

phys. stat. sol. **17**, 249 (1966)*Institut Fiziki SO AN SSSR (a) und Krasnoyarskii Pedinstitut (b)***Magnetische Eigenschaften von Einkristallschichten aus Eisen, Nickel, Kobalt und deren Legierungen<sup>1)</sup>**

Von

L. V. KIRENSKII (a), V. G. PYNKO (a), G. P. PYNKO (a), R. V. SUKHAHOVA (b),  
N. I. SIVKOV (b), G. I. RUSOV (a) und I. S. EDELMAN (a)

In dieser Arbeit wird gezeigt, daß die Energie der Anisotropie der einzelnen Kristallite in Epitaxieschichten (z. B. Co-Schichten) additiv ist. Das Feld, das während der Aufdampfung anliegt, beeinflußt die Anisotropie von einkristallinen Fe-Schichten nicht merklich, während bei Ni- und  $\beta$ -Co-Schichten das Feld eine starke einachsige Komponente hervorrufen kann. Die Feinstruktur in den Domänen von einkristallinen Fe-Ni- und Co-Ni-Schichten mit schwacher kristallographischer Anisotropie wird beobachtet. Die Breite der Wände zwischen den Domänen in einkristallinen Schichten aus Fe, Ni und  $\beta$ -Co wird elektronenmikroskopisch gemessen. Es wird gezeigt, daß in Schichten mit starker biaxialer Anisotropie die Änderung der Koerzitivkraft in Abhängigkeit von der Änderung der Richtung des magnetisierenden Feldes befriedigend durch den Ausdruck

$$H_c = \frac{p}{I_s} (\cos \Theta_1 - \cos \Theta_2)^{-1}$$

beschrieben wird, wobei  $p$  den Druck, der durch das Feld auf die Wände ausgeübt wird,  $\Theta_1$  und  $\Theta_2$  die Winkel zwischen dem Feld und den Magnetisierungsvektoren auf beiden Seiten der Wand und  $I_s$  die Sättigungsmagnetisierung bedeuten.

В работе показано, что энергия анизотропии отдельных кристаллитов в эпитаксиальных пленках складывается аддитивно (на примере пленок Co). Поле, прикладываемое во время напыления, не влияет заметно на анизотропию монокристаллических пленок железа, тогда как в пленках Ni и  $\beta$ -Co может создавать сильную одноосную компоненту. Установлено наличие тонкой структуры в доменах монокристаллических пленок Fe-Ni и Ni-Co, обладающих слабой кристаллической анизотропией. С помощью электронного микроскопа измерена ширина междоменных границ в монокристаллических пленках Fe, Ni и  $\beta$ -Co. Показано, что в пленках с сильной двухосной анизотропией изменение коэрцитивной силы с изменением направления намагничивающего поля удовлетворительно описывается формулой

$$H_c = \frac{p}{I_s} (\cos \Theta_1 - \cos \Theta_2)^{-1},$$

где  $p$  давление, производимое на границу полем,  $\Theta_1$  и  $\Theta_2$  углы между полем и векторами намагниченности по обе стороны границы,  $I_s$  намагниченность насыщения.

Die Untersuchung der magnetischen Eigenschaften polykristalliner magnetischer Schichten, die sowohl in praktischer als auch in wissenschaftlicher Hinsicht interessant ist, ist ohne eine detaillierte Untersuchung der Eigenschaften einkristalliner Schichten außerordentlich erschwert. Gegenwärtig gibt es nur

<sup>1)</sup> Beitrag zum Internationalen Kolloquium über magnetische dünne Schichten, 25. bis 28. April 1966 in Jena.

einzelne, getrennte Arbeiten über die Untersuchung der magnetischen Eigenschaften von Einkristallschichten [1–14], was im wesentlichen durch die Schwierigkeiten bei ihrer Herstellung zu erklären ist. Da es uns gelang, solche Schichten sehr regelmäßig herzustellen, ergab sich auch die Möglichkeit, eine systematische Untersuchung ihrer magnetischen Eigenschaften zu beginnen. Die vorliegende Arbeit ist eine kurze Bilanz dieser Untersuchungen.

