

05,12

## Влияние толщины слоев гадолиния на магнитные свойства и процессы перемагничивания низкоразмерных Co/Gd/Co-систем

© А.М. Харламова<sup>1</sup>, А.В. Свалов<sup>2</sup>, В.Н. Лепаловский<sup>2</sup>, Е.Е. Шалыгина<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

<sup>2</sup> Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия

E-mail: anna-h-m@mail.ru

(Поступила в Редакцию 25 сентября 2018 г.)

Представлены результаты исследования структурных и магнитных характеристик, а также магнитополевого поведения тонкопленочных Co/Gd/Co-систем, полученных методом ионно-плазменного распыления. Результаты рентгеноструктурных измерений показали, что слои кобальта во всех исследуемых образцах имеют нанокристаллическую структуру. Средняя шероховатость поверхности  $R_a$  исследуемых образцов не превышает 0.5 nm, и величина  $R_a$  не зависит от толщины слоя Gd. Форма петель гистерезиса, наблюдаемых для Co/Gd/Co, зависит от толщины Gd-слоя,  $t_{Gd}$ . Зависимость поля насыщения,  $H_S$ , от  $t_{Gd}$  имеет осциллирующий характер. Этот факт объяснен межслойным взаимодействием слоев Co через прослойку Gd.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках научного проекта № 17-32-50020 „мол\_нр“.

DOI: 10.21883/FTT.2019.03.47236.258

### 1. Введение

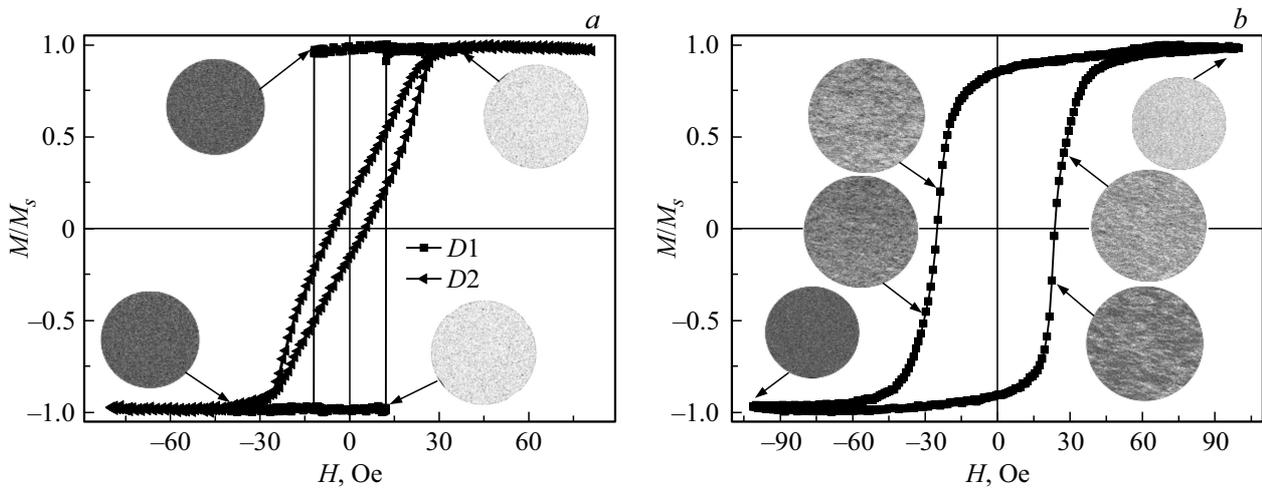
Многослойные магнитные структуры, содержащие редкоземельные металлы (*REM*) и их сплавы привлекают внимание исследователей в течение многих лет. Высокие значения магнитных моментов *REM*-атомов в сочетании с перспективой их широкого практического применения предопределили активное исследование их свойств. Интерес к этим системам усилился в середине 80-х годов [1–3]. Этому способствовало существенное улучшение способов получения и методов изучения тонкопленочных систем с хорошо контролируруемыми толщинами слоев нанометрового диапазона [4–7]. Уже в первых работах [1,2,8], посвященных изучению подобных многослойных систем, было установлено, что межслойное обменное взаимодействие в них подобно взаимодействию, существующему между редкоземельными (*RE*) и магнитными (Co, Fe) атомными подсистемами в однородных магнетиках. Важную роль при этом играют толщины взаимодействующих слоев. Магнитное упорядочение в *REM* обусловлено дальнедействующим косвенным обменным взаимодействием, осуществляющимся через электроны проводимости. Поэтому магнитные свойства *REM* в большой степени зависят от структурного состояния реальных объектов [9]. Для изучения тонкопленочного состояния редкоземельных элементов чаще выбирают слоистые структуры, содержащие сильномагнитные компоненты, то есть металлы, обладающие высокими температурами магнитного упорядочения. Наиболее популярными редкоземельными элементами являются Gd, Tb, Dy. При этом гадолиний имеет наибольшую температуру Кюри (293 K) и явля-

