

05,08

Влияние толщины платины на магнитные свойства пленок Pt/Co/CoO

© М.А. Кузнецова, А.А. Турпак, А.В. Приходченко, Н.Н. Черноусов, А.Г. Козлов

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
„Дальневосточный федеральный университет“,
Владивосток, Россия

E-mail: kuznetcova.mal@dvfu.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г.

В окончательной редакции 6 марта 2025 г.

Принята к публикации 5 мая 2025 г.

В работе представлены результаты экспериментального исследования тонких магнитных пленок Pt/Co/CoO/Pt, полученных методом магнетронного распыления с различной толщиной нижнего слоя Pt. Основное внимание уделено изучению влияния толщины подслоя Pt на магнитные свойства и морфологию исследуемых пленок. Магнитные характеристики, такие как коэрцитивная сила и поле анизотропии, исследованы с использованием вибрационного магнитометра. Скорость распространения доменных стенок в зависимости от толщины Pt была исследована при помощи магнитооптического Керр-микроскопа, на основании измерения динамики распространения доменных стенок рассчитана константа взаимодействия Дзялошинского-Мории (ВДМ). Продемонстрировано, что при увеличении подслоя Pt увеличивается средний размер зерна, что ведет за собой увеличение коэрцитивной силы, поля анизотропии и магнитного момента в исследуемых пленках. Результаты работы могут быть полезны для использования системы Pt/Co/CoO/Pt в качестве основы для изготовления новых устройств хранения информации с заданными магнитными характеристиками, для применения в спинтронике.

Ключевые слова: перпендикулярная магнитная анизотропия, окисление кобальта, спинорбитальное взаимодействие, рентгеновская рефлектометрия, доменная структура, взаимодействие Дзялошинского-Мории.

DOI: 10.61011/FTT.2025.07.61188.5NN-25

1. Введение

Пленки Pt/Co/MO_x, где M — окисляемый металл, являются перспективными объектами исследования в области спинтроники [1], благодаря возможности реализации в них широкого спектра граничных явлений, в частности, перпендикулярной магнитной анизотропии, взаимодействия Дзялошинского-Мории (ВДМ) [2–5], обменного смещения [6] и т. д. Такие эффекты имеют практическое значение, например, для реализации трековой магнитной памяти на основе скирмионов [7,8], магнитных сенсоров [9], нейроморфных устройств [10] и пр.

На интерфейсе Pt/Co перпендикулярная магнитная анизотропия индуцируется в результате гибридизации между 5d тяжелым металлом с сильным спинорбитальным взаимодействием и 3d ферромагнетиком [11,12], а также вкладов магнитоупругой интерфейсной и магнитокристаллической анизотропии при условии когерентного сопряжения зерен Pt и Co [13], если эти вклады достаточно велики, чтобы преодолеть энергию размагничивания [14,15]. Пленки Pt/Co/Pt демонстрируют перпендикулярную магнитную анизотропию [16,17], эффект передачи спин-орбитального момента за счет спинового эффекта Холла [18], ВДМ [19–21] и т. д. Но для их реализации необходимо нарушение симметрии интерфейсов Pt/Co и Co/Pt, так, например, в работе [19] верхний и нижний слои Pt получались в условиях различных температур, а в [20] было использовано разное давление аргона во время напыления.

В качестве оксидного материала, для тонких магнитных слоистых структур типа Pt/Co/MO_x обычно используют Gd₂O₃ [2], MgO [3], Al₂O₃ [4], NiO [5], они позволяют индуцировать вышеупомянутые эффекты. Однако влияние оксидного слоя CoO на поликристаллические пленки Co остается малоизученным, хотя его наличие позволяет, изменить магнитную структуру, за счет модификации интерфейса Co/CoO. В работах [22,23] показано влияние дозы окисления на механизм роста окисла, а также показано возрастание перпендикулярной магнитной анизотропии, энергии ВДМ в тонких эпитаксиальных пленках Pd/Co. Кроме того, CoO может использоваться в качестве антиферромагнитного слоя для исследования обменного смещения в условиях низких температур [6].

В нашей работе проводится исследование влияния подслоя тяжелого металла (платины) на структурные и магнитные характеристики ультратонких поликристаллических пленок кобальта, в которых симметрия верхнего и нижнего интерфейсов нарушалась путем частичного контролируемого окисления магнитного слоя.