## 1. Methodik der Untersuchungen

Zur Untersuchung solcher Größen wie  $I_s$  und  $H_K$  wurden die bekannte Methode der ferromagnetischen Resonanz, ein Anisotropiemesser und ein Gerät zur Sichtbarmachung der Hystereseschleife benutzt, das auf der Anwendung des magnetooptischen Faraday- bzw. Kerr-Effektes beruht. Mit Hilfe dieses Geräts wurden auch die Koerzitivfeldstärken der Schichten bestimmt. Die Bereichsstruktur, deren Dynamik und die Zwischenbereichsgrenzen wurden durch Lorentz-Elektronenmikroskopie und mit der Pulverfigurenmethode untersucht.

## 2. Sättigungsmagnetisierung und Anisotropiefeldstärke der Schichten

Da in der Resonanzapparatur die Felder nicht hinreichend groß waren, gelang es nur an Einkristallschichten von Nickel und einigen Fe-Ni-Legierungen,  $I_s$  zu messen. Die Sättigungsmagnetisierung einer Nickelschicht, die bei einer minimalen epitaktischen Temperatur (120 °C) gezüchtet und nicht von der Unterlage getrennt wurde, war immer größer als das  $I_s$  des massiven Nickels und erreichte 800 G. Nach dem Ablösen der Schicht von der Unterlage ging die Magnetisierung auf die übliche Größe zurück. Ein analoger (schwächerer) Effekt wurde auch an Fe-Ni-Legierungsschichten beobachtet.

Die Anisotropiefeldstärken eindeutig orientierter Nickelschichten änderten sich ebenfalls beim Ablösen der Schicht von den Unterlagen (sie wurden kleiner). Beide Tatsachen erklärte Freedman [7] durch die Existenz von Spannungen in der nicht von der Unterlage gelösten Schicht und durch das Aufheben dieser Spannungen beim Ablösen der Schicht. Die mit ferromagnetischer Resonanz gemessenen Anisotropiefeldstärken von der Unterlage abgelöster Nickelschichten und die Anisotropiefeldstärken von Fe- und  $\beta$ -Co-Schichten mit eindeutiger Kristallitorientierung waren gleich 200 Oe, 500 Oe bzw. 600 Oe. Die Anisotropiefeldstärken von Kobaltschichten, die auf NaCl- und KCl-Kristalle aufgedampft wurden, zeigten immer Werte kleiner als 600 Oe, und bei einigen Schichten fielen die leichten Achsen nicht mit den kristallographischen [110]-Richtungen, sondern mit den Richtungen vom [100]-Typ der  $\beta$ -Phase zusammen. Die Erklärung dieser Tatsache wurde aus der Analyse der Addition der Anisotropieenergien der Kristallite der  $\beta$ - und  $\alpha$ -Phase gefunden. Die Anisotropieenergie von Kristalliten der  $\alpha$ -Phase von 4 gleichwertigen Orientierungen (Fig. 1) hat unter Berücksichtigung der Konstanten  $K_2$  die Gestalt

$$E = E_0 + (K_2/2) \cos 4 \varphi. \quad (1)$$

Diesem Ausdruck entspricht ein Diagramm, das für eine Schicht mit zweiachsiger Anisotropie mit der Orientierung der Achsen leichter Magnetisierbarkeit längs Richtungen vom [100]-Typ der  $\beta$ -Phase charakteristisch ist (Fig. 2). Bei einem bestimmten Gehalt von Kristalliten der  $\alpha$ -Phase in der Schicht kann

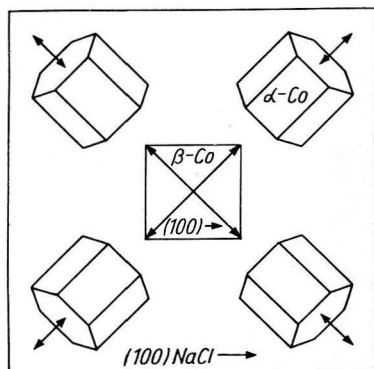


Fig. 1. Orientierung der Vorzugsachsen von Kristalliten der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Phase in epitaxialen Kobalt-Schichten