ется коллинеарным ферромагнетиком во всем температурном диапазоне ниже  $T_C$ . Кроме того, на сегодняшний день гадолиний остается наиболее перспективным материалом для создания устройств магнитного охлаждения [10], не только в объемном, но и тонкопленочном состоянии [11].

Цель данной работы — исследование влияния толщины слоев гадолиния на магнитные свойства и магнитополовое поведение низкоразмерных тонкопленочных систем Co/Gd/Co, состоящих из двух одинаковых по толщине кобальтовых слоев и редкоземельной гадолиниевой прослойки разной толщины.

### 2. Образцы и методики исследования

Исследуемые тонкопленочные системы были получены методом ионно-плазменного распыления на неохлаждаемые стеклянные подложки Corning 2845 с использованием Ta-, Co- и Gd-мишеней. Перед процедурой напыления все подложки очищались последовательно в ультразвуковой ванне ацетоном, этанолом и деионизированной водой, а затем сушились при температуре 100°C. Шероховатость поверхности подложки была порядка 0.5 nm. В качестве буферного подслоя и верхнего слоя, защищающего тонкопленочные системы от окисления, наносились слои Ta толщиной 5 nm. Напыление Co- и Gd-слоев проводилось при комнатной температуре. Базовое давление в вакуумной камере было  $4 \times 10^{-7}$  mbar. Давление аргона в процессе напыления пленки достигало  $3.8 \times 10^{-3}$  mbar. Толщина Co-слоев,  $t_{Co}$ , во всех трехслойных Co/Gd/Co-образцах была равна 5 nm, а толщина слоев Gd изменялась от 0.5 до 10 nm. Толщина каждого



**Рис. 1.** Петли гистерезиса и видоизменения доменной структуры, измеренные с помощью магнитооптического Керр-магнетометра для Co/Gd/Co-тонкопленочных систем с  $t_{\text{Gd}} = 0.5 \text{ nm}$  при  $H$ , параллельном  $D1$  и  $D2$  направлениям, (a) и с  $t_{\text{Gd}} = 3.0 \text{ nm}$  при  $H$ , параллельном  $D1$  направлению, (b).

слоя была определена с учетом известных скоростей (2.6, 2.8 и 11.0 nm/min для Co, Gd и Ta соответственно) и времени напыления для каждого материала. Скорость напыления была определена дополнительной процедурой калибровки с оценкой толщины с помощью атомно-силового микроскопа (AFM).

Было найдено, что значения  $M_S$ , реперных Co-пленок толщиной 5 и 10 nm, измеренные с помощью высокочувствительного вибрационного магнетометра при комнатной температуре, соответственно, равны 970 и 1200 G. Эти значения меньше  $M_S = 1400 \text{ G}$  объемного кобальта, но хорошо согласуются с литературными данными о зависимости  $M_S$  пленок Co с изменением их толщины, полученных с помощью магнетронного распыления.

