

PACS numbers: 68.55.jd, 75.30.Gw, 75.50.Kj, 75.60.Ej, 75.70.Ak, 81.40.Rs, 85.70.Kh

Магнетні властивості приладових структур на основі Co та Gd

С. І. Воробйов, Л. В. Дехтярук*, А. М. Чорноус, Т. М. Шабельник

*Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2,
40007 Суми, Україна*

**Харківський національний університет будівництва та архітектури,
вул. Сумська, 40,
61002 Харків, Україна*

Робота стосується встановлення загальних закономірностей, яких пов'язано з впливом товщини окремих шарів ферромагнетика, кількості повторювань і температури термооброблення мультишарів на основі Co і Gd на їхні магнетні властивості, такі як коерцитивна сила, намагнетованість насити та залишкова намагнетованість. Показано, що зміна магнетних властивостей відбувається через зростання дефектності інтерфейсів та утворення на них аморфного твердого розчину вже на стадії конденсації. Термооброблення призводить до часткового руйнування інтерфейсів і збільшення концентрації твердого розчину в системі. Коефіцієнт прямокутності петель гістерезису систем має значення, близькі до одиниці. При зміні кута орієнтації зразки в паралельній геометрії мірювання характеризуються анізотропією магнетних властивостей у площині плівки.

The paper is devoted to the general regularities, which are concerned with the influence of thickness of the individual layers of ferromagnet, the number of repetitions, and the temperature of heat treatment of the multilayers based on Co and Gd on their magnetic properties such as the coercivity, the saturation of magnetization, and the residual magnetization. As shown, the change of magnetic properties is caused by both the growth of interface imperfection and the formation of amorphous solid solution at the condensation stage. The heat treatment leads to both the partial destruction of interfaces and the increase of concentration of the solid solution in a system. The squareness ratio of hysteresis loops for systems at issue is close to one. In the case of change of orientation angle, the samples in a parallel geometry of measurement are characterized by the anisotropy of magnetic properties in a plane of film.

Робота посвящена установленню общих закономерностей, связанных с влиянием толщины отдельных слоёв ферромагнетика, количества повторений и температуры термообработки мультислоёв на основе Co и Gd на

их магнитные свойства, такие как коэрцитивная сила, намагничённость насыщения и остаточная намагничённость. Показано, что изменение магнитных свойств происходит за счёт роста дефектности интерфейсов и образования на них аморфного твёрдого раствора уже на стадии конденсации. Термообработка приводит к частичному разрушению интерфейсов и увеличению концентрации твёрдого раствора в системе. Коэффициент прямоугельности петель гистерезиса систем имеет значения, близкие к единице. При изменении угла ориентации образцы в параллельной геометрии измерения характеризуются анизотропией магнитных свойств в плоскости плёнки.

Ключові слова: мультишари, коерцитивна сила, намагнетованість насити, залишкова намагнетованість, аморфний твердий розчин, магнетна анізотропія.

(Отримано 13 травня 2014 р.)

1. ВСТУП

Основні магнетні характеристики, такі як коерцитивна сила (H_c), намагнетованість насити (M_s) та залишкова намагнетованість (M_r), для плівкових систем є важливими з точки зору їх використання як високощільні носії інформації. Для виготовлення останніх використовуються матеріали з прямокутною петлею гистерезису, що характеризується коефіцієнтом прямокутності, який визначається за співвідношенням M_r/M_s . Інформація зберігається у вигляді залишкової намагнетованості, яка визначає величину сигналу, що зчитується, та рівня співвідношення сигнал–шум. Коерцитивна сила матеріалу носія відповідає за стабільність збереження записаної інформації. При відносно великій коерцитивній силі потрібно прикладати більше магнетне поле, щоб перемагнетувати матеріал, а це конструктивно складна задача, яка призводить до збільшення собівартості готового виробу. У свою чергу, мала величина коерцитивної сили не забезпечує стабільність зберігання інформації, адже матеріал може перемагнетуватися під впливом випадкового зовнішнього магнетного поля. Плівкові системи на основі Co і рідкісноземельних металів відповідають вимогам щодо високих магнетних характеристик носіїв інформації, а деякі з них (наприклад, Co і Gd) мають нанокристалічну структуру [1] та є перспективними матеріалами для виготовлення високощільних носіїв для запису і збереження інформації.