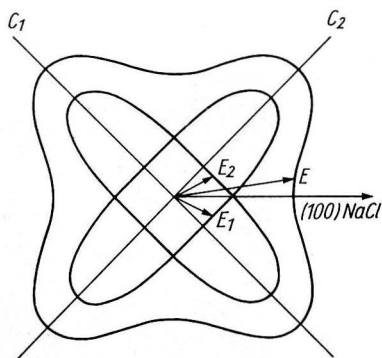


Fig. 2. Polardiagramme der Anisotropieenergien  $E_1$  und  $E_2$  der Kristallite der hexagonalen Phase in einer epitaxialen Kobalt-Schicht und Diagramm der Gesamtenergie  $E$

also die durch sie hervorgerufene Anisotropie die Anisotropie der Kristallite der  $\beta$ -Phase „unterdrücken“, und die Richtung der leichten Achsen ändert sich um  $45^\circ$ .

Die Untersuchung der Drehmomentenkurven von Schichten, die in einem Magnetfeld aufgedampft wurden, zeigte, daß dessen Einfluß auf die Anisotropie von Eisenschichten unmerklich ist, während in Ni- und Co-Schichten das während des Aufdampfens angelegte Magnetfeld eine starke einachsige Komponente hervorruft.

### 3. Bereichsstruktur der Schichten

Mit der Pulverfigurenmethode und Elektronenmikroskopie wurde festgestellt, daß die kompakten Fe- und  $\beta$ -Co-Schichten mit eindeutiger Orientierung aller Kristallite in der Regel in große Bereiche in Form von Quadraten und Rechtecken mit  $90^\circ$ -Wänden zerfallen. Ein solches „Schachbrett“, das am häufigsten bei Entmagnetisierung längs der schweren Achse entsteht, besteht aus Quadraten mit einer mittleren Fläche von  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ . In kompakten monokristallinen Nickelschichten besteht das „Schachbrett“ aus wesentlich kleineren Quadraten von  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$  (Fig. 3). Den Unterschied in der Bereichsgröße kann man durch eine unterschiedliche Größe der magnetischen Anisotropie der Schichten und folglich durch unterschiedliche Wandenergien erklären.

In Nickelschichten, die bei einer Unterlagentemperatur über  $150^\circ\text{C}$  aufgedampft wurden, werden die Bereiche noch kleiner, die Regelmäßigkeit ihrer Form verschwindet fast („getupfte“ Bereichsstruktur). Elektronenmikroskopische Aufnahmen der Schichten zeigen, daß ihre Unregelmäßigkeit zunimmt.

Auf elektronenmikroskopischen Abbildungen der Bereiche von Eiseneinkristallschichten beobachtet man keine Feinstruktur (ripples), die für die Bereiche von polykristallinen Schichten charakteristisch ist und aus der die mittlere Richtung des Magnetisierungsvektors gewöhnlich bestimmt wird (der Magnetisierungsvektor steht senkrecht zu den ripple-Streifen). In Schichten, die aus Kristalliten der zwei Orientierungen  $(001) [100]_{\text{Fe}} \parallel (001) [100]_{\text{NaCl}}$  und  $(001) [100]_{\text{Fe}} \parallel (001) [110]_{\text{NaCl}}$  bestehen, beobachtet man immer Magnetisierungsripples (Fig. 3b), obgleich sie im Gegensatz zu den ripples der Bereiche in polykristallinen

