



Научная статья
2.6.17. – Материаловедение (технические науки)
УДК537.611.4

doi: 10.25712/ASTU.2072-8921.2023.02.029



ФОРМИРОВАНИЕ МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ И ГИСТЕРЕЗИСНЫХ СВОЙСТВ ПЛЕНОК R-Fe

Николай Александрович Манаков¹, Александр Михайлович Ерёмин²

¹ Оренбургский государственный университет, Оренбург, Россия

¹ Бийский технологический институт (филиал) федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Алтайский государственный технический университет им. И.И. Ползунова», Бийск, Россия

¹ manakov2004@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0001-9421-6934>

² eremin.am@bti.secna.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3453-2860>

Аннотация. Проведено исследование гистерезисных свойств нанокристаллических пленок $R_{40}Fe_{60}$ (R – Tb или Sm), полученных термическим испарением и конденсацией в вакууме $3 \cdot 10^{-6}$ тор на подложки из разных материалов (стекло, ситалл, слюда (мусковит), алюминий, скол NaCl) при разной температуре подложек. Изучено влияние условий получения и отжига на фазовый состав пленок, а также их внутренние структурные и термические напряжения. Установлена возможность формирования магнитной анизотропии и определенных параметров гистерезиса пленок путем регулирования уровня их структурных и термических напряжений. Получены пленки Tb-Fe с перпендикулярной магнитной анизотропией, достаточно высокой коэрцитивной силой и остаточной намагниченностью, пригодные для использования в качестве пленочных магнитов.

Ключевые слова: нанокристаллические пленки, структурные и термические напряжения, магнитная анизотропия и коэрцитивная сила, пленочные магниты.

Для цитирования: Манаков Н. А., Ерёмин А. М. Формирование магнитной анизотропии и гистерезисных свойств пленок R-Fe // Ползуновский вестник. 2023. № 2. С. 225–229. doi: 10.25712/ASTU.2072-8921.2023.02.029. EDN: <https://elibrary.ru/ESLIDG>.

Original article

FORMATION OF MAGNETIC ANISOTROPY AND HYSTERESIS PROPERTIES OF R-Fe FILMS

Nikolai A. Manakov¹, Alexander M. Eremin²

¹ Orenburg State University, Orenburg, Russia

¹ Biysk Technological Institute (branch) of the Polzunov Altai State Technical University, Biysk, Russia

¹ manakov2004@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0001-9421-6934>

² eremin.am@bti.secna.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3453-2860>

Abstract. The hysteresis properties of $R_{40}Fe_{60}$ (R – Tb or Sm) nanocrystalline films obtained by thermal evaporation and condensation in a vacuum of $3 \cdot 10^{-6}$ Torr on substrates of different materials (glass, glass-ceramic, mica (muscovite), aluminum, NaCl cleavage) were studied at different substrate temperature. The influence of the conditions of preparation and annealing on the phase composition of the films, as well as their internal structural and thermal stresses, is studied. The possibility of formation of magnetic anisotropy and certain hysteresis parameters of films by controlling the level of their structural and thermal stresses is established. Tb-Fe films with perpendicular magnetic anisotropy, sufficiently high coercive force, and residual magnetization suitable for use as film magnets have been obtained. 150-200 words, includes the relevance of the research topic, results and key conclusions.

Keywords: nanocrystalline films, structural and thermal stresses, magnetic anisotropy and coercive force, film magnets.

© Манаков Н. А., Ерёмин А. М., 2023

For citation: Manakov, N. A. & Eremin, A. M. (2023). Formation of magnetic anisotropy and hysteresis properties of R-Fe films. *Polzunovskiy vestnik*, (2), 225-229. (In Russ.). doi: 10.25712/ASTU.2072-8921.2023.02.029. EDN: <https://elibrary.ru/ESLIDG>.