При збільшенні щільності запису зменшується площа, на яку записується один біт інформації, та, як наслідок, відстань між комітками пам'яті. А це вимагає зменшити поле, яке перемагнетовує матеріал, оскільки зростає ймовірність перемагнетування сусідніх бітів. Зменшити поле можна використавши локальний підігрів ли-

ше тієї ділянки, яка виділяється під один біт [2]. Але при цьому дія температури може викликати структурні зміни в матеріалі.

Тому одержання нових матеріалів із значенням $M_r/M_s \rightarrow 1$ та стабільними магнетними властивостями в робочому діапазоні температур є актуальною задачею. У зв'язку з цим, нами було одержано серію зразків плівкових систем на основі Co і Gd та досліджено їх магнетні властивості.

2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Плівкові зразки на основі Co і Gd одержувались у робочому об'ємі високовакуумної установки Alliance Concept DP методом магнетронного осадження в атмосфері інертного газу Ar. Пара металів конденсувалася пошарово на полікристалічне кремнієве підложжя при температурі $T_n = 300$ К, з кількістю повторювань $n = 2-8$. На підложжя попередньо було нанесено шар оксиду кремнію товщиною 100 нм та двошарова плівка Ta(2)/Pt(5) (у дужках зазначено товщину в нм).

Ефективна товщина шарів Gd зберігалася постійною ($d_{Gd} = 2$ нм), в той час для шарів Co вона змінювалася і складала $d_{Co} = 2$ і 5 нм. Для запобігання окисненню, плівкові зразки покривались двошаровою плівкою Ta(5)/Pt(5). Таким чином мультишари мали таку структуру Ta(5)/Pt(5)/[Co(x)/Gd(2)] $_n$ /Ta(2)/Pt(5)/SiO(100)/Si (x — товщина шару Co).

Термообробка зразків здійснювалась у вакуумі за схемою «нагрівання \rightarrow витримка при $T_e = 700$ К впродовж 15 хв. при $T_e \rightarrow$ охолодження до кімнатної температури».

Магнетні властивості мультишарів досліджувались методом вібраційної магнетометрії (прилад VSM Lake Shore 7400) при кімнатних температурах, при двох орієнтаціях зразка відносно зовнішнього магнетного поля:

- лінії індукції магнетного поля були направлені паралельно поверхні зразка (паралельна геометрія);
- лінії індукції магнетного поля були направлені перпендикулярно поверхні зразка (перпендикулярна геометрія).

Структурно-фазовий стан плівкових систем досліджувався методом електроннографії з використанням приладу ПЕМ-125К, який працював у мікродифракційному режимі без введеної селекторної діафрагми.

Електроннографічні дослідження показали, що плівкові зразки у щойносконденсованому стані та після термообробки мають фазовий склад ГЦП-Co + ГЦК-Co + квазіаморфний Gd. Подібний результат мав місце у тришарових плівках Co/Gd/Co, детальне дослідження фазового складу яких наведено і обговорювалося нами в роботах [3, 4].

3. МАГНЕТНІ ВЛАСТИВОСТІ

Дослідження магнетних властивостей мультишарів, показали що товщина окремих шарів $\text{Co}(x)$, кількість повторювань (n) та термообробка впливають на коерцитивну силу, намагнетованість насичення і залишкову намагнетованість.

На рисунку 1 наведено типові залежності намагнетованості від прикладеного зовнішнього магнетного поля в напрямку легкої осі намагнетування для систем у щойносконденсованому стані та після термообробки.

Спочатку проаналізуємо й відмітимо деякі закономірності впливу товщини прошарку з Co , кількості повторювань та температури термообробки на величину коерцитивної сили плівкових систем.

По-перше, при збільшенні кількості повторювань не залежно від ефективної товщини прошарків з Co , величина коерцитивної сили збільшується. Такий результат може бути пов'язаний з тим, що при збільшенні кількості повторювань, інтерфейси стають більш дефектними. Подібний результат спостерігався авторами [5] на прикладі системи Gd/Fe . Ними було зроблено висновок про те, що чим менші значення мають товщини шарів системи, тим руйнування інтерфейсів настає з меншою періодичністю.