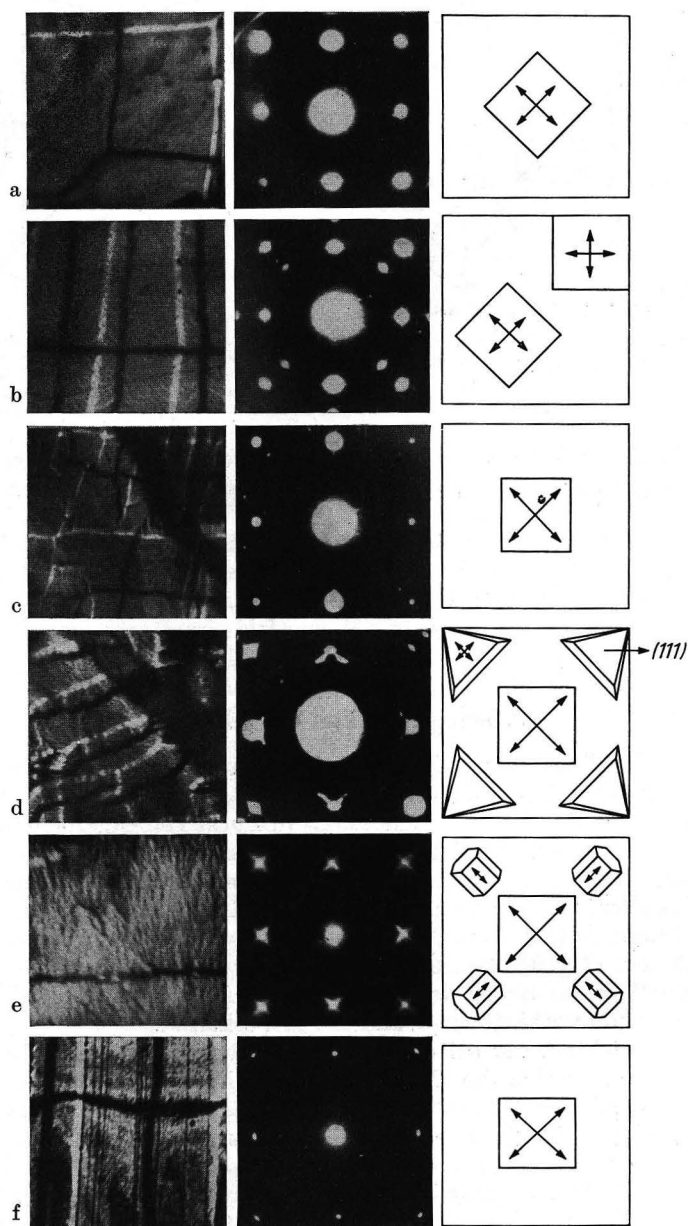


Fig. 3. Bereichsstrukturen, Elektronenbeugungsaufnahmen und Orientierungsschemata der Kristallite in epitaxialen Schichten:  
a) und b) Eisen, c) und d) Nickel, e) Kobalt vor dem Tempern, f) Kobalt nach dem Tempern

Schichten weniger klar ausgebildet sind. (Die Schemata rechts von der Elektronenbeugungsaufnahme in Fig. 3 stellen das Vorhandensein oder das Fehlen der Anisotropiedispersion in den Schichten dar.)

In einkristallinen Nickelschichten werden unabhängig vom Gehalt an Mikrozwillingen keine Magnetisierungsripples beobachtet (Fig. 3c, 3d). In sehr dünnen Nickeleinkristallschichten (150 bis 200 Å) können während der Ummagnetisierung ripples in beliebiger Richtung entstehen. In Fig. 4 wird die Entstehung eines ripples bei der Ummagnetisierung in der leichten Richtung und sein Verschwinden in den ummagnetisierten Teilen gezeigt.

In Kobaltschichten, die epitaxial auf NaCl-Kristallen gezüchtet wurden, wird immer eine Feinstruktur der Bereiche beobachtet (Fig. 3e), die dem Charakter

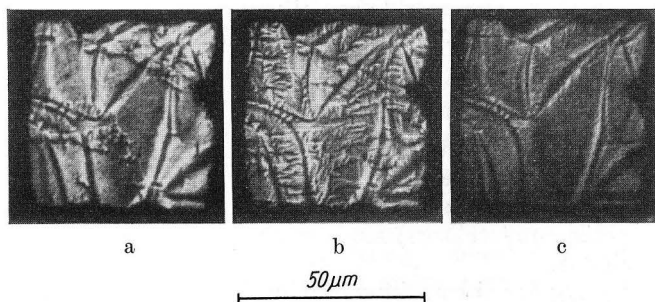


Fig. 4. Änderung der Bereichsstruktur einer einkristallinen Nickelschicht (Dicke  $\approx 200$  Å) bei der Ummagnetisierung längs der leichten Achse a)  $H = 0$  Oe, b)  $H = 52$  Oe, c)  $H = 56$  Oe