В процессе напыления пленок было приложено постоянное магнитное поле, параллельное плоскости подложки,  $H_{\text{SUB}} = 250 \text{ Oe}$ , что способствовало формированию одноосной магнитной анизотропии.

Микроструктура тонкопленочных систем была изучена рентгеновским методом с использованием  $\text{CuK}\alpha$ -излучения. Морфология поверхности образцов была исследована с помощью атомного силового микроскопа (AFM). Полученные АСМ-изображения для Co/Gd/Co-систем были обработаны с использованием математических операций и фильтров программы „Nova“, разработанной изготовителем AFM [12]. Программа позволяет определить среднее арифметическое значение шероховатости,  $R_a$ .

Намагниченность насыщения,  $M_S$ , реперных пленок Co толщиной 5 и 10 nm была измерена на высокочувствительном вибрационном магнетометре. Магнитное поведение образцов было изучено с помощью вибрационного магнетометра, а также магнитооптического Керр-магнетометра, созданном на основе поляризационного микроскопа Carl Zeiss, позволяющем проводить измерения петель гистерезиса и одновременно

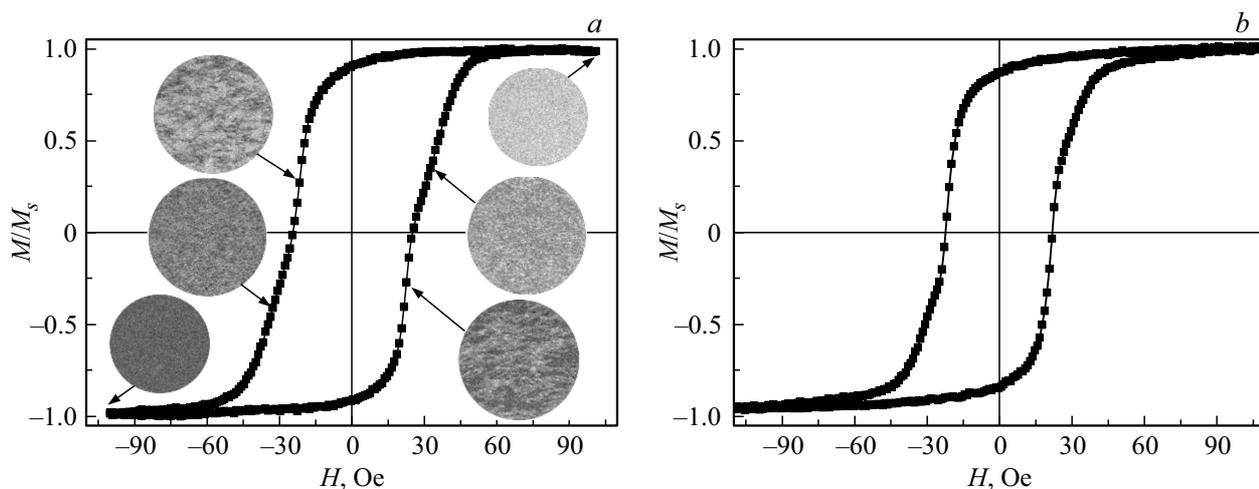
визуализировать изменения доменной структуры (DS) в процессе перемагничивания образцов. Магнитооптические измерения были выполнены в геометрии меридионального эффекта Керра, пропорционального компоненте намагниченности, параллельной поверхности образца, и плоскости падения света. В данной работе все измерения были выполнены при комнатной температуре.