ВВЕДЕНИЕ

Интерметаллические соединения редкоземельных металлов с железом типа фаз Лавеса представляют класс многоосных магнетиков, в которых огромная магнитокристаллическая анизотропия сочетается с гигантскими магнитоупругими эффектами [1–4]. Особенно показательны в этом отношении интерметаллиды TbFe₂ и SmFe₂, обладающие рекордными величинами магнито-стрикции и механострикции, а также достаточными высокими значениями намагниченности и температуры магнитного упорядочения [5–11]. Поэтому для формирования определенных гистерезисных свойств сплавов TbFe₂ и SmFe₂, а, следовательно, и их функциональных возможностей, можно использовать как магнитокристаллическую анизотропию, так и магнито-стрикцию. Весьма удобны в этом отношении пленки, осаждаемые на подложки из разного материала [12–19]. Меняя температуру подложки при осаждении пленки или материал подложки, можно в широких пределах варьировать величину термических напряжений σ_T в плоскости образцов [20].

$$\sigma_T = (\alpha_M - \alpha_{II}) \Delta T E / (1 - \nu). \quad (1)$$

Здесь $(\alpha_M - \alpha_{II})$ – разность коэффициентов термического расширения материалов пленки и подложки, соответственно; ΔT – разность температуры подложки при осаждении пленки и температуры при измерениях (комнатной); E – модуль Юнга материала пленки; ν – коэффициент Пуассона. Полагая $E = 1,0 \cdot 10^{11}$ н/м² и $\nu = 0,33$, получим σ_T для алюминиевой, стеклянной, ситалловой и слюдяной подложек, соответственно, (–9,0; 2,4; 4,2; 0,9) 10^9 н/м².

Из-за образования «столбчатой» микро-структуры в пленках наряду с термическими, формируются также «структурные» сжимающие напряжения σ_C [13]. Оценку знака и величины результирующих напряжений в плоскости пленок можно провести по изменению параметра решетки «а» вдоль нормали к их поверхности, согласно работе [20]:

$$\sigma = \sigma_T + \sigma_C = -E \Delta a / (2 \nu a). \quad (2)$$

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА, РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для исследования были выбраны нанокристаллические пленки состава R₄₀Fe₆₀, где R – Tb или Sm, полученные термическим испарением и конденсацией в вакууме $3 \cdot 10^{-6}$ тор на

подложки из разных материалов (стекло, ситалл, слюда (мусковит), алюминий, скот NaCl) при разной температуре подложек T_п. При T_п менее ~ 300 К формировались аморфные пленки, а при T_п более ~ 600 К – нанокристаллические. Толщина пленок варьировалась от 0,02 до 2 мкм, скорость осаждения ~ 10 нм/с. Размер кристаллитов RFe₂ в пленках составлял 10–30 нм, а период столбчатой микро-структуры – 0,2–1,0 мкм. Исследование микро-структуры образцов проводилось с помощью растрового микроскопа JEOLJSM-6460LV, а рентгено-структурный анализ осуществлялся на дифрактометре MD-10 «Эфа» в кобальтовом K_α – излучении.

Пленки состояли, в основном, из кристаллитов RFe₂, сосредоточенных в столбчатых образованиях, и небольшого количества Tb или Sm и R₂O₃ по границам между столбчатыми образованиями. Рост количества R₂O₃ за счет окисления при отжиге приводит к увеличению сжимающих структурных напряжений. Увеличение температуры подложки при осаждении пленок вызывает рост термических напряжений, сжимающих в случае алюминиевой подложки и растягивающих для остальных подложек.

Благодаря конкуренции структурных и термических напряжений, а также анизотропии формы пленок и столбчатых образований в пленках формируется магнитная анизотропия типа конус осей легкого намагничивания (ОЛН). Угол составляющей конуса «α» с плоскостью пленки изменяется в зависимости от условий получения от 0 до 90 °.

На рисунке 1 схематично показаны характер микро-структуры исследованных нанокристаллических пленок R-Fe и принцип формирования их магнитной анизотропии в зависимости от знака магнито-стрикции сплава и материала подложки. Растягивающие термические напряжения $\sigma_T > 0$, создаваемые стеклянной подложкой, формируют магнитную анизотропию типа легкая плоскость в случае положительной магнито-стрикции (горизонтальная стрелка) и магнитную анизотропию типа перпендикулярная легкая ось в случае отрицательной магнито-стрикции (вертикальная стрелка).

Структурные сжимающие напряжения, наоборот, при положительной магнито-стрикции приводят к перпендикулярной магнитной анизотропии (ПМА), а в случае отрицательной магнито-стрикции к анизотропии типа легкая плоскость.

ФОРМИРОВАНИЕ МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ И ГИСТЕРЕЗИСНЫХ СВОЙСТВ ПЛЕНОК R-Fe

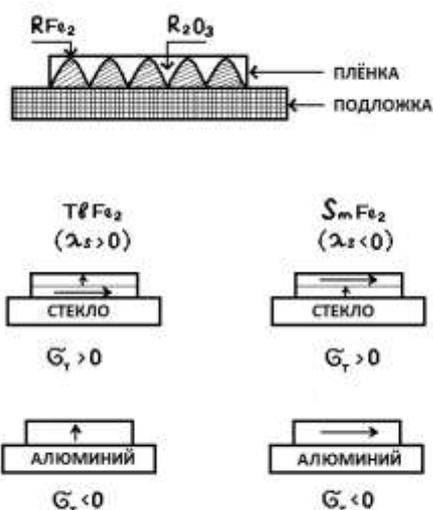


Рисунок 1 – Схематичное представление микроструктуры и формирования магнитной анизотропии пленок R-Fe

Figure 1 – Schematic representation of the microstructure and formation of the magnetic anisotropy of R-Fe films

Определенный вклад в перпендикулярную магнитную анизотропию вносит анизотропия формы столбчатых образований, а в плоскостную – анизотропия формы пленки. В результате конкуренции указанных вкладов образуется магнитная анизотропия типа конус осей легкого намагничивания. В случае алюминиевой подложки термические и структурные напряжения совпадают по знаку (сжимающие), поэтому при положительной магнитострикции образуется перпендикуляр-

ная магнитная анизотропия, а при отрицательной – типа легкая плоскость.

В таблице 1 в качестве примера приведены значения угла конуса ОЛН для пленок, осажденных на разные подложки при температуре 673 К, а в таблице 2 – характерные параметры гистерезиса пленок Tb-Fe в зависимости от угла α .

В таблице 2 χ , H_c , M_r/M_m – начальная восприимчивость, коэрцитивная сила и относительная остаточная намагниченность пленок при перемагничивании в плоскости и нормально плоскости образцов; M_m – намагниченность пленок в поле 1,6 МА/м.

Для изучения влияния окисления на внутренние напряжения и свойства проводился отжиг пленок $R_{40}Fe_{60}$ толщиной ~ 1 мкм при температуре 400 °С в вакууме $5 \cdot 10^{-6}$ тор в течение 1–12 часов. В случае пленок Sm-Fe в плоскости образцов прикладывалось магнитное поле 0,5 кА/м. В процессе отжига происходит селективное окисление Tb или Sm, что приводит к росту структурных и релаксационных напряжений. В результате в пленках Tb-Fe устанавливалась перпендикулярная магнитная анизотропия, а в пленках Sm-Fe – одноосная магнитная анизотропия в плоскости с ОЛН нормально направлению приложенного внешнего магнитного поля. В таблице 3 приведены характерные параметры этих пленок при перемагничивании вдоль ОЛН.

Как видно из таблицы, нанокристаллические пленки Tb-Fe обладают достаточно высокими значениями коэрцитивной силы и остаточной намагниченности.

