

АНОМАЛЬНАЯ МАГНИТНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ Pd_{0.99}Fe_{0.01}

Л. С. Успенская^{a}, И. Н. Хлюстиков^b*

^a *Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^b *Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
119334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 24 мая 2017 г.

Обнаружена и экспериментально изучена магнитная релаксация в пленках Pd_{0.99}Fe_{0.01}, имеющих практически значимые для криоэлектроники толщины 25 нм и 40 нм. Показано, что релаксация существенна только в тонких пленках. Установлено, что релаксация намагниченности хорошо описывается суммой двух экспоненциальных зависимостей с характерными временами, различающимися на порядок, причем и характерные времена релаксации, и соотношение вкладов двух релаксаций зависят от температуры. Определены активационные энергии процессов. Показано, что активационный объем соответствует размеру ферромагнитного кластера порядка 20 нм. Полученные результаты согласуются с моделью двухкомпонентной намагниченности в тонких пленках PdFe [6].

DOI: 10.7868/S0044451017110177

Сплавы Pd_{1-x}Fe_x принадлежат к классу сплавов переходных металлов, в которых ферромагнетизм появляется за счет усиления локального обмена и магнитного момента у ионов матрицы Pd, локализованных вблизи магнитных ионов Fe [1, 2]. При концентрациях Fe ~ 0.01 % в сплаве PdFe уже появляются ферромагнитные кластеры, а эффективный магнитный момент, приходящийся на один ион железа, достигает величины 12 μ_B [3]. При больших концентрациях Fe, на уровне 1 %, сплав становится однородным ферромагнитным материалом [4, 5]. Однако это справедливо лишь для объемного материала. Пленки того же состава, имеющие толщину 90–20 нм, характеризуются нанокластерным ферромагнетизмом [6–8]. При этом, как недавно было показано, свойства пленок с толщинами больше или порядка 40 нм хотя бы качественно совпадают со свойствами объемного материала, в то время как более тонкие пленки, толщиной 20–30 нм, демонстрируют принципиально отличные свойства: изменяются и тип температурной зависимости намагниченности $M(T)$, и вид петель гистерезиса $M(H)$ [6]. В данной работе мы продолжили изучение магнитных

свойств пленок Pd_{0.99}Fe_{0.01}, уделяя особое внимание эффектам магнитного последствия, которые значительно усиливаются по мере уменьшения толщины пленок. Мы определили характерные времена релаксации, энергии активации процессов и активационный объем.

Эксперименты проводились на пленках Pd_{0.99}Fe_{0.01} толщиной 25 нм и 40 нм, площадью 1 × 6 мм², изготовленных стандартным методом: осаждение при комнатной температуре на подложку из оксидированного кремния методом ионно-плазменного ВЧ-распыления мишени того же состава. Базовый вакуум составлял 2 · 10⁻⁶ мбар, давление аргона при распылении составляло 1.5 · 10⁻² мбар, напряжение смещения 1 кВ, скорость осаждения — 2 Å/с. Предварительно проводилась ионная очистка подложки при давлении аргона 1.5 · 10⁻² мбар в течение 60 с при напряжении смещения 1 кВ и 120 с при напряжении смещения 600 В. Это позволяло обеспечить хорошую адгезию пленки PdFe, а также обезгаживание подложки и столика подложкодержателя. Магнитные измерения выполнялись на СКВИД-магнитометре с временным разрешением 40 мс [9]. Регистрировались зависимости $M(H)|_T$, $M(T)|_H$ и $M(t)|_{T,H}$. Здесь M , H , T и t — магнитный момент образца, приложенное внешнее магнитное поле, температура и время. Температура

