РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК ИНСТИТУТ ФИЗИЧЕСКИХ ПРОБЛЕМ имени П. Л. КАПИЦЫ

на правах рукописи

Дровосеков Алексей Борисович

ИССЛЕДОВАНИЕ МАГНИТНЫХ СОСТОЯНИЙ МНОГОСЛОЙНЫХ СТРУКТУР Fe/Cr

01.04.09 — физика низких температур 01.04.11 — физика магнитных явлений

$ABTOPE\Phi EPAT$

диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Москва — 2008

Работа выполнена в Институте физических проблем имени П. Л. Капицы РАН.

,	
Официальные опоненты:	В.А. Ацаркин
доктор физико-математических наук, профессор	В.В. Турушор

Ведущая организация:

Государственное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (технический университет)»

Защита состоится 3 декабря 2008 года в 10⁰⁰ часов на заседании диссертационного совета Д 002.103.01 при Институте физических проблем имени П. Л. Капицы РАН по адресу: 119334, Москва, ул. Косыгина 2.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физических проблем РАН.

Автореферат разослан		2008 года.
----------------------	--	------------

Ученый секретарь Совета член-корреспондент РАН, доктор физико-математических наук, профессор

Л.А. Прозорова

1. Общая характеристика работы

Актуальность работы

Металлические магнитные многослойные системы, или сверхрешетки, представляющие собой периодические структуры, состоящие из чередующихся тонких слоев ферромагнитного (Fe, Co, Ni...) и неферромагнитного (Ag, Au, Cr, Cu, Mn...) металлов, образуют особый класс материалов с необычными физическими свойствами. Открытие явления гигантского магнетосопротивления в системе Fe/Cr [1,2] привело к резкому росту интереса ко всей совокупности этих объектов и стимулировало интенсивное исследование магнитных, магниторезистивных и других особенностей, присущих таким структурам.

Большое число теоретических и экспериментальных работ посвящено изучению взаимодействия между соседними ферромагнитными слоями в сверхрешетке. Результаты этих исследований изложены в ряде обзорных статей (см., например, [3–6]). Экспериментально показано, что в зависимости от толщины неферромагнитной прослойки в многослойных и трехслойных (сэндвичах) образцах может реализовываться ферромагнитное (Φ M), антиферромагнитное ($A\Phi$ M) или неколлинеарное упорядочение магнитных моментов соседних ферромагнитных слоев. Энергию взаимодействия, описывающую указанные выше магнитные структуры, чаще всего принято представлять в виде суммы двух вкладов по намагниченностям соседних слоев ($\mathbf{m}_1, \mathbf{m}_2$), билинейного и биквадратичного:

$$E = J_1(\mathbf{m}_1, \mathbf{m}_2) + J_2(\mathbf{m}_1, \mathbf{m}_2)^2 = J_1 \cos \theta + J_2 \cos^2 \theta.$$
(1)

Конкуренция этих двух вкладов может, вообще говоря, давать произвольный угол θ между намагниченностями соседних ферромагнитных слоев в нулевом магнитном поле.

Необходимость учета биквадратичного члена в выражении для энергии взаимодействия возникла в связи с экспериментально обнаруженным 90-градусным магнитным упорядочением в образцах Fe/Cr/Fe [7] и Co/Cu/Co [8]. В дальнейшем биквадратичный обмен экспериментально был обнаружен во многих сверхрешетках, а для его объяснения предложен ряд теоретических моделей. Тем не менее, механизм появления биквадратичного вклада в энергию и связанного с ним неколлинеарного магнитного упорядочения в системе Fe/Cr пока однозначно не установлен. Вопрос усложняется возможным наличием магнитного порядка внутри прослоек хрома. В работах [9, 10] было показано, что в системах Fe/Cr тонкие слои хрома имеют антиферромагнитную структуру по крайней мере до температур порядка 500 K, хотя точка Нееля объемного хрома составляет 311 K. Учет антиферромагнетизма прослойки приводит к альтернативным формам записи энергии межслойного взаимодействия, отличным от модели биквадратичного обмена (1), а именно к так называемой модели «магнитной близости» [11]

$$E = C_1 \theta^2 + C_2 (\pi - \theta)^2, \qquad (2)$$

и модели «половинного угла» [12–15]

$$E = A_1 \cos \frac{\theta}{2} + A_2 \sin \frac{\theta}{2}.$$
 (3)

Для выяснения реальных механизмов возникновения неколлинеарной магнитной структуры в системе Fe/Cr представляется важным изучение температурной зависимости межслойного взаимодействия. До сих пор таким исследованиям уделялось недостаточно внимания, и восполнение данного пробела являлось на момент написания работы актуальной задачей. Сравнение экспериментальных результатов с предсказаниями различных теорий позволило бы сделать более определенные выводы о механизме возникновения межслойного обмена.

Другим направлением исследований магнитных многослойных структур является изучение эволюции их свойств при уменьшении номинальной толщины магнитных слоев, когда эти слои перестают быть сплошными и разбиваются на отдельные магнитные кластеры.

В последние годы подобные системы, состоящие из мелких магнитных частиц, привлекают достаточно большой интерес. Даже при отсутствии межчастичных взаимодействий ансамбль наноразмерных однодоменных магнитных частиц проявляет свойства, промежуточные между парамагнетиком и макроскопическим ферромагнетиком. Более того, наличие случайных межчастичных взаимодействий в системе может приводить к реализации фазы спинового (кластерного) стекла — коллективных неупорядоченных магнитных состояний. Несмотря на довольно обширные экспериментальные и теоретические исследования спин-стекольного состояния (см., например, обзоры [16, 17]) его магнитные свойства до конца не поняты, так что изучение данного вопроса остается актуальным.

