

05,12

Методы модуляции микромагнитных характеристик многослойных тонкопленочных систем [Co/Pt]

© М.В. Дорохин¹, П.Б. Дёмина¹, А.В. Здоровейщев¹, Д.А. Здоровейщев¹, А.В. Кудрин¹,
И.Л. Калентьева¹, В.Н. Трушин¹, М.П. Темирязева^{1,2}, А.Г. Темирязов^{1,2}

¹ Нижегородский государственный университет 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

Поступила в Редакцию 18 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 18 апреля 2024 г.

Принята к публикации 8 мая 2024 г.

Сформированы многослойные магнитные пленки, представляющие собой 10 чередующихся слоев Co и Pt толщиной 3 и 5 Å соответственно ($[(Co(3)Pt(5))_{10}]$). Рассмотрены две технологические модификации многослойной структуры Co/Pt, одна из которых (увеличение в два раза толщины слоев Co и Pt в одном из десяти бислоев) позволяет в небольших пределах корректировать, а другая (увеличение толщины слоя Co в 3.5 раза в одном из 10 бислоев) — существенно изменять микромагнитные параметры: плотность скирмионов в намагниченной пленке в нулевом магнитном поле. Полученный эффект связывается с модуляциями степени перемешивания между слоями Co и Pt, которые в первом случае приводят к некоторому изменению состава твердого раствора Co_xPt_{1-x} в центре многослойной структуры, а во втором — к формированию в центре структуры неперемешанного слоя Co; границы между этим слоем и твердым раствором Co_xPt_{1-x} обеспечивают значительное изменение магнитных свойств.

Ключевые слова: магнитная анизотропия, тонкие пленки, ферромагнетизм.

DOI: 10.61011/FTT.2024.06.58245.12NN

1. Введение

Тонкопленочные многослойные структуры и сплавы на основе систем ферромагнетик/тяжелый металл представляют интерес в силу уникальных магнитных и микромагнитных свойств [1–4]. С точки зрения магнитных свойств такие материалы обладают магнитной анизотропией, тип которой управляется технологическими параметрами получения пленок. Так, в работах [3,4] в многослойных тонкопленочных структурах Co/Pt с толщиной слоев в единицы ангстрем было показано наличие перпендикулярной магнитной анизотропии, обеспечивающей положение оси легкого намагничивания в направлении нормали к поверхности. Изменение толщин слоев ферромагнетика и тяжелого металла (независимое или одновременное), изменение степени перемешивания между слоями обеспечивают существенное изменение констант магнитной анизотропии и соответствующее изменение положения оси легкого намагничивания ферромагнитной пленки [5–7]. Таким образом, технологические параметры позволяют в широких пределах управлять магнитными свойствами рассматриваемых пленок. С точки зрения микромагнитной структуры для систем ферромагнетик/тяжелый металл (в частности, Co/Pt) была показана возможность формирования изолированных магнитных доменов, размеры которых могут составлять сотни или десятки нанометров. Такие домены являются естественным элементом памяти, в котором бит информации соответствует направлению намагниченности [5,8]. Размеры, форма и плотность микромагнитных

элементов зависят от структуры и состава пленок и также могут контролируемо изменяться при варьировании технологических параметров их роста [5–8].

В настоящей работе рассмотрены новые способы модификации технологических режимов, обеспечивающие как плавную настройку, так и существенную перестройку магнитных свойств и микромагнитной структуры тонких пленок Co/Pt, сформированных методом электронно-лучевого испарения в режиме поочередного распыления Co и Pt мишеней электронным пучком. Ранее структурные исследования показали, что магнитные и микромагнитные свойства определяются степенью диффузионного размытия гетерограниц между слоями многослойной пленки и составом твердого раствора Co_xPt_{1-x} , который формируется в системе по итогу диффузионного перемешивания Co и Pt [9]. В рамках настоящей работы в многослойную структуру с сильным диффузионным размытием слоев были введены локальные модуляции в виде увеличения толщины одного бислоя Co/Pt из десяти, либо увеличения толщины слоя Co в одном из десяти бислоев. Показано, что подобные модуляции дают дополнительные инструменты для управления свойствами ферромагнитных пленок за счет изменения однородности и степени перемешивания.

