

05,13

Управление микромагнитной структурой многофазных тонких пленок CoPt путем варьирования толщин слоев

© М.В. Дорохин¹, П.Б. Дёмина¹, А.В. Здоровейщев¹, Д.А. Здоровейщев¹, А.Г. Темиряев^{1,2},
М.П. Темиряева², И.Л. Калентьева¹, В.Н. Трушин¹

¹ Научно-исследовательский физико-технический институт Национального исследовательского Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского, Нижний Новгород, Россия

² Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Фрязино, Россия

E-mail: dorokhin@nifti.unn.ru, demina@phys.unn.ru

Поступила в Редакцию 17 апреля 2023 г.

В окончательной редакции 17 апреля 2023 г.

Принята к публикации 11 мая 2023 г.

Исследованы магнитные свойства и микромагнитная структура многослойных магнитных пленок вида [Co/Pt]₁₀, сформированных независимым варьированием толщин слоев Co и Pt. Показана возможность управления в широких пределах параметрами намагничивания пленки. Получено, что микромагнитная структура пленок существенно модифицируется при изменении толщин слоев, при этом изменения коррелируют с видом магнитополевой зависимости сопротивления Холла. В частности, для ряда структур методом магнитно-силовой микроскопии была выявлена система магнитных скирмионов, плотность которых зависит от условий роста и коррелирует с величиной остаточной намагниченности. Изменение толщин слоев Co и Pt позволяет управлять плотностью скирмионов в пределах от 0.2 до 10.5 mkm⁻².

Ключевые слова: микромагнитная структура, скирмионы, пленки CoPt, электронно-лучевое испарение.

DOI: 10.21883/FTT.2023.06.55655.15H

1. Введение

Многослойные пленки вида ферромагнетик/тяжелый металл с несимметричной структурой чередования слоев являются предметом активного исследования последних лет [1]. Интерес к подобным материалам обусловлен комплексом уникальных свойств, обеспечивающих формирование особой микромагнитной структуры с наноразмерными магнитными доменами — скирмионами. Скирмионы считаются перспективным кандидатом на роль носителя бита информации: они характеризуются двумя устойчивыми состояниями намагниченности, а их малый размер обеспечивает сверхвысокие плотности записи. Методы управления размерами и плотностью скирмионов заключаются в варьировании структуры и состава магнитной пленки путем изменения технологических ростовых параметров [1]. Из литературных источников, содержащих в том числе расчетные фазовые диаграммы, известно, что комбинация CoPt может формировать фазы Co, CoPt, Co₃Pt, CoPt₃ и Pt. При этом структура таких фаз может существенно отличаться: фаза может обладать различной сингонией или вообще быть полиморфной. Микромагнитная структура, при этом, сильно зависит от конкретного фазового состава и может существенно изменяться даже при небольшой ее модуляции [2–4].

Настоящая работа посвящена изучению методов управления микромагнитной структурой в многослойных пленках Co/Pt путем прецизионного изменения

толщины слоев Co и Pt. Особенностью исследованных структур ферромагнетик/тяжелый металл является метод их получения (электронно-лучевое испарение), обеспечивающий высокую гибкость в управлении параметрами технологического процесса и, соответственно, структурой формируемых пленок. Изменение условий роста позволяет изменять не только фазовый состав, но и однородность гетерограниц между отдельными слоями. Пленки с размытыми гетерограницами относятся к новым объектам, в которых физика магнитных взаимодействий еще не изучена.

2. Методика

В работе исследовались многослойные пленки [Co/Pt]₁₀, сформированные путем поочередного напыления слоев ферромагнетик/тяжелый металл на подложку GaAs. Структуры были получены методом электронно-лучевого испарения в вакууме при температуре 200°C. Состав пленки задавался соотношением времен распыления Co и Pt слоев. При таких условиях роста формируется многослойная пленка с неполным перемешиванием между слоями. Рассмотрены две серии образцов: с варьированием толщины Co в каждом бислое от 1 до 6 Å при неизменной толщине Pt (5 Å); с варьированием толщины Pt в каждом бислое от 3 до 7 Å при неизменной толщине Co (4 Å). Каждая пленка была сформирована

Технологические параметры пленок CoPt

Номер образца	Толщина Co в одном слое, Å	Толщина Pt в одном слое, Å	Толщина одного слоя пленки CoPt, Å	Маркировка образцов
1	1	5	6	1/5
2	2	5	7	2/5
3	3	5	8	3/5
4	4	5	9	4/5
5	5	5	10	5/5
6	6	5	11	6/5
7	4	3	7	4/3
8	4	4	8	4/4
9	4	6	10	4/6
10	4	7	11	4/7

из 10 бислоев. В таблице приведены технологические параметры исследуемых образцов.

