

05

## Структура и магнетосопротивление пленок на основе сплавов Co–Gd и Al–Co–Gd

© В.Н. Варюхин, Т.Т. Мороз,<sup>✉</sup> Б.Е. Шкуратов, А.И. Изотов, Ю.И. Непочатых, В.В. Бурховецкий, З.А. Самойленко, Е.И. Пушенко

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина,  
83114 Донецк, Украина  
<sup>✉</sup> e-mail: ftimoroz@mail.ru

Поступило в Редакцию 10 июня 2019 г.  
В окончательной редакции 17 декабря 2019 г.  
Принято к публикации 24 декабря 2019 г.

Представлены структурные данные и полевые зависимости  $R(H)$  сопротивления от напряженности магнитного поля для пленок сплавов Co–Gd и Al–Co–Gd, полученных методом вакуумного распыления. Показано, что аморфная пленка состава  $\text{Co}_{55}\text{Gd}_{45}$  при комнатной температуре проявляет ферромагнитное поведение. Обнаружены особенности в ходе кривых  $R(H)$  для пленок состава  $\text{Al}_{84}\text{Co}_8\text{Gd}_8$  и  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$ , связанные с магнитным упорядочением материала пленок.

**Ключевые слова:** аморфное состояние, магнетосопротивление, ферромагнитное состояние, магнитная восприимчивость.

DOI: 10.21883/JTF.2020.06.49280.231-19

### Введение

Редкоземельные металлы (РЗМ) с их уникальными физическими свойствами являются основными компонентами для создания новых материалов с целым комплексом особых свойств, обусловленных тем, что  $4f$ -электроны в РЗМ расположены очень близко к ядру атома и сильно экранированы внешними  $5d$ - и  $6s$ -электронами. В результате в РЗМ отсутствует перекрытие электронных облаков соседних атомов в кристалле. Магнитные моменты атомов взаимодействуют друг с другом посредством косвенного обменного взаимодействия через электроны проводимости. Большинство РЗМ магнитоупорядочены при низких температурах, и только Gd является ферромагнетиком при комнатной температуре (его температура Кюри  $T_C = 293$  К). В основном состоянии магнитный  $M$  момент Gd равен  $7.98 \mu\text{B}$ ; для сравнения  $M$  для Fe, Co и Ni равен 2.22, 1.72 и  $0.61 \mu\text{B}$  соответственно [1].

Сплавы Gd–Co привлекают внимание не только с научной, но и с практической стороны, так как являются перспективными для создания магнитных носителей информации с колоссальной плотностью записи. При импульсном тепловом воздействии в процессе перемангничивания пленок Gd–Co показана возможность использования их в качестве носителей оптической информации. Существование температуры  $T_{\text{COMP}}$  магнитной компенсации в аморфных пленках Gd–Co приводит к экстремальному росту коэрцитивной силы  $H_C$  в окрестности  $T_C$  и появлению вращающейся магнитной анизотропии [2].

В настоящее время проявляется особый интерес к объемным и пленочным материалам на основе алюминия с добавками РЗМ с целью повышения прочности

и температурного интервала, в котором могут быть использованы эти материалы [3]. При этом заслуживает внимания и вопрос о влиянии добавок РЗМ на магнитные свойства упомянутых пленочных материалов.

Цель настоящей работы — изучение структуры и магнетосопротивления пленок на основе сплавов Co–Gd и Al–Co–Gd.