* E-mail: uspenska@issp.ac.ru

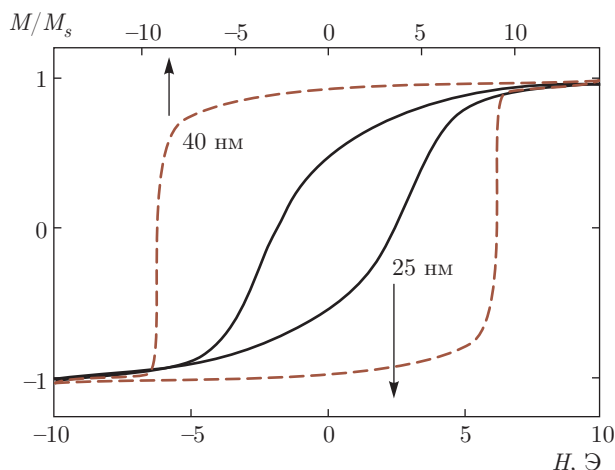


Рис. 1. Петли гистерезиса пленок толщиной $h = 25$ нм (сплошная кривая, нижняя горизонтальная ось) и $h = 40$ нм (штриховая кривая относится к верхней горизонтальной оси графика), снятые при температуре 2.5 К при развертке поля со скоростью 0.05 Э/с, M_s — намагниченность насыщения

Кюри пленок T_C определялась из магнитометрии и, кроме того, контролировалась по исчезновению аномального эффекта Холла [10].

Измерения показали, что использованные в наших экспериментах пленки толщиной 25 нм и 40 нм при низких температурах обладают ферромагнитными свойствами: петли гистерезиса $M(H)$ имеют протяженные участки необратимого перемагничивания, конечную величину коэрцитивности H_c , а остаточная намагниченность M_{res} отлична от нуля в широком диапазоне температур, $T < 11$ К и $T < 5.7$ К для пленок соответственно толщиной 40 нм и 25 нм, рис. 1, 2.

Петли гистерезиса «толстых» пленок (толщиной 40 нм) с точностью проведенных экспериментов не зависят от скорости развертки поля при снятии петель гистерезиса, рис. 1. Зависимость остаточной намагниченности от температуры, $M_{res}(T)$, снятая после охлаждения образца в поле 45 Э (рис. 2, штриховая линия), совпадает и с зависимостью $M_{res}(T)$, снятой после охлаждения в поле величиной всего 5 Э, и со значениями остаточной намагниченности, определенными из полных петель гистерезиса, измеренных при соответствующих температурах. Заметим также, что полученная зависимость $M_{res}(T)$ для пленок толщиной 40 нм имеет классический вид гладкой выпуклой функции, близкой к функции Ланжевена.

Петли гистерезиса для «тонких» пленок (25 нм) оказались динамически уширенными. На рис. 3 при-

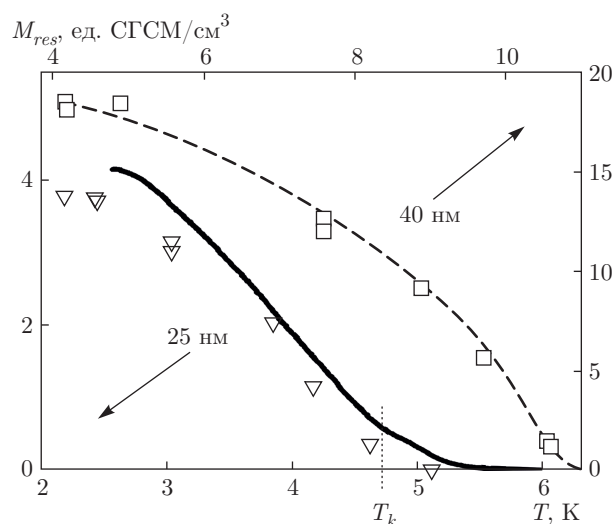


Рис. 2. Зависимости остаточной намагниченности пленок толщиной $h = 25, 40$ нм от температуры, измеренные после охлаждения в поле 45 Э при последующем отогреве в нулевом поле ($h = 25$ нм — сплошная линия, нижняя и левая оси, $h = 40$ нм — штриховая линия, верхняя и правая оси), а также значения остаточной намагниченности, восстановленные из петель гистерезиса (треугольники для $h = 25$ нм и квадраты для $h = 40$ нм)

веден пример экспериментальных записей $M(H)|_T$ при температуре $T = 3.04$ К для двух скоростей развертки приложенного магнитного поля: 0.5 Э/с — внешняя петля (кривая 1) и 0.05 Э/с — внутренняя петля (кривая 2). Видно, что уменьшение скорости развертки приводит к заметному сужению петли гистерезиса. Остановки развертки приводят к дальнейшему изменению петель — релаксации намагниченности M образца «внутри» петли гистерезиса (пунктирная кривая 3), а продолжение развертки поля после любой остановки приводит к возврату M на петлю $M(H)$, соответствующую выбранной скорости развертки поля (в данном случае на петлю с $dH/dt = 0.05$ Э/с).