По-друге, величина коерцитивної сили суттєво зростає після термообробки, що може свідчити про часткове або повне руйнування інтерфейсів між шарами, а також збільшення концентрації фази ГЦК- Co . Можливо, що при термовідпалюванні на роздільчій межі Co/Gd за рахунок термодифузії, відбувається утворення аморфного твердого розчину (Co , Gd), який нами електронографічно не фіксується. Хоча за даними АСМ, уже на стадії конденсації на роздільчій

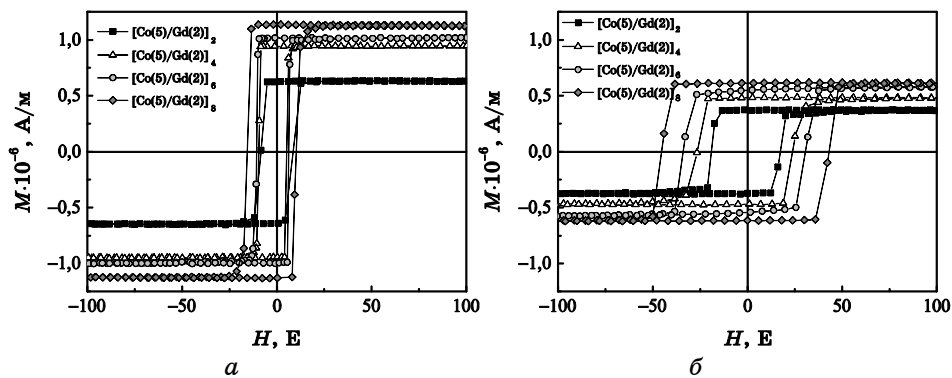


Рис. 1. Залежність намагнетованості від напруженості прикладеного зовнішнього магнетного поля при паралельній геометрії мірювання у напрямку легкої осі намагнетування для мультишарів із різною кількістю повторювань до (а) і після термообробки (б).

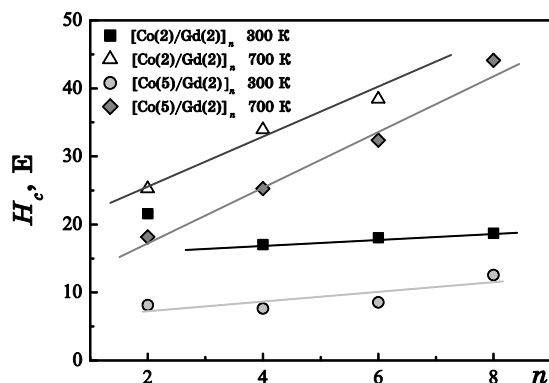


Рис. 2. Залежність величини коерцитивної сили мультишарів у паралельній геометрії вимірювання при орієнтації прикладеного зовнішнього магнетного поля в напрямку легкої осі намагнетування від кількості повторень, товщини прошарку з Co та температури термооброблення.

межі утворюється буферний шар. Згідно з [6] такі розчини мають ферімагнетне впорядкування, для яких величина коерцитивної сили має більше значення порівняно з феромагнетиками.

Оціночний розрахунок загальної концентрації атомів Co і Gd у системі за умови, що при термовідпалюванні відбулося повне перемішування шарів Co і Gd, було виконано за наступною формулою [7]:

$$c_{\text{Co}} = \frac{D_{\text{Co}} d_{\text{Co}} \mu_{\text{Co}}^{-1}}{D_{\text{Co}} d_{\text{Co}} \mu_{\text{Co}}^{-1} + D_{\text{Gd}} d_{\text{Gd}} \mu_{\text{Gd}}^{-1}}, \quad (1)$$

де D — густина, μ — молярна маса елементів, d — ефективна товщина плівки для кожного шару відповідно.

Авторами [7] було показано, що ця формула справедлива як для стопів, яких одержано одночасним напорошенням, так і для тих, які утворилися внаслідок термооброблення.