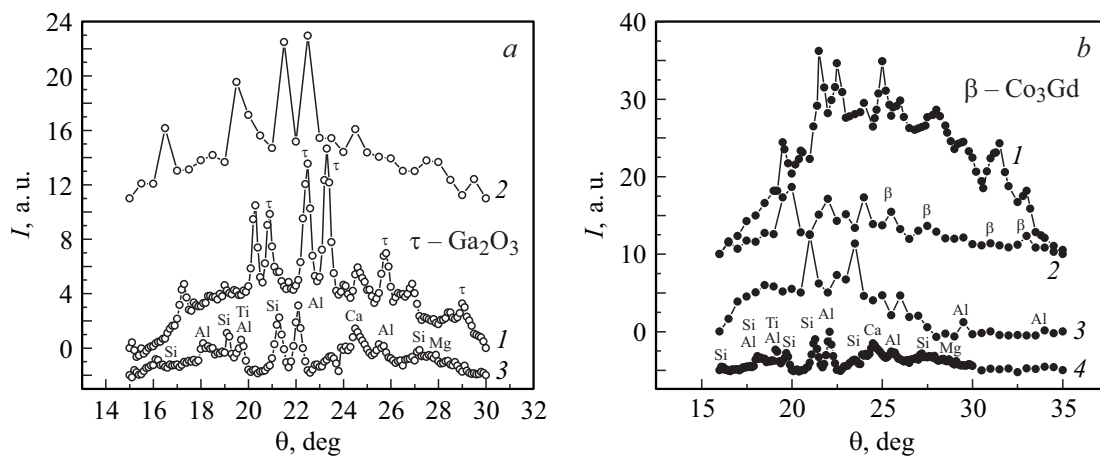
### Материал и методика эксперимента

Пленки получены методом вакуумного распыления на холодные подложки из ситалла и окисленного кремния кусочков слитка состава  $\text{Co}_{54}\text{Gd}_{46}$  (без и с Al). Слиток сплава указанного состава выплавлен в индукционной печи в алуновом тигле, помещенном в кварцевую ампулу, омываемую проточным аргоном. Элементный состав пленок уточнен с помощью растрового микроскопа JEOL JSM-6490 LV с приставкой для энергодисперсионного анализа. Структурные данные получены фотографическим методом со шлифа в камере РКД (рентгеновская камера Дебая) на установке УРС-55 в  $\text{CrK}_\alpha$ -излучении.

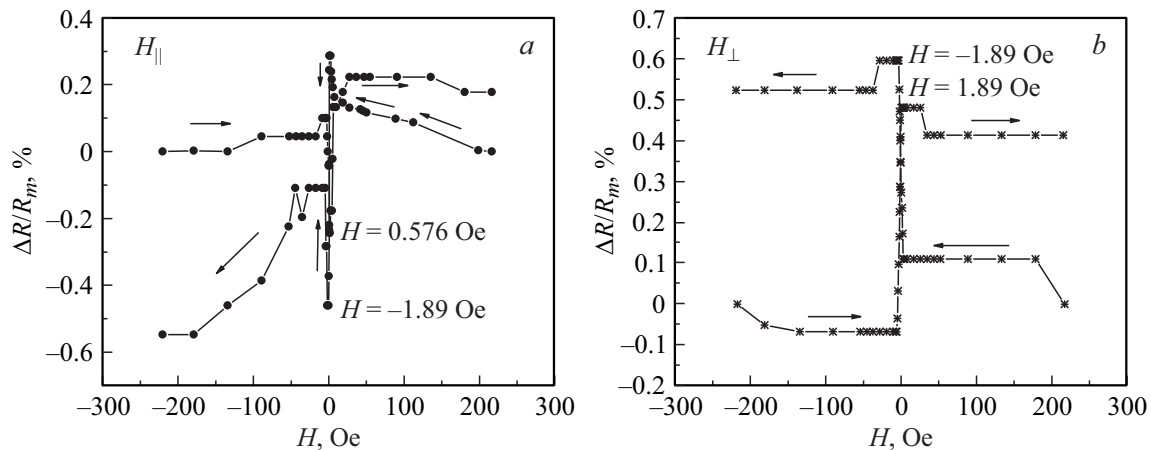
Размер частиц нанокристаллических фаз оценен по полуширине соответствующих дифракционных максимумов с использованием формулы Шеррера–Селякова [4]

$$L_{hkl} = n\lambda / \beta \cos \theta,$$

где  $L_{hkl}$  — размер частиц в направлении, перпендикулярном отражающей (под углом  $90-\theta$ ) плоскости ( $hkl$ ),  $n$  — коэффициент, учитывающий форму частиц и индексы ( $hkl$ ) отражающей плоскости, принят за единицу,  $\lambda$  — длина волны рентгеновского излучения,  $\beta$  — полуширина линии ( $hkl$ ).



**Рис. 1.** Микрофотометрические кривые для пленочных образцов сплавов: *a* —  $\text{Co}_{46}\text{Gd}_{44}\text{O}_{10}$  (1),  $\text{Co}_{55}\text{Gd}_{45}$  (2), подложки (3); *b* —  $\text{Al}_{84}\text{Co}_8\text{Gd}_8$  (1),  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$  (2), пленки Al (3), подложки (4). Здесь Al, Si, Ti, Ca, Mg — окислы указанных элементов, присутствующие в подложке.



**Рис. 2.** Зависимости относительного изменения сопротивления  $\Delta R/R_m$  пленочного образца  $\text{Co}_{55}\text{Gd}_{45}$  от напряженности  $H$  магнитного поля, направленного параллельно  $H_{\parallel}$  и перпендикулярно  $H_{\perp}$  относительно длинной оси образца.

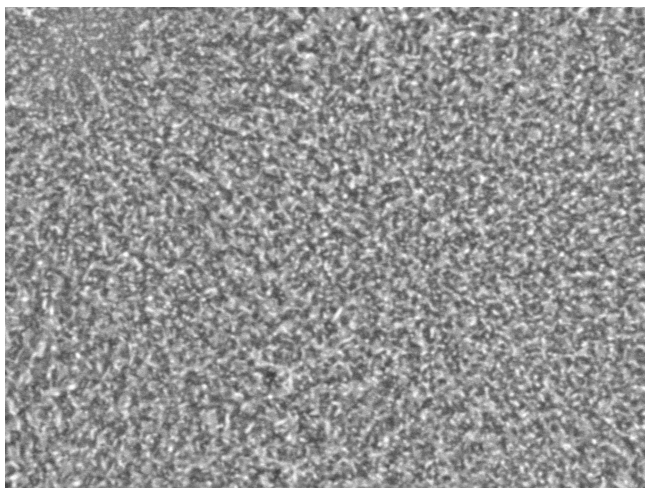
Электрическое сопротивление  $R$  измерено 4-зондовым методом на постоянном токе (погрешность измерения  $\pm 2 \cdot 10^{-5} \Omega$ ). Полевые зависимости  $R$  от напряженности  $H$  магнитного поля, приложенного в плоскости пленочного образца, получены при комнатной температуре при изменении  $H$  от 220 до  $-220$  Oe и от  $-220$  до 220 Oe. Величина электрического тока через образец изменялась в пределах  $80\text{--}100 \mu\text{A}$  и существенного влияния на результаты измерения не оказывала.

Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi(T)$  получены с помощью автодина [5,6] (частота генератора около 5 MHz, амплитуда его поля на образце порядка 0.01 Oe). Образцы помещались в выносную катушку индуктивности автодина, которая располагалась в ячейке с регулируемой температурой в модулирующем поле частотой 330 Hz и амплитудой 4 Oe. Изменение температуры и модулирующее магнитное поле индуцируют связанные с ними изменения восприимчивости образца и индуктивности выносной катушки,

что соответственно изменяет с частотой модуляции амплитуду колебаний автодина. Амплитуда  $Q$  этой модуляции пропорциональна магнитной восприимчивости исследуемого образца на частоте модуляции. Поэтому ход кривой  $Q(T)$ , записанный после детектирования ее сигнала, эквивалентен ходу температурной зависимости восприимчивости  $\chi(T)$ . Зависимости записывались при изменении температуры с одной и той же постоянной скоростью.

## Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 1, *a* показаны микрофотометрические кривые для полученных пленок сплавов следующих составов (at.%):  $\text{Co}_{46}\text{Gd}_{44}\text{O}_{10}$ ,  $\text{Co}_{55}\text{Gd}_{45}$ , а также подложки (ситалл). Толщина пленочных образцов составляет 3 и  $0.1 \mu\text{m}$  соответственно.