Зависимость $M_{res}(T)$ для пленок толщиной 25 нм принципиально отличается от классической ланжевеновской функции (рис. 2, сплошная линия). При $T = T_k = 4.7$ К имеет место перегиб. Ниже T_k зависимость $M_{res}(T)$ имеет вид выпуклой функции, которая ближе к линейной функции, чем к куполообразной. Выше T_k зависимость $M_{res}(T)$ также является выпуклой функцией, которая плавно переходит в нуль при $T \sim 5.4$ К. Остаточная намагниченность $M_{res}(T)$, восстановленная по петлям гистерезиса (треугольники на рис. 2), меньше, чем снятая непрерывно зависимость $M_{res}(T)$. Отли-

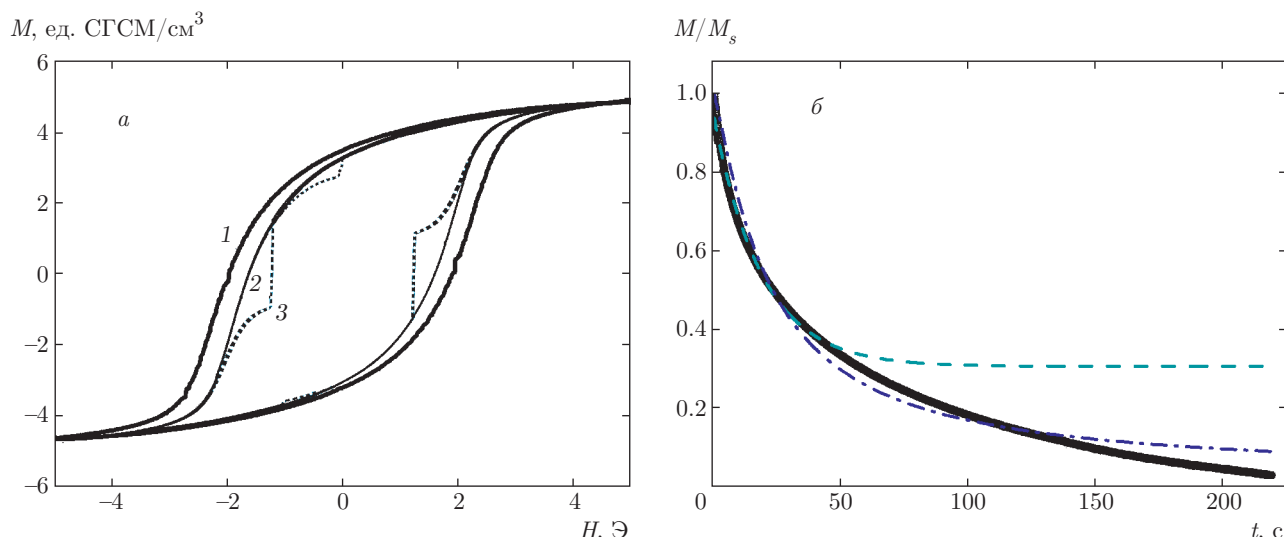


Рис. 3. а) Петли гистерезиса тонкой пленки, снятые при температуре 3 К при развертке поля за 10 с (толстая линия 1) и за 100 с (линия 2), а также петля (пунктирная линия 3), снятая с задержками развертки поля при $H = -0.03, -1.21$ Э (спадаящая ветвь петли), $H = -0.9, +1.25$ Э (восходящая ветвь петли) на 100 с; б) релаксация намагниченности при температуре 3 К при задержке развертки поля при $H = 1.2$ Э (толстая сплошная линия) и подгоночные кривые логарифмической и экспоненциальной функциями по интервалу времени $t < 50$ с (соответственно штрихпунктирная и штриховая линии) и двумя экспонентами (подгоночная кривая практически совпадает с экспериментальной)

чия величин $M_{res}(T)$ от значений, определенных из петель гистерезиса, естественны при наличии релаксации магнитного момента.