2. Эксперимент

Тонкопленочные структуры Co/Pt были сформированы на подложках Si/Al_2O_3 методом электронно-лучевого

испарения в высоком вакууме [9,10] при температуре 200°C. Рост осуществлялся путем поочередного нанесения десяти слоев Co и Pt толщиной 3 и 5 Å соответственно. Таким образом, базовым видом структур была многослойная пленка $[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_{10}$. Свойства подобных структур в зависимости от толщин Co и Pt были рассмотрены ранее в [9,10]. В рамках настоящей работы выполнено целенаправленное изменение структуры пленки на микроуровне путем технологической модуляции в процессе напыления при сохранении общей толщины пленки неизменной. Изменение заключалось:

– в удвоении толщины одного бислоя в центре многослойной пленки (и уменьшении общего числа бислоев до 9) — структура А. Таким образом, была получена структура вида $[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_4[\text{Co}(6)/\text{Pt}(10)]_1[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_4$;

– увеличении толщины слоя кобальта в одном из периодов в 3.5 раза (и уменьшении общего числа бислоев до 9) — Структура Б. Получена структура вида $[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_4[\text{Co}(11)/\text{Pt}(5)]_1[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_4$;

– в качестве контрольной использовалась структура В — $[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_{10}$, сформированная в аналогичных условиях и являющаяся аналогом структур, рассмотренных в работе [9]. Данная структура была сформирована для сравнения результатов.

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

Магнитные свойства оценивались по результатам измерения аномального эффекта Холла, выполненным при комнатной температуре. Сопротивление Холла $R_H(H)$ является нелинейной функцией внешнего магнитного поля и имеет как компоненту пропорциональную напряженности магнитного поля (R_0), так и компоненту пропорциональную намагниченности структуры $R_s(M)$ [11,12]. Для исследованных структур величина $R_0 \ll R_s$ в области насыщения намагниченности. Поэтому R_0 принимается равной нулю, а зависимость $R_H(H)$, таким образом, подобна магнитолевой зависимости намагниченности. Сопоставление кривых $R_H(H)$ для разных структур позволяет сделать выводы о модуляции намагниченности при варьировании технологических параметров.

Исследования микромагнитной структуры сформированных Co/Pt пленок осуществлялись методом магнитно-силовой микроскопии (МСМ) при помощи микроскопа Smart SPM (AIST-NT) по „двухпроходной“ методике с использованием зонда с низким магнитным моментом [13]. Изменения доменной структуры изучались при МСМ-сканировании зондом PPP-LM-MFMR (Nanosensors), магнитный момент которого достаточен для формирования скирмионов методом, описанным в [14,15]. Для изменения магнитной доменной структуры выполнялось перемагничивание образцов, которое

заключалось в подведении МСМ-зонда на минимальное расстояние к поверхности и его перемещение по определенной площади (в режиме, аналогичном МСМ-сканированию). В результате воздействия на поверхность магнитного поля зонда осуществлялось перемагничивание отдельной области пленок с размерами от 3×3 до $5 \times 5 \mu\text{m}^2$.

3. Результаты и обсуждение

В работах [9,10] была выполнена серия структурных исследований образцов, аналогичных сформированным в настоящей работе. Результаты показали, что в пленках вида $[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_{10}$ отдельные слои Co и Pt сильно перемешаны между собой и представляют собой твердый раствор $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ с периодически изменяющимся переменным составом x [9,10]. Как и в работах [9,10], полученные результаты исследования структур подтверждают перемешивание слоев Co и Pt и образование твердого раствора $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ переменного состава x . На рис. 1, *a* и *b* представлены спектры рентгеновской дифракции полученных пленок. Несмотря на то, что в структуру пленок были встроены слои с большим