20 kV ×2.500 10 μm 0835 10 63 ВЕС

**Рис. 3.** Электронное изображение поверхности пленочного образца алюминия.

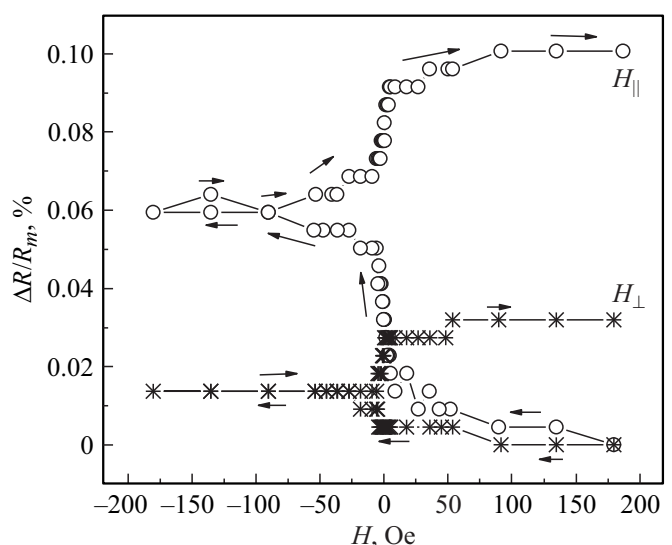
Анализ рентгеновских данных приводит к выводу о том, что в исходном состоянии пленки находятся в аморфном состоянии. При этом пленка 1, кроме аморфной фазы, содержит частицы кристаллической фазы  $Gd_2O_3$  (моноклинная решетка) размером  $\sim 25$  nm, имеет высокое сопротивление  $\sim 1$  MΩ, большое значение величины микротвердости  $\sim 17$  GPa. Следуя классификации М.Ф. Ashby [7], структуру этой пленки можно определить как композитную, содержащую два твердых компонента: частицы одной фазы находятся в матрице другой фазы.

На рис. 2 для образца  $Co_{55}Gd_{45}$  приведены зависимости  $\Delta R/R_m = (R - R_m)/R_m$  от напряженности  $H$  магнитного поля (где  $R$  и  $R_m$  — соответственно текущее и измеренное при максимальной  $H$  значения магнетосопротивления образца). Ход кривых различен для поля, ориентированного параллельно  $H_{\parallel}$  и перпендикулярно  $H_{\perp}$  длинной оси образца. При перемагничивании в поле  $H_{\parallel}$  наблюдается резкое падение  $R$  с минимумом при  $H = -1.89$  Oe при изменении  $H$  от 220 до  $-220$  Oe и соответственно при  $H = 0.58$  Oe при обратном изменении направления поля. При перемагничивании в поле  $H_{\perp}$  сопротивление резко возрастает, достигая максимального значения при  $H = \pm 1.89$  Oe при возрастании поля от  $-220$  до 220 Oe и снижении его от 220 до  $-220$  Oe соответственно. Такой характер зависимостей  $\Delta R/R_m(H_{\parallel}, H_{\perp})$  типичен для ферромагнитного состояния образца [8]: пленка состава  $Co_{55}Gd_{45}$  при комнатной температуре обнаруживает ферромагнитное поведение. Этот вывод согласуется с данными работы [9], в которой для аморфной пленки аналогичного состава определена температура Кюри  $T_C \sim 320$  K.