Розрахунки на основі (1) показали, що при товщинах прошарків $d_{\text{Co}} = 2$ нм і $d_{\text{Gd}} = 2$ нм загальна концентрація атомів Co та Gd складає 75% і 25%, а при $d_{\text{Co}} = 5$ нм і $d_{\text{Gd}} = 2$ нм 88% та 12% відповідно. З цього можна зробити висновок, що при таких концентраціях залишається відносно велика кількість атомів Co, яких не задіяно у формуванні твердого розчину при перебігу процесів взаємної дифузії. Таким чином, після термообробки плівкова система може представляти собою шарувату структуру із чергуванням феро- і ферімагнетних шарів, останній знаходиться в квазіаморфному стані.

По-третє, величина коерцитивної сили як у щойносконденсованому стані, так і після термооброблення зменшується при збільшенні ефективної товщини прошарків з Co. Такий результат може бути пов'язаний зі зміною ширини доменних стінок, для яких ве-

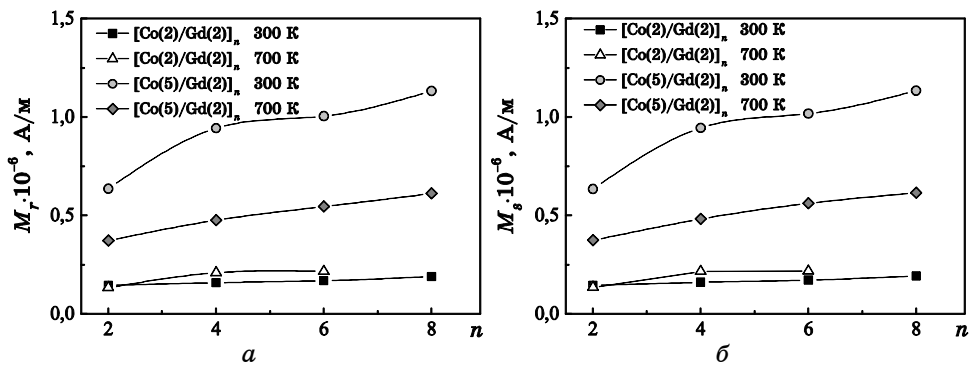


Рис. 3. Залежність величини залишкової намагнетованості і намагнетованості насичу мультишарів у паралельній геометрії мірювання при орієнтації прикладеного зовнішнього магнетного поля в напрямку легкої осі намагнетування від кількості повторювань, товщини прошарку з Со та температури термооброблення.

личина розмагнетувального поля є обернено пропорційною товщині плівки. Через таке вектор намагнетованості орієнтується в площині плівки і перехід між доменами відбувається в цій же площині [8].

Розглянемо вплив кількості повторювань, ефективної товщини прошарку з Со та температури термообробки на величину залишкової намагнетованості і намагнетованості насичення. З даних, наведених на рис. 3, видно, що ці залежності майже повторюють одна одну, оскільки розглянуті системи характеризуються великим коефіцієнтом прямокутності петлі гістерезису, що буде обговорено пізніше. При збільшенні кількості повторювань і товщини прошарку Со як у щойносконденсованому стані, так і після термообробки величина M_r і M_s зростає. Це обумовлено збільшенням товщини і концентрації феромагнетного компонента, що як наслідок призводить до зменшення товщини доменних стінок. Хоча, як було нами показано раніше, зі збільшенням періодичності повторювань відбувалося зростання коерцитивної сили, і це суперечить останньому висновку. Але можна зробити припущення, що в нашому випадку між собою конкурують два механізми, які надають внесок у магнетні властивості всієї системи. З одного боку, це утворення феромагнетного твердого розчину і руйнування інтерфейсів між шарами, а з іншого боку, збереження відносно високої концентрації феромагнетного компонента. На нашу думку, другий фактор домінує над першим, причому зростання величини M_r і M_s від n відбувається сильніше, де ефективна товщина Со більша.