### 3. Результаты и их обсуждение

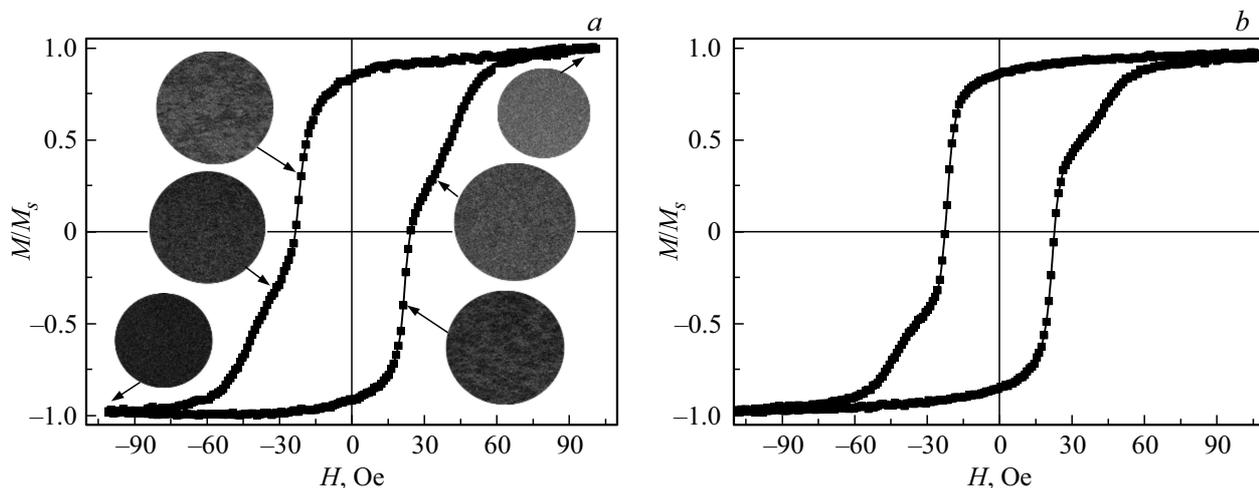
Результаты рентгеноструктурных измерений свидетельствовали о том, что слои кобальта во всех исследуемых образцах имеют нанокристаллическую структуру. Исследования AFM показали, что средняя шероховатость поверхности,  $R_a$ , исследуемых образцов не превышает 0.5 nm, и величина  $R_a$  не зависит от толщины слоя Gd.

Измерения петель гистерезиса исследуемых Co/Gd/Co-образцов были выполнены на магнитооптическом и вибрационном магнетометрах при двух направлениях внешнего магнитного поля,  $H$ . В одном случае,  $H$  было параллельно ориентации магнитного поля, приложенного в процессе напыления образцов (направление  $D1$ ), а в другом перпендикулярно  $D1$  (направление  $D2$ ). Результаты этих измерений представлены на рис. 1–4. Петли гистерезиса, наблюдаемые для двухслойных Co/Gd- и Gd/Co-пленок, приведены на рис. 5.

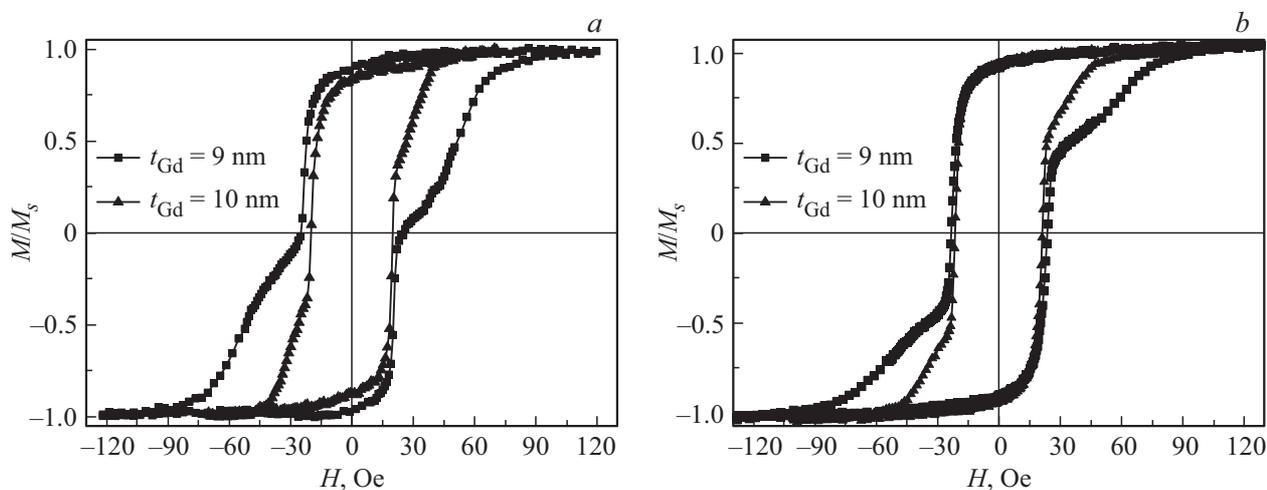
Анализ полученных данных показал, что петли гистерезиса, наблюдаемые для изучаемых тонкопленочных систем, измеренные в магнитном поле, приложенном вдоль  $D1$ - и  $D2$ -направлений, различаются (рис. 1, a). Этот факт подтверждал наличие наведенной магнитной анизотропии с осью легкого намагничивания, параллельной направлению магнитного поля, приложенного в процессе напыления пленок. В настоящее время основной