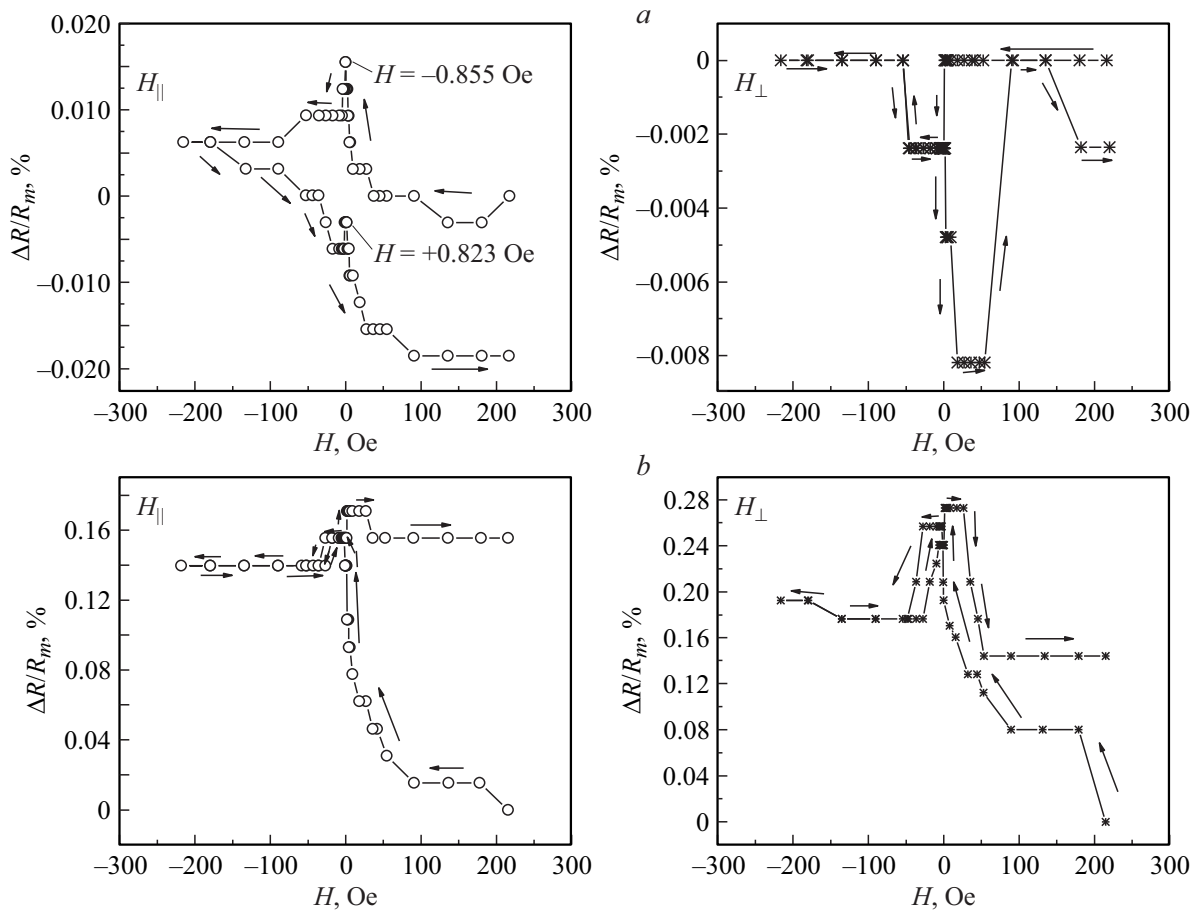
Структурные данные в виде микрофотометрических кривых для пленочных образцов на основе алюминия, приведенные на рис. 1, б, свидетельствуют о том, что

исходное состояние пленки сплава  $Al_{84}Co_8Gd_8$  — аморфное (толщина ее  $0.3$  μm, удельное сопротивление  $\rho \sim 170$  μΩ · cm). Для пленки  $Al_{92}Co_6Gd_2$  (толщина пленки составляет  $1$  μm, значение  $\rho \sim 40$  μΩ · cm) исходное состояние — смешанное, аморфно-нанокристаллическое. Помимо гало на кривой 2 зафиксированы дифракционные максимумы фазы  $Co_3Gd$  (тригональная решетка), размер частиц этой фазы  $\sim 15$  nm. По данным [10] это соединение является ферримагнетиком и имеет температуру Кюри  $T_C = 615$  K.