2. Экспериментальная часть

Поликристаллические магнитные пленки Pt/Co/CoO/Pt и Pt/Co/Pt были изготовлены методом магнетронного распыления в высоковакуумном комплексе Omicron при комнатной температуре. Базовое давление

основной камеры составляло $P = 1 \cdot 10^{-8}$ Торр, давление во время напыления $P = 1 \cdot 10^{-3}$ Торр; в качестве подложек использовался термически окисленный Si(100). В процессе осаждения подложка вращалась со скоростью 40 rpm для исключения анизотропии роста. Толщины подслоя Pt варьировались в диапазоне от 3 до 15 nm, а толщина ферромагнитного слоя Co составляла 1 nm. Толщины слоев подбирались таким образом, чтобы индуцировать перпендикулярную магнитную анизотропию, а также обеспечить возможность частичного окисления ферромагнитного слоя. Окисление Co проводилось в отдельной камере, оснащенной газовым натекателем и вакуумным манометром, соединенной с камерой для напыления. Время экспозиции в сухом кислороде составляло 2 минуты при постоянном давлении $P = 1 \cdot 10^{-3}$ Торр. Все образцы покрывались защитным слоем Pt (5 nm) для предотвращения дальнейшего нежелательного окисления пленки.

Анализ кристаллической структуры пленок проводился с использованием методов рентгеновской дифракции (XRD). Структура и параметры интерфейсов исследовались методом рентгеновской рефлектометрии (XRR). Измерения рентгеновских спектров проводились на дифрактометре Колибри (Буревестник, Россия), работающем по схеме Брегга-Брентано, где в качестве анода используется ^{29}Cu с потенциалом возбуждения $U_{\text{возб}} = 8.86$ kV, тип излучения $\alpha_1, \alpha_2, \beta$ длина волны $\lambda_{\text{Керр}} = 0.154$ nm.

Морфология поверхности исследовалась при помощи сканирующего туннельного микроскопа (СТМ), установленного в сверхвысоковакуумном комплексе Omicron Nanotechnology, Германия.

Магнитные свойства образцов, такие как коэрцитивная сила, поле анизотропии и магнитный момент, исследованы на основе результатов измерения петель гистерезиса, полученных при помощи вибрационного магнитометра LakeShore 7410, США.

Визуализация доменной структуры проводилась с использованием магнитооптического Керр-микроскопа EvicoMagnetics (Германия), оснащенного электромагнитами, позволяющими прикладывать поле в импульсном или непрерывном режимах как параллельно, так и перпендикулярно плоскости пленок. Для визуализации магнитных доменов использовался полярный эффект Керра. Зарождение магнитных доменов производилось в поле (16 mT) приложенном перпендикулярно плоскости в течение 2 ms. Для образца с толщиной подслоя Pt 10 nm проводилось измерение динамики смещения доменных границ в скрещенных магнитных полях [24]. Такая методика позволяет численно оценить константу ВДМ.

3. Результаты и обсуждение

Частичное окисление ферромагнитного слоя использовалось для нарушения симметрии верхнего и нижнего интерфейсов необходимого для реализации ВДМ.

Интерфейс Pt/Co позволяет индуцировать перпендикулярную магнитную анизотропию за счет реализации кристаллических напряжений в Co и частичной гибридизации электронных уровней. Комбинация тяжелого металла с сильным спин-орбитальным взаимодействием и ферромагнетика позволяет индуцировать интерфейсный ВДМ. Окисление слоя приводит к уменьшению функционального слоя Co за счет внедрения атомов кислорода в поверхность и, тем самым, увеличивает энергию перпендикулярной магнитной анизотропии за счет уменьшения вклада объемной константы анизотропии ($K_v = -\frac{\mu_0 M_s^2}{2} + K_{\text{MCA}}$, где $K_{\text{shape}} = -\frac{\mu_0 M_s^2}{2}$ — константы анизотропии формы, K_{MCA} — константы магнито-кристаллической анизотропии [25–26] по сравнению с вкладом константы поверхностной анизотропии).

Согласно исследованиям, структурно-сплошной слой Pt на подложке SiO_2 образуется при толщине около 4 nm [27]. Частичное окисление слоя Co толщиной 1 nm служит для предотвращения прямого контакта Co и Pt.

Структурные исследования показали, что для всех образцов наблюдаются брэгговские пики, соответствующие Pt(111). Пик интенсивности объемной чистой платины $2\theta = 39.239$ [28]. В нашем случае наблюдается смещение линии спектра по оси углов 2θ и фиксируется в диапазоне от 39.401 до 39.933. Это указывает на наличие в пленке кристаллических напряжений, связанных с деформацией на интерфейсах, также нельзя исключать образование сплава Pt-Co на границе раздела.