Многослойные структуры, состоящие из островковых (кластерных) слоев ферромагнитного вещества, разделенных относительно толстыми немагнитными прослойками представляют собой один из возможных способов реализации рассмотренных систем. В настоящее время достаточно много работ посвящено изучению подобного рода объектов. В качестве прослоек между ферромагнитными слоями используются как неферромагнитные металлы [18–20], так и изоляторы [21, 22]. Обычно в этих работах не проводится детальное исследование возможных магнитных состояний системы. Большинство авторов ограничивается либо небольшим интервалом температур, либо фиксированными значениями толщин ферромагнитных слоев, и т.п.

Сравнительно полным является цикл работ, посвященных изучению свойств многослойной структуры металл-изолятор $[CoFe/Al_2O_3]_N$ (discontinuous metal-isolator multilayers) [21, 22] с разрывными ферромагнитными слоями. Магнитное состояние такой системы определяется в основном диполь-дипольным взаимодействием между частицами внутри ферромагнитных слоев, а межслойное взаимодействие пренебрежимо мало. В указанных работах было обнаружено существование различных магнитных фаз в зависимости от номинальной толщины магнитного слоя и температуры, включая ферромагнитную, суперпарамагнитную и фазу спинового стекла.

В ряде структур с металлической прослойкой, где важна роль обменного взаимодействия РККИ (Рудерман-Киттель-Касуия-Иосида) между сверхтонкими ферромагнитными слоями, (например, Co/Cu [18], Co/Ag [19], Fe/Al [20]) наблюдалось суперпарамагнитное поведение.

Несмотря на обширные исследования системы Fe/Cr, ее свойства для случая сверхтонких (кластерных) слоев железа практически не изучены. Особый интерес представляет выяснение влияния обменного взаимодействия между слоями Fe через прослойку Cr на характер формируемой магнитной структуры, в том числе на возможность реализации в исследуемой системе состояния спинового стекла.

Цель работы

Одной из задач данной работы было определить происхождение межслойного взаимодействия в многослойных системах Fe/Cr. Для этого методом ферромагнитного резонанса (Φ MP) было проведено исследование температурной зависимости межслойного обмена для серии образцов.

Другой целью работы было исследование эволюции магнитных свойств сверхрешеток Fe/Cr с уменьшением толщины слоев железа, когда они перестают быть сплошными.

Положения, выносимые на защиту

- Для серии сверхрешеток [Fe/Cr]_N методом ФМР изучены температурные (2÷400 K) зависимости и анизотропия спектров СВЧ поглощения. В исследуемых спектрах, помимо акустической и оптической резонансных мод, наблюдались дополнительные моды колебаний.
- 2. Произведен аналитический расчет спектра магнитных колебаний сверхрешетки. Показано, что наблюдаемые дополнительные моды

соответствуют сдвигу фаз прецессии намагниченности в соседних ферромагнитных слоях, отличному от 0 и π .

- 3. Характер температурных зависимостей констант межслойного обмена, полученных из экспериментальных спектров, подтверждает, что механизм биквадратичного обмена в системе [Fe/Cr]_N определяется наличием зарядово-индуцированной волны спиновой плотности в тонкой хромовой прослойке.
- 4. Обнаружено, что в системе [Fe/Cr]_N со сверхтонкими слоями железа (< 5 Å) в зависимости от температуры и номинальной толщины железного слоя, кроме магнитоупорядоченной фазы, реализуются суперпарамагнитная фаза и фаза спинового стекла.
- 5. Получена качественная фазовая диаграмма изучаемой системы для случаев ферромагнитного и антиферромагнитного взаимодействия между слоями железа. Обнаруженное различие в характере диаграмм для этих двух случаев связывается с разной величиной межслойного обмена.

Научная новизна и ценность работы

В данной работе проводились исследования межслойного обмена в многослойной системе Fe/Cr. Впервые межслойное взаимодействие изучалось на сверхрешетках Fe/Cr методом ФМР в широком температурном интервале 2–400 К. В спектрах резонансного поглощения обнаружены линии, соответствующие неоднородным модам магнитных колебаний. Вид полученных спектров ФМР объяснен на основе проведенного аналитического расчета частот резонансных мод в модели биквадратичного взаимодействия. Результирующие температурные зависимости обменных констант подтверждают, что билинейное взаимодействие в системе Fe/Cr обусловлено обменом РККИ, а биквадратичное связано с антиферромагнетизмом тонких слоев хрома.

Проведены исследования многослойных структур Fe/Cr со сверхтонкими слоями железа. Впервые в подобных структурах наблюдены аномальные петли гистерезиса. Обнаружен также ряд других свидетельств реализации в системе при низких температурах состояния типа спинового стекла. Построены качественные фазовые диаграммы для структур с толщинами прослойки хрома, соответствующими ФМ и АФМ межслойному взаимодействию. Отличие полученных диаграмм объяснено разницей в величине межслойного взаимодействия. Полученные в работе результаты являются новыми и вносят существенный вклад в наши представления о механизмах магнитного упорядочения в многослойных магнитных системах.

Практическая ценность работы

Высокий прикладной интерес к многослойным магнитным системам связан с возможностью их использования в области высоких технологий. Такие эффекты как гигантское магнитосопротивление, антипараллельное упорядочение соседних ферромагнитных слоев, а также возможность получать структуры с требуемой величиной и знаком межслойного обмена позволяют создавать на их основе компактные датчики магнитного поля, ячейки энергонезависимой памяти для вычислительной техники, магнитные вентили и т.д. Система Fe/Cr/Fe является в этом отношении одной из наиболее перспективных в связи с большой величиной межслойного обмена и, как следствие, высокими полями насыщения, которые достигаются в данной структуре.