Таблица 1 – Ориентация ОЛН в зависимости от материала подложки

Table 1 – Orientation of the easy magnetization axes depending on the substrate material

Пленка	Материал подложки	α , град
Tb-Fe	ситалл	0–10
Tb-Fe	стекло	10–30
Tb-Fe	слюда	20–40
Tb-Fe	алюминий	80–90
Sm-Fe	стекло	20–30
Sm-Fe	алюминий	0

Таблица 2 – Характерные параметры гистерезиса пленок Tb-Fe в зависимости от угла конуса ОЛН

Table 2 – Characteristic parameters of the hysteresis of Tb-Fe films depending on the cone angle of the easy magnetization axes

α , град	Перемагничивание в плоскости			Перемагничивание нормально плоскости		
	χ	H_c (кА/м)	M_r/M_m	χ	H_c (кА/м)	M_r/M_m
0	0,80	265	0,85	0,65	320	0,40
45	0,90	255	0,65	0,30	410	0,70
90	0,95	210	0,35	0,25	440	0,90

Таблица 3 – Характерные параметры гистерезиса пленок Tb-Fe и Sm-Fe при перемагничивании вдоль ОЛН

Table 3 – Characteristic hysteresis parameters of Tb-Fe and Sm-Fe films during magnetization reversal along the easy magnetization axes

Пленка	H_c (кА/м)	M_r/M_m	M_r (кА/м)	Ориентация ОЛН	Механизм перемагничивания
Tb-Fe	650	0,90	400	Нормально плоскости	Смещение ДГ
Sm-Fe	500	0,85	200	В плоскости	Смещение ДГ

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенного исследования показывают возможности регулирования структурных и термических напряжений в пленках на основе редкоземельных металлов (и не только) со столбчатой микроструктурой. Регулирование внутренних напряжений позволяет получать на образцах с высокой магнитострикцией заданную магнитную анизотропию и гистерезисные свойства, то есть формировать у них определенные функциональные возможности для практического применения. В частности, установлена возможность получения пленок Tb-Fe пригодных в качестве пленочных магнитов на промышленных установках типа УВН-2М-2 в вакууме $\sim 5 \cdot 10^{-6}$ тор. Регулирование внутренних напряжений, а соответственно и магнитных свойств пленок, возможно для широкого круга магнитострикционных сплавов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ианделли А. Физика и химия редкоземельных элементов: справочник / А. Ианделли, А. Палензона, Х.Р. Кирхмайер [и др.]. Москва : Металлургия, 1982. 336 с.
2. Кекало И.Б. Физическое металловедение прецизионных сплавов. Сплавы с особыми магнитными свойствами / И.Б. Кекало, Б.А. Самарин. Москва : Металлургия, 1989. 496 с.
3. Введенский В.Ю. Экспериментальные методы физического материаловедения : монография / В.Ю. Введенский, А.С. Лилеев, А.С. Пермионов. Москва : МИСиС, 2011. 310 с.
4. Coey J.M.D. Magnetism and magnetic materials / J.M.D. Coey. Cambridge: Cambridge University Press, 2010. P. 335.
5. Белов К.П. Магнитострикционные явления и их технические приложения / К.П. Белов. Москва : Наука, 1987. 160 с.
6. Кукушкин С.А. Процессы конденсации тонких пленок / С.А. Кукушкин, А.В. Осипов // *Успехи физических наук*. 1998. Т. 168, № 10. С. 1083–1116. DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.0168.199810b.1083>.
7. Дубновский В.Г. Теория формирования многослойных тонких пленок на поверхности твердого тела / В.Г. Дубновский, Н.В. Сибирев, Г.Э. Цырлин, В.М. Устинов // *Физика и техника полупроводников*. 2006. Т. 40, вып. 3. С. 257–263.
8. Sander D. The magnetic anisotropy and spin reorientation of nanostructures and nanoscale films /

D. Sander // *Journal of Physics: Condensed Matter*. 2004. Vol. 16, № 20. P. R603–R636. DOI: 10.1088/0953-8984/16/20/R01.

9. Sharma P. Ion beam sputtered thin films of finemet alloy for soft magnetic applications / P. Sharma and A. Gupta // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. 2006. Vol. 244. P. 105–109. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2005.11.012>.

10. Vaz C.A.F. Magnetism in ultrathin film structures / C.A.F. Vaz, J.A.C. Bland and G. Launhoff // *Reports on Progress in Physics*. 2008. Vol. 71. P. 056501-056578. DOI: 10.1088/0034-4885/71/5/056501.