Средний размер зерна рассчитан при помощи формулы Шеррера [29]:

$$d = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta}, \quad (1)$$

где d — средний размер кристаллита; K — безразмерный коэффициент формы частиц (постоянная Шеррера) равный 0.94; λ — длина волны рентгеновского излучения (0.154 nm); β — интегральное уширение (в радианах и в единицах 2θ); θ — угол дифракции (брэгговский угол в градусах).

Согласно результатам анализа рентгеновских спектров, формирование различных кристаллических зерен начинается при толщине Pt $t_{\text{Pt}} > 4$ nm (рис. 1, a). Возрастание среднего размера зерна платины характеризуется почти линейной зависимостью вплоть до толщины 10 nm, после чего наклон кривой уменьшается, что может свидетельствовать о завершении процессов коалесценции и дальнейшего разрастания зерен в плоскости пленки. Согласно данным рентгеновской рефлектометрии шероховатость также увеличивается с толщиной слоя Pt, что свидетельствует о развитии островковой структуры пленки (рис. 2, b).

На рис. 1, b приведены зависимости магнитного момента от толщины подслоя. Очевидно при малых толщинах Pt возрастание магнитного момента обусловлено постепенным формированием непрерывного интерфейса Pt/Co и уменьшением площадей, в которых Co граничит с аморфной подложкой SiO_2 . Дальнейшее увеличение

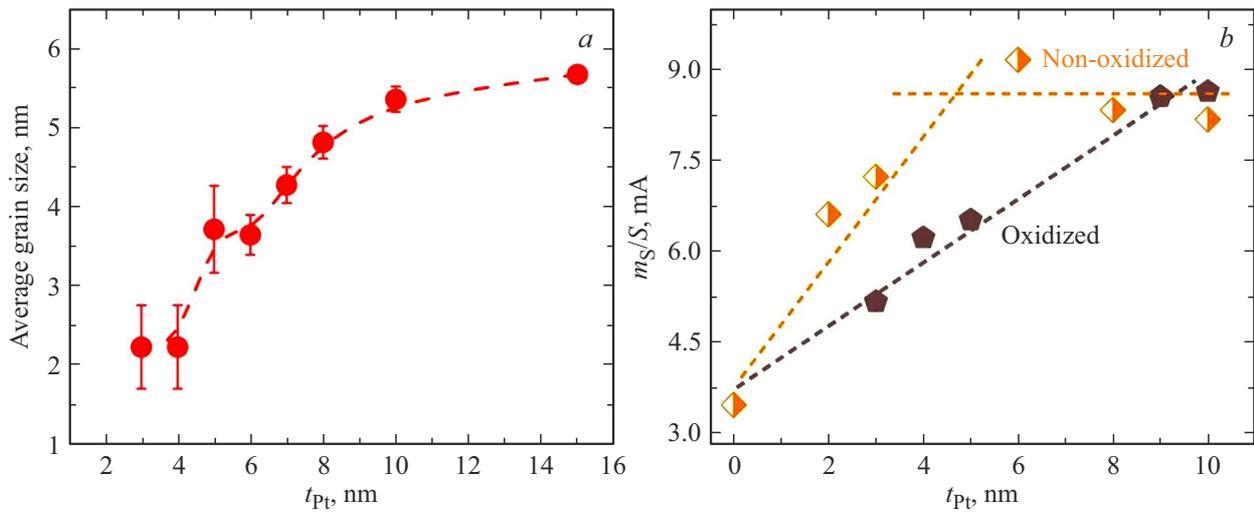


Рис. 1. Толщинные зависимости (a) среднего размера зерна для серии Pt/Co/CoO (b) приведенного магнитного момента Co для систем Pt/Co/Pt и Pt/Co/CoO.