**Рис. 2.** Петли гистерезиса и видоизменения доменной структуры, измеренные при  $H$ , параллельном  $D1$  направлению, с помощью магнитооптического Керр-магнетометра ( $a$ ) и вибрационного магнетометра ( $b$ ) для Co/Gd/Co-тонкопленочного образца с  $t_{\text{Gd}} = 5.0$  nm.



**Рис. 3.** Петли гистерезиса и видоизменения доменной структуры, измеренные при  $H$ , параллельном  $D1$  направлению, с помощью магнитооптического Керр-магнетометра ( $a$ ) и вибрационного магнетометра ( $b$ ) для Co/Gd/Co-тонкопленочного образца с  $t_{\text{Gd}} = 6.0$  nm.



**Рис. 4.** Петли гистерезиса, измеренные при  $H$ , параллельном  $D1$  направлению, с помощью магнитооптического Керр-магнетометра ( $a$ ) и вибрационного магнетометра ( $b$ ) для Co/Gd/Co-тонкопленочных образцов с  $t_{\text{Gd}}$ , равной 9.0 и 10.0 nm.

причиной появления наведенной магнитной анизотропии принято считать парное упорядочением атомов [13].

Практически для всех образцов при ориентации магнитного поля вдоль направления  $D2$  при  $H < H_S$  наблюдается линейная зависимость намагниченности от величины  $H$ , аналогичная приведенной на рис. 1, *a*. Форма петель гистерезиса Co/Gd/Co-образцов в магнитном поле, приложенном параллельно  $D1$ -направлению, зависит от толщины Gd-слоя,  $t_{Gd}$ . В частности, было найдено, что образцы с  $t_{Gd} < 2.0$  nm характеризуются почти прямоугольными петлями гистерезиса, подобными приведенной на рис. 1, *a*. В этом случае процессы перемангничивания трехслойных тонкопленочных структур аналогичны процессам перемангничивания тонкой однодоменной пленки в поле, параллельном оси легкого намагничивания, то есть осуществляются за счет формирования зародыша перемангничивания, формирования доменной границы по его периметру и мгновенного смещения этой доменной границы. Одновременная визуализация изменения доменной структуры образцов в процессе перемангничивания образца свидетельствует о резком изменении контраста при переключении магнитного поля от  $-H_S$  до  $+H_S$  (рис. 1, *a*). Этот факт подтверждает выше приведенное объяснение процессов перемангничивания тонкопленочных образцов с  $t_{Gd} < 2.0$  nm.