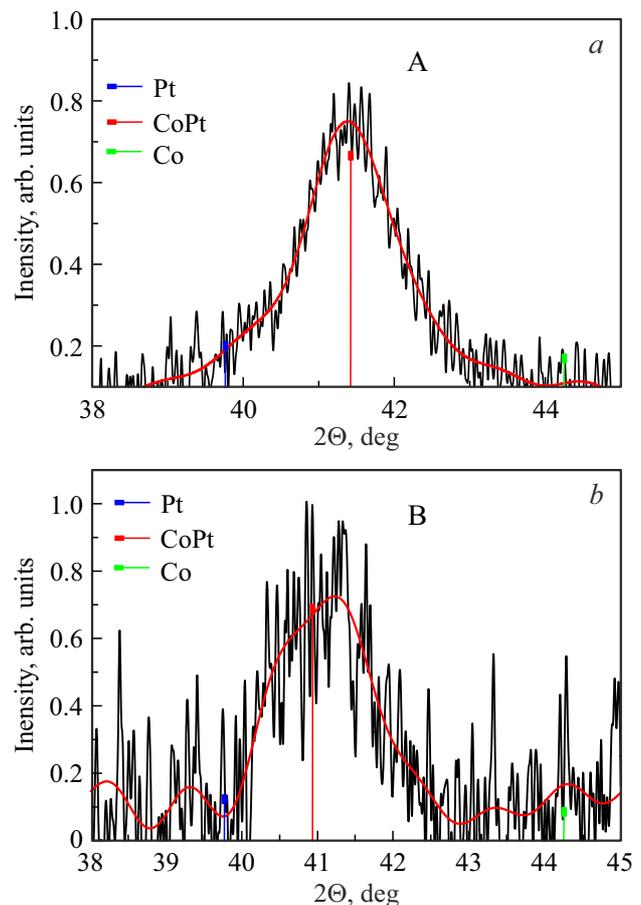


Рис. 1. Спектры рентгеновской дифракции, измеренные для образцов Co/Pt Структура А (*a*) и Структура Б (*b*). Показана область спектра, в которой наблюдались пики от пленки Co/Pt.

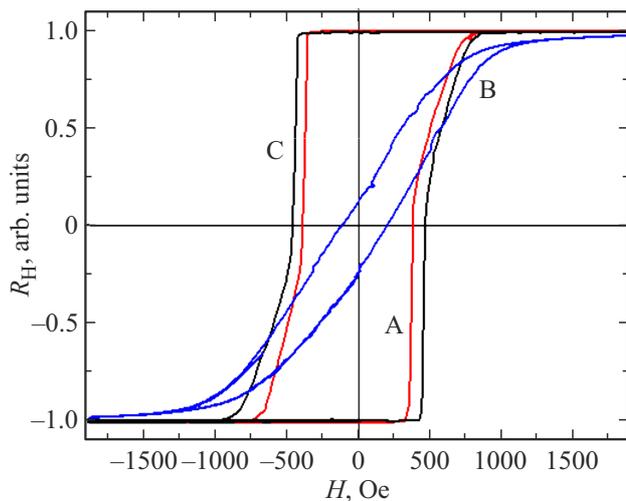


Рис. 2. Магнитопольевые зависимости сопротивления Холла, измеренные для образцов А (кривая А) и Б (кривая В), сформированных с отклонением от схемы роста и контрольного образца В (кривая С).

значением толщины, единственным пиком, зарегистрированным на спектрах (помимо пиков от подложки), является линия, соответствующая твердому раствору $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$. Предположительно, равномерного диффузионного перемешивания в исследованных структурах не происходит, но отдельные слои настолько перемешаны между собой, что на спектрах рентгеновской дифракции регистрируется лишь пик, соответствующий твердому раствору с некоторым усредненным составом. На рис. 2 представлены магнитопольевые зависимости сопротивления Холла, отражающие изменения намагниченности. Для контрольной структуры В зависимость $R_H(H)$ представляет собой замкнутую петлю гистерезиса с особенностью вида „синяя талия“. Подобная особенность в ряде случаев регистрируется в двухфазных магнитных пленках [9]. На рис. 3 представлены МСМ-изображения микромагнитной структуры сформированных образцов. На МСМ-изображении контрольной структуры в намагниченной области наблюдаются темные области размером $\sim 0.1 \mu\text{m}$, которые ранее [9] на основании данных лоренцевской просвечивающей микроскопии интерпретировались как скирмионы (рис. 3, с). Плотность скирмионов, определяемая как количество скирмионов на единицу площади, составляет $\sim 1 \mu\text{m}^{-2}$, что сравнительно невелико. Отметим, что для контрольной структуры как магнитные свойства, так и микромагнитная структура (в т. ч. плотность скирмионов) согласуются с ранее полученными результатами [9]. Технологические модуляции слоев приводят, как будет показано ниже, к существенным изменениям магнитных характеристик и микромагнитной структуры по сравнению с контрольной. Увеличение толщины одного бислоя Co/Pt в два раза в одном из 9 бислоев (структура А) приводит к уменьшению ширины петли гистерезиса с 475 Ое до 355 Ое (рис. 2, кривые В и А, соответственно). Микромагнитная