Исследования микромагнитной структуры сформированных CoPt пленок осуществлялись методом магнитно-силовой микроскопии (МСМ) при помощи микроскопа Smart SPM (AIST-NT) по „стандартной“ методике с использованием зонда с низким магнитным моментом [5]. Изучение изменений доменной структуры, осуществлялось при МСМ-сканировании зондом PPP-LM-MFMR (Nanosensors), магнитный момент которого достаточен для формирования скирмионов методом, описанным в работах [6,7]. Для изменения магнитной доменной структуры выполнялось „подмагничивание“ образцов, которое заключалось в подведении МСМ-зонда на минимальное расстояние к поверхности и перемещении зонда по определенной площади (в режиме аналогичном МСМ-сканированию). В результате воздействия на поверхность магнитного поля зонда осуществлялось перемещение отдельной области пленок с размерами от 3×3 до 5×5 мкм.

Измерения аномального эффекта Холла выступали в качестве оценки намагниченности пленок, так как сопротивление Холла $R_H(H)$ является нелинейной функцией внешнего магнитного поля и имеет как компоненту пропорциональную напряженности магнитного поля, так и компоненту пропорциональную намагниченности структуры $R_s(M)$ [8,9].

Исследования фазового состава и кристаллической структуры сформированных пленок проводили методом рентгеновской дифракции при помощи рентгеновского дифрактометра Bruker D8 Discover. Кристаллическая структура подложек GaAs, на которых формировалась многослойная металлическая пленка, соответствует монокристаллу и в данной работе не рассматривается.

3. Результаты и обсуждение

Согласно ранее полученным результатам, сформированные пленки представляют собой разупорядоченную поликристаллическую систему с размерами кристаллитов менее 10 nm [10]. На рис. 1, *a* представлены типичные спектры рентгеновской дифракции структур (1, 2, 5, 6 и 10). Для образцов 1, 2, 5 и 10 положение основного максимума не соответствует линиям для Co и Pt и соединений Co-Pt. Аналитическая программа интерпретирует указанные пики как твердый раствор CoPt(*x*) с составом, зависящим от соотношения толщин. Отметим, что подобный спектр характерен для большинства исследованных структур, отличия заключаются лишь в точном положении основного дифракционного максимума (ДМ). На рис. 1, *b* представлена зависимость положения основного ДМ от соотношения толщины Co к общей толщине слоев. Видно монотонное увеличение углового положения ДМ с повышением относительной толщины Pt. Отметим также, что для структур с малой относительной толщиной кобальта положение пиков ДМ смещено в сторону Co (рис. 1, *b*), что свидетельствует о неполном растворении платины; это также подтверждается наличием пиков малой интенсивности, соответствующих ДМ от нерастворенного слоя Pt. Пример такого спектра для образца 2 представлен на рис. 1, *a* (кривая 2/5). Исключение из указанных закономерностей составляет спектр образца со сравнительно толстым слоем Co (6 Å), где идентифицируются широкие линии с максимумами при углах, соответствующих положениям ДМ от атомарных кобальта и платины (рис. 1, *a*, кривая 6/5).

Предыдущие исследования [10], показали, что пленка CoPt, состоящая из 10 периодов Co и Pt с толщинами