При  $t_{Gd} > 2.0$  nm форма петель гистерезиса, измеренных в магнитном поле, приложенном параллельно  $D1$ -направлению, отличается от прямоугольной (рис. 1, *b–4*). Это можно объяснить наличием доменной структуры в образцах, перемангничивание которых обычно на начальном этапе осуществляется за счет смещения доменных границ, затем смещения доменных границ и вращения вектора намагниченности и завершается вращением вектора намагниченности. Этот факт подтверждается видоизменениями доменной структуры, приведенными также на рис. 1, *b, 2, a* и 3, *a*.

Для трехслойных образцов с  $t_{Gd} > 2.0$  nm наблюдается рост значений  $H_S$ , величина которого определялась из петель гистерезиса как значение приложенного магнитного поля, при котором намагниченность образца достигает 98%  $M_S$ . В частности,  $H_S$  образца с  $t_{Gd} = 3$  nm (рис. 1, *b*) практически в 4 раза больше  $H_S$  образца с  $t_{Gd} = 2$  nm. Можно предположить, что при  $t_{Gd} = 3$  nm формируется сплошной парамагнитный слой гадолиния, который уменьшает взаимодействие между слоями Co. В результате в слоях кобальта возможно увеличение числа доменных границ, сопровождающееся возрастанием граничной энергии, и как следствие увеличением  $H_S$  [14].

Петли гистерезиса при  $t_{Gd} > 3.0$  nm имеют сложную форму (рис. 2–4). Это может быть обусловлено условиями осаждения слоев Co. Для проверки этого факта были получены и исследованы двухслойные тонкопленочные системы Co(5 nm)/Gd(3 nm) и Gd(3 nm)/Co(5 nm) (рис. 5). Было найдено, что двухслойные системы перемангничиваются по-разному. В частности, если слой Co осажден на слой Gd, образец характеризуется большей

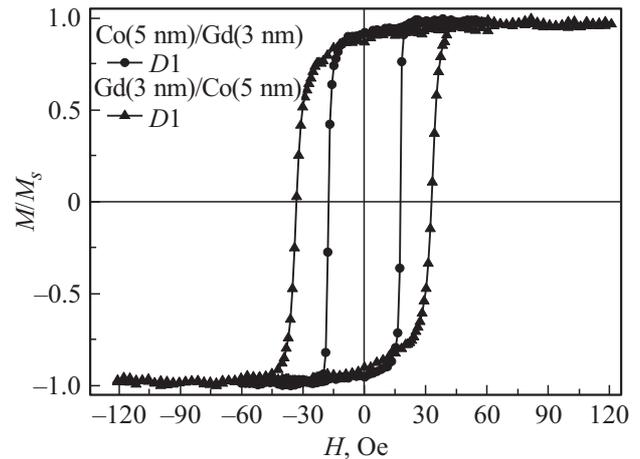


Рис. 5. Петли гистерезиса, наблюдаемые для двухслойных Co/Gd и Gd/Co тонкопленочных систем, измеренные при  $H$ , параллельном  $D1$  направлению, с помощью магнитооптического Керр-магнетометра.

коэрцитивной силой по сравнению с образцом, в котором Gd напыляется на слой Co. Этот факт свидетельствует о том, что один из слоев формируется относительно магнитотвердым, а другой относительно магнитомягким. Повышение  $H_C$  верхнего слоя Co может быть объяснено особенностями его кристаллической структуры при осаждении его на слой гадолиния, о котором сообщалось в работах [15–18].

Сравнение результатов петель гистерезиса, наблюдаемых для Co/Gd/Co-трехслойных (рис. 1–4) и Gd/Co, Co/Gd двухслойных (рис. 5) тонкопленочных систем, показало, что значения поля насыщения трехслойных образцов практически в два раза превышают  $H_S$  двухслойных. Наличие в трехслойных системах двух идентичных по толщине ферромагнитных Co-слоев, взаимодействие которых через промежуточный слой Gd требует добавочной энергии на перемангничивание всего образца, может быть причиной увеличения  $H_S$ .