картина испытывает некоторую трансформацию: плотность скирмионов, рассчитанная по рис. 3, а составляет $\sim 1.2 \mu\text{m}^{-2}$, круглые микромагнитные особенности, выявленные на МСМ-изображении, преобразуются в про-

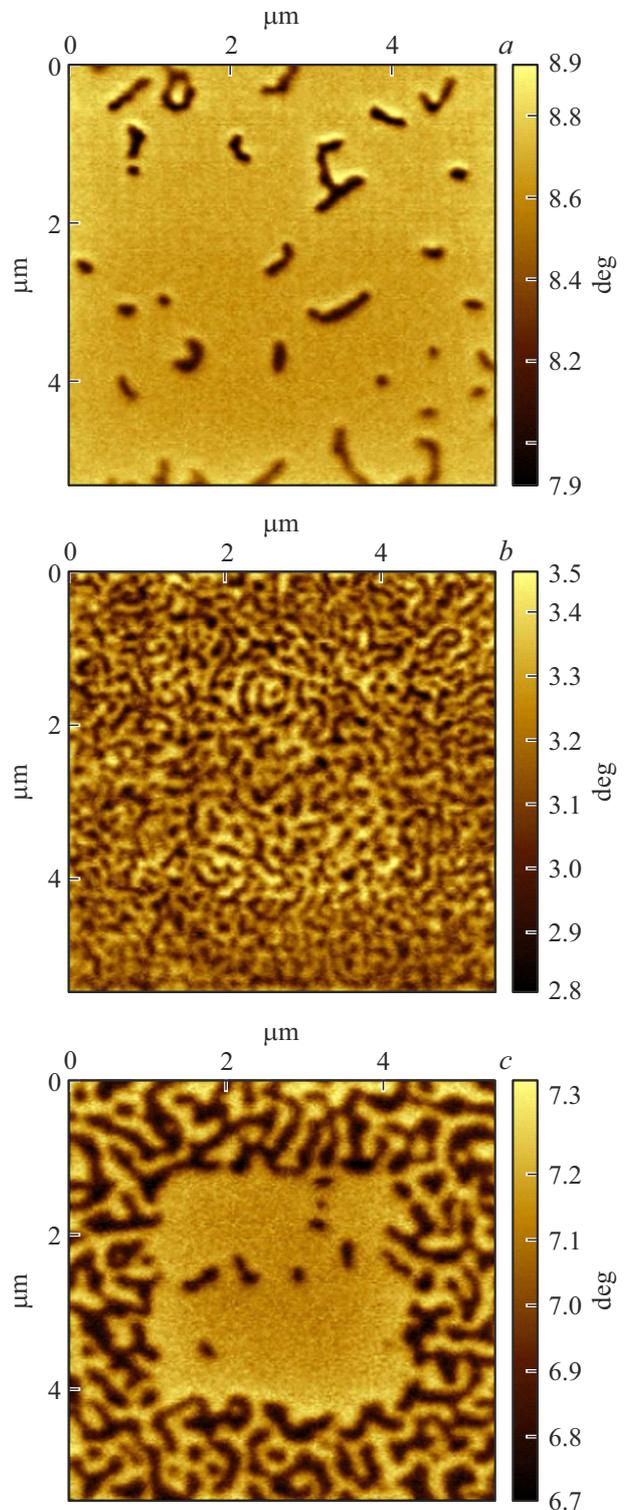


Рис. 3. МСМ-изображения образцов А (а), Б (б) и В (с). Для структуры А площадь скана составила $5 \mu\text{m}^2$, для структур Б и В — $3 \mu\text{m}^2$.