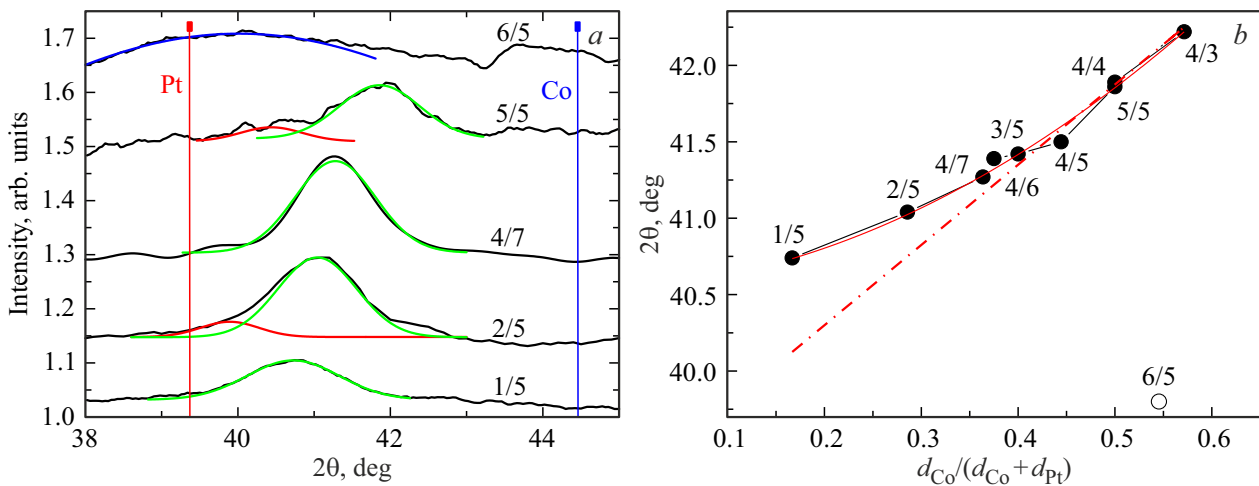


Рис. 1. *a* — Спектры рентгеновской дифракции, измеренные в области, соответствующей пику от сформированной пленки. Цифры соответствуют маркировке образцов. *b* — Зависимость положения пика рентгеновской дифракции от соотношения толщин Co и Pt, штрихпунктирной линией на графике показана линейная функция твердого раствора ($0 = \text{Pt}$, $1 = \text{Co}$).

3 и 5 Å, соответственно, является неоднородной и ее состав модулируется с периодом, близким к значению толщин слоев Co и Pt. При варьировании относительной толщины слоев степень перемешивания Co и Pt, очевидно, зависит от конкретных значений d_{Co} и d_{Pt} . В структурах с малой толщиной Co, по-видимому, только часть платины на границе Co/Pt участвует в процессах диффузии и растворения кобальта, поэтому пленка, вероятно, представляет собой слои твердого раствора, разделенные между собой слоями платины. При повышении толщины Co обеспечивается ситуация полного растворения Co и Pt, хотя высокая ширина пиков и ранее полученные результаты свидетельствуют о неоднородности перемешивания и сохранения периодичности состава. При сравнительно большой толщине Co, равной 6 Å, уже не обеспечивается растворение кобальта платиной, что принципиальным образом меняет как структурные, так и магнитные свойства.

Магнитные свойства структур исследовались путем измерения магнитопольных зависимостей сопротивления Холла. Для структур с различной толщиной Co и Pt были зарегистрированы четыре различных формы кривых, представленные на рис. 2. Для структур с малым содержанием Co характерна ярко выраженная перпендикулярная магнитная анизотропия с осью легкого намагничивания, лежащей в направлении роста — перпендикулярно поверхности (рис. 2, *a*). Ширина петли гистерезиса увеличивается с ростом содержания Co. Для структур с толщиной слоя Co от 3 до 4 Å форма петли гистерезиса изменяется, на зависимости появляются дополнительные перегибы, характерные для структур, содержащих две взаимодействующие магнитные фазы (рис. 2, *b*) [11]. Ширина петли гистерезиса (коэрцитивное поле) в этом диапазоне толщин уменьшается с увеличением толщины.

Для структур с номинально одинаковой толщиной Co и Pt (4/4 и 5/5 Å) ось легкого намагничивания смещается по направлению в плоскость слоя, что проявляется в „наклоне“ петли гистерезиса (рис. 2, *c*). Величина остаточного сопротивления для этих структур становится меньше, чем сопротивление при насыщении намагниченности. В случае максимальных толщин кобальта или платины ось легкого намагничивания лежит в плоскости слоя, что проявляется в отсутствии остаточной намагниченности на зависимости $R_H(H)$ и существенном повышении магнитного поля насыщения (рис. 2, *d*).

