{split}$$

с различным парциальным давлением кислорода (рис. 6). Несколько более низкое поле перпендикулярной магнитной анизотропии обнаружено при давлении кислорода  $3.4 \cdot 10^{-4}$  Torr, что составляет более 30 раг.% от общего давления рабочего газа (рис. 6, кривая 5).

Другая ситуация наблюдается в случае композитов  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}$ , у которых введение окисленной прослойки позволяет подавить перпендикулярную магнитную анизотропию при концентрации металлической фазы выше порога перколяции (рис. 7).

Таким образом, наиболее существенное влияние на магнитные свойства введение окисленной прослойки из композита оказывает в пленках

$$\begin{split} \{ & [(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x}] \big/ \\ & [(\text{Co}_{45}\text{Fe}_{45}\text{Zr}_{10})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{100-x} + \text{O}_2] \}_n, \end{split}$$

где удается полностью подавить формируемую в процессе роста перпендикулярную магнитную анизотропию.

#### 6. Заключение

Методом ионно-лучевого распыления составной мишени при циклическом напуске в инертный рабочий газ (Ar) активных газов (O<sub>2</sub> или N<sub>2</sub>) получены новые многослойные пленочные структуры

$$\{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x} + N_{2}] \}_{n}, \\ \{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{x}(Al_{2}O_{3})_{100-x} + O_{2}] \}_{n}, \\ \{ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{x}(SiO_{2})_{100-x}] / \\ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_{x}(SiO_{2})_{100-x} + O_{2}] \}_{n} \}$$

И

$$\begin{split} \{ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x}] / \\ [(Co_{84}Nb_{14}Ta_2)_x(SiO_2)_{100-x} + O_2] \}_n. \end{split}$$

Введение окисленной прослойки позволило подавить перпендикулярную магнитную анизотропию в композите  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_x(Al_2O_3)_{100-x}$  при концентрации металлической фазы выше порога перколяции. Структурные

изменения в многослойных пленках

$$\{ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x}] / \\ [(Co_{41}Fe_{39}B_{20})_x(SiO_2)_{100-x} + O_2] \}_n$$

при  $P_{\rm O_2} \leq 0.32 \cdot 10^{-4}$  Тогг способствуют формированию ярко выраженной магнитной анизотропии в плоскости пленки порядка 100–200 Ое.

На примере композита  $(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}$  и многослойных структур

$$\begin{split} \{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}] \big/ \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40} + N_2] \}_{300}, \end{split}$$

$$\{ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40}] / \\ [(Co_{45}Fe_{45}Zr_{10})_{60}(Al_2O_3)_{40} + O_2] \}_{300}$$

(рис. 7) видно, что кривые намагничивания многослойных систем отражают магнитную структуру пленки, в которой вектор намагничивания расположен в плоскости подложки, тогда как объемный композит характеризуется некоторой перпендикулярной составляющей намагничивания.

#### Список литературы

- К. Судзуки, Х. Фудзимори, К. Хасимото. Аморфные металлы. Металлургия, М. (1987). 328 с.
- [2] И.В. Золотухин, Ю.Е. Калинин. УФН 160, 9, 75 (1990).
- [3] А.М. Глезер, Б.В. Молотилов. ФММ 69, 2, 5 (1990).
- [4] И.Б. Кекало, Б.А. Самарин. Физическое металловедение прецизионных сплавов. Сплавы с особыми магнитными свойствами. Металлургия, М. (1989) 496 с.
- [5] А.Д. Помогайло, А.С. Розенберг, И.Е. Уфлянд. Наночастицы металлов в полимерах. Химия, М. (2000). 672 с.
- [6] В.А. Цурин, А.Е. Ермаков, М.А. Уймин, А.А. Мысик, Н.Н. Щеголева, В.С. Гавико, В.В. Майков. ФТТ 56, 287 (2014).
- [7] S.H. Ohnuma, H. Fujimori, S. Mitani, T. Masumoto. J. Appl. Phys. 79, 5130 (1996).
- [8] S. Ge, X. Yang, K.Y. Kim, L. Xi, X. Kou, D.S. Yao, B. Li, X. Wang. Phys. Status Solidi A 202, 2021 (2005).
- [9] С.А. Гриднев, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников, О.В. Стогней. Нелинейные явления в нано- и микрогетерогенных системах. БИНОМ. Лаборатория знаний, М. (2012). 352 с
- [10] L.V. Lutsev, N.E. Kazantseva, I.A. Tchmutin, N.G. Ryvkina, Yu.E. Kalinin, A.V. Sitnikoff. J. Phys.: Condens. Matter 15, 3665 (2003).
- [11] О.В. Стогней, А.В. Ситников. ФТТ 52, 2356 (2010).
- [12] H. Ohnuma, K. Hono, H. Onoder, S. Ohnuma, H. Fujimori, J.S. Pedersen, J. Appl. Phys. 87, 817 (2000).
- [13] S. Ohnuma, H. Fujimori, T. Masumoto, X.Y. Xiong, D.H. Ping, K. Hono. Appl. Phys. Lett. 82, 946 (2003).
- [14] А.В. Ситников. Материаловедение 3, 49 (2010).
- [15] J. Fedotova, J. Kasiuk, J. Przewoznik, Cz. Kapusta, J. Svito, Yu. Kalinin, A. Sitnikov. J. Alloys Comp. 509, 9869 (2011).
- [16] A.M. Saad, A.V. Mazanik, Yu.E. Kalinin, J.A. Fedotova, A.K. Fedotov, S. Wrotek, A.V. Sitnikov, I.A. Svito. Rev. Adv. Mater. Sci 8, 152 (2004).

- [17] В.И. Иевлев. Тонкие пленки неорганических материалов: механизм роста и структура. ИПЦ ВГУ, Воронеж (2008). 495 с.
- [18] А.А. Тимофеев, С.М. Рябченко, В.М. Калита, А.Ф. Лозенко, П.А. Троценко, О.В. Стогней, А.В. Ситников. ФТТ 53, 463 (2011).
- [19] T. Shimatsu, Y. Inaba, S. Watanabe, O. Kitakami, S. Okamoto, H. Aoi, H. Muraoka, Y. Nakamura. IEEE Trans. Magn. 43, 2103 (2007).
- [20] Y. Sun, W. Li, P. Dhagat, C.R. Sullivan. J. Appl. Phys. 97, 10N301 (2005).