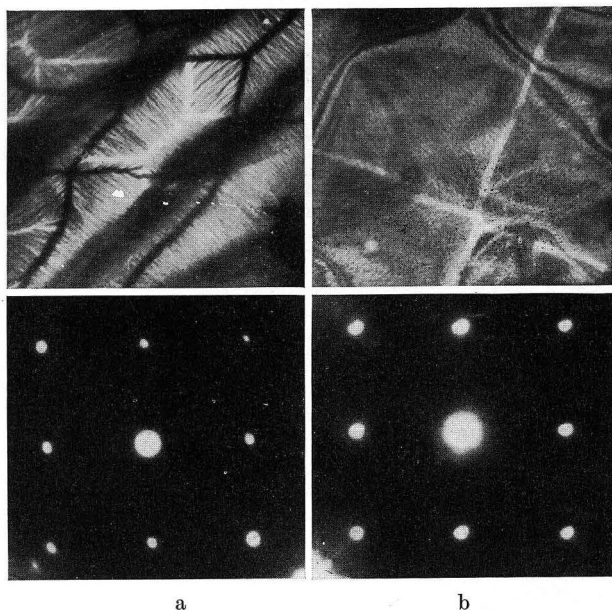


Fig. 5. Bereichsstrukturen und Elektronenbeugungsaufnahmen von Schichten aus a) 50% Ni, 50% Fe, b) 66,4% Co, 33,6% Ni

nach an die Substruktur von Eisschichten mit Kristalliten zweier Orientierungen erinnert. Nach einer kurzen Glühung der Schicht im Elektronenmikroskop bei Temperaturen von etwa 600 °C verschwanden die ripples auf den Abbildungen der Bereiche (Fig. 3f). Wie man der daneben gezeigten Elektronenbeugungsaufnahme entnimmt, verschwand die  $\alpha$ -Phase in der Schicht praktisch ebenfalls.

Einkristallschichten aus Permalloy 82, 80, 50 u. a. haben immer kontrastreiche ripples, die sich kaum von den ripples der polykristallinen Schichten der angegebenen Legierungen unterscheiden. In Fig. 5a wird die Bereichsstruktur einer Schicht gezeigt, die durch Aufdampfen der Legierung 50%Ni-50%Fe erzeugt wurde.

In den Bereichen einkristalliner Schichten der Legierung Co-Ni führt der Magnetisierungsvektor keine merklichen Richtungsschwankungen aus. In Fig. 5b wird die Bereichsstruktur einer Schicht der Legierung 34%Ni-66%Co gezeigt.

Aus der Beobachtung der Feinstruktur der Bereiche epitaxial gezüchteter Schichten kann man folgende Schlußfolgerungen ziehen:

1. Die Ursache für die Entstehung der ripples in ferromagnetischen Schichten ist die Dispersion ihrer Anisotropie.

2. Die Parameter der Substruktur (ripple-Wellenlänge, Schwingungsamplitude des Magnetisierungsvektors) sind durch den Charakter der Anisotropie-dispersion bestimmt.

3. Die Entstehung der Substruktur in sehr dünnen Nickeleinkristallschichten bei ihrer Ummagnetisierung hängt mit der Amplitude der Dispersion ihrer Kristallanisotropie oder einfach mit der unterschiedlichen Dicke der Schicht in verschiedenen Gebieten zusammen.

4. Die Substruktur in Einkristallschichten der Legierung Fe-Ni kann nur durch die Anisotropiedispersion, die mit dem unterschiedlichen prozentualen Gehalt an Nickel (oder Eisen) und der unterschiedlichen Ordnung der Legierung an verschiedenen Stellen der Schicht zusammenhängt, hervorgerufen werden.

Wie aus den elektronenmikroskopischen Abbildungen folgt, haben die Bereichswände in kompakten einkristallinen Nickelschichten von 200 bis 400 Å keine innere Struktur. In Schichten von über 400 Å Dicke gibt es in den Wänden eine innere Struktur; auf den elektronenmikroskopischen Aufnahmen sind sie als eine Reihe von Punkten sichtbar (Fig. 6). Naturgemäß nimmt man an, daß

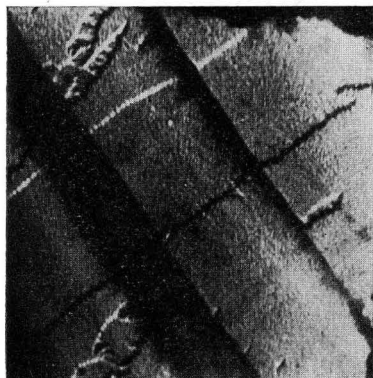


Fig. 6. Elektronenmikroskopische Abbildung der Bereichsgrenzen in einer einkristallinen Nickelschicht von  $\approx 700$  Å Dicke

die Wände in einkristallinen Nickelschichten von weniger als 450 Å Dicke reine Néel-Wände sind.

Die Messungen der Breite der Wände aus deren elektronenmikroskopischen Abbildungen nach der von Michalak und Glenn [15] vorgeschlagenen Methode ergibt folgende Werte:

Material der Schicht	Schichtdicke	Breite einer 90°-Wand	Breite einer 180°-Wand
Fe	700 Å	$900 \pm 100$ Å	$1800 \pm 200$ Å
Ni	350 Å	$350 \pm 100$ Å	$700 \pm 200$ Å
$\beta$ -Co	950 Å	$700 \pm 100$ Å	$1250 \pm 200$ Å

#### 4. Ummagnetisierungsprozesse

Die Gestalt der Hystereseschleife (Fig. 7) und die Beobachtung der Dynamik der Bereichsstruktur von kompakten, eindeutig orientierten Schichten aus Eisen und  $\beta$ -Kobalt sprechen davon, daß ihre Ummagnetisierung in Abhängigkeit vom Winkel  $\alpha$  zwischen der leichten Achse und der Feldrichtung auf folgende 4 Weisen stattfinden kann:

1. Beim Anlegen eines Gegenfeldes nahe zur leichten Achse bilden sich zuerst Keile mit der Magnetisierung in zwei Richtungen (ungefähr senkrecht zum Feld). Wenn sich diese Keile treffen, bilden sie Keime der umgekehrten Magnetisierung, durch deren Wachstum die Ummagnetisierung beendet wird. Ein idealisiertes Schema dieses Prozesses ist in Fig. 8a dargestellt.

2. Bei  $\alpha = (10 \dots 40)^\circ$  findet die Ummagnetisierung als Ergebnis einer zweifachen Keimbildung und einer Wandverschiebung statt (Fig. 8b).

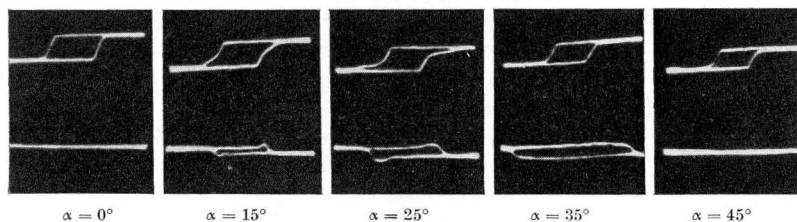


Fig. 7. Mit Hilfe des magnetooptischen Faraday-Effektes (oben longitudinal, unten transversal) aufgenommene Hystereseschleifen einer einkristallinen Eisen-schicht