Отмеченные выше тенденции наиболее наглядно могут быть представлены на зависимостях от относительной толщины Co двух параметров петли гистерезиса: магнитного поля насыщения и отношения остаточного сопротивления (в нулевом магнитном поле) к сопротивлению при насыщении намагниченности (R_0/R_S). Это отношение пропорционально отношению остаточной намагниченности к намагниченности насыщения (M_r/M_s). Указанные зависимости представлены на рис. 3, *a, b* соответственно. Хорошо видно, что с повышением относительной толщины Co имеет место поворот оси легкого намагничивания в плоскость пленок, что проявляется в повышении магнитного поля насыщения и уменьшении остаточного сопротивления Холла до нуля.

Типичные изображения микромагнитной структуры образцов показаны на рис. 4. В центре МСМ-изображения расположена область пленки, перемещенная зондом в режиме, рассмотренном в методической части работы. Размер области составляет от 3×3 до 5×5 мкм², что обсуждалось выше. На периферии изображения наблюдается доменная структура, характерная для ненамагниченной пленки CoPt. Исключение составляет образец 6/5 (рис. 4, *d*), на МСМ-изображении которого не наблюдается магнитного контраста. Это связано с расположением оси легкого намагничивания в плоско-

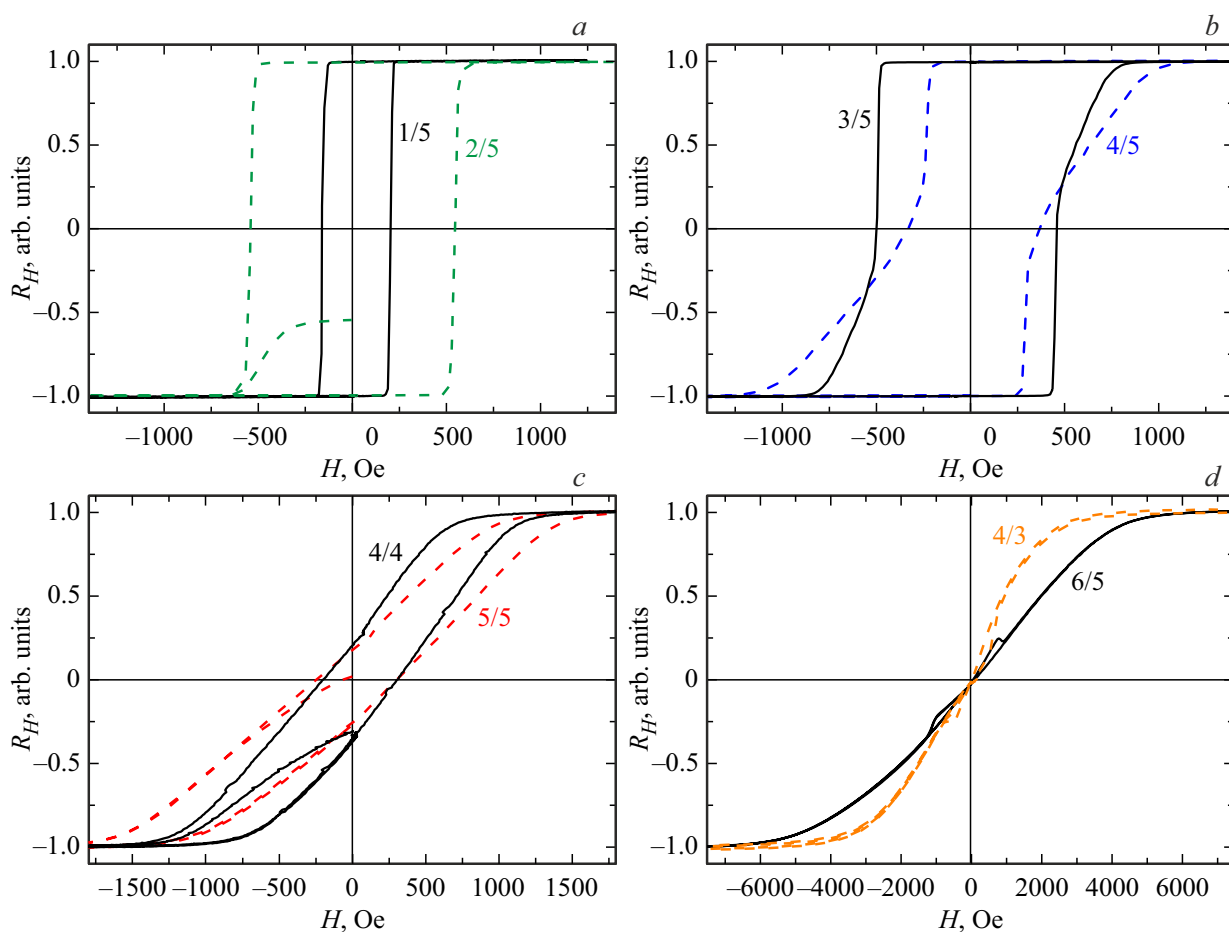


Рис. 2. Магнитопольные зависимости сопротивления Холла. Цифры на графиках соответствуют маркировке образцов.

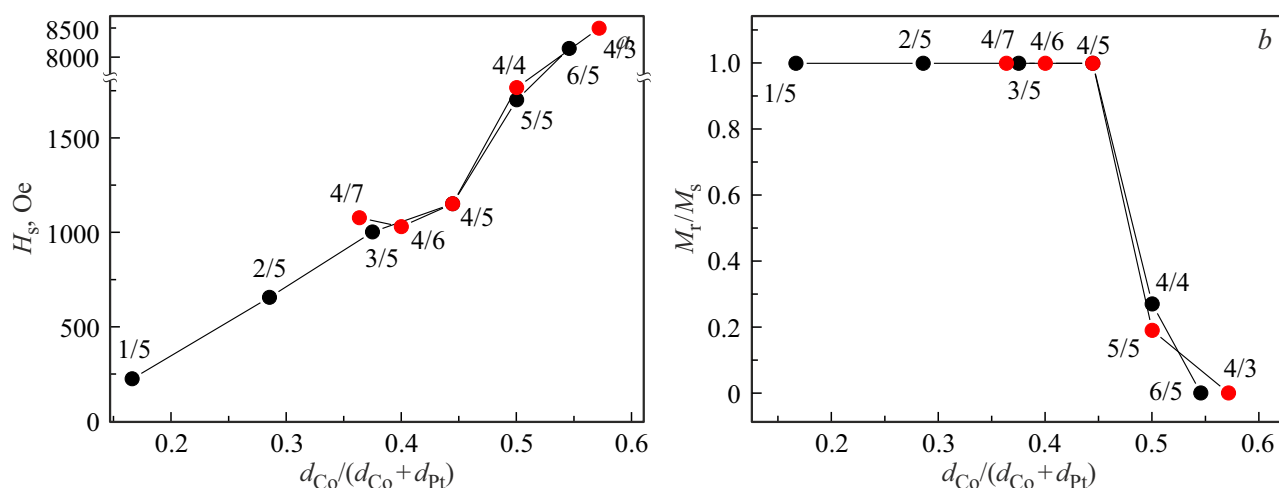


Рис. 3. Зависимость магнитного поля насыщения (а) и отношения остаточного сопротивления к сопротивлению при насыщении намагниченности (б) от относительной толщины Co.

сти пленки для данного образца, в такой конфигурации магнитные домены не могут быть разрешены использованным магнитным зондом. В намагниченных областях МСМ-изображений видны особенности в виде темных контрастных пятен, которые интерпретируются как

скирмионы [10]. Предыдущие исследования аналогичных структур [10], выполненные методом лоренцевской просвечивающей электронной микроскопии (ЛПЭМ), показали, что подобным темным контрастным пятнам на МСМ-изображениях пленок CoPt, можно поставить в