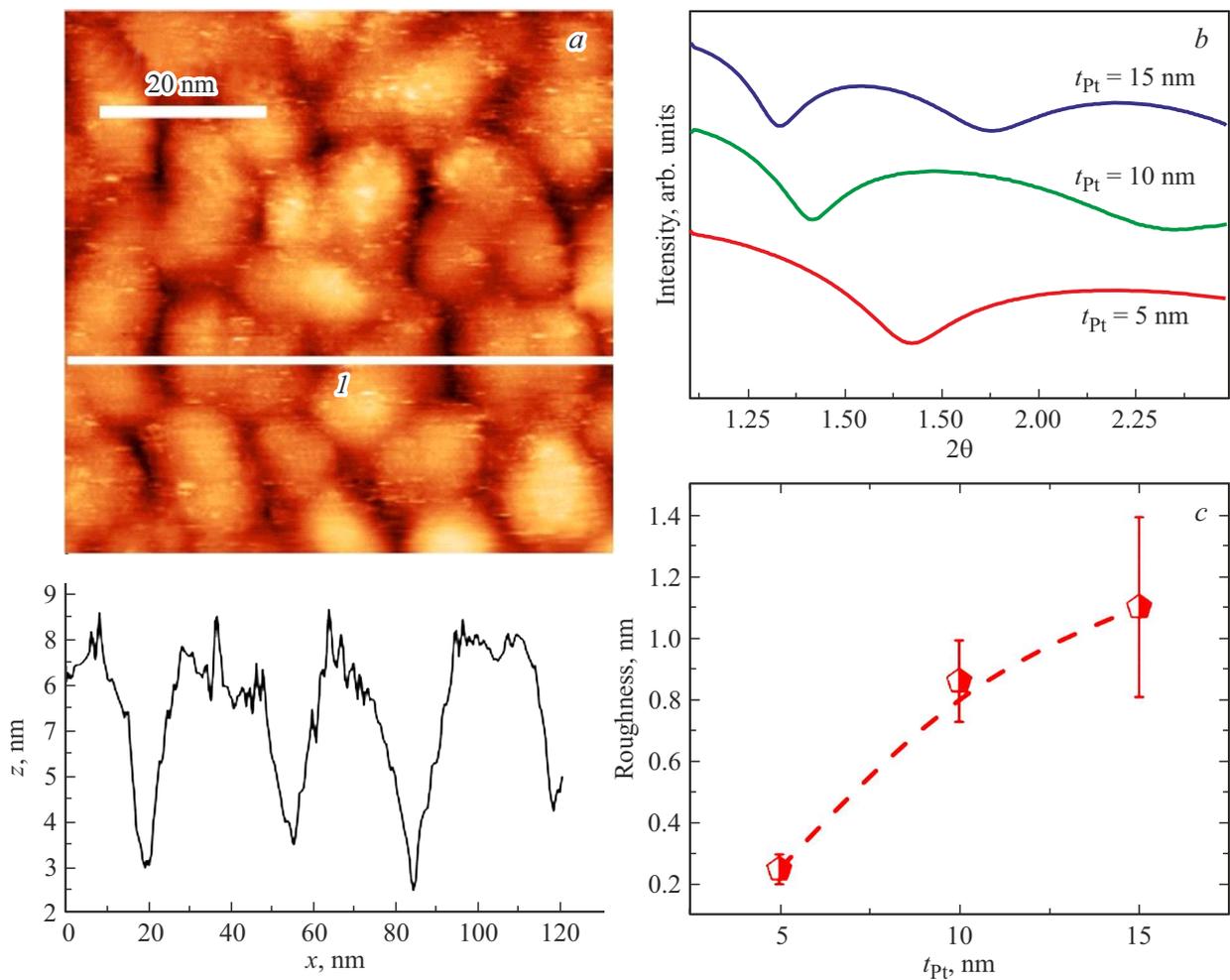


Рис. 2. Морфология поверхности слоя Pt: a — СТМ-изображения SiO₂/Pt(10 nm); b — спектры малоугловой дифракции; c — зависимость шероховатости от толщины Pt, построенная на основании спектров.