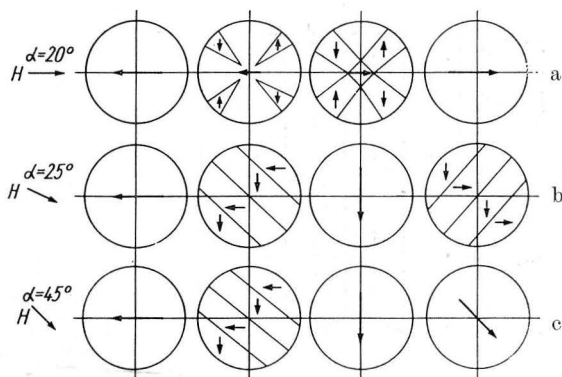


Fig. 8. Schematische Darstellung der Ummagnetisierungsprozesse bei verschiedenen Winkeln  $\alpha$  zwischen Feld und leichter Achse in einer Schicht mit starker zweiaxiger Anisotropie]



3. Bei Ummagnetisierung der Schichten in der schweren Richtung und in deren Nähe geschieht die Drehung der Magnetisierung um die ersten  $90^\circ$  durch Keimbildung und Wandverschiebung. Eine weitere Zunahme des Feldes führt zu einer reversiblen Drehung des Magnetisierungsvektors. Diese Drehung kann man leicht anhand der transversalen Hystereseschleife verfolgen, wenn das ummagnetisierende Feld nicht genau längs der schweren Richtung angelegt wurde (Fig. 7). Die Ummagnetisierung der Schichten in der schweren Richtung geschieht bei einer Änderung des Feldes mit einer Frequenz von 50 Hz offenbar anders, weil sich in diesem Falle die transversale Schleife nicht öffnet.

4. Ein Feld, das unter einem Winkel von  $\alpha = 90^\circ$  angelegt wird, ruft eine kohärente Drehung des Magnetisierungsvektors hervor.

In kompakten einkristallinen Nickelschichten geschieht die Ummagnetisierung in der leichten Richtung wegen der kleineren Anisotropie oft durch Bildung von Keimen, die sofort die Magnetisierung der umgekehrten Richtung haben; die Zweistappen-Ummagnetisierung bei  $\alpha = 10$  bis  $40^\circ$  ist schwach ausgeprägt.

### 5. Die Koerzitivfeldstärke der Schichten

Die Koerzitivfeldstärken von kompakten und eindeutig orientierten Schichten mit einer Dicke von 700 bis 800 Å betragen:

	$H_c(\text{Oe})$	$H_K(\text{Oe})$	$I_s(\text{Oe})$
Fe	20—30	500	1714
Ni	90—100	200	484
Co	30—40	600	1422

Aus dieser Tabelle, in der zum Vergleich auch die Werte der Anisotropiefeldstärken und die Sättigungsmagnetisierungen des Schichtmaterials angeführt sind, entnimmt man, daß die Koerzitivfeldstärke einer Schicht aller Wahrscheinlichkeit nach nicht durch die Anisotropiefeldstärke, sondern durch die Sättigungsmagnetisierung bestimmt wird.

Wenn die Dicke von Eisenschichten von 600 Å auf 1000 Å anwächst, nimmt ihre Koerzitivfeldstärke monoton ab. Die Koerzitivfeldstärke einkristalliner Nickelschichten wächst im Dickenbereich von 300 Å bis 500 Å an und fällt dann mit zunehmender Dicke langsam ab (Fig. 9).

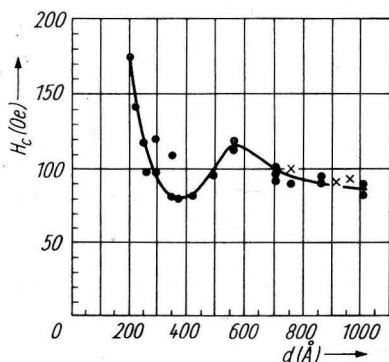


Fig. 9. Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke einkristalliner Nickelschichten von ihrer Dicke. ● Schichten mit Zwillingen, × Schichten ohne Zwillinge. Temperatur der Unterlagen (NaCl-Kristalle) beim Aufdampfen  $120^\circ\text{C}$