Після термооброблення зразків до $T_e = 700$ К величини M_r і M_s для систем з $d_{Co} = 5$ нм зменшуються в середньому на 54% в порівнянні зі щойносконденсованими плівками. Цей результат має ті ж

ТАБЛИЦЯ. Значення величини коефіцієнта прямокутності (КП) петлі гістерезису мультишарів.

| Плівкова система \ КП | $T_c = 300$ К | $T_c = 700$ К |
|----------------------------|---------------|---------------|
| [Co(2)/Gd(2)] ₂ | 0,996 | 0,988 |
| [Co(2)/Gd(2)] ₄ | 0,989 | 0,972 |
| [Co(2)/Gd(2)] ₆ | 0,983 | 0,987 |
| [Co(2)/Gd(2)] ₈ | 0,982 | — |
| [Co(5)/Gd(2)] ₂ | 0,991 | 0,995 |
| [Co(5)/Gd(2)] ₄ | 0,998 | 0,989 |
| [Co(5)/Gd(2)] ₆ | 0,988 | 0,969 |
| [Co(5)/Gd(2)] ₈ | 0,999 | 0,995 |

причини, які впливають на величину H_c . Після термообробки відбувається утворення аморфного твердого розчину (Co, Gd), який має ферімагнетне впорядкування з температурою Кюрі, вищою аніж для Gd ($\Theta_C^{\text{Gd}} = 293$ К [9]). Внаслідок цього переміщується точка компенсації відносно кімнатної температури, магнетні моменти такого розчину направлені антипаралельно до магнетних моментів Co і спостерігається зменшення M_r і M_s та зростання H_c . Що стосується даних для систем, в яких $d_{\text{Co}} = 2$ нм, то можливо ферімагнетне впорядкування переважає, внаслідок чого не переміщується точка компенсації відносно кімнатної температури.

У таблиці наведено дані розрахунків коефіцієнта прямокутності петель гістерезису, аналізуючи які можна зробити висновок, що всі досліджені зразки при орієнтації зовнішнього магнетного поля в напрямку легкої осі намагнетування мають дуже високі показники КП. Термооброблення не істотно впливає на величину КП, хоча в більшості випадків він зменшується в середньому до 2%.

Дослідження магнетних характеристик при зміні орієнтації зразка в паралельній геометрії вимірювання (рис. 4) показали, що характер залежності змінюється та відбувається деформація петлі гістерезису. Це пов'язано з анізотропією магнетних властивостей систем у площині плівки.

Така поведінка намагнетованості від прикладеного зовнішнього магнетного поля свідчить про те, що процеси намагнетування і перемагнетування відбуваються відповідно до моделі Стонера–Вольфарта, шляхом когерентного обертання векторів M_s [10]. Згідно з цією моделлю, магнетні моменти всіх атомів залишаються паралельними один до одного в будь який момент часу, мінімізуючи таким чином обмінну енергію системи. Проте цей процес потребує подолання енергетичного бар'єру, висота якого визначається розмагнетувальним полем.

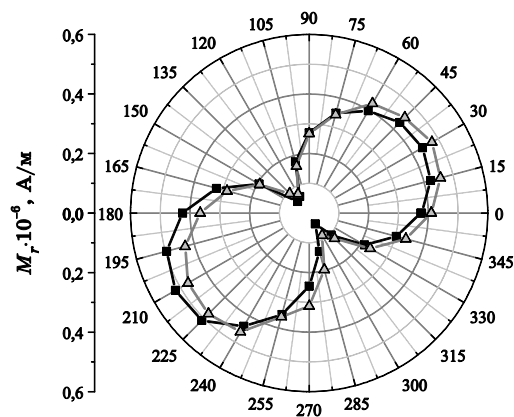


Рис. 4. Залежність залишкової намагнетованості в полярних координатах від напруженості прикладеного зовнішнього магнетного поля при зміні орієнтації зразка в паралельній геометрії мірювання для плівкової системи Ta(5)/Pt(5)/[Co(5)/Gd(2)]₄/Ta(2)/Pt(5)/SiO(100)/Si. Температура відпалювання: ■ — 300 К, ▲ — 700 К.

Термооброблення плівкових зразків не призводить до істотної зміни величини залишкової намагнетованості, і в таких системах зберігається анізотропія в площині плівки. Ці особливості розширюють межі застосування таких систем у приладобудуванні, зокрема, їх можна використати для виготовлення чутливих елементів датчиків положення.