11. Herzer G. Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials / G. Herzer // *Acta Materialia*. 2013. Vol. 61, № 3. P. 718–734. DOI: 10.1002/CHIN/201314220.

12. Технология тонких пленок: справочник / под ред. Л. Майссела, Р. Глэнга. Нью-Йорк, 1970. Пер. с англ. Под ред. М.И. Елинсона, Г.Г. Смолко, Т. 2. М. : Сов. радио, 1977. 768 с.

13. Манакон Н.А. Магнитные свойства дисперсных сплавов редкоземельных металлов с железом типа фаз Лавеса : монография / Н.А. Манакон. Иркутск : Иркутский гос. ун-т, 1991. 96 с.

14. Li X.H. Effects of sputtering conditions on the structure and magnetic properties of Ni-Fe films / X.H. Li and Z. Yang // *Materials Science and Engineering B*. 2004. Vol. 106, № 1. P. 41–45. DOI: 10.1016/j.mseb.2003.07.003.

15. Xiao S. Giant magnetoimpedance and domain structure in FeCuNbSiB films and sand-wiched films / S. Xiao, Y. Liu, S. Yan, Y. Dai, L. Zhang and L. Mei // *Physical Review B*. 2000. Vol. 61, № 8. P. 5734–5739. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.5734>.

16. Moulin J. Internal stress influence on the coercivity of FeCuNbSiB thin films / J. Moulin, F. Mazaleyrat, A. Mendez and E. Dufour-Gergam // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. 2010. Vol. 322, № 9–12. P. 1275–1278. DOI: 10.1016/j.jmmm.2009.06.043.

17. Gavrilović A. The corrosion behavior of amorphous and nanocrystalline Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇ alloy / A. Gavrilović, L.D. Rafailović, W. Artner, J. Wosik and A.H. Whitehead // *Corrosion Science*. 2011. Vol. 53. P. 2400–2405. DOI: 10.1016/j.corsci.2011.03.023.

18. Su X. Influence of pH and bath composition on properties of Ni-Fe alloy films synthe-sized by electrodeposition / X. Su and C. Qiang // *Bulletin of Materials Science*. 2012. Vol. 35, № 2. P. 183–189. DOI: 10.1007/s12034-012-0284-8.

ФОРМИРОВАНИЕ МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ И ГИСТЕРЕЗИСНЫХ СВОЙСТВ ПЛЕНОК R-Fe

19. Silveyra J.M. Effects of air annealing on Fe–Si–B–M–Cu (M = Nb, Mo) alloys / J.M. Silveyra and E. Illeková // *Journal of Alloys and Compounds*. 2014. Vol. 610. P. 180–183. DOI: 10.1016/j.jallcom.2014.04.147.

20. Палатник Л.С. Механизм образования и субструктура конденсированных пленок / Л.С. Палатник, М.Я. Фукс, В.М. Косевич. Москва : Наука, 1972. 320 с.

Информация об авторах

Н. А. Манаков – доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики и методики преподавания физики Оренбургского государственного университета.

А. М. Ерёмин – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры естественно-научных дисциплин Бийского технологического института (филиал) Алтайского государственного технического университета им. И.И. Ползунова.

REFERENCES

1. Iandelli, A., Palenzona, A. & Kirchmeier, H.R. (1982). Physics and chemistry of rare earth elements: a reference book. Moscow: Metallurgy. (In Russ.).

2. Kekalo, I.B. & Samarin, B.A. (1989). Physical metallurgy of precision alloys. Alloys with special magnetic properties. Moscow: Metallurgy. (In Russ.).

3. Vvedensky, V.Yu., Lileev, A.S. & Permionov, A.S. (2011). Experimental methods of physical materials science: monograph. Moscow: Moscow Institute of Steel and Alloys, 2011. (In Russ.).