В силу всего этого понимание механизмов межслойного взаимодействия и формирования упорядоченных состояний в системе Fe/Cr является крайне важным для приложений.

Апробация работы и публикации

Результаты данной работы были доложены на 12 семинарах и конференциях, включая 7 международных. По результатам работы опубликовано 12 статей в реферируемых научных журналах [23–34], из них 6 — в отечественных.

Объем работы

Диссертация состоит из Введения, двух частей и Заключения. Общий объем диссертации — 82 страницы. Работа содержит 32 рисунка и 4 таблицы. Список литературы состоит из 91 наименования, в том числе 12 статей, опубликованных по результатам диссертации.

2. Содержание диссертации

Во **Ведении** дается общая характеристика диссертации, обсуждается актуальность рассматриваемых вопросов, изложена цель работы, обосновывается ее новизна и научная ценность. Часть I работы посвящена изучению межслойного взаимодействия в сверхрешетках Fe/Cr с относительно толстыми слоями железа 20 ÷ 40 Å. При таких толщинах ферромагнитные слои железа можно считать сплошными и однородно намагниченными, а характер их взаимного упорядочения определяется механизмами взаимодействия через прослойку хрома.

В первом разделе первой части дается обзор основных экспериментальных результатов, известных к моменту написания диссертации. Приводится также обзор теоретических моделей, объясняющих наличие биквадратичного вклада в энергию взаимодействия слоев и предсказывающих возможность их неколлинеарного упорядочения. Показано, что при определенных условиях наличие антиферромагнетизма прослойки может приводить не только к формам записи энергии взаимодействия ФМ слоев (2) или (3), но также, в принципе, и к более популярной биквадратичной форме (1) [15, 29].

Второй раздел посвящен описанию образцов, изучаемых в первой части диссертации, и используемых в ней экспериментальных методов. В этой части исследовались четыре образца, приготовленных методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ). Их условные обозначения и структурные формулы приведены в таблице 1. Образцы S1–S3 приготовлены в Институте физики металлов УрО РАН (ИФМ, Екатеринбург), образец S4 был выращен в Техническом университете Кайзерслаутерна (Германия)¹. Высокое качество исследуемых образцов подтверждается данными малоугловой рентгеновской дифракции.

Обозначение	Структурная формула
S1	$[{ m Cr}(10,6{ m \AA})/{ m Fe}(19,5{ m \AA})]_8/{ m Cr}(68{ m \AA})/{ m Al}_2{ m O}_3$
S2	$[{ m Cr}(10,4{ m \AA})/{ m Fe}(21,2{ m \AA})]_{12}/{ m Cr}(90{ m \AA})/{ m MgO}$
S3	$[{ m Cr(8,1~\AA)}/{ m Fe(35~\AA)}]_{16}/{ m Cr(90~\AA)}/{ m MgO}$
S4	$[m Cr(10{ m \AA})/ m Fe(30{ m \AA})]_{10}/ m Ag(1000{ m \AA})/ m Fe(10{ m \AA})/ m MgO$

Таблица 1: Образцы, изучаемые в I части работы

Кривые намагничивания образцов S1–S3 при комнатной температуре были получены на вибромагнетометре в ИФМ.

В качестве основного метода исследования температурной зависимости межслойного взаимодействия в сверхрешетках Fe/Cr применялся ме-

¹ Автор благодарен В.В. Устинову, Л.Н. Ромашеву, М.А. Миляеву, С.О. Демокритову, Д.И. Холину за приготовление образцов.



Рис. 1: Кривые намагничивания (а) и зависимости частот ФМР от поля (б) для образца S2 при комнатной температуре. Точки — эксперимент, линии — теоретические зависимости. На графике (а) показаны результаты аппроксимации M(H) биквадратичной моделью (сплошная линия), а также моделями магнитной близости (штриховая линия) и половинного угла (крестики). На вставке — те же зависимости в координатах $M^2(H/M)$. На графике (б) экспериментальные зависимости $\omega(H)$ аппроксимируются на основе аналитического расчета спектров в модели биквадратичного взаимодействия (см. пояснения в тексте).

тод ферромагнитного резонанса. Используемая установка позволяла проводить измерения при температурах от 2 до 400 К на частотах 7÷37 ГГц. Магнитное поле величиной до 12 кЭ прикладывалось в плоскости пленки.

В **третьем разделе** приводятся кривые намагничивания исследуемых образцов при комнатной температуре, а также описываются основные особенности спектров поглощения ФМР.

Кривые намагничивания хорошо описываются в рамках модели биквадратичного взаимодействия (1) (рис. 1, а). Модели магнитной близости (2) и половинного угла (3) описывают экспериментальные зависимости заметно хуже. Полученные константы J_1 и J_2 сравнимы по абсолютной величине для всех образцов. Их значения лежат в пределах ~ $0.1 \div 0.7$ эрг/см².

Основной особенностью спектров ФМР для исследуемых сверхрешеток оказалось наличие, наряду с акустической и оптической модами, дополнительных линий резонанса (рис. 1, б). Было предположено, что эти линии связаны с возбуждением в сверхрешетке колебательных мод, неоднородных по толщине структуры, с промежуточным между 0 и *π* сдвигом фазы прецессиии намагниченности соседних слоев железа.

Для проверки этого предположения в **четвертом разделе** первой части диссертации предпринят расчет полевых зависимостей частот спиновых волн в рассматриваемой структуре в модели биквадратичного взаимодействия с произвольным волновым вектором, перпендикулярным плоскости пленки. Поскольку вид экспериментальных спектров существенно зависел от направления поля в плоскости пленки, в расчете необходим учет анизотропии четвертого порядка кристалла железа.