тяженные микромагнитные элементы (рис. 3, а). Предположительно, протяженные элементы соответствуют близкорасположенным друг к другу скирмионам, расстояние между которыми ниже разрешающей способности магнитосилового микроскопа.

Увеличение в 3.5 раза толщины слоя Co до 11 Å в одном из 9 бислоев (структура Б) приводит к значительно более существенной трансформации свойств (рис. 2, кривые В и Б). Магнитная петля гистерезиса претерпевает существенные изменения: уменьшается величина коэрцитивного поля с 475 до ≈ 100 Ое, снижается отношение холловских сопротивлений в нулевом и максимальном магнитном поле R_o/R_s (в структурах А и В оно было равно 1). Так называемый „наклон“ петли гистерезиса обеспечивает изменение микромагнитной структуры: существенно уменьшается период доменной структуры. При более подробном сканировании результата перемешивания видно, что зонд разбивает домены на круглые скирмионы, но плотность скирмионов повышается более, чем на порядок по сравнению с исходной структурой. Часть близко расположенных друг к другу скирмионов разрешается как удлиненный микромагнитный элемент (рис. 3, б).

Перейдем к обсуждению полученных результатов. В рамках предыдущих работ [9,10] была получена зависимость магнитных свойств и микромагнитной структуры слоев $[\text{Co}(x)/\text{Pt}(y)]_{10}$ от толщины Co и Pt в многослойной структуре. Было получено, что, в отличие от большинства известных работ, структуры в настоящем исследовании представляют собой сильно перемешанные пленки $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ с переменным содержанием Co и Pt. О сильном перемешивании слоев Co и Pt свидетельствуют рентгеноструктурные измерения образцов, а также ПЭМ-изображения поперечного среза, рассмотренные в работе [9]. Сопоставление данных ПЭМ и рентгеновской дифракции позволяют заключить: что вместо слоев Co в многослойной структуре формируются слои твердого раствора $\text{Co}_z\text{Pt}_{1-z}$ с повышенным содержанием Co, а вместо платины — слои $\text{Co}_y\text{Pt}_{1-y}$ с повышенным содержанием Pt. Состав $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$, выявляющийся на рентгеноструктурных исследованиях (рис. 1), — это усредненное значение состава твердого раствора.

Наличие скирмионов в пленках Co–Pt связывается с взаимодействием Дзялошинского–Мория (ВДМ), приводящее к особому виду магнитного упорядочения [1,6–9]. Считается, что энергия взаимодействия Дзялошинского–Мория включает в себя две составляющие: объемную и поверхностную. В случае исследованных в настоящей работе структур для поверхностной компоненты ВДМ константа взаимодействия зависит от степени размытости гетерограниц $\text{Co}_z\text{Pt}_{1-z}/\text{Co}_y\text{Pt}_{1-y}$, тогда как объемная составляющая ВДМ связана с наличием в системе фазы L_{10} , величина объемной константы обычно увеличивается с увеличением общей толщины пленки [16]. В настоящей работе общая толщина пленки не изменяется, увеличение толщины отдельного слоя в центре идет за счет уменьшения общего числа бислоев.

В соответствии с описанной выше технологией, в структуре А формируется бислоем Co/Pt с удвоенной технологической толщиной. Величина диффузионного размытия границ при этом не изменяется, но несколько уменьшается степень перемешивания Co и Pt в данном конкретном бислое, и уменьшается количество гетерограниц на одну (т.к. формируется 9 бислоев для сохранения общей толщины пленки). Подобная структурная перестройка приводит к незначительному изменению как магнитных свойств, так и микромагнитной структуры намагниченной пленки.