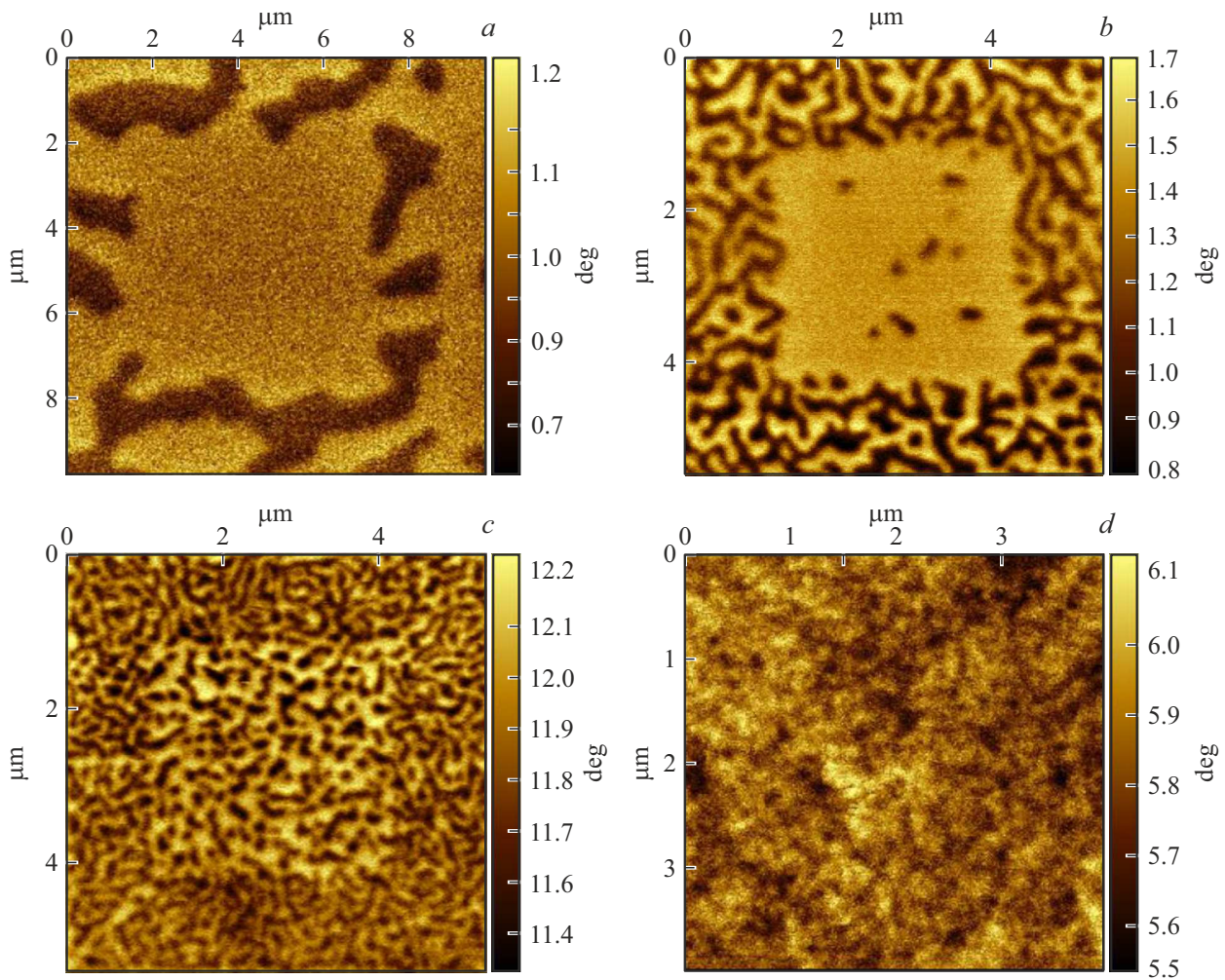


Рис. 4. МСМ-изображения поверхности пленок, предварительно подмагниченных зондом магнито-силового микроскопа. Толщины слоев Co/Pt в каждом бислое в Å: *a* — 1/5, *b* — 3/5, *c* — 4/4, *d* — 6/5.

соответствие характерную контрастную особенность на ЛПЭМ-изображении, которое однозначно интерпретируется как неелевский скирмион. Характерное размытие круглой формы скирмиона в овал, вероятно, обусловлено недостаточной разрешающей способностью зонда, что не позволяет разделить близкорасположенные друг к другу соседние скирмионы.

Размер и концентрация скирмионов (N_{sk}) зависят от толщины слоя Co. Под термином „концентрация скирмионов“ понимается число скирмионов на единицу площади. Отметим, что параметр N_{sk} коррелирует с видом магнитополевой зависимости сопротивления Холла. В структурах с наименьшей относительной толщиной слоя Co, для которых характерны магнитные свойства, показанные на рис. 2, *a*, регистрируется однородный магнитный контраст без особенностей (рис. 4, *a*). При увеличении толщины Co (2/5) изменяется вид магнитополевой зависимости R_H (рис. 2, *b*), при этом регистрируются скирмионы с невысокой плотностью. Плотность скирмионов рассчитывалась путем пересчета

их количества на полученных изображениях по отношению к площади намагниченной области, при этом овальные особенности оценивались как два скирмиона (в предположении, что близкорасположенные скирмионы дают однородный контраст). Подобный расчет носит оценочный характер, а полученная величина N_{sk} отличается высокой погрешностью. Тем не менее из-за сильных различий в количестве скирмионов для разных структур значение N_{sk} представляется хорошим количественным показателем, позволяющим сравнивать МСМ-изображения между собой. Так для структуры 2/5 на изображении зарегистрированы 10 характерных темных контрастных пятен на перемарниченной зондом площади $3.5 \times 3.5 \text{ мкм}^2$, что соответствует ≈ 0.81 скирмиона на 1 мкм^2 (т. е. $N_{sk} = 0.81 \text{ мкм}^{-2}$).

Повышение толщины слоя Co приводит к увеличению N_{sk} . Наибольшая плотность скирмионов зарегистрирована для структур со сравнительно большими значениями толщин 4/4 (рис. 4, *c*) и 4/5 — 128 скирмионов на перемарниченную площадь $3.5 \times 3.5 \text{ мкм}^2$

($N_{sk} = 10.5 \text{ mkm}^{-2}$) и 43 скирмиона на перемангнитненную площадь $3.5 \times 3.5 \text{ mkm}^2$ ($N_{sk} = 3.5 \text{ mkm}^{-2}$), соответственно.

Для структур с составом 4/4 характерно уменьшение остаточной намагнитченности по отношению к намагнитченности насыщения, при этом на МСМ-изображении регистрируется наибольшая наблюдаемая нами плотность скирмионов. Повышение толщины слоев до значения 5/5 приводит к тому, что после воздействия зонда вновь образуется лабиринтная доменная структура без изолированных микромагнитных особенностей, т.е. микромагнитная структура не может быть сформирована с применением описанного в методической части метода намагничивания. Дальнейшее повышение толщины Co приводит к существенной трансформации микромагнитной структуры: за счет разворота оси легкого намагничивания в направлении, лежащее в плоскости пленки, на изображении виден однородный магнитный контраст (рис. 4, *d*).

Перейдем к обсуждению полученных результатов. Исследования магнитно-силовой микроскопии, эффекта Холла и рентгеноструктурный анализ показали возможность существенной модификации магнитных свойств и микромагнитной структуры в многослойных тонких пленках [Co/Pt]. В частности, показана возможность управления плотностью скирмионов в широких пределах. Максимальное количество скирмионов в данных пленках задается составом Co/Pt = 4/4. Для данных пленок характерна магнитополевая зависимость намагнитченности в виде наклонной петли гистерезиса.

Результаты рентгенофазового анализа позволяют предположить, что существенную роль в многослойных магнитных пленках [Co/Pt], формируемых методом электронно-лучевого испарения, играет перемешивание атомов Co и Pt. В силу отсутствия на рентгеновском спектре пиков, соответствующих атомарному кобальту, мы предполагаем, что при толщинах слоя Co до 5 Å включительно именно кобальт растворяется полностью, образуя сложную систему, которая может содержать как твердый раствор CoPt_x, так и отдельные фазы соединения CoPt (например, Co₃Pt). Точный фазовый состав не может быть выявлен в силу сильного разупорядочения пленки и большой ширины пиков рентгеновской дифракции. При больших толщинах Co (6 Å) за время роста платина не диффундирует на всю глубину Co и формируется система атомарных слоев Co и Pt с размытой гетерограницей. Ось легкого намагничивания такой системы, вероятно, лежит в плоскости пленки. Аналогичные магнитные свойства зарегистрированы и для структуры Co/Pt = 4/3. В этом случае толщины платины (3 Å) недостаточно, чтобы растворить весь Co, поэтому формируется твердый раствор CoPt с периодически изменяющимся составом, в такой системе, предположительно, перпендикулярная магнитная анизотропия отсутствует. При повышении толщины Pt до значения 7 Å аналогичного резкого изменения свойств не наблюдалось, кроме того, на ряде рентгеновских

спектров регистрируются пики, относящиеся к атомарной Pt. Это позволяет сделать вывод, что основным фактором, влияющим на микромагнитную структуру, является полное растворение кобальта платиной, сама же платина может частично оставаться нерастворенной. Роль платины при этом сводится к формированию фазового состава раствора CoPt_x, а именно фазовый состав CoPt_x определяет магнитные характеристики многослойной структуры. Влияние прослоек нерастворенной платины на магнитные характеристики в рамках настоящих экспериментов не выявлено.

Влияние фазового состава CoPt_x на микромагнитную структуру подробно исследовалось в работе [12]. В цитированной статье продемонстрировано существенное влияние фазового состава на магнитные свойства и доменную структуру в слоях CoPt_x. Для исследованных структур можно предположить аналогичные механизмы магнитных взаимодействий, при этом следует учитывать высокую неоднородность состава, который включает в том числе прослойки атомарной платины. В частности, для определенных фазовых составов реализуется микромагнитная структура, включающая в себя магнитные скирмионы.

Таким образом, профили распределения элементов, наличие растворенных и нерастворенных слоев Pt, их толщина определяют характер магнитных взаимодействий в пленках и формирующуюся микромагнитную структуру. Практическим результатом, при этом, является установление технологического способа управления микромагнитной структурой в широких пределах. В частности, показано, что задание толщины слоев позволяет варьировать плотность скирмионов в пределах почти двух порядков величины: от 0.22 mkm^{-2} до 10.5 mkm^{-2} .

Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-79-20186).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] L. Wang, C. Liu, N. Mehmood, G. Han, Y. Wang, X. Xu, C. Feng, Z. Hou, Y. Peng, X. Gao, G. Yu. ACS Appl. Mater. Interfaces **11**, 12098 (2019).
- [2] P. Vlaic, E. Burzo. J. Opt. Adv. Mater. **12**, 5, 1114 (2010).
- [3] J.B. Newkirk, R. Smoluchowski, A.H. Geisler, D.L. Martin. J. Appl. Phys. **22**, 290 (1951).
- [4] A.W. Rushforth, P.C. Main, B.L. Gallagher, C.H. Marrows, B.J. Hickey, E.D. Dahlberg, P. Eames. J. Appl. Phys. **89**, 7534 (2001).
- [5] A.V. Zdoroveyshchev, O.V. Vikhrova, P.B. Demina, M.V. Dorokhin, A.V. Kudrin, A.G. Temiryazev, M.P. Temiryazeva. Int. J. Nanosci. **18**, 3–4, 1940019 (2019).

- [6] А.Г. Темиряев, М.П. Темиряева, А.В. Здоровейшев, О.В. Вихрова, М.В. Дорохин, П.Б. Демина, А.В. Кудрин. ФТТ **60**, 11, 2158 (2018).
- [7] А.Г. Темиряев, А.В. Здоровейшев, М.П. Темиряева. Изв. РАН, Сер. физ. **87**, 3, 362 (2023).
- [8] J.C. Woolley, J.H. Phillips, J.A. Clark. J. Less-Com. Met. **6**, 461 (1964).
- [9] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A.H. MacDonald, N.P. Ong. Rev. Mod. Phys. **82**, 1539 (2010).
- [10] M.V. Dorokhin, A.V. Zdoroveyshchev, M.P. Temiryazeva, A.G. Temiryazev, P.B. Demina, O.V. Vikhrova, A.V. Kudrin, I.L. Kalentyeva, M.V. Ved, A.N. Orlova, V.N. Trushin, A.V. Sadovnikov, D.A. Tatarskiy. J. All. Comp. **926**, 166956 (2022).
- [11] S.T. Ruggiero, A. Williams, C.E. Tanner, S. Potashnik, J. Moreland, W.H. Rippard. Appl. Phys. Lett. **82**, 4599 (2003).
- [12] Y. Yang, J.S. Chen, G.M. Chow. J. Appl. Phys. **109**, 07B744 (2011).

Редактор К.В. Емцев