Как говорилось выше, при остановке развертки поля в тонких пленках наблюдается длительная релаксация намагниченности. Мы ее измеряли до тех пор, пока были заметны изменения намагниченности. Оказалось, что полученные релаксационные кривые $\Delta M(t)$ не описываются функцией $\Delta M \sim \ln t$, характерной для широкого спектра распределения дефектов [11]. А экспоненциально-затухающая функция $\Delta M(t) \sim a_0 \exp(-t/\tau_0)$ с одним характерным временем затухания τ_0 описывает процесс лишь на начальном участке релаксации, при этом значения τ_0 оказываются зависящими от интервала времени, на котором делается подгонка. Хорошую аппроксимацию удалось получить в предположении о сосуществовании двух различных релаксационных процессов. При этом $\Delta M(t)$ вполне удовлетворительно описывалось суммой двух экспоненциальных функций, $\Delta M(t) \sim a_1 \exp(-t/\tau_1) + a_2 \exp(-t/\tau_2)$. Процедура подгонки осуществлялась следующим образом: сначала делалась подгонка для времени $t > 100$ с одной экспоненциальной функцией и таким образом определялись характерное время и амплитуда «медленной» релаксации — τ_1, a_1 . Затем делалась подгонка двумя экс-

понентами, с фиксированными параметрами τ_1, a_1 , и определялись параметры второй функции, описывающей «быструю» релаксацию: τ_2, a_2 .

На рис. 4а,б показаны температурные изменения времен релаксации τ_1 и τ_2 и изменение соотношения амплитуд медленной и быстрой релаксаций a_1/a_2 . Видно, что при повышении температуры время медленной релаксации уменьшается от 200 с до 5 с, а время быстрой релаксации падает с 10 с до 1 с. Построение Аррениуса $A(T) = \lg \tau(1/T)$ дает примерно линейную зависимость в области температур выше 2.5 К, рис. 4а (штриховая и штрихпунктирная линии показывают подгонку по формуле). При этом τ_2 падает ниже 1 с при $T_1 \sim 4.5$ К, что соответствует температуре исчезновения коэрцитивности пленок (рис. 4в, точка T_k отмечена стрелкой) и точке перегиба на экспериментальной зависимости $M_{res}(T)$ (точка T_k на кривой на рис. 2). Время τ_1 падает ниже 1 с при $T_2 \sim 6$ К, что приблизительно соответствует температуре перехода пленки из ферромагнитного в парамагнитное состояние, определенной по нулевому значению намагниченности насыщения, восстановленной из петель гистерезиса, $M_s(T)$ (рис. 2).

Активационная энергия процесса «медленной» релаксации E_B , оцененная из функции Аррениуса $\tau = \tau_1 \exp(E_B/kT)$, где τ_1 — предэкспоненциальный

множитель, k — константа Больцмана, имеет значение порядка $2 \cdot 10^{-15}$ эрг. Активационный объем V_a , оцененный по формуле $E_B = 4\pi M_s H V_a$, оказывается порядка $7 \cdot 10^{-18}$ см³, что соответствует диаметру ферромагнитного кластера порядка 20 нм и практически совпадает с размером кластеров в пленке PdFe толщиной 40 нм, полученным ранее из оценки пиннинга в структуре PdFe/Nb [7, 10].

Амплитуда релаксации намагниченности зависит от величины поля, при котором проводятся измерения. Вблизи нулевого поля она составляет доли процента, вблизи поля коэрцитивности достигает 40 % за 200 с, рис. 3 (петля 3). Изменение соотношения амплитуд двух типов релаксаций в зависимости от температуры, рассчитанное из экспериментальных данных при остановке развертки поля вблизи поля коэрцитивности, приведено на рис. 4б: при низких температурах релаксация определяется в основном медленными процессами, но по мере повышения температуры возрастает вклад быстрой релаксации.