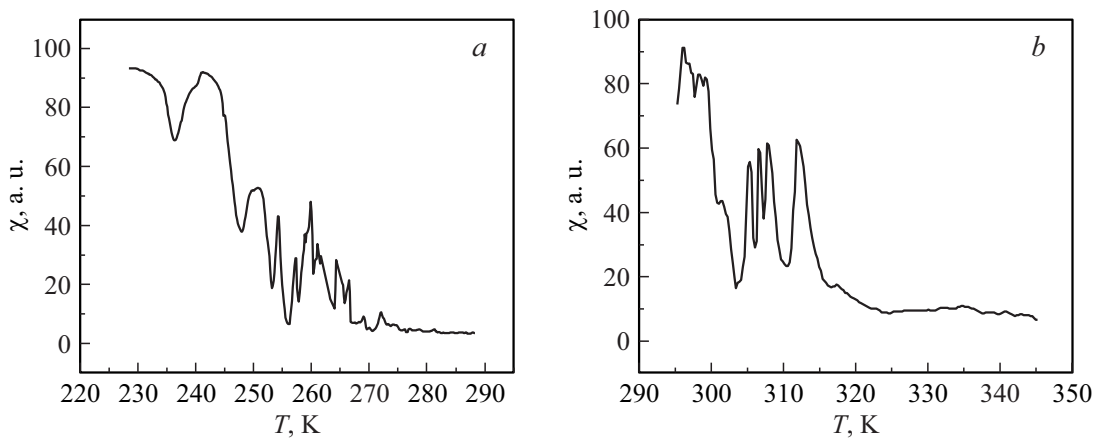
Зафиксировать все дифракционные максимумы ГЦК решетки на рентгенограмме пленочного образца алюминия (рис. 1, б, кривая 3) не удалось. Электронное изображение поверхности этого образца (его толщина  $0.1$  μm) показано на рис. 3. На фоне подложки видны частицы размером  $\sim 200$  nm. Соответствующие зависимости  $\Delta R/R_m(H_{\parallel}, H_{\perp})$  представлены на рис. 4. Характер зависимостей одинаков для  $H_{\parallel}$  и  $H_{\perp}$ : с уменьшением  $H$  от 220 до  $-220$  Oe магнетосопротивление растет сначала медленно, в окрестности  $H$  от 2 до  $-2$  Oe довольно резко, достигает максимального значения и практически не изменяется при дальнейшем повышении  $H$  поля. При обратном изменении направления поля процесс повторяется в том же порядке. Абсолютные значения  $\Delta R/R_m$  малы, магниторезистивное отношение [11]  $\Delta R/R_0 = 3(R_{\parallel} - R_{\perp})/(R_{\parallel} + 2R_{\perp}) \approx -0.1\%$  является отрицательной величиной. Здесь  $R_0, R_{\parallel}$  и  $R_{\perp}$  — значения  $R$ , измеренные при  $H = 0$  и 220 Oe соответственно для параллельной и перпендикулярной ориентаций магнитного поля относительно длинной оси образца. Такая зависимость  $\Delta R/R_m(H_{\parallel}, H_{\perp})$  не характерна для ферромагнитного состояния и скорее отвечает парамагнитному состоянию материала образца. Аналогичные полевые зависимости  $\Delta R/R_m(H_{\parallel}, H_{\perp})$  представлены на



**Рис. 4.** Зависимости относительного изменения сопротивления  $\Delta R/R_m$  пленочного образца алюминия от напряженности  $H$  магнитного поля, направленного параллельно  $H_{\parallel}$  и перпендикулярно  $H_{\perp}$  относительно длинной оси образца.



**Рис. 5.** Зависимости относительного изменения сопротивления  $\Delta R/R_m$  образцов составов  $Al_{84}Co_8Gd_8$  (a) и  $Al_{92}Co_6Gd_2$  (b) от напряженности  $H$  магнитного поля, направленного параллельно  $H_{||}$  и перпендикулярно  $H_{\perp}$  относительно длинной оси образцов.



**Рис. 6.** Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi$  для пленочных образцов составов  $Al_{84}Co_8Gd_8$  (a) и  $Al_{92}Co_6Gd_2$  (b).

рис. 5 соответственно для пленок составов  $Al_{84}Co_8Gd_8$  и  $Al_{92}Co_6Gd_2$ . Характер приведенных зависимостей и значения величин  $\Delta R/R_m(H_{||}, H_{\perp})$  различны. Ход кривых  $\Delta R/R_m(H_{||}, H_{\perp})$ , полученных для сплава  $Al_{84}Co_8Gd_8$ , в поле, ориентированном параллельно  $H_{||}$  относительно длинной оси образца, противоположен таковому для

поля  $H_{\perp}$  и не соответствует ходу аналогичных кривых для образцов, проявляющих как ферромагнитное, так и парамагнитное состояние. Однако явно видна зависимость магнетосопротивления от знака и направления магнитного поля, что является характерной чертой для зависимости  $\Delta R/R_m(H_{||}, H_{\perp})$  для большинства ферро-

магнетиков и дает основание предположить о возможном проявлении магнитного упорядочения материала пленки при комнатной температуре.

Напротив, ход зависимостей  $\Delta R/R_m(H_{\parallel}, H_{\perp})$ , приведенных для пленочного образца  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$ , одинаков для процесса прямого и обратного изменения напряженности магнитного поля и аналогичен поведению зависимостей для пленки алюминия. Однако абсолютные значения величин  $\Delta R/R_m(H_{\parallel}, H_{\perp})$  и величина магнито-резистивного отношения  $\Delta R/R_0$ , равная 3%, на порядок выше таковых для пленки алюминия. Кроме того, принимая во внимание структурные данные (рис. 1, *b*, кривая 2), свидетельствующие о присутствии в аморфной матрице материала пленки дисперсных частиц ферромагнитной фазы с  $T_C = 615$  К, можно предположить, что при комнатной температуре и пленка данного состава проявляет ферромагнитные свойства.