Расчет проводился на основании следующего основного выражения для полной энергии многослойной структуры:

$$E = -\sum_{i} M_{S}V(\mathbf{H}, \mathbf{m}_{i}) + \sum_{i} \left\{ J_{1}S(\mathbf{m}_{i}, \mathbf{m}_{i+1}) + J_{2}S(\mathbf{m}_{i}, \mathbf{m}_{i+1})^{2} \right\} + \sum_{i} \frac{KV}{2} (\mathbf{m}_{i}, \mathbf{z})^{2} - \sum_{i} \frac{AV}{4} \left\{ (\mathbf{m}_{i}, \mathbf{x})^{4} + (\mathbf{m}_{i}, \mathbf{y})^{4} \right\}.$$
(4)

Здесь M_S — абсолютная величина намагниченности Φ M слоя, V и S — его объем и площадь соответственно, \mathbf{m}_i — единичный вектор в направлении намагниченности *i*-го слоя. Первая сумма в (4) представляет собой энергию Зеемана в магнитном поле H. Вторая сумма дает энергию межслойного взаимодействия с билинейной (J_1) и биквадратичной (J_2) составляющими. Оставшиеся слагаемые представляют анизотропный вклад в энергию. Здесь квадратичный член — энергия легкоплоскостной анизотропии (\mathbf{z} — нормаль к плоскости пленки), связанная в основном с размагничивающим эффектом. При этом коэффициент K с хорошей точностью равен $4\pi M_S^2$. Члены 4-го порядка по \mathbf{m}_i — кубическая анизотропия кристалла железа с коэффициентом A (\mathbf{x}, \mathbf{y} — оси легкого намагничивания).

Кривая намагничивания и спектр спиновых волн в описанной модели могут быть получены аналитически в предположении реализации двухподрешеточного упорядочения магнитных моментов в структуре с бесконечным количеством слоев, когда намагниченности подрешеток расположены симметрично относительно внешнего магнитного поля. Реализация такой структуры возможна в случае поля, приложенного вдоль легкой либо трудной оси анизотропии в плоскости пленки. В этом случае статическая конфигурация магнитных моментов слоев описывается единственным параметром φ — углом между подрешетками и магнитным полем. Этот угол связан с намагниченностью системы простым соотношением

$$\cos\varphi = \frac{M}{M_S}.\tag{5}$$

При расчетах удобно ввести эффективные обменные и анизотропные поля

согласно формулам

$$H_{J1} = \frac{4J_1}{dM_S}, \qquad H_{J2} = \frac{8J_2}{dM_S}, \qquad H_U = \frac{K}{M_S}, \qquad H_A = \frac{A}{M_S}, \qquad (6)$$

где d — толщина ФМ слоев. В полях меньше поля насыщения кривая намагничивания в рассматриваемой модели неявно описывается уравнением

$$H = (H_{J1} - H_{J2} \pm H_A) \cos \varphi + 2(H_{J2} \mp H_A) \cos^3 \varphi,$$
(7)

где верхние знаки соответствуют случаю поля, направленного вдоль легкой, а нижние — трудной осей намагничивания. Величина поля насыщения определяется из (7) подстановкой $\cos \varphi = 1$ (т. е. $M = M_S$):

$$H_S = H_{J1} + H_{J2} \mp H_A.$$
 (8)

Анализ устойчивости рассматриваемой симметричной двухподрешеточной конфигурации магнитных моментов ФМ слоев (исследование на положительную определенность второго дифференциала энергии (4)) приводит к условию применимости формулы (7):

$$\frac{H}{H_A} > \mp \frac{\cos 4\varphi}{\cos \varphi}.$$
(9)

Это соотношение определяет область применимости выражения (7) в координатах $H(\cos \varphi)$.

При указанных предположениях также аналитически вычисляются собственные частоты магнитных колебаний системы (спиновых волн) в зависимости от сдвига фаз прецессии намагниченностей соседних Φ M слоев q. При этом q = 0 соответствует акустической, а $q = \pi$ — оптической колебательным модам. Приведем здесь формулы для частот в несколько упрощенном виде, в случае $H_A \ll H_U$. В полях меньше поля насыщения

$$\frac{\omega_q^2}{\gamma^2} = \left\{ (H_{J1} + H_{J2}\cos 2\varphi)\cos^2\frac{q}{2} + H_U \right\} \times \\
\times \left\{ H\cos\varphi - (H_{J1}\cos 2\varphi + H_{J2}\cos 4\varphi)\sin^2\frac{q}{2} \pm H_A\cos 4\varphi \right\},$$
(10)

в полях больше поля насыщения

$$\frac{\omega_q^2}{\gamma^2} = \left\{ H - (H_{J1} + H_{J2}) \sin^2 \frac{q}{2} + H_U \right\} \times \\ \times \left\{ H - (H_{J1} + H_{J2}) \sin^2 \frac{q}{2} \pm H_A \right\}.$$
(11)



Рис. 2: Зависимости билинейной (а) и биквадратичной (б) констант межслойного взаимодействия исследуемых образцов от температуры. Точки — эксперимент, линии — теоретические зависимости (обсуждаются в тексте).

В пятом разделе проводится сравнение экспериментальных зависимостей $\omega(H)$ с результатами расчета. В целом наблюдается неплохое согласие (рис. 1, б). Значения обменных констант совпадают с полученными из кривых намагничивания с точностью 10%. Величины $H_U \approx 2 \cdot 10^4$ Э и $H_A \approx 500$ Э хорошо соответствуют значениям для объемного железа. Экспериментальные зависимости $\omega(H)$ для дополнительных линий резонанса хорошо описываются неоднородными колебательными модами со значениями q между 0 (акустическая мода) и π (оптическая мода).