Da die Ummagnetisierung von Schichten mit einer zweiachsigen Anisotropie gewöhnlich durch Wandverschiebung geschieht, kann man erwarten, daß auch ihre Koerzitivfeldstärke durch die Verhältnisse bestimmt wird, die diesen Prozeß beschreiben. Speziell die von Kondorskii angegebene Formel

$$H_c = \frac{p}{I_s} (\cos \Theta_1 - \cos \Theta_2)^{-1} \quad (2)$$

(dabei ist  $p$  der Druck, der vom Feld auf die Wand ausgeübt wird,  $I_s$  die Sättigungsmagnetisierung,  $\Theta_1$  und  $\Theta_2$  sind die Winkel zwischen dem Feld und dem Magnetisierungsvektor auf beiden Seiten der Wand) gibt Werte von  $H_c$ , die befriedigend mit dem Experiment übereinstimmen. In der untenstehenden Tabelle sind die  $H_c$ -Werte, die an den Hystereseschleifen (Fig. 7) einer einkristallinen Eisenschicht gemessen wurden, und die  $H_c$ -Werte, die nach Formel (2) für verschiedene Winkel  $\alpha$  zwischen dem ummagnetisierenden Feld und der leichten Achse bestimmt wurden, angegeben. Zur Bestimmung der Winkel  $\Theta_1$  und  $\Theta_2$  wurde Fig. 8 benutzt.

$\alpha$	$H_c$ exper. (Oe)	$H_c$ ber. (Oe)	$\Theta_1$	$\Theta_2$
0°	16	16	90°	0°, 180°
25°	14	12	65°	155°
25°	32	32,2	65°	-25°
45°	11,8	11,3	45°	135°

Die berechneten  $H_c$ -Werte erhielt man durch Multiplikation von  $p/I_s$  mit den entsprechenden Werten  $(\cos \Theta_1 - \cos \Theta_2)^{-1}$ . Das Verhältnis  $p/I_s$  wurde mit dem experimentellen Wert von  $H_c$  bei  $\alpha = 0^\circ$ , d. h. 16 Oe, gleichgesetzt.

Der Gedanke, daß die Koerzitivfeldstärke der Schichten nicht durch die Keimbildungsfeldstärke, sondern durch die zur Wandverschiebung notwendige Feldstärke bestimmt wird, wird durch die Tatsache bestätigt, daß das Anwachsen der Koerzitivfeldstärke von Nickelschichten mit zunehmender Dicke gerade in dem Dickenbereich geschieht, in dem eine Änderung der Wandstruktur beobachtet wird.

### Literatur

- [1] E. L. BOYD, IBM J. Res. Dev. **4**, 116 (1960).
- [2] S. CHIKAZUMI, J. appl. Phys. **32**, 81 (1961).
- [3] H. SATO, R. S. TOTH und R. W. ASTRUE, J. appl. Phys. **33**, 1113 (1962).
- [4] H. SATO und R. W. ASTRUE, J. appl. Phys. **33**, 2956 (1962).
- [5] H. SATO, R. S. TOTH und R. W. ASTRUE, J. appl. Phys. **34**, 1062 (1963).
- [6] H. SATO, R. W. ASTRUE und S. S. SHINOZAKI, J. appl. Phys. **35**, 822 (1964).
- [7] J. F. FREEDMAN, IBM J. Res. Dev. **6**, Nr. 10 (1962).
- [8] J. GODDARD und J. G. WRIGHT, Nature **202**, 1322 (1964).
- [9] Y. GONDO, S. USAMI, K. ITOH, H. KONNO und Z. FUNATOGAWA, J. appl. Phys. **34**, 1079 (1963).
- [10] D. UNANGST, Ann. Phys. (Germany) **7**, 280 (1961).
- [11] J. KACZÉR, Czech. J. Phys. **7**, 557 (1957).
- [12] Y. GONDO und Z. FUNATOGAWA, J. Phys. Soc. Japan **17**, S. B-I, 621 (1962).
- [13] L. V. KIRENSKII, V. G. PYNKO und I. S. EDELMAN, Kristallografiya **9**, 682 (1964).
- [14] L. V. KIRENSKII, V. G. PYNKO und G. P. PYNKO, Kristallografiya **10**, 920 (1965).
- [15] J. T. MICHALAK und R. C. GLENN, J. appl. Phys. **32**, 1261 (1961).

(Received June 6, 1966)