

Магнитные свойства ультратонких пленок Ni

© О.В. Снигирев, А.М. Тишин, С.А. Гудошников*, К.Е. Андреев, Якоб Бор**

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

* Институт земного магнетизма, ионосферы и распространения радиоволн
Российской академии наук,
142092 Троицк, Московская обл., Россия

** Технический университет Дании,
DK 2800 Люнгбю, Дания

(Поступила в Редакцию 20 ноября 1997 г.
В окончательной редакции 11 марта 1998 г.)

Исследованы магнитные свойства пленок Au/Ni/Si(100) в интервале толщин Ni от 8 до 200 Å при $T = 77$ К с помощью сканирующего магнитного микроскопа на основе тонкопленочного высокотемпературного сквида постоянного тока. Установлено, что пленки Ni размером в плане 0.6×0.6 мкм, толщина которых превышает 26 Å, имеют однодоменную структуру, причем их магнитный момент ориентирован в плоскости пленки, а намагниченность насыщения близка к 0.17 MA/m. Для пленок с толщиной менее 26 Å найдено резкое падение намагниченности пленки.

Исследование свойств ультратонких магнитных пленок имеет как фундаментальный, так и практический интерес. Данные пленки могут быть использованы в записывающих магнитных устройствах для увеличения плотности памяти. С точки зрения фундаментальных исследований эти пленки являются интересным объектом для изучения магнитного упорядочения в двумерных (2D) магнетиках [1,2].

Наиболее известные приборы, используемые для измерений магнитных свойств ультратонких пленок, поверхности 3d- и 4f-металлов, а также субмикронных частиц записывающих сред, можно классифицировать в три группы: устройства, с помощью которых можно измерять интегральный магнитный момент образца [3–5]; устройства, которые обеспечивают получение изображения структуры магнитных объектов с высоким пространственным разрешением [6–9]; приборы, использующие синхротронное или нейтронное излучение [10–12].

Недавно созданные сканирующие сквид-микроскопы (см., например, [13]) позволяют измерять абсолютные значения намагниченности образца с высокой чувствительностью, недоступной другим устройствам, и снимать топограммы магнитного поля исследуемого объекта с пространственным разрешением вплоть до нескольких микрон [14].

В данной работе приведены результаты исследования магнитных свойств ультратонких Au/Ni/Si(100)-пленок при температуре 77 К при помощи сквид-микроскопа.

1. Свойства тонких пленок Ni

Как известно [15], тонкие пленки Ni могут иметь два типа кристаллической структуры (гранецентрированную (fcc) и объемно центрированную (bcc)) с существенно различными магнитными свойствами. Согласно теоретическим представлениям, fcc-Ni существует только в ферромагнитной фазе, тогда как bcc-модификация де-

монстрирует переход из ферромагнитной в немагнитную фазу [15] при уменьшении радиуса Вигнера-Зейтца до критической величины порядка 2.6 Å. Переход из немагнитного в ферромагнитное состояние предсказан также для эпитаксиальных bcc-Ni-пленок, подверженных 1% растяжению решетки, вызываемому подложкой [16].

Величина магнитного момента пленок Ni и его пространственная ориентация зависят от числа монослоев, подложки и структуры буферного слоя [8,16–19].

Размеры магнитных доменов, образующихся в пленках Ni, варьируются от десятков до единиц микрон при изменении толщины Ni от 20 до 140 Å [6].

Помимо отмеченных выше свойств ультратонкие пленки Ni могут демонстрировать спектр явлений, связанных с переходом при увеличении числа монослоев от двумерных к трехмерным магнитным системам. Было найдено, например, что величина критического индекса β в температурной зависимости намагниченности в области фазового перехода $M(T) \sim (1 - T/T_c)^\beta$ довольно резко изменяется от значения 0.125, характерного для двумерных "изинговских" магнетиков, до значения 0.43, характерного для трехмерных "гейзенберговских" магнетиков, при изменении толщины пленки Ni от 5 до 10 моноатомных слоев [7].

Температура Кюри T_c также зависит от толщины пленки Ni и, как было показано, может изменяться от 50 до 450 К при увеличении толщины пленки Ni/Cu(001) от 1.5 до 8 монослоев [20]. При этом зависимость T_c от толщины пленки может быть экстраполирована к значению $T_c = 0$ для одного монослоя Ni [21].

2. Методика эксперимента

Взаимное расположение сквид-датчика [22] сканирующего магнитного микроскопа, исследуемого образца пленки Ni на подложке из Si(100) толщиной 0.3 мкм и токопленочной калибровочной петли, нанесенной на ту

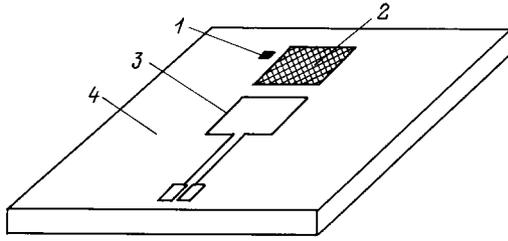


Рис. 1. Схематическое изображение взаимного расположения сквида (1), образца (2) и калибровочной петли (3) на подложке (4) в магнитном сквид-микроскопе.

же кремниевую подложку, показано на рис. 1. Образцы пленок изготавливались [22] в форме квадрата со стороной $600\ \mu\text{m}$. Для визуализации распределения магнитного поля, создаваемого образцом, производилось сканирование образца при расстоянии образец–датчик порядка $100\ \mu\text{m}$.

Намагничивающее поле, параллельное плоскости образца, задавалось с помощью длинного соленоида, а поле, перпендикулярное образцу, создавалось квази-плоской 500-витковой катушкой. Используемый сканирующий сквид-микроскоп (ССМ) мог нормально работать в магнитном поле с напряженностью до $70\ \text{A/m}$, если направление поля было перпендикулярно плоскости сквида (и плоскости образца), и в полях до $10^4\ \text{A/m}$, ориентированных параллельно сквиду.

Сведения о кристаллографической структуре образцов были получены на толстых пленках Ni ($200\ \text{\AA}$) без золотого покрытия на рентгеновском дифрактометре Rigaku. При этом был обнаружен только рефлекс (111) ($2\theta = 44.32^\circ$); полная ширина пика на половине максимума равнялась 1.028° . Наличие единственного рефлекса (111) указывает на текстурированную структуