

# ФЕРРОМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС В СИСТЕМЕ МАГНИТНЫХ ПЛЕНОК С РАЗЛИЧНЫМИ ТЕМПЕРАТУРАМИ КЮРИ

*Е. В. Скороходов<sup>a\*</sup>, Е. С. Демидов<sup>b</sup>, С. Н. Вдовичев<sup>a</sup>, А. А. Фраерман<sup>a\*\*</sup>*

*<sup>a</sup> Институт физики микроструктур Российской академии наук  
603950, Нижний Новгород, Россия*

*<sup>b</sup> Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского  
603950, Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 19 октября 2016 г.

Исследованы особенности поглощения высокочастотного электромагнитного излучения (ферромагнитного резонанса) в многослойных структурах  $\text{NiFe}/\text{Ni}_{0.65}\text{Cu}_{0.35}(d)/\text{CoFe}$  в широком диапазоне температур. Показано, что характер взаимодействия ферромагнитных пленок  $\text{NiFe}$ ,  $\text{CoFe}$  через прослойку «слабого» ферромагнетика  $\text{Ni}_{0.65}\text{Cu}_{0.35}$  изменяется с антиферромагнитного на ферромагнитный при понижении температуры и уменьшении толщины прослойки  $d$ . Обнаруженная зависимость межслойного взаимодействия от температуры свидетельствует о возможности наблюдения большого магнитокалорического эффекта в исследуемых структурах.

DOI: 10.7868/S0044451017040113

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Контакт двух ферромагнетиков с различными температурами Кюри приводит к существенной перестройке распределения намагниченности в контактирующих подсистемах. В общем случае эта перестройка заключается в размагничивании «сильного» ферромагнетика с большей температурой Кюри и подмагничивании более «слабого» ферромагнетика, характеризуемого меньшей температурой Кюри. Аналогичная ситуация реализуется, если один из контактирующих магнетиков находится в парамагнитной фазе. Экспериментальному и теоретическому изучению такого «магнитного эффекта близости» посвящен ряд работ [1–4]. Значительный интерес представляют системы, состоящие из двух сильных ферромагнетиков (F), разделенных прослойкой слабого ферромагнетика (f), температура Кюри которого может быть как больше, так и меньше температуры образца. В качестве материала такой прослойки используют твердые растворы  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{1-x}$ , температурой Кюри которых можно управлять, изменяя концентрацию  $x$  раствора [5, 6].

Интерес к многослойным структурам F/f/F обусловлен возможностью создания на их основе микрогенераторов СВЧ-излучения [7], в которых взаимная ориентация магнитных моментов ферромагнитных пленок существенно зависит от температуры. Теоретически предсказаны высокие значения эффективности магнитного охлаждения для этих систем [8]. Обменное взаимодействие на границах парамагнитной пленки с ферромагнитными «берегами» приводит к уменьшению магнитного момента парамагнитной пленки и ферромагнетиков в случае антипараллельной ориентации их магнитных моментов и, следовательно, к возрастанию энтропии системы по сравнению со случаем параллельной ориентации. Переключение между состояниями с разной энтропией осуществляется за счет переключения взаимной ориентации магнитных моментов ферромагнитных пленок. По существу, изменяется распределение «обменных» полей, действующих на парамагнитную пленку. Поскольку эти поля существенно больше внешнего магнитного поля, величина изменения энтропии системы, как показывают оценки, тоже велика. По аналогии с эффектом гигантского магнитосопротивления этот эффект может быть назван гигантским магнитокалорическим эффектом.

Магнитные свойства структур F/f/F определяются эффективным взаимодействием ферромагнит-

\* E-mail: evgeny@ipm.sci-nnov.ru

\*\* E-mail: andr@ipmras.ru

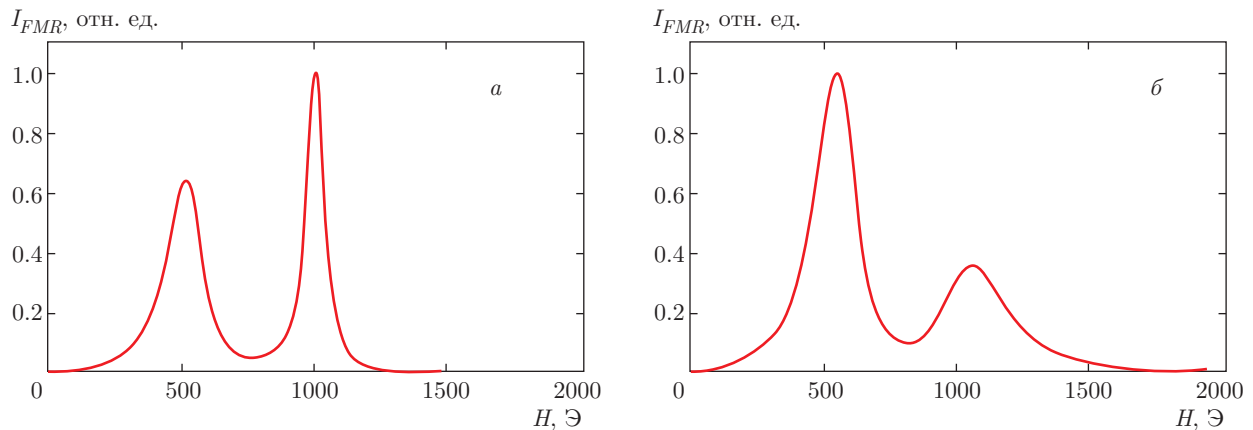


Рис. 1. Зависимости поглощения СВЧ-излучения от внешнего магнитного поля, снятые при комнатной температуре для структуры с прослойкой слабого ферромагнетика с толщинами  $d = 7$  нм (а) и  $d = 21$  нм (б)

ных берегов через прослойку слабого ферромагнетика. Это взаимодействие, в свою очередь, зависит от соотношения характерных магнитных длин и толщин пленок, температуры и внешнего магнитного поля. В работах [9, 10] теоретически и экспериментально изучены особенности динамики магнитного момента в структурах F/f/F, включая температурные зависимости положения и ширины линии ферромагнитного резонанса (ФМР). Согласно приведенным данным, межслойное взаимодействие носит ферромагнитный характер. В настоящей работе мы покажем, что такое поведение системы характерно лишь для относительно малых толщин слабого ферромагнетика. При достаточно больших толщинах прослойки и высоких температурах межслойное взаимодействие носит антиферромагнитный характер. Таким образом, существуют критические толщина прослойки и температура, при которых меняется знак межслойного взаимодействия в структурах F/f/F.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Методом высоковакуумного магнетронного распыления (многокамерная система AJA 2200) были созданы многослойные структуры  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (11 нм) /  $\text{Ni}_{65}\text{Cu}_{35}$  ( $d$  [нм]) /  $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{40}$  (8 нм) с различной толщиной прослойки слабого ферромагнетика  $d = 7, 14, 21$  нм. Давление остаточных газов не превышало  $10^{-7}$  Торр. Напыление проводилось на кремниевые и стеклянные подложки. При этом структурные и магнитные свойства образцов, выращенных на различных подложках, качественно не различались. Толщины слоев контролировались методом рентгено-

новской рефлектометрии (Bruker D8 Discover). По нашим данным, полученным методом просвечивающей электронной микроскопии, размер кристаллитов в исследуемых образцах составляет 10–20 нм [11]. Пленки твердых растворов  $\text{Ni}_{65}\text{Cu}_{35}$  были получены путем одновременного распыления мишеней Ni и Cu, а их состав определялся методом рентгеновского микроанализа с использованием энергетического дисперсионного спектрометра (INCA Energy Oxford Instruments). Статические магнитные свойства полученных пленок контролировались путем измерения магнитооптического эффекта Керра, а динамические магнитные свойства изучались при помощи ЭПР-спектрометра (Bruker EMX 10/12) в диапазоне температур 77–300 К, рабочая частота спектрометра 9.8 ГГц, доступный диапазон постоянного магнитного поля 0–15000 Э. Во всех измерениях постоянное и переменное магнитные поля были ориентированы в плоскости образца.

На рис. 1 представлены зависимости СВЧ-поглощения от внешнего магнитного поля при комнатной температуре для структур с толщинами прослойки  $\text{Ni}_{65}\text{Cu}_{35}$   $d = 7$  нм и  $d = 21$  нм. Положения наблюдающихся резонансов близки к резонансным полям изолированных пленок NiFe ( $H_{res} \approx 1000$  Э) и CoFe ( $H_{res} \approx 550$  Э). Однако интенсивности пиков существенно зависят от толщины прослойки слабого ферромагнетика. Если для тонкой (7 нм) прослойки (рис. 1а) более интенсивным является пик, соответствующий большему значению поля (высокополевой пик), то для прослойки толщиной 21 нм (рис. 1б) более интенсивным является пик, соответствующий меньшему значению поля (низкополевой пик). Очевидно, что такое поведение не может быть объяс-

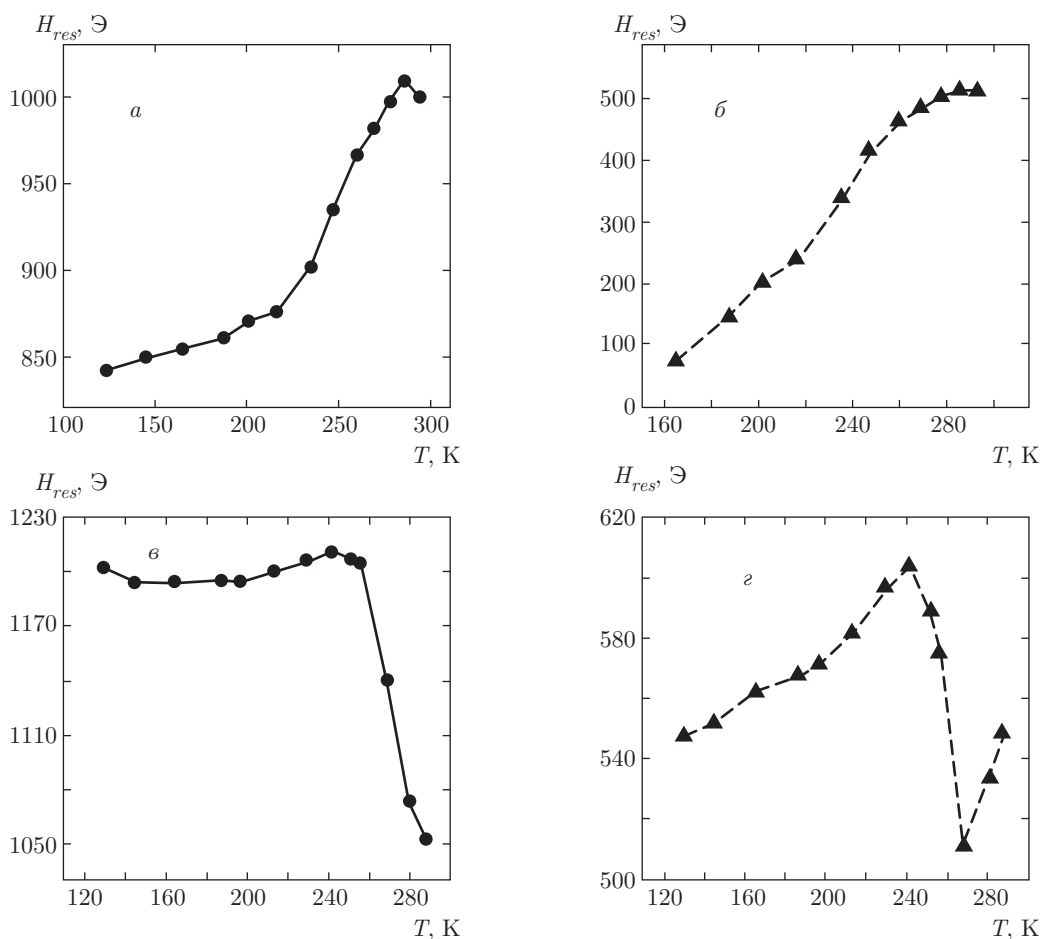


Рис. 2. Зависимости резонансных полей для высокополевого (а, в) и низкополевого (б, г) пиков от температуры для многослойной структуры с толщинами прослойки  $d = 7$  нм (а, б) и  $d = 21$  нм (в, г)

нено свойствами изолированных ферромагнитных пленок, и наблюдаемые резонансы соответствуют коллективным колебаниям намагниченности исследуемой многослойной системы.

На рис. 2 представлены зависимости резонансных полей от температуры для многослойной структуры с тонкой и толстой прослойками слабого ферромагнетика. Во-первых, резонансные поля существенно зависят от температуры, что отличает поведение многослойной системы от температурных зависимостей резонансных полей для изолированных пленок. Так, относительное изменение положения низкополевого резонанса для многослойной структуры с тонкой прослойкой составляет 80 % (рис. 2б), тогда как изменение резонансных полей изолированных пленок CoFe и NiFe не превышает 3 % при изменении температуры от 130 до 300 К. Во-вторых, температурные зависимости резонансных полей для структуры с толстой прослойкой существенно немо-

тонны (рис. 2в, г). Наибольшее изменение резонансных полей происходит в интервале температур 240–270 К. Отметим, что температурные зависимости резонансных полей многослойной системы с толщиной прослойки  $d = 14$  нм качественно совпадают с зависимостями для структуры с тонкой прослойкой ( $d = 7$  нм) и поэтому графики для этой промежуточной структуры здесь не приводятся.

На рис. 3 представлены зависимости амплитуд резонансных пиков от температуры. Для системы с тонкой прослойкой интенсивность высокополевого пика больше интенсивности низкополевого пика во всем исследованном диапазоне температур. В системе с толстой прослойкой наблюдается изменение соотношения интенсивностей высоко- и низкополевого пиков при температуре около 250 К (рис. 3б). Итак, основные особенности ФМР в исследуемой системе заключаются в изменении знака разности между интенсивностями высоко- и низкополевого

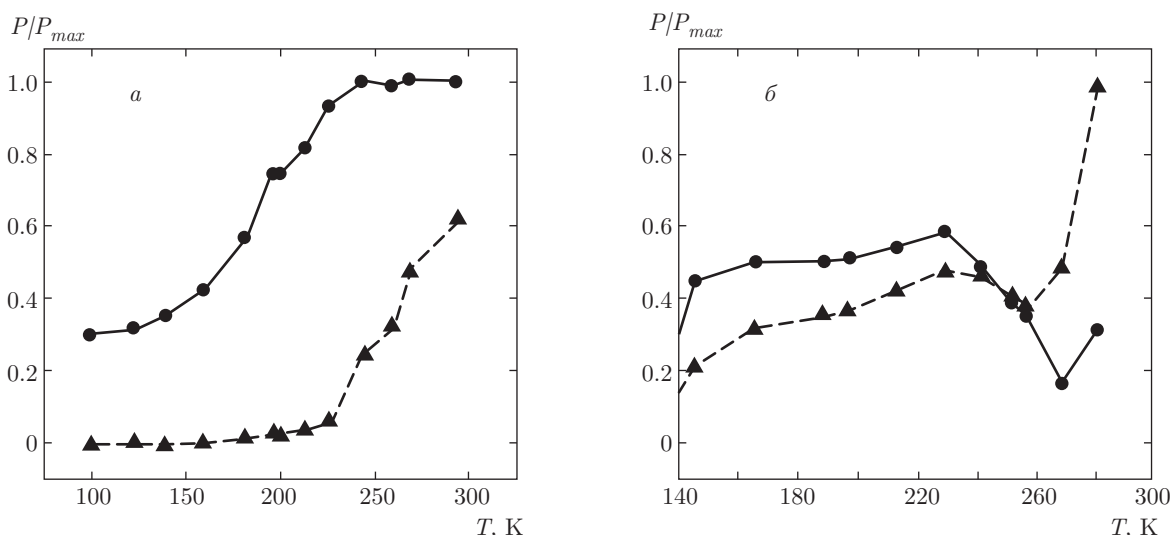


Рис. 3. Зависимости нормированных амплитуд высокополевого (сплошные линии) и низкополевого (штриховые) резонансных пиков от температуры для многослойной структуры с толщинами прослойки  $d = 7$  нм (а) и  $d = 21$  нм (б)

пиков при изменении толщины прослойки слабого ферромагнетика и температуры. Разность между этими интенсивностями меняет знак при некоторой критической толщине прослойки  $d_c$ , которая для исследованных образцов находится в интервале  $14 \text{ нм} < d_c < 21 \text{ нм}$ . Для системы с  $d > d_c$  разность интенсивностей меняет знак при критической температуре  $T_C \approx 250 \text{ К}$ . Отметим, что ранее эти особенности не наблюдались, что, возможно, связано с недостаточно широким диапазоном толщин прослоек слабого ферромагнетика в системах, изученных в работе [10].

### 3. МОДЕЛЬ МЕЖСЛОЙНОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Предположим, что основной вклад в резонансное поглощение СВЧ-излучения F/f/F-структур вносят колебания магнитных моментов ферромагнитных берегов (F). Тогда два резонанса на рис. 1 соответствуют синфазному (акустическая ветвь) и противофазному (оптическая ветвь) колебаниям магнитных моментов ферромагнитных пленок. Ясно, что интенсивность резонанса, пропорциональная поглощенной мощности, для оптической ветви меньше, чем для акустической. Кроме того, в зависимости от знака межслойного взаимодействия резонансное поле акустического колебания больше («ферромагнитное» взаимодействие) или меньше («антиферромагнитное» взаимодействие) резонансного поля оптического колебания [12]. Из сказанного следует, что при критической толщине прослойки и комнатной

температуре происходит смена знака межслойного взаимодействия, причем малой толщине прослойки соответствует «ферромагнитное» взаимодействие, а большой толщине — «антиферромагнитное» (см. рис. 1). Для структуры с  $d = 21 \text{ нм} > d_c$  происходит смена знака межслойного взаимодействия при изменении температуры,  $T_C \approx 250 \text{ К}$  (см. рис. 3).

Для описания межслойного взаимодействия в F/f/F-системе представим свободную энергию на единицу площади в виде

$$\begin{aligned}
 F = \int_{|z| < d/2} & \left[ \frac{1}{2} l_f^2 \left( \frac{d\mathbf{m}_f}{dz} \right)^2 + \frac{1}{2} \tau \mathbf{m}_f^2 + \right. \\
 & \left. + \frac{1}{4M_f^2} \mathbf{m}_f^4 - \mathbf{H} \cdot \mathbf{m}_f \right] dz + \\
 + \int_{|z| > d/2} & \left[ \frac{1}{2} l_F^2 \left( \frac{d\mathbf{m}_F}{dz} \right)^2 - \mathbf{H} \cdot \mathbf{m}_F \right] dz + \\
 + \frac{1}{2} l_J (\mathbf{m}_F - \mathbf{m}_f)^2 & \Big|_{z=-d/2} + \\
 + \frac{1}{2} l_J (\mathbf{m}_F - \mathbf{m}_f)^2 & \Big|_{z=d/2}, \quad (1)
 \end{aligned}$$

где ось  $z$  направлена перпендикулярно границам пленок, область  $-d/2 < z < d/2$  занята пленкой слабого ферромагнетика f, вне этой области располагается сильный ферромагнетик F. Внешнее магнитное поле  $\mathbf{H} = (H, 0, 0)$  ориентировано вдоль оси  $x$ . Будем считать далее, что магнитные моменты пленок лежат в плоскости  $xy$ , зависят только от координаты  $z$  и размагничивающих полей не создают. Первое сла-

гаемое в выражении (1) представляет собой свободную энергию слабого ферромагнетика, записанную в форме Ландау,  $\tau = (T - T_C)/T_C$ ,  $T_C$  — температура Кюри,  $l_f^2 \approx kT_C/aM_f^2$ ,  $a$  — межатомное расстояние [13, 14]. В этой области магнитный момент  $\mathbf{m}_f$  может изменяться как по модулю, так и по направлению. В области сильных ферромагнетиков (второе слагаемое в выражении (1)) магнитный момент изменяется только по направлению,  $\mathbf{m}_F = \mathbf{M}_F(\cos \theta, \sin \theta, 0)$ ,  $\theta$  — угол между магнитным моментом и внешним полем,  $\mathbf{M}_F$  — магнитный момент насыщения. Два последних слагаемых в (1) описывают обменное взаимодействие пленки слабого ферромагнетика с берегами, которое характеризуется константой  $l_J > 0$ , имеющей размерность длины. Уравнения, соответствующие экстремуму функционала (1), и граничные условия для намагниченности пленки слабого ферромагнетика имеют вид

$$l_f^2 \frac{\partial^2 \mathbf{m}_f}{\partial z^2} - \tau \mathbf{m}_f - \frac{1}{M_f^2} \mathbf{m}_f^3 + \mathbf{H} = 0, \tag{2}$$

$$l_f^2 \frac{\partial \mathbf{m}_f}{\partial z} = \pm l_J (\mathbf{m}_F - \mathbf{m}_f) \Big|_{z=\pm d/2}.$$

Для распределения магнитного момента в сильных ферромагнетиках получим

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} - \frac{1}{l_H^2} \sin \theta = 0, \quad l_H^2 = l_f^2 \frac{M_F}{H}, \tag{3}$$

$$l_F^2 M_F^2 \frac{\partial \theta}{\partial z} = \pm l_J \frac{\partial}{\partial \theta} (m_f^2 - 2\mathbf{m}_F \cdot \mathbf{m}_f) \Big|_{z=\pm d/2}.$$

Решение уравнения (3) для «полубесконечных» ( $d_F \gg l_H, d_F$  — толщина ферромагнетика) ферромагнитных берегов имеет вид

$$\cos \frac{\theta}{2} = \pm \text{th} \frac{z \mp z_0}{l_H}, \tag{4}$$

где верхний знак относится к правому полупространству, а нижний — к левому, константа  $z_0$  определяется из граничных условий.

Для определения характера межслойного взаимодействия исследуем зависимость свободной энергии (1) от угла разворота магнитных моментов ферромагнитных берегов. Будем считать, что на границах прослойки слабого ферромагнетика магнитный момент сонаправлен с магнитным моментом ферромагнитных берегов, который характеризуется углом  $\theta(\pm d/2) = \pm \theta_0$ . Предполагая, что взаимодействие на границах мало и выполняется условие  $l_J d \ll l_f^2$ , решение уравнений (2) можем представить в виде

$$m_x = A + \frac{Bz^2}{2}, \quad m_y = Cz, \tag{5}$$

где константы определяются уравнением

$$A \left( \tau + \frac{2l_J}{d} \right) + \frac{1}{M_f^2} A^3 = H + \frac{2l_J M_F \cos \theta_0}{d} \tag{6}$$

и формулами

$$B = \frac{2l_J(M_F \cos \theta_0 - A)}{dl_f^2}, \quad C = \frac{l_J M_F \sin \theta_0}{l_f^2}.$$

Подставляя решения (4)–(6) в уравнение (1) и предполагая угол  $\theta_0$  малым, для свободной энергии системы получаем

$$F = M_F^2 \theta_0^2 \times \left( \frac{l_J^2 \left\{ l_f^2 \left( \tau + \frac{2l_J}{d} \right) - \frac{d^2}{4} \left[ \left( \tau + \frac{2l_J}{d} \right)^2 - \frac{\tau^2}{3} \right] \right\}}{\frac{d}{2} l_f^2 \left( \tau + \frac{2l_J}{d} \right)^2} + l_F \sqrt{\frac{H}{M_F}} \right). \tag{7}$$

Эта формула получена при дополнительных условиях малости взаимодействия на границах пленок,  $l_J \ll d$ , и величины внешнего магнитного поля  $H \ll \ll M_F$ , что позволяет пренебречь линейными по магнитному полю слагаемыми и существенно упростить выражение для свободной энергии. Кроме того, предполагается, что прослойка находится в парамагнитной фазе ( $\tau > 0$ ) и уравнение (6) имеет только «вынужденное» решение

$$A \approx \frac{l_J M_F \cos \theta_0}{d\tau/2 + l_J}.$$

Из выражения (7) следует, что существует критическая толщина  $d$  прослойки, при которой параллельная ориентация магнитных моментов ферромагнитных берегов теряет устойчивость. Эта критическая толщина может быть найдена из условия обращения в нуль выражения в фигурных скобках (7). При  $H = 0$  критическая толщина удовлетворяет уравнению

$$d_{c0} = 2l_f \sqrt{\frac{2l_J/d_{c0} + \tau}{(2l_J/d_{c0} + \tau)^2 - \tau^2/3}} \tag{8}$$

и в предельных случаях равна

$$d_{c0} \approx \begin{cases} \frac{l_f^2}{l_J}, & l_J > \sqrt{\tau} l_f, \\ \sqrt{\frac{3}{2\tau}} l_f, & l_J < \sqrt{\tau} l_f. \end{cases} \tag{9}$$

При включении магнитного поля критическая толщина увеличивается по корневому закону,  $d_c \approx d_{c0} + \alpha \sqrt{H/M_F}$ , где константа  $\alpha$  определяется из выражений (7), (8).

Существование смены знака межслойного взаимодействия в F/f/F-системе можно понять из следующих соображений. Если прослойка находится при температуре выше температуры Кюри, то минимуму свободной энергии соответствует ее размагниченное состояние (слагаемое  $\tau \mathbf{m}_f^2$  в (1)). Тенденция к уменьшению среднего квадрата магнитного момента ведет к «антиферромагнитному» упорядочению магнитных моментов ферромагнитных берегов. Действительно, при этом пленка слабого ферромагнетика находится в нулевом (в среднем) «обменном» поле и намагниченность ее существенно уменьшается. С другой стороны, «поверхностные» слагаемые, ответственные за эффект «близости», приводят к параллельной ориентации магнитных моментов берегов, при которой магнитный момент прослойки увеличивается. Конкуренция «объемного» и «поверхностного» факторов приводит к существованию критической толщины прослойки. Увеличение этой критической толщины с возрастанием внешнего магнитного поля есть следствие возрастания энергии ферромагнитных берегов из-за образования неоднородных распределений (4). Когда температура становится меньше температуры Кюри прослойки, в системе отсутствуют факторы, приводящие к антипараллельной ориентации магнитных моментов берегов. Поэтому при низких температурах ( $T < T_C$ ,  $\tau < 0$ ) межслойное взаимодействие должно иметь «ферромагнитный» характер при любых толщинах прослойки. Таким образом, рассмотренная модель качественно объясняет основные особенности ФМР, наблюдавшиеся экспериментально.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе исследованы особенности ФМР в многослойных структурах NiFe/Ni<sub>0.65</sub>Cu<sub>0.35</sub>(d)/CoFe, состоящих из пленок с различными температурами Кюри. Показано, что при температуре ниже температуры Кюри слабого ферромагнетика Ni<sub>0.65</sub>Cu<sub>0.35</sub> ( $T_C \approx 250$  К) межслойное взаимодействие носит «ферромагнитный» характер. При температуре выше температуры Кюри знак межслойного взаимодействия зависит от толщины прослойки  $d$ , причем для толстой прослойки,  $d > d_c$ , взаимодействие «антиферромагнитное», тогда как для тонкой прослойки,  $d < d_c$ , оно становится «ферромагнитным». Для исследованных образцов критическая толщина слабого ферромагнетика лежит в диапа-

зоне  $14 \text{ нм} < d_c < 21 \text{ нм}$ . Рассмотренная в работе модель качественно объясняет основные особенности ФМР, наблюдавшиеся экспериментально. Полученные результаты подтверждают существенную зависимость межслойного взаимодействия от температуры и позволяют определить оптимальные параметры F/f/F-системы для наблюдения магнитокалорического эффекта.

Экспериментальное исследование спектров ферромагнитного резонанса было выполнено при поддержке Российского научного фонда (проект № 16-12-10254). Построение теоретической модели для описания полученных экспериментальных результатов было выполнено в рамках проекта РФФИ (грант № 17-0200620\_a).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнс, А. О. Савицкий и др., ЖЭТФ **147**, 1204 (2015).
2. W. E. Bailey, A. Ghosh, S. Auffret et al., Phys. Rev. B **86**, 144403 (2012).
3. D. Schwenk, F. Fishman, and F. Schwabl, Phys. Rev. B **38**, 11618 (1988).
4. I. Navarro, M. Ortuno, and A. Hernando, Phys. Rev. B **53**, 11656 (1995).
5. A. F. Kravets, A. N. Timoshevskii, B. Z. Yanchitsky et al., Phys. Rev. B **86**, 214413 (2012).
6. A. F. Kravets, Yu. I. Dzhezherya, A. I. Tovstolytkin et al., Phys. Rev. B **90**, 104427 (2014).
7. A. M. Kadigrobov, S. Andersson, D. Radić et al., J. Appl. Phys. **107**, 123706 (2010).
8. А. А. Фраерман, И. А. Шерешевский, Письма в ЖЭТФ **101**, 693 (2015).
9. A. F. Kravets, A. I. Tovstolytkin, Yu. I. Dzhezherya et al., J. Phys.: Condens. Matter **27**, 446003 (2015).
10. A. F. Kravets, D. M. Polishchuk, Yu. I. Dzhezherya et al., Phys. Rev. B **94**, 064429 (2016).
11. С. А. Гусев, Д. А. Татарский, А. Ю. Климов и др., ФТТ **55**, 435 (2013).
12. J. Lindner and K. Baberschke, J. Phys.: Condens. Matter **15**, 193 (2003).
13. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, ч. 1, Наука, Москва (1976).
14. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Статистическая физика*, ч. 2, Наука, Москва (1978).