Наибольшее отклонение теоретических зависимостей от экспериментальных происходит вблизи точки пересечения кривых $\omega(H)$. В этой области наблюдается дополнительная резонансная ветвь, лежащая по частоте ниже оптической моды (светлые ромбики на рис. 1, б). Такое несоответствие связано с использованным в расчете приближением бесконечного количества слоев сверхрешетки. В случае реального конечного количества слоев численный расчет предсказывает наличие указанной дополнительной ветви.

Аппроксимацией экспериментальных зависимостей $\omega(H)$ с помощью численного расчета в **шестом разделе** получены температурные зависимости обменных констант J_1 и J_2 для образцов S1–S4 (рис. 2).

В области низких температур абсолютные значения билинейной и биквадратичной констант сравнимы между собой. Однако при повышении температуры константа J_1 изменяется слабо, а J_2 , напротив, сильно уменьшается. При этом зависимость $J_2(T)$ с хорошей точностью линейна во всей исследованной области температур. Полученная экстраполяцией нащих экспериментальных данных температура T_2 , при которой исчезает биквадратичное взаимодействие, лежит в пределах 500 ÷ 800 К.

Наблюдаемый характер температурных зависимостей обменных констант находится в соответствии с представлениями, что билинейное взаимодействие в системе Fe/Cr связано с обменом РККИ, а биквадратичное — с АФМ структурой прослойки хрома.

Зависимость $J_1(T)$ описывается в рамках модели РККИ формулой

$$J_1(T) = J_1^0 \frac{T/T_1}{\operatorname{sh}(T/T_1)},$$
(12)

где $T_1 \sim 10^3$ К. На рисунке 2 (а) экспериментальные зависимости $J_1(T)$ аппроксимированы с помощью формулы (12) с $T_1 = 400$ К. Как видим, имеется неплохое качественное согласие наших данных с моделью РККИ.

Величина температуры T₂ исчезновения биквадратичного взаимодействия качественно неплохо согласуется с температурой исчезновения AΦM параметра порядка в тонких слоях хрома. Полученная экспериментально линейная зависимость константы биквадратичного взаимодействия в области низких температур также была предсказана в работе Меньшова и Тугушева [15] на основе предположения о существовании волны спиновой плотности в прослойке хрома.

Часть II диссертации посвящена исследованию многослойных структур Fe/Cr со сверхтонкими слоями железа 2 ÷ 6 Å. При таких малых номинальных толщинах реальные напыленные слои железа не являются сплошными, а разбиваются на отдельные островки (кластеры). В этом случае, в отличие от сплошных слоев железа, дополнительными факторами, определяющими характер возникающей магнитной структуры, являются фрустрация магнитных взаимодействий между кластерами в слое и тепловые флуктуации. Как результат, помимо упорядоченных состояний, в системе возможна реализация суперпарамагнитного и спин-стекольного состояний.

В первом разделе второй части дается обзор основных эффектов, типичных для систем малых магнитных частиц — суперпарамагнетизм, явление блокировки, состояние спинового (кластерного) стекла. Обсуждается возможность приготовления таких систем напылением многослойных структур ферромагнетик-немагнетик со сверхтонкими ФМ слоями. Приводится краткий обзор имеющихся работ, посвященных исследованию подобных объектов. Во втором разделе описываются изучаемые образцы и используемые экспериментальные методы. Исследуются магнитные свойства шести многослойных структур Fe/Cr со сверхтонкими слоями железа 2–6 Å, выращенных методом МЛЭ в ИФМ (Екатеринбург). Приготовлены две серии образцов с толщиной прослойки хрома 20 Å и 10 Å, обеспечивающих в слоистых структурах Fe/Cr соотвественно ферро- и антиферромагнитное межслойное взаимодействие РККИ. В таблице 2 приведены условные обозначения изучаемых образцов с их структурными формулами.

Условное обозначение	Структурная формула
F1	$[{ m Cr}(20{ m \AA})/{ m Fe}(2,5{ m \AA})]_{30}/{ m Cr}(80{ m \AA})/{ m MgO}$
F2	$[{ m Cr}(20{ m \AA})/{ m Fe}(3,5{ m \AA})]_{30}/{ m Cr}(80{ m \AA})/{ m MgO}$
F3	$[{ m Cr}(20{ m \AA})/{ m Fe}(5,5{ m \AA})]_{30}/{ m Cr}(80{ m \AA})/{ m MgO}$
A1	$[{ m Cr}(10{ m \AA})/{ m Fe}(2,1{ m \AA})]_{60}/{ m Cr}(80{ m \AA})/{ m MgO}$
A2	$[{ m Cr}(10{ m \AA})/{ m Fe}(3,1{ m \AA})]_{50}/{ m Cr}(80{ m \AA})/{ m MgO}$
A3	$[m Cr(10{ m \AA})/ m Fe(5,2{ m \AA})]_{30}/ m Cr(80{ m \AA})/ m MgO$

Таблица 2: Образцы, изучаемые во II части работы

Магнитные свойства структур изучались методами SQUID-магнитометрии и ФМР. Исследования статических кривых намагничивания и низкочастотной магнитной восприимчивости проводились на SQUID-магнетометрах серии MPMS фирмы «Quantum Design». Бо́льшая часть измерений статических магнитных свойств выполнена в ИФМ (Екатеринбург), исследования низкочастотной восприимчивости проводились на SQUIDмагнетометре в ИОФАН (Москва)¹.

Третий раздел посвящен изучению суперпарамагнитного состояния приготовленных структур и определению порогового значения толщины слоев железа, при котором система переходит от режима обычной обменно-связанной сверхрешетки к суперпарамагнитному поведению. Показано, что при температурах порядка комнатной $T \approx 300$ K кривые намагничивания и спектры ФМР образцов с номинальной толщиной слоев железа $t_{\rm Fe} \approx 5$ Å (F3 и A3) хорошо описывается в рамках представлений об обычных обменно-связанных сверхрешетках, изучению которых посвящена первая часть диссертации.