Итак, магнитные свойства пленок Pd_{0.99}Fe_{0.01} значительно изменяются при уменьшении их толщины. Естественно, что уменьшаются M_s и T_C . Кроме того, уменьшается H_c , что не характерно для обычных тонких ферромагнитных пленок. Далее, качественно изменяется вид зависимости $M_{res}(T)$: при $T = T_k$ на зависимости $M_{res}(T)$ появляется точка перегиба. В то же время, при уменьшении толщины пленок значительно усиливаются релаксационные процессы. Наблюдаемая релаксация намагниченности хорошо описывается суммой двух экспоненциальных функций. Такое изменение свойств пленок можно понять, приняв во внимание тот факт, что сплавы Pd_{1-x}Fe_x относятся к неупорядоченным ферромагнитным системам, магнитные свойства которых определяются спиновой поляризацией расположенных вблизи магнитной примеси атомов палладия, приводящей к формированию магнитных кластеров вокруг примесных атомов, и взаимодействием между этими кластерами [6, 12]. Авторы работы [12] показали, что в объемных материалах при уменьшении концентрации магнитных атомов и, как следствие, исчезновении прямого обменного взаимодействия между магнитными кластерами происходит перколяционный переход, при котором принципиально изменяются магнитные свойства материала. На тонких пленках Pd_{0.99}Fe_{0.01} мы видим изменение свойств пленок и вида зависимости $M(T)$ не при уменьшении концентрации магнитной примеси, а при уменьшении толщины пленок. В работе [6] высказано предположение, что в пленках PdFe эти изменения связаны с исчезновением пер-

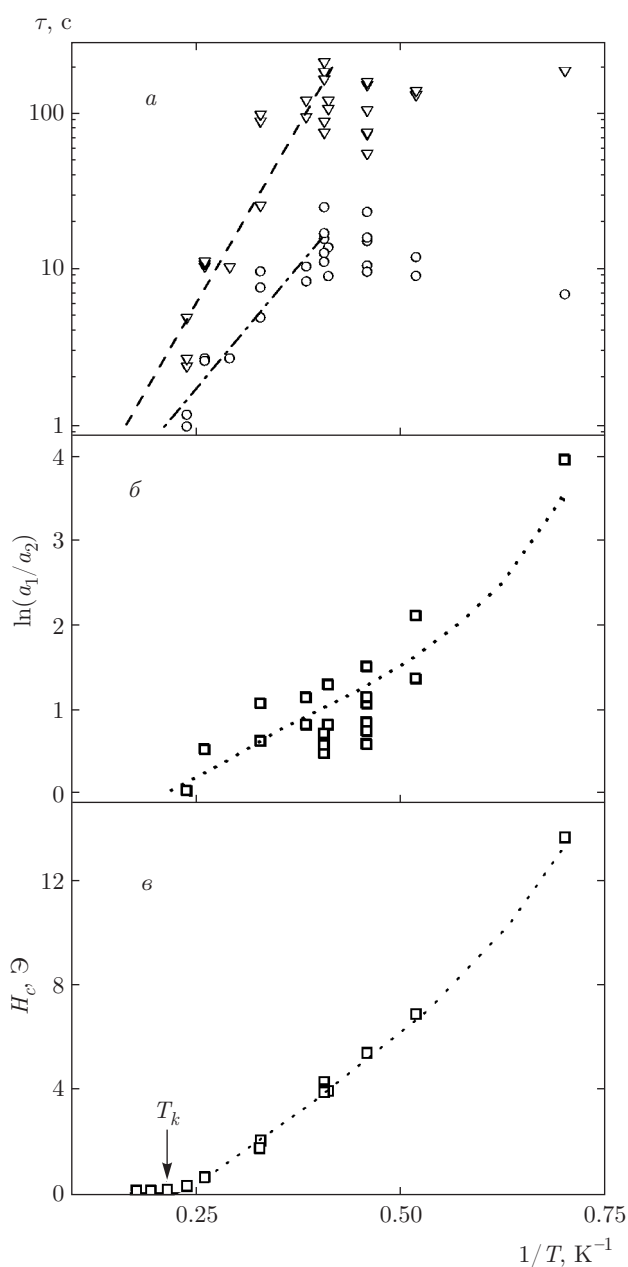


Рис. 4. а) Изменение медленного (треугольники) и быстрого (кружки) времен релаксации намагниченности с температурой (штриховая и штрихпунктирная линии — подгоночные кривые для $T > 2.5$ К по формуле $\tau = \tau_0 \exp(E_B/kT)$); б) изменение соотношения амплитуд медленной и быстрой релаксаций с температурой (пунктирная линия проведена «на глаз» для удобства восприятия данных); в) изменение коэрцитивности того же образца в зависимости от температуры