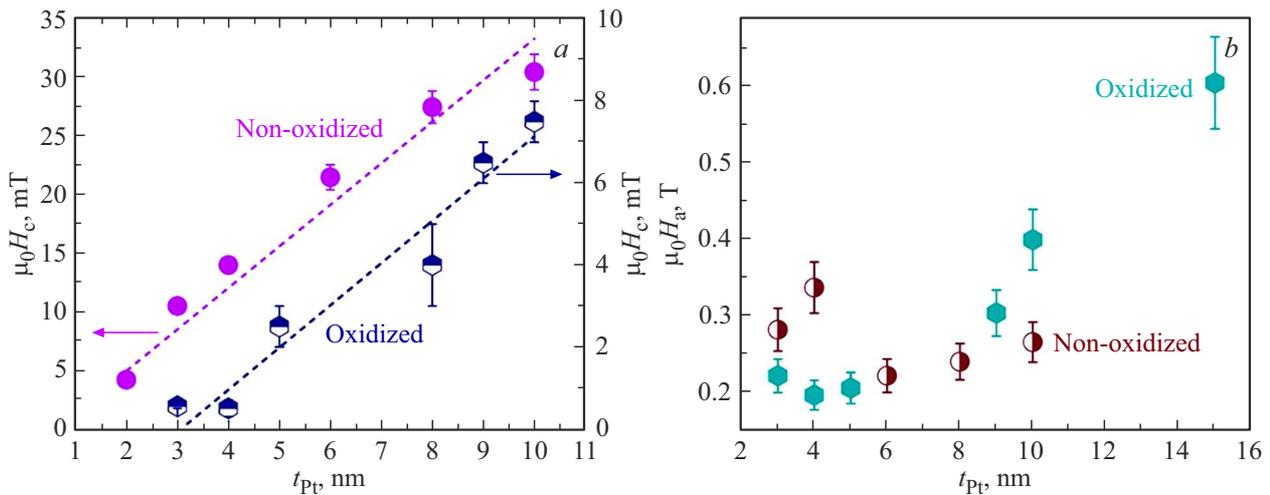


Рис. 3. Магнитные характеристики в зависимости от толщины подслоя Pt для систем Pt/Co/Pt и Pt/Co/CoO/Pt *a* — коэрцитивной силы, *b* — поля анизотропии.

магнитного момента связано с ростом среднего размера зерна, способствующим возрастанию площади когерентного сопряжения Pt/Co. Разницу между наклоном графиков для окисленной и неокисленной серий можно объяснить появлением наведенной намагниченности в граничном слое Pt на интерфейсе с Co за счет эффекта близости [30]. Изменение наклона примерно в два раза связано с наличием двух интерфейсов Pt/Co и Co/Pt в неокисленных образцах.

Согласно результатам СТМ измерений (рис. 2, *a*) слоя Pt (10 nm) рост пленки происходит по островковому механизму. Среднеквадратичная шероховатость слоя составляет $R_{RMS} = 0.2$ nm, средняя шероховатость $R_a = 0.15$ nm. Профиль показал величину островков порядка 0.8–1 nm, что согласуется с показаниями шероховатости, полученных с помощью рентгеновской дифракции.

Все полученные пленки демонстрируют перпендикулярную магнитную анизотропию, энергия которой растет с увеличением толщины Pt. Зависимость поля анизотропии от толщины Pt представлена на рис. 3, *b* для Pt/Co/CoO/Pt и Pt/Co/Pt.

Коэрцитивная сила на рис. 3, *a* линейно возрастает как для окисированных, так и для не окисированных образцов, причем зависимость более резкая для пленок Pt/Co/Pt. Окисленные пленки Pt/Co/CoO/Pt демонстрируют существенно меньшие величины H_c , и более плавное ее изменение, что можно объяснить диффузией атомов кислорода в объем пленки. Влияние нижнего интерфейса Pt/Co на коэрцитивную силу можно считать одинаковым для обеих серий, поэтому ответственным за изменение наклона толщинных зависимостей можно считать только верхний интерфейс.

На изображениях доменной структуры, полученных методом Керр-микроскопии, в поле 16 mT, приложенном перпендикулярно плоскости пленки в течении короткого импульса шириной 20 ms, наблюдается, что при малых

толщинах подслоя Pt средний размер доменов относительно невелик, однако плотность центров зарождения доменов сравнительно большая, рис. 4, *a*. Такое поведение связано с малой энергией анизотропии при малых толщинах подслоя Pt ввиду наличия слабо упорядоченных областей в слое Co. По мере увеличения толщины подслоя (Pt 8 nm), снижается плотность центров зарождения доменов, возрастает средний размер доменов, энергия анизотропии постепенно увеличивается, за счет формирования более резкой межфазной границы и возрастания напряжений на границе Pt/Co, вызванных увеличением размера зерна Pt, и, соответственно, площади контакта материалов на поверхности зерна. Дальнейшее увеличение толщины приводит к резкому уменьшению плотности центров зарождения доменов в связи с усилением энергии магнитной анизотропии. Средняя скорость зарождения домена в зависимости от толщины подслоя платины представлена на рис. 4, *b*.