¹ Автор благодарен А.В. Королеву, А.А. Мухину, В.Ю. Иванову за сотрудничество в проведении измерений.



Рис. 3: Температурные зависимости намагниченности исследуемых структур ΦM (а) и $A\Phi M$ (б) типов, полученные в поле 500'Э после процедуры охлаждения образца в отсутствие поля (светлые точки) и в поле (темные точки).

Структуры с $t_{\rm Fe} \approx 2$ Å (F1 и A1) в области достаточно высоких температур $T \gtrsim 100$ К проявляют суперпарамагнитные свойства — кривые намагничивания ланжевеновской формы и линейную зависимость частоты ФМР от поля. При более низких температурах кривые намагничивания этих образцов плохо описываются функцией Ланжевена, кроме того наблюдается наличие остаточной намагниченности.

По мере увеличения номинальной толщины слоев железа температура перехода к суперпарамагнитному режиму повышается. Для образца ФМ типа F2 остаточный момент исчезает при $T \gtrsim 200$ K. Изучение образца AФM типа A2 с помощью ФМР показывает наличие в нем упорядоченной фазы вплоть до достаточно высоких температур $T \sim 400$ K. При более высоких температурах происходит переход к суперпарамагнитному поведению, проявляющийся в исчезновении анизотропии положения резонансной линии.

В **четвертом разделе** проводится более детальное исследование свойств низкотемпературной фазы изучаемых структур.

Зависимости намагниченности от температуры, полученные при охлаждении образцов в магнитном поле $M_{\rm FC}(T)$ и в его отсутствие $M_{\rm ZFC}(T)$, в области низких температур демонстрируют различное поведение (рис. 3). $M_{\rm FC}$ монотонно убывает с увеличением температуры, а $M_{\rm ZFC}$ проходит через максимум. Таким образом, в области низких температур и малых полей магнитное состояние образцов является необратимым и зависит от их магнитной предыстории. Зависимость температуры T_m максимума $M_{\rm ZFC}(T)$ от номинальной толщины слоя железа различна для образцов ФМ и АФМ серий. Для образцов ФМ типа T_m растет с увеличением номинальной толщины железа, а для образцов АФМ типа, наоборот, падает.

Низкотемпературная необратимость магнитных свойств исследуемых структур, в принципе, может объясняться различными причинами. В случае кластерного устройства слоев железа эффект может быть связан с блокировкой отдельных ферромагнитных частиц из-за их внутренней анизотропии. При наличии межчастичных взаимодействий могут также возникать коллективные состояния типа спинового стекла. Наконец, для достаточно толстых слоев железа необратимость может быть обусловлена обычной доменной структурой ФМ пленок.

Для определения природы необратимых явлений в исследуемых образцах был проведен ряд дополнительных экспериментов, в частности, измерения низкотемпературных петель гистерезиса и температурных зависимостей комплексной низкочастотной восприимчивости. Также с помощью техники ФМР исследована зависимость кривых резонансного поглощения в области низких температур от магнитной предыстории образцов.

Характерная особенность низкотемпературных петель гистерезиса исследуемых образцов состоит в том, что кривая начального намагничивания, измеренная после охлаждения образца в отсутствие поля, лежит вне петли гистерезиса, полученной после приложения к образцу сильного магнитного поля (рис. 4, а). Подобная аномалия в той или иной степени наблюдается при низких температурах для всех исследуемых образцов за исключением F3. С ростом температуры эта аномалия исчезает.

Наблюдаемое поведение свидетельствует в пользу предположения о спин-стекольном состоянии образцов при низких температурах. Такое состояние характеризуется множественностью локальных минимумов энергии с различными значениями полной намагниченности. Для перевода системы из состояния с малым магнитным моментом в состояние с большим магнитным моментом необходимы существенно большие поля, чем для вращения этого магнитного момента как целого.

Необратимость магнитных свойств системы обнаруживается также при изучении спектров ферромагнитного резонанса. Рисунок 4 (б) иллюстрирует зависимость кривой поглощения от магнитной предыстории на примере образца F2. В этих экспериментах образец охлаждается в отсутствие поля от комнатной температуры до T = 4 K. Затем вводится магнитное поле величины $H = H_1$ и при уменьшении поля до нуля записывается кривая CBЧ поглощения. Далее эта процедура повторяется с последовательно увеличивающимися значениями поля $H = H_{i+1} > H_i$.

При небольших значениях $H\approx 2\,\mathrm{k}\Im$ резонансное поглощение практи-



Рис. 4: Зависимость магнитных характеристик образца F2 от предыстории: а) петля гистерезиса (темные точки) и кривая начального намагничивания после охлаждения образца в отсутствие поля (светлые точки) при $T = 2 \,\mathrm{K}$, б) кривые поглощения, записанные после охлаждения образца в отсутствие поля до 4 K и последующего приложения различных величин поля.

чески отсутствует (рис. 4, б). По мере увеличения H сначала появляется широкая линия, которая затем становится все у́же и интенсивней. Насыщение происходит лишь в полях $H \gtrsim 10$ кЭ.

Такое поведение находится в согласии с предположением о спин-стекольном характере образцов при низких температурах. При охлаждении в нулевом поле система попадает в состояние, у которого отсутствует макроскопическая намагниченность и имеется широкий спектр собственных частот. Приложением магнитных полей ~10 кЭ система переводится, последовательно преодолевая ряд потенциальных барьеров, в состояние с наличием макроскопического момента. В таком состоянии появляется выделенная собственная частота, соответствующая колебанию системы как целого — акустическая мода.