коляции между магнитными кластерами вследствие $3D-2D$ -перехода. Во многих разбавленных ферромагнетиках, но не в объемных сплавах PdFe, этот переход приводит к появлению свойств спинового стекла [12]. В тонких пленках PdFe мы наблюдаем именно этот эффект и, как следствие, усиление магнитной релаксации. Кроме того, мы видим, что релаксация определяется двумя процессами с заметно различающимися временами распада намагниченности. Естественно связать их с релаксацией магнитного момента в кластерах и ослаблением взаимодействия между кластерами. При высокой температуре намагниченность кластеров невелика и взаимодействие между ними слабее, наведенная внешним магнитным полем намагниченность в кластерах также уменьшается быстрее и, соответственно, взаимодействие между кластерами исчезает, пленка становится как бы суперпарамагнитной (остаточная намагниченность и коэрцитивность быстро принимают нулевые значения вследствие отсутствия взаимодействия между кластерами). Таким образом, мы можем связать быструю релаксацию с взаимодействием между кластерами, а медленную релаксацию — с намагниченностью в кластерах.

В заключение отметим, что наблюдаемая в тонких пленках Pd_{0.99}Fe_{0.01} магнитная релаксация не является препятствием для их применения в гибридных структурах сверхпроводник–ферромагнетик–сверхпроводник, например, в структурах Nb/PdFe/Nb, для управления свойствами структур магнитным полем. Во-первых, потому что существенная релаксация появляется только в перемангничивающем поле, а в диапазоне от насыщающего до нулевого она незначительна. Во-вторых, в гибридных структурах сверхпроводящий слой стабилизирует распределение магнитного момента в близрасположенном ферромагнитном слое и, тем самым, стабилизирует его намагниченность.

Работа выполнена в ИФТТ РАН и ИФП РАН при частичной финансовой поддержке РАН в рамках программы «Современные проблемы физики низких температур» и РФФИ (грант № 15-02-06743). Авторы признательны В. В. Больгинову за изготовление образцов и А. И. Морозову за обсуждение результатов.

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Vogt, P. Lederer, and D. L. Mills, Phys. Stat. Sol. (a) **34**, 11 (1976).
2. J. W. Cable and H. R. Child, Phys. Rev. B **1**, 3809 (1970).
3. G. G. Low and T. M. Holden, Proc. Phys. Soc. **89**, 119 (1966).
4. Z. Wang, H. P. Kunkel, and Gwyn Williams, J. Phys.: Condens. Matter **4**, 10385 (1992).
5. B. Heller, K.-H. Speidel, R. Ernst et al., J. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **142**, 133 (1998).
6. В. В. Больгинов, О. А. Тихомиров, Л. С. Успенская, Письма в ЖЭТФ **105**, 153 (2017).
7. Л. С. Успенская, А. Л. Рахманов, Л. А. Доросинский и др., Письма в ЖЭТФ **97**, 176 (2013).
8. I. A. Golovchanskiy, V. V. Bolginov, N. N. Abramov et al., J. Appl. Phys. **120**, 163902 (2016).
9. И. Н. Хлюстиков, ПТЭ **6**, 167 (1984).
10. L. S. Uspenskaya, A. L. Rakhmanov, L. A. Dorosinskii et al., Mater. Res. Express **1**, 036104 (2014).
11. X. X. Zhang, G. H. Wen, Gang Xiao, and Shouheng Sun, J. Magn. Magn. Mat. **261**, 21 (2003).
12. И. Я. Коренблит, Е. Ф. Шендер, УФН **126**, 233 (1978).