Для проверки высказанных предположений получены температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi(T)$ , приведенные на рис. 6 для пленочных образцов  $\text{Al}_{84}\text{Co}_8\text{Gd}_8$  и  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$  соответственно. Резкие отклонения от плавного хода кривой  $\chi(T)$  на рис. 6, *a* можно связать с присущей способу измерения реакцией на скачкообразные изменения магнитных характеристик образца. При температуре выше точки Кюри ( $T_C = 285$  К) зависимость  $\chi(T)$  выходит на минимальное значение  $\chi$  и отвечает парамагнитному состоянию материала пленки.

Для пленочного образца состава  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$  ход кривой  $\chi(T)$  аналогичен кривой, приведенной на рис. 6, *a*, при этом  $T_C = 323$  К.

Таким образом, оба пленочных образца при комнатной температуре находятся в магнитоупорядоченном состоянии, несмотря на своеобразие полевых зависимостей сопротивления.

## Заключение

Методом вакуумного распыления кусочков слитка состава  $\text{Co}_{54}\text{Gd}_{46}$  получены пленки составов  $\text{Co}_{46}\text{Gd}_{44}\text{O}_{10}$ ,  $\text{Co}_{55}\text{Gd}_{45}$ ,  $\text{Al}_{84}\text{Co}_8\text{Gd}_8$ ,  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$  и Al. По данным рентгеноструктурного анализа пленки  $\text{Co}_{46}\text{Gd}_{44}\text{O}_{10}$  и  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$  находятся в смешанном аморфно-нанокристаллическом состоянии, пленка на основе Al — в кристаллическом, остальные — в рентгеноаморфном состоянии.

Полевые зависимости сопротивления  $R(H)$ , полученные при комнатной температуре, свидетельствуют о ферромагнитном состоянии пленочного образца  $\text{Co}_{55}\text{Gd}_{45}$  и парамагнитном поведении алюминия. Особенности, обнаруженные в ходе зависимостей  $R(H)$ , полученных для пленок  $\text{Al}_{84}\text{Co}_8\text{Gd}_8$  и  $\text{Al}_{92}\text{Co}_6\text{Gd}_2$ , авторы связывают с проявлением ферромагнитного упорядочения.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] *Вонсовский С.В.* Магнетизм. Магнитные свойства диа-, пара-, ферро-, антиферро- и ферримагнетиков М.: Наука, 1971. 1032 с.
- [2] *Свалов А.В., Кондаурова Г.С., Беспалько О.И.* // ФММ. 1995. Т. 80. Вып.1. С. 65–69.
- [3] *Попов В.В., Рассолов С.Г., Ткач В.И., Маслов В.В., Максимов В.В., Носенко В.К., Петренко А.Г.* // ФТВД. 2009. Т. 19. № 2. С. 76–81.
- [4] *Уманский Я.С., Скаков Ю.А., Иванов А.Н., Расторгуев Л.Р.* Кристаллография, рентгенография и электронная микроскопия. М.: Металлургия, 1982. 682 с.
- [5] *Тарасенко Т.Н., Кравченко З.Ф., Бурховецкий В.В., Мазур А.С., Каменев В.И., Линник А.И.* // РАН. Сер. физ. 2017. Т. 81. N 3. С. 344–348.
- [6] *Mesin N.I., Nepochatykh Yu.I., Starostyuk N.Yu., Yampolskii S.V.* // J. MMM. 2019. Vol. 476. P. 447–452.
- [7] *Ashby M.F.* Materials selection in mechanical design. Elsevier Ltd., Chapter 11. 2011. P. 299–339.
- [8] *Медведь А.В., Крышталь Р.Г., Крикунов А.И.* // ЖТФ. 2006. Т. 60. Вып. 11. С. 72–78.
- [9] *Hansen P., Clausen C., Much G., Rosenkranz M., Witter K.* // J. Appl. Phys. 1989. Vol. 66. N 2. P. 756–767.
- [10] *Kwiecien M., Chelkoska G., Rabijasz K.* // J. Alloys Comp. 2006. Vol. 423. N 1–2. P. 55–58.
- [11] *Mc Guire T.R., Potter R.I.* // IEEE Trans. MAG. 1975. Vol. 11. N 4. P. 1018–1038.