Динамические свойства системы были исследованы также с помощью измерений низкочастотной магнитной восприимчивости в нулевом постоянном и малом переменном поле. Температурные зависимости действительной $\chi'(T)$ и мнимой $\chi''(T)$ частей комплексной восприимчивости демонстрируют наличие максимумов (рис. 5, а). Положене пиков $\chi'(T)$, T_{mf} , зависит от частоты переменного поля f. Зависимость $T_{mf}(f)$ качественно описывается типичным для спиновых стекол степенным критическим законом: $f(T_{mf}) \sim \tau_0^{-1}(T_{mf}/T_g - 1)^{z\nu}$ с «разумными» значениями по-



Рис. 5: Температурная зависимость действительной (χ') и мнимой (χ'') частей магнитной восприимчивости на различных частотах $f = 1 \div 1000 \, \Gamma$ ц для образца F1 (a) и зависимость частоты f от температуры максимума T_{mf} восприимчивости χ' (б).

стоянной времени $\tau_0 \sim 10^{-10}$ с и критического показателя $z\nu \sim 10$ [22] (рис. 5, б). Величина T_g имеет смысл температуры перехода в состояние спинового стекла. Использование для описания результатов наших экспериментов закона Аррениуса $f(T_{mf}) \sim \tau_0^{-1} \exp(-\Delta E/k_B T_{mf})$ (ΔE — энергия активации), описывающего явление блокировки в суперпарамагнетиках, приводит к нереальным значениям константы $\tau_0 \sim 10^{-50}$ с.

В пятом разделе построены качественные фазовые диаграммы наблюдаемых состояний образцов ФМ и АФМ типа в координатах температура — номинальная толщина слоя железа (рис. 6).

Основное отличие для структур ФМ и АФМ типов в исследованном диапазоне толщин слоев Fe заключается в различном поведении линии перехода в спин-стекольное (CC) состояние $T_g(t_{\rm Fe})$, а именно, «возрастающая» (при увеличении номинальной толщины слоев Fe) зависимость для образцов ФМ типа и «убывающая» — для образцов АФМ типа. При этом выше температуры T_g образцы ФМ типа F1 и F2 ($t_{\rm Fe} \approx 2 \div 4$ Å) проявляют суперпарамагнитные (СП) свойства. Напротив, образцы АФМ типа уже при толщинах $t_{\rm Fe} \gtrsim 3$ Å выше T_g демонстрировали наличие упорядоченной фазы.

Наблюдаемое отличие фазовых диаграмм для образцов ΦM и $A\Phi M$ типов связывается с различием в величине межслойного взаимодействия. Для образцов ΦM типа с $t_{\rm Cr} = 20$ Å межслойный обмен относительно мал, и свойства системы определяются в основном взаимодействиями слу-



Рис. 6: Качественные диаграммы наблюдаемых состояний для образцов ФМ и АФМ типов.

чайного характера внутри магнитного слоя. В этом случае при высоких температурах система является суперпарамагнетиком, а при охлаждении переходит не в упорядоченное ΦM состояние, а в состояние спинового стекла. По мере увеличения номинальной толщины напыленного железа величина взаимодействий внутри магнитного слоя растет, что приводит к увеличению температуры спин-стекольного перехода. По-видимому, лишь при $t_{\rm Fe} \gtrsim 5$ Å ΦM взаимодействие в слое начинает преобладать и пленка переходит в ΦM состояние.

Образцы АФМ типа отличаются от структур ФМ типа гораздо большим межслойным обменом, который вносит в систему дополнительный упорядочивающий эффект. Можно сказать, что помимо среднего ферромагнитного взаимодействия внутри железных слоев, каждый из них испытывает дополнительное воздействие среднего поля со стороны соседних слоев. Поэтому, в отличие от структур ФМ типа, уже при $t_{\rm Fe} > 3$ Å образцы АФМ серии демонстрируют переход из парамагнитной в упорядоченную фазу с АФМ упорядочением соседних слоев Fe. При более низких температурах наблюдается «возвратная» фаза спинового стекла. С увеличением $t_{\rm Fe}$ эффективное среднее поле внутри слоев растет, а относительный вклад случайных взаимодействий ослабевает. Соответственно, температура перехода из парамагнитной в упорядоченную фазу растет, а температура перехода в фазу спинового стекла понижается.

В Заключении сформулированы основные результаты диссертации:

- 1. В интервале температур от 2 до 400 К методом ФМР исследованы спектры сверхрешеток Fe/Cr с толщинами слоев железа $t_{\rm Fe} = 20 \div 35$ Å. Полученные экспериментальные спектры характеризуются, помимо акустической и оптической ветвей, наличием дополнительных резонансных линий.
- 2. Проведен аналитический расчет кривых намагничивания и полевых зависимостей частот магнитных колебаний для бесконечной магнитной сверхрешетки с учетом билинейной и биквадратичной констант межслойного взаимодействия, а также анизотропии четвертого порядка. Получены частоты магнитных колебаний с произвольными волновыми векторами, перпендикулярными плоскости пленки. Показано, что экспериментальные кривые намагничивания и спектры ФМР качественно хорошо описываются в рамках рассмотренной модели. Наблюдаемые дополнительные линии ФМР связаны с магнитными колебательными модами, неоднородными по толщине структуры.
- 3. Аппроксимацией экспериментальных зависимостей ω(H) результатами численных расчетов получены температурные зависимости билинейной и биквадратичной констант межслойного взаимодействия. Вид результирующих зависимостей J₁(T) и J₂(T) свидетельствует в пользу предположения, что билинейная константа имеет обменную природу РККИ, а биквадратичное взаимодействие связано с АФМ структурой прослойки хрома.
- 4. Методами SQUID магнитометрии и ΦМР исследованы две серии образцов со сверхтонкими слоями железа t_{Fe} = 2 ÷ 6 Å и различной толщиной прослойки хрома, соответствующей ΦМ и АΦМ межслойному обмену. В зависимости от температуры и номинальной толщины железного слоя наблюдена реализация различных магнитных фаз: магнитоупорядоченной сверхрешетки, суперпарамагнитной и спинового стекла.
- 5. Построена качественная фазовая диаграмма магнитных состояний исследуемой системы в зависимости от номинальной толщины слоев железа и температуры. Вид диаграммы отличается для структур с ФМ и АФМ межслойным взаимодействием.
- Различие фазовых диаграмм для структур с разной толщиной прослойки хрома на качественном уровне объясняется разницей по абсолютной величине межслойного обмена РККИ.