Типові залежності намагнетованості від орієнтації зразка відносно величини повздовжнього зовнішнього магнетного поля наведено на рис. 5, а. Аналіз цих даних показує, що при переході від паралельної геометрії мірювання до перпендикулярної відбувається зростання коерцитивної сили (рис. 5, б, в).

На залежностях H_c від α можна виділити дві ділянки з різною монотонністю зміни коерцитивної сили. В інтервалі кутів від 0 до 60° зростання величини H_c відбувається не більше ніж у 2 рази (залежно від ефективної товщини прошарків із Co). Збільшення кута від 60° до 90° спричинює різке зростання величини H_c . Такі результати обумовлено тим, що вектор намагнетованості плівки знаходиться в її площині (переважна орієнтація доменних стінок). У цьому випадку легка вісь намагнетування припадає на 0°. Коли зовнішнє магнетне поле складає деякий кут з віссю легкого намагнетування, то тиск зі сторони поля на доменну стінку зменшується. Воно буде визначатися складовою поля $H \cos \alpha$ (при $\alpha = 90^\circ$ доменна стінка не буде зміщатися). Така поведінка доменних стінок описується законом анізотропії коерцитивної сили (див. бібліографію в [11]):

$$H_c(\alpha) = H_c(0)/\cos \alpha, \quad (2)$$

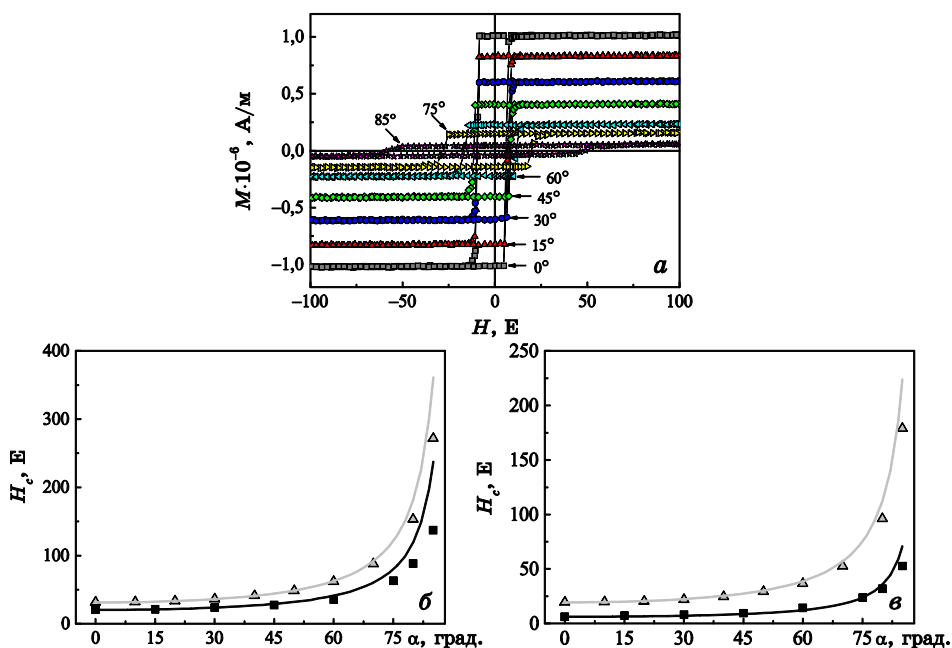


Рис. 5. Залежність намагнетованості від прикладеного зовнішнього магнетного поля (*a*) та розрахункові (лінії) і експериментальні (точки) залежності коерцитивної сили (*б*, *в*) при переході від паралельної до перпендикулярної геометрії мірювання для системи Ta(5)/Pt(5)/[Co(*x*)/Gd(2)]_n/Ta(2)/Pt(5)/SiO(100)/Si, де $x = 2$ (*a*, *б*) та $x = 5$ (*в*). Температура відпалювання: ■ — 300 К, ▲ — 700 К.

де $H_c(0)$ — значення коерцитивної сили при орієнтації зовнішнього магнетного поля вздовж осі легкого намагнетування.