Из-за большой плотности доменов была измерена динамика движения доменных границ только для образца соответствующему толщине Pt $t_{Pt} = 10$ nm. Вид зависимости скоростей движения доменных границ (левой и правой) от внешнего плоскостного поля на рис. 4, *c* указывает на наличие ВДМ. Минимумы скоростей соответствуют значению внутреннего эффективного поля Дзялошинского-Мории H_{DMI} равного по величине, но противоположного по знаку. На основании H_{DMI} можно рассчитать модуль константы ВДМ $|D_{eff}|$ по формуле:

$$|D_{eff}| = \mu_0 M_S |H_{DMI}| \sqrt{\frac{A_{ex}}{K_{eff}}}, \quad (2)$$

где M_S и A_{ex} — намагниченность насыщения и обменная энергия соответственно ($M_{S(Co)} = 1.1$ A/m, $A_{ex} = 2.8 \cdot 10^{-11}$ J/m), которые берутся из табличных значений, K_{eff} — эффективная константа анизотропии, поле анизотропии берется из экспериментальных значений.

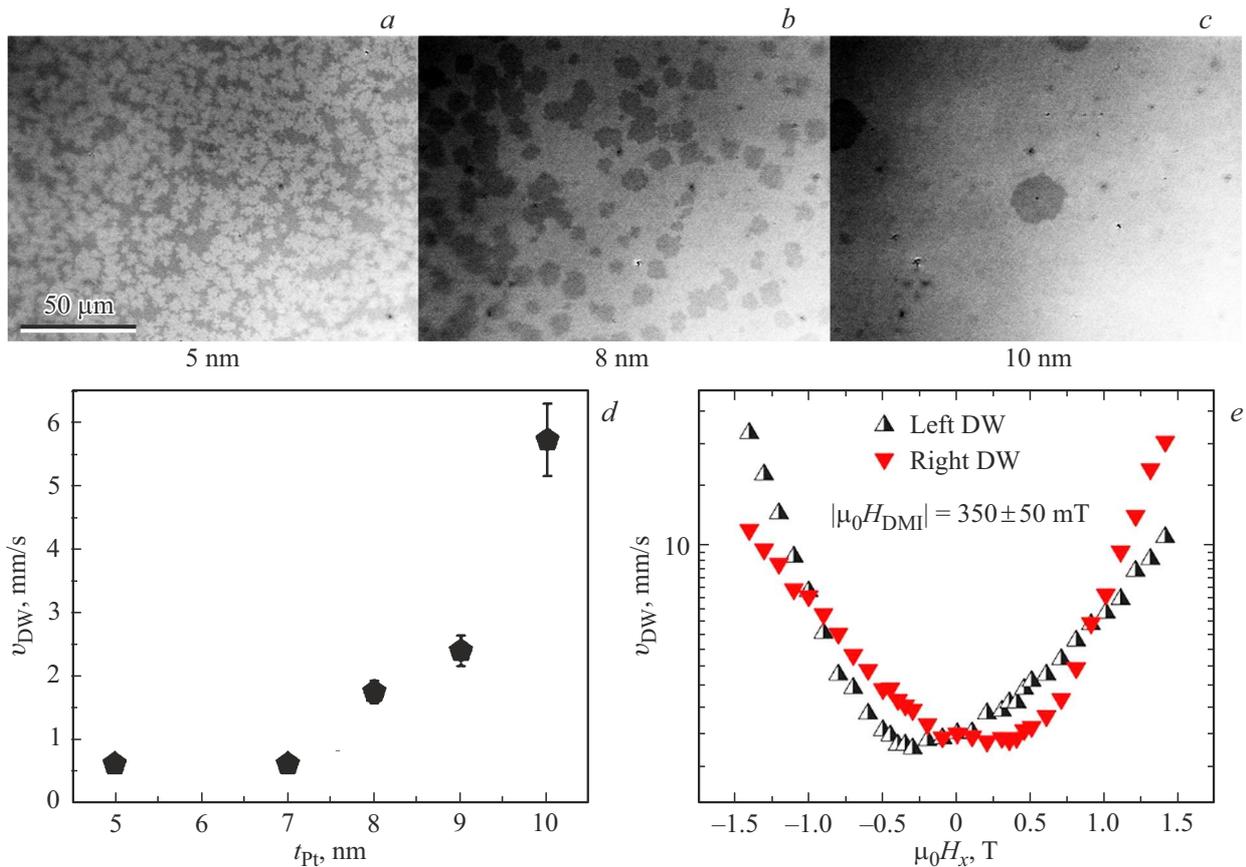


Рис. 4. Результаты исследования доменной структуры: Керр-изображения доменной структуры во время зарождения домена для $t_{Pt} = 5$ nm (a), $t_{Pt} = 8$ nm (b), $t_{Pt} = 10$ nm (c); d — зависимость средней скорости роста домена от толщины Pt для системы Pt/Co/CoO/Pt при подаче кратковременного импульса магнитного поля, направленного перпендикулярно плоскости пленки; e — зависимости скоростей движения доменных границ v_{DW} от приложенного в плоскости образца внешнего магнитного поля H_x в результате воздействия импульса перпендикулярно направленного поля H_z .

Константа Дзялошинского-Мории для системы $\text{SiO}_2/\text{Pt}(10 \text{ nm})/\text{Co}/\text{CoO}/\text{Pt}(5 \text{ nm})$ $D_{\text{eff}} = 0.37 \text{ mJ/m}^2$. Это значение близко по величине, измеренной в подобных системах $\text{Pd}(2 \text{ nm})/\text{Co}(0.8 \text{ nm})/\text{CoO}/\text{Pd}(3 \text{ nm})$ [22]. Для сравнения, в структурах, где используется MgO , AlO_x в качестве оксидного металла константа ВДМ значительно выше ($D_{\text{eff}(\text{MgO})} = 3 \text{ mJ/m}^2$, $D_{\text{eff}(\text{AlO}_x)} = 0.87 \text{ mJ/m}^2$) [31], однако они требуют использования источников для напыления MgO , AlO_x что несколько усложняет технологию получения гетероструктур.

4. Заключение

Проведенные исследования показали, что толщина Pt в системе пленок Pt/Co/CoO существенно влияет на их структурные и магнитные свойства. С увеличением размера кристаллита подслоя Pt возрастают значения коэрцитивной силы, магнитного момента, поля анизотропии и скорости зарождения доменов. В такой системе может проявляться ВДМ, причем для системы $\text{SiO}_2/\text{Pt}(10 \text{ nm})/\text{Co}/\text{CoO}/\text{Pt}$ константа ВДМ составляет $D_{\text{eff}} = 0.37 \text{ mJ/m}^2$.

Установленные закономерности могут быть использованы для оптимизации параметров материалов, применяемых в устройствах магнитной записи и спинтроники.

Благодарности

Козлов Алексей Гаврилович благодарит за финансовую поддержку исследования Российский Научный Фонд (проект № 24-72-00162). Кузнецова Мария Алексеевна, Приходченко Алена Витальевна, Турпак Александр Алексеевич, Черноусов Николай Николаевич благодарят государственное задание № FZNS-2023-0012.

Список литературы

- [1] Q.L. Lv, J.W. Cai, H.Y. Pan, B.S. Han. Appl. Phys. Express **3**, 093003 (2010).
- [2] M. Li, Q. Li, S. Zhang, J. Fu, F. Gu, W. Ma, H. Shi, G. Yu. Vacuum **205**, 111410 (2022).
- [3] Z. Chen, C. Pan, N. Wang, M. Qiu, T. Lin, J. Liu, S. Li, P. Han, J. Shi, K. Ando, H. An. J. Magn. Magn. Mater. **507**, 166822 (2020).