4. Coey, J.M.D. (2010). Magnetism and magnetic materials. Cambridge: Cambridge University Press.

5. Belov, K.P. (1987). Magnetostriction phenomena and their technical applications. Moscow : Nauka, 1987. (In Russ.).

6. Kukushkin, S.A. & Osipov, A.V. (1998). Condensation processes of thin films. *Uspekhi fizicheskikh nauk*, (10), 1083-1116. (In Russ.). DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.0168.199810b.1083>.

7. Dubnovsky, V.G., Sibirev, N.V., Tsyrlin, G.E. & Ustinov, V.M. (2006). Theory of formation of multilayer thin films on the surface of a solid body. *Physics and technology of semiconductors*, (3), 257-263. (In Russ.).

8. Sander, D. (2004). The magnetic anisotropy and spin reorientation of nanostructures and nanoscale films. *Journal of Physics: Condensed Matter*, (20), R603-R636. DOI: 10.1088/0953-8984/16/20/R01.

9. Sharma, P. (2006). Ion beam sputtered thin films of finemet alloy for soft magnetic applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 105-109. DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2005.11.012>.

10. Vaz, C.A.F., Bland, J.A.C. & Launhoff, G. (2008). Magnetism in ultrathin film structures. *Reports on Progress in Physics*, 056501-056578. DOI: 10.1088/0034-4885/71/5/056501.

11. Herzer, G. (2013). Modern soft magnets: Amorphous and nanocrystalline materials. *Acta Materialia*, (3), 718-734. DOI: 10.1002/CHIN/201314220.

12. Meissel, L. & Glang, R. (1977). Technology of thin films: reference book. Moscow: Sov. Radio. (In Russ.).

13. Manakov, N.A. (1991). Magnetic properties of dispersed alloys of rare earth metals with iron of the Laves phase type: monograph. Irkutsk: Irkutsk state. un-t. (In Russ.).

14. Li, X.H. & Yang, Z. (2004). Effects of sputtering conditions on the structure and magnetic properties of Ni–Fe films. *Materials Science and Engineering B*, (1), 41-45. DOI: 10.1016/j.mseb.2003.07.003.

15. Xiao, S., Liu, Y., Yan, S., Dai, Y., Zhang, L. & Mei, L. (2000). Giant magnetoimpedance and domain structure in FeCuNbSiB films and sand-wiched films. *Physical Review B*, (8), 5734-5739. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.5734>.

16. Moulin, J., Mazaleyrat, F., Mendez, A. & Dufour-Gergam, E. (2010). Internal stress influence on the coercivity of FeCuNbSiB thin films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, (9-12), 1275-1278. DOI: 10.1016/j.jmmm.2009.06.043.

17. Gavrilović, A., Rafailović, L.D., Artner, W., Wosik, J. & Whitehead, A.H. (2011). The corrosion behavior of amorphous and nanocrystalline Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇ alloy. *Corrosion Science*, 2400-2405. DOI: 10.1016/j.corsci.2011.03.023.

18. Su, X. & Qiang, C. (2012). Influence of pH and bath composition on properties of Ni–Fe alloy films synthesized by electrodeposition. *Bulletin of Materials Science*, (2), 183-189. DOI: 10.1007/s12034-012-0284-8.

19. Silveyra, J.M. & Illeková, E. (2014) Effects of air annealing on Fe–Si–B–M–Cu (M = Nb, Mo) alloys. *Journal of Alloys and Compounds*, 180-183. DOI: 10.1016/j.jallcom.2014.04.147.

20. Palatnik, L.S., Fuchs, M.Ya. & Kosevich, V.M. (1972). Formation mechanism and substructure of condensed films. Moscow: Nauka. (In Russ.).

Information about the authors

N.A. Manakov - Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor of the Department of Physics and Methods of Teaching Physics, Orenburg State University.

A.M. Eremin – Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor of the Department of Natural Sciences of the Biysk Technological Institute (branch) of the Polzunov Altai State Technical University.

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

The authors declare that there is no conflict of interest.

Статья поступила в редакцию 12.01.2023; одобрена после рецензирования 13.05.2023; принята к публикации 11.06.2023.

The article was received by the editorial board on 12 Jan 2022; approved after editing on 13 May 2023; accepted for publication on 11 June 2023.