Розрахунок за формулою (2) показав кількісне узгодження експериментальних і розрахункових даних (рис. 5, *б*, *в*).

4. ВИСНОВКИ

За результатами наших досліджень магнетних властивостей плівкових систем Ta(5)/Pt(5)/[Co(*x*)/Gd(2)]_n/Ta(2)/Pt(5)/SiO(100)/Si можна зробити наступні висновки.

1. Петлі гістерезису характеризується високим коефіцієнтом прямокутності, на який фактично не впливає термооброблення до $T_e = 700$ К. Це уможливило розглядати дані плівкові системи як перспективний матеріал для високощільних носіїв запису та зберігання інформації.

2. Встановлено, що при паралельній орієнтації зразка відносно прикладеного зовнішнього магнетного поля, плівкова система ха-

рактизується високою анізотропією польових властивостей в площині плівки, яка зберігається і після термооброблення. Це дозволяє розглядати дані плівки як перспективний магнетний матеріал для високочутливих датчиків положення.

3. Показано, що модель анізотропії коерцитивної сили може бути використана для прогнозування значень величини H_c мультишарів зі зміною кута повороту при переході від паралельної до перпендикулярної геометрії міряння.

Колектив авторів висловлює подяку за допомогу у виконанні експериментальних досліджень та обговоренні результатів доктору філософії Т. Хауету, професору М. Хену, співробітникам відділу наномагнетизму і спінтроніки Університету Лотарингії (м. Нансі, Франція) та завідувачу кафедри прикладної фізики Сумського державного університету професору І. Ю. Проценку.

Роботу виконано за НДР № 0112U001381, № 0113U000137с та індивідуальним грантом МОН України для проходження стажування в провідних закордонних університетах (2012–2013 рр.) у Інституті Жана Ламура Університету Лотарингії (м. Нансі, Франція).

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. A. V. Svalov, V. O. Vas'kovskiy, J. M. Barandiaran, N. G. Bebenin, G. V. Kurlyandskaya, A. V. Gorbunov, L. Lezama, J. Gutierrez, and D. Schmool, *J. Alloy Compd.*, **327**: 5 (2001).
2. Y. Zeng, X. Huang, W. Zhou, and S. Yu, *Int. J. Heat Mass Transfer*, **60**: 322 (2013).
3. S. I. Vorobiov, O. V. Shutileva, I. A. Shpetnyi, and A. M. Chornous, *J. Nano-Electron. Phys.*, **4**, No. 4: 04026 (2012) (in Ukrainian).
4. S. I. Vorobiov, I. V. Cheshko, A. M. Chornous, and I. O. Shpetnyi, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **35**, No. 12: 1645 (2013) (in Ukrainian).
5. H. Miyagawa, H. Shiraoka, M. Tani, K. Fujii, N. Takahashi, S. Koshiba, Y. Tanaka, N. Tsurumachi, S. Nakanishi, and H. Itoh, *J. Cryst. Growth*, **311**: 2143 (2009).
6. S. Mangin, M. Gottwald, C-H. Lambert, D. Steil, V. Uhlir, L. Pang, M. Hehn, S. Alebrand, M. Cinchetti, G. Malinowski, Y. Fainman, M. Aeschlimann, and E. E. Fullerton, *Nat. Mater.*, **13**: 286 (2014).
7. S. I. Protsenko, I. V. Cheshko, D. V. Velykodny, I. M. Pazukha, L. V. Odnodvoretz, I. Yu. Protsenko, and O. V. Synashenko, *Uspehi Fiziki Metallov*, **8**: 247 (2007) (in Ukrainian).
8. D. D. Tang and Y. J. Lee, *Magnetic Memory. Fundamentals and Technology* (Cambridge: Cambridge University Press: 2010), p. 57.
9. Y. Yamada, M. Okada, P. Jin, M. Tazawa, and K. Yoshimura, *Thin Solid Films*, **459**: 191 (2004).
10. E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Phil. Trans. R. Soc. London. A*, **240**, No. 826: 599 (1948).
11. G. S. Kandaurova, *Sorosovskiy Obrazovatel'nyy Zhurnal*, **1**: 100 (1997) (in Russian).