Полученные экспериментальные данные позволили получить зависимость значений поля насыщения,  $H_S$ , для изучаемых Co/Gd/Co-образцов от толщины Gd-слоя,  $t_{Gd}$  (рис. 6).

Из рис. 6 можно видеть, что зависимость поля насыщения,  $H_S$ , изучаемых тонкопленочных Co/Gd/Co-образцов от толщины гадолиниевого слоя имеет осциллирующий характер. Максимальные значения  $H_S$ , увеличивающиеся с ростом толщины гадолиниевого слоя, наблюдаются при  $t_{Gd} = 3.0, 6.0$  и  $9.0$  nm. Объяснение этих данных может состоять в следующем. Ранее проведенные в лаборатории исследования [19] показали, что с ростом толщины магнитного образца, напыленного на тантал, его текстурированность повышается, что сопровождается увеличением поля насыщения. Таким образом, наличие слоя тантала между подложкой и слоем кобальта может обуславливать увеличение значений

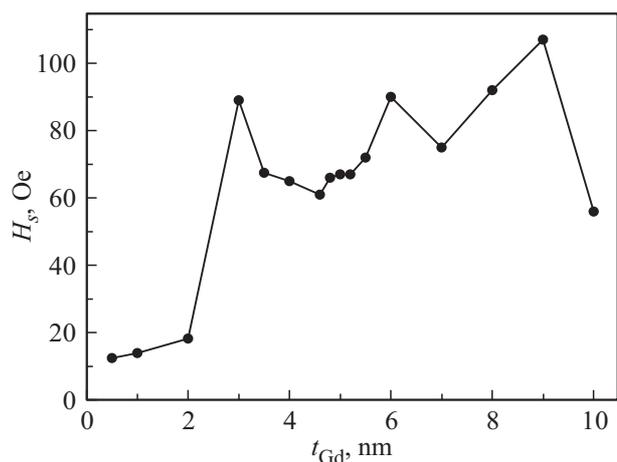


Рис. 6. Зависимость значений поля насыщения от толщины Gd-слоя, наблюдаемая для Co/Gd/Co-образцов.

$H_S$  тонкопленочных Co/Gd/Co-образцов при  $t_{Gd} = 3.0, 6.0$  и  $9.0$  nm.

Наблюдаемые для тонкопленочных Co/Gd/Co-систем сложные петли гистерезиса при  $t_{Gd} > 3.0$  nm, по-видимому, могут быть объяснены, если учесть следующий факт. Результаты расчетов магнитополевого поведения трехслойных тонкопленочных образцов, в которых один слой (магнитомягкий) находится под влиянием размагничивающего поля магнитотвердого, приведенные в работе [20], свидетельствовали о появлении петель гистерезиса сложной формы, обусловленных магнитостатическим взаимодействием между магнитными слоями. Таким образом, сложные петли гистерезиса в изучаемых трехслойных Co/Gd/Co-системах при  $t_{Gd} > 3.0$  nm можно объяснить влиянием магнитостатического взаимодействия между магнитными слоями благодаря различию значений коэрцитивной силы верхнего и нижнего слоев Co.

На магнитополевое поведение Co/Gd/Co-образцов, безусловно, будут также влиять изменения свойств Gd-слоя с ростом его толщины. В частности, при малых толщинах Gd в области интерфейсов возможно появление слабомагнитных Gd–Co-областей. Дальнейший рост  $t_{Gd}$  сопровождается появлением сплошного Gd-слоя. Изменения структуры промежуточного Gd-слоя будут влиять на магнитостатическое взаимодействие слоев кобальта.