Список литературы

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert at al., Phys. Rev. Lett. 61, 2472 (1988).
- [2] G. Binasch, P. Grünberg at al., Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [3] S. O. Demokritov, J. Phys. D **31**, 925 (1998).
- [4] D. T. Pierce, J. Unguris, R. J. Celotta, M. D. Stiles, J. Magn. Magn. Mater. 200, 290 (1999).
- [5] M. D. Stiles, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 332 (1999).
- [6] B. Heinrich, Can. J. Phys. **78**, 161 (2000).
- M. Ruhrig, R. Schäfer, A. Hubert, R. Mosler, J. A. Wolf, S. O. Demokritov, P. Grünberg, Phys. Stat. Sol. A 125, 635 (1991).
- [8] B. Heinrich, J. F. Cochran, M. Kowalewski, J. Kirscher, Z. Celinski, A. S. Arrott, K. Myrtle, Phys. Rev. B 44, 9348 (1991).
- [9] T. Schmitte, A. Schreyer, V. Leiner, R. Siebrecht, K. Theis-Bröhl, H. Zabel, Europhys. Lett. 48, 692 (1999).
- [10] H. Zabel, J. Phys.: Condens. Matter. **11**, 9303 (1999).
- [11] J. C. Slonczewsky, J. Magn. Magn. Mater. 150, 13 (1995).
- [12] А. И. Морозов, А. С. Сигов, ФТТ 41, 1240 (1999).
- [13] А. И. Морозов, А. С. Сигов, ФТТ 46, 385 (2004).
- [14] В. Н. Меньшов, В. В. Тугушев, ЖЭТФ **122**, 1044 (2002).
- [15] В. Н. Меньшов, В. В. Тугушев, ЖЭТФ **125**, 136 (2004).
- [16] И. Я. Коренблит, Е. Ф. Шендер, УФН 157, 267 (1989).
- [17] K. Binder, A. P. Young, Rev. Mod. Phys. 58, 801 (1986).
- [18] P. Vavassori, F. Spizzo et al., J. Magn. Magn. Mater. 262, 120 (2003).
- [19] E. A. M. van Alphen, W. J. M. de Jonge, Phys. Rew. B 51, 8182 (1995).
- [20] M. Carbucicchio, C. Grazzi, M. Rateo *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. 215–216, 563 (2000).
- [21] W. Kleemann, O. Petracic, Ch. Binek et al., Phys. Rew. B 63, 134423 (2001).

[22] O. Petracic, X. Chen, S. Bedanta *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **300**, 192 (2006).

Статьи, опубликованные по результатам диссертации:

- [23] А.Б. Дровоссков, Н.М. Крейнес, Д.И. Холин, В.Ф. Мещеряков, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов, Письма в ЖЭТФ 67, 690 (1998).
- [24] A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, A. N. Kolmogorov, N. M. Kreines, V. F. Mescheriakov, M. A. Miliayev, L. N. Romashev, V. V. Ustinov, J. Magn. Magn. Mat. **198–199**, 455 (1999).
- [25] А. Б. Дровосеков, О. В. Жотикова, Н. М. Крейнес, В. Ф. Мещеряков, М. А. Миляев, Л. Н. Ромашев, В. В. Устинов, Д. И. Холин, ЖЭТФ 116, 1817 (1999).
- [26] A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, N. M. Kreines, O. V. Zhotikova, S. O. Demokritov, J. Magn. Magn. Mat. 226–230, 1779 (2001).
- [27] A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, N. M. Kreines, V. F. Mescheriakov, M. A. Milyaev, L. N. Romashev, V. V. Ustinov, The Physics of Metals and Metallography 91, Suppl. 1, S38 (2001).
- [28] A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, N. M. Kreines, V. F. Mescheriakov, M. A. Milyaev, L. N. Romashev, V. V. Ustinov, The Physics of Metals and Metallography 91, Suppl. 1, S74 (2001).
- [29] С. О. Демокритов, А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнес, Х. Нембах, М. Рикарт, Д. И. Холин, ЖЭТФ 122, 1233 (2002).
- [30] S. O. Demokritov, A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, N. M. Kreines, J. Magn. Magn. Mat. 258-259, 391 (2003).
- [31] S. O. Demokritov, A. B. Drovosekov, D. I. Kholin, N. M. Kreines, H. Nembach, M. Rickart, J. Magn. Magn. Mat. 272-276, E963 (2004).
- [32] A. B. Drovosekov, N. M. Kreines, M. A. Milyaev, L. N. Romashev, V. V. Ustinov, J. Magn. Magn. Mater. 290-291, 157 (2005).
- [33] A. B. Drovosekov, N. M. Kreines, M. A. Milyaev, L. N. Romashev, V. V. Ustinov, Phys. stat. sol. (c) 3, 109 (2006).
- [34] А.Б. Дровоссков, Н.М. Крейнес, Д.И. Холин, А.В. Королев, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов, Письма в ЖЭТФ 88, 126 (2008).