- [4] M. Schott, L. Ranno, H. Béa, C. Baraduc, S. Auffret, A. Bernard-Mantel. *J. Magn. Magn. Mater.* **520**, 167122 (2021).
- [5] K.-W. Lin, J.-Y. Guo, S. Kahwaji, S.-C. Chang, H. Ouyang, J. van Lierop, N.N. Phuoc, T. Suzuki. *Phys. Status Solidi A* **204**, 12, 3970 (2007).
- [6] D.I. Anyfantis, C. Ballani, N. Kanistras, A. Barnasas, I. Tsiaoussis, G. Schmidt, E.Th. Papaioannou, P. Pouloupoulos. *Materials* **16**, 4, 1378 (2023).
- [7] S. Parkin, S.-H. Yang. *Nat. Nanotechnol.* **10**, 3, 195 (2015).
- [8] K. Gu, Y. Guan, B.K. Hazra, H. Deniz, A. Migliorini, W. Zhang, S.S.P. Parkin. *Nat. Nanotechnol.* **17**, 10, 1065 (2022).
- [9] J. Lenz, S. Edelstein. *IEEE Sens. J.* **6**, 3, 631 (2006).
- [10] T. Blachowicz, A. Ehrmann. *Molecules* **25**, 11, 2550 (2020).
- [11] H. Yang, A. Thiaville, S. Rohart, A. Fert, M. Chshiev. *Phys. Rev. Lett.* **115**, 26, 267210 (2015).
- [12] A.B. Здравейщева, O.B. Вихроваа, П.Б. Демина, M.B. Дорохина, A.B. Кудрина, A.G. Темиряев, M.П. Темиряева. *ФТТ* **61**, 9, 1628 (2019).
- [13] A.S. Samardak, A.V. Davydenko, A.G. Kolesnikov, A.Yu. Samardak, A.G. Kozlov, Vappaditya Pal, A.V. Ognev, A.V. Sadovnikov, S.A. Nikitov, A.V. Gerasimenko, In Ho Cha, Yong Jin Kim, Gyu Won Kim, Oleg A. Tretiakov, Young Keun Kim. *NPG Asia Mater.* **12**, 1, 51 (2020).
- [14] K. Kyuno, R. Yamamoto, S. Asano. *J. Phys. Soc. Jpn.* **61**, 6, 2099 (1992).
- [15] C. Chappert, P. Bruno. *J. Appl. Phys.* **64**, 10, 5736 (1988).
- [16] M. Kisielewski, A. Maziewski, M. Tekielak, J. Ferré, S. Lemerle, V. Mathet, C. Chappert. *J. Magn. Magn. Mater.* **260**, 1–2, 231 (2003).
- [17] S. Bandiera, R.C. Sousa, B. Rodmacq, B. Dieny. *IEEE Magn. Lett.* **2**, 3000504 (2011).
- [18] S. Chen, D. Li, B. Cui, L. Xi, M. Si, D. Yang, D. Xue. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51**, 9, 095001 (2018).
- [19] A.W.J. Wells, P.M. Shepley, C.H. Marrows, T.A. Moore. *Phys. Rev. B* **95**, 5, 054428 (2017).
- [20] R. Lavrijsen, D.M.F. Hartmann, A. van den Brink, Y. Yin, B. Barcones, R.A. Duine, M.A. Verheijen, H.J.M. Swagten, B. Koopmans. *Phys. Rev. B* **91**, 10, 104414 (2015).
- [21] H.C. Гусев, Ю.А. Дудин, A.B. Садовников, M.B. Сапожников. *ФТТ* **63**, 9, 1263 (2021).
- [22] A.G. Kozlov, A.V. Davydenko, L.L. Afremov, I.G. Iliushin, V.N. Kharitonov, P.S. Mushtuk, E.V. Tarasov, A.A. Turpak, A.F. Shishelov, N.N. Chernousov, M.E. Letushev, A.V. Sadovnikov, A.B. Khutieva, A.V. Ognev, A.S. Samardak. *ACS Appl. Electron. Mater.* **6**, 4928 (2024).
- [23] A.G. Kozlov, A.F. Shishelov, A.A. Turpak, M.A. Kuznetsova, A.V. Prikhodchenko, A.V. Davydenko, E.V. Tarasov, N.N. Chernousov, A.V. Ognev, A.S. Samardak. *J. Magn.* **29**, 1, 143 (2024).
- [24] S.G. Je, D.H. Kim, S.C. Yoo, B.C. Min, K.J. Lee, S.B. Choe. *Phys. Rev. B* **88**, 21, 214401 (2013).
- [25] A.V. Davydenko, A.G. Kozlov, A.V. Ognev, M.E. Stebliy, A.S. Samardak, K.S. Ermakov, A.G. Kolesnikov, L.A. Chebotkevich. *Phys. Rev. B* **95**, 6, 064430 (2017).
- [26] Л.А. Чеботкевич, A.B. Огнев, Б.Н. Грудин. *ФТТ* **46**, 8, 1449 (2004).
- [27] J.S. Agustsson, U.B. Arnalds, A.S. Ingason, K.B. Gylfason, K. Johnsen, S. Olafsson, J.T. Gudmundsson. *J. Phys.: Conf. Ser.* **100**, 8, 082003 (2008).
- [28] I. Zrinski, A. Minenkov, C. Cancellieri, R. Hauert, C.C. Mardare, J.P. Kollender, L.P.H. Jeurgens, H. Groiss, A.W. Hassel, A.I. Mardare. *Appl. Mater. Today* **26**, 101270 (2022).
- [29] A.L. Patterson. *Phys. Rev.* **56**, 10, 978 (1939).
- [30] R.M. Rowan-Robinson, A.A. Stashkevich, Y. Roussigné, M. Belméguenai, S.-M. Chérif, A. Thiaville, T.P.A. Hase, A.T. Hindmarch, D. Atkinson. *Sci. Rep.* **7**, 1, 16835 (2017).
- [31] M. Kuepferling, A. Casiraghi, G. Soares, G. Durin, F. Garcia-Sanchez, L. Chen, G. Carlotti. *Rev. of Mod. Phys.* **95**, 1, 015003 (2023).

Редактор В.В. Емцев