#### 4. Выводы

Впервые проведено экспериментальное исследование низкоразмерных тонкопленочных систем Co/Gd/Co, состоящих из двух одинаковых по толщине кобальтовых слоев и редкоземельной гадолиниевой прослойки разной толщины. Найдено, что толщина слоев гадолиния,  $t_{Gd}$ , влияет на магнитные свойства и магнитополевое поведение изучаемых образцов. В частности, форма

петель гистерезиса Co/Gd/Co систем в магнитном поле, приложенном параллельно оси легкого намагничивания, зависит от  $t_{Gd}$ . При  $t_{Gd} > 3$  nm наблюдаются петли гистерезиса сложной формы. Зависимость  $H_S(t_{Gd})$  имеет осциллирующий характер. Максимальные значения  $H_S$  наблюдаются при  $t_{Gd} = 3.0, 6.0$  и  $9.0$  nm. Сложная форма петель гистерезиса Co/Gd/Co-образцов и осцилляционная зависимость  $H_S(t_{Gd})$  объяснена магнитостатическим взаимодействием между магнитными слоями Co, обусловленным различием значений коэрцитивной силы,  $H_C$ , верхнего и нижнего слоев Co. Величина этого взаимодействия зависит от толщины и структуры слоя Gd.

#### Список литературы

- [1] T. Morishita, Y. Togami, K. Tsushima. J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 37 (1985).
- [2] H. Okuno, Y. Sakaki, Y. Sakurai. J. Phys. D **19**, 873 (1986).
- [3] N. Sato, K. Habu. J. Appl. Phys. **61**, 4287 (1987).
- [4] R.F.C. Farrow, C.H. Lee, S.S.P. Parkin. IBM J. Res. Develop. **34**, 903 (1990).
- [5] С.Г. Овчинников. УФН **169**, 869 (1999).
- [6] J. Kortright, D.D. Awschalom, J. Stöhr, S.D. Bader, Y.U. Idzerda, S.S.P. Parkin, I.K. Schuller, H.-C. Siegmann. J. Magn. Magn. Mater. **207**, 7 (1999).
- [7] D.R. Lee, Y. Choi, C.-Y. You, J.C. Lang, D. Haskel, G. Srajer, V. Metlushko, B. Ilic, S.D. Bader. Appl. Phys. Lett. **81**, 4997 (2002).
- [8] L.T. Baczewski, M. Piecuch, J. Durand, G. Marchal, P. Delecroix. Phys. Rev. B. **40**, 11237 (1989).
- [9] С.А. Никитин. Магнитные свойства редкоземельных металлов и их сплавов. Изд-во МГУ, М. (1989). 248 с.
- [10] А.М. Тишин, Я.И. Спичкин. The magnetocaloric effect and its applications. Taulor & Fransic Group (CRC Press), Boca Raton, Florida (2003). 476 p.
- [11] C.W. Miller, D.V. Williams, N.S. Bingham, H. Srikanth. J. Appl. Phys. **107**, 09A903-1 (2010).
- [12] <http://www.ntmdt.ru>
- [13] S. Chikazumi. Physics of Magnetism. John Wiley & sons, N. Y. (2001). 544 p.
- [14] В.О. Васьковский, П.А. Савин, В.Н. Лепаловский, А.А. Рязанцев. ФТТ **39**, 2191 (1997).
- [15] J.B. Peřka, W. Paszkowicz, A. Wawro, L.T. Baczewski, O. Seeck. J. Alloys Compd. **328**, 253 (2001).
- [16] J.A. Alonso, R. Hojvat de Tendler, D.A. Barbiric, J.M. Riveiro. J. Phys.: Condens. Matter. **14**, 8913 (2002).
- [17] J.P. Andrés, J.L. Sacedón, J. Colino, J.M. Riveiro. J. Appl. Phys., **87**, 2483 (2000).
- [18] G. Choe, R.M. Walser. J. Appl. Phys., **79**, 6306 (1996).
- [19] C. Lin, G. Gorman, C. Lee, R. Farrow, E. Marinero, H. Do, H. Notarys. J. Magn. Magn. Mater. **93**, 194 (1991).
- [20] A. Aharoni. J. Appl. Phys. **76**, 6977 (1994).

Редактор Т.Н. Василевская