Ранее было показано, что слои Co/Pt в многослойной структуре толщиной вплоть до 6 Å перемешаны между собой [9,10]. Мы предполагаем, что формирование в многослойной структуре слоя Co значительно большей по сравнению с [9,10] толщиной (структура Б) не позволяет достичь полного его перемешивания, в итоге в центре пленки формируется тонкий слой чистого Co с сильно размытой диффузионной гетерограницей. Это привносит в систему две новые границы раздела: $\text{Co}/\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ и $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}/\text{Co}$, которые могут быть несимметричными из-за разного времени роста и нахождения при высокой температуре. Средний состав пленок при этом изменяется незначительно, что не должно существенно сказаться на величине объемной константы ВДМ. В то же время, существенно отличающаяся по структуре граница $\text{Co}/\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$, вероятнее всего, вносит существенное изменение в поверхностные эффекты: как в значение константы магнитной анизотропии, так и в значение константы взаимодействия Дзялошинского–Мория. Это обуславливает существенные изменения вида магнитной петли гистерезиса (рис. 2) и микромагнитной структуры пленки (повышение плотности скирмионов в намагниченной пленке в нулевом магнитном поле) соответственно.

4. Заключение

Таким образом, в работе показаны две технологические модификации многослойной структуры Co/Pt при сохранении ее толщины, одна из которых (увеличение толщины одного бислоя Co/Pt в два раза в одном из 9 бислоев) позволяет в небольших пределах корректировать, а другая (увеличение в 3.5 раза толщины слоя Co до 11 Å в одном из 9 бислоев) — существенно изменять микромагнитные параметры: плотность скирмионов в намагниченной пленке в нулевом магнитном поле, величину коэрцитивного поля. Полученный эффект связывается с модуляциями степени перемешивания между слоями Co и Pt, которые в первом случае приводят к некоторому изменению состава твердого раствора $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ в центре многослойной структуры, а во втором — к формированию в центре структуры слоя перемешанного Co; границы между этим слоем и твердым раствором $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ обеспечивают значительное изменение магнитных свойств.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Российского научно-го 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] A.W. Rushforth, P.C. Main, B.L. Gallagher, C.H. Marrows, B.J. Hickey, E.D. Dahlberg, P. Eames. *J. Appl. Phys.* **89**, 7435 (2001).
- [3] Н. Саланский, М. Ерухимов. *Физические свойства и применение магнитных пленок*. Наука, Новосибирск (1975).
- [4] H. Sato, T. Shimatsu, Y. Okazaki, H. Muraoka, H. Aoi, S. Okamoto, O. Kitakami. *J. Appl. Phys.* **103**, 07E114 (2008).
- [5] P. Vlais, E. Burzo. *J. Opt. Adv. Mater.* **12**, 5, 1114 (2010).
- [6] F. Tejo, D. Toneto, S. Oyarzún, J. Hermosilla, C.S. Danna, J.L. Palma, R.B. da Silva, L.S. Dorneles, J.C. Denardin. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 47, 53454 (2020).
- [7] H. Yang, A. Thiaville, S. Rohart, A. Fert, M. Chshiev. *Phys. Rev. Lett.* **115**, 267210 (2015).
- [8] G. Yu, P. Upadhyaya, Q. Shao, H. Wu, G. Yin, X. Li, C. He, W. Jiang, X. Han, P.K. Amiri, K.L. Wang. *Nano Lett.* **17**, 261 (2017).
- [9] 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. Alloys Comp.* **926**, 166956 (2022).
- [10] М.В. Дорохин, П.Б. Демина, А.В. Здоровейщев, Д.А. Здоровейщев, А.Г. Темиряев, М.П. Темиряева, И.Л. Калентьева, В.Н. Трушин. *ФТТ* **65**, 6, 989 (2023).
- [11] J.C. Woolley, J.H. Phillips, J.A. Clark. *J. Less-Com. Met.* **6**, 461 (1964).
- [12] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A.H. MacDonald, N.P. Ong. *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1539 (2010).
- [13] 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).
- [14] А.Г. Темиряев, М.П. Темиряева, А.В. Здоровейщев, О.В. Вихрова, М.В. Дорохин, П.Б. Демина, А.В. Кудрин. *ФТТ* **60**, 11, 2158 (2018).
- [15] А.Г. Темиряев, А.В. Здоровейщев, М.П. Темиряева. *Изв. РАН. Сер. физ.* **87**, 3, 362 (2023).
- [16] B. Zimmermann, W. Legrand, D. Maccariello, N. Reyren, V. Cros, S. Blügel, A. Fert. *Appl. Phys. Lett.* **113**, 33, 232403 (2018).

Редактор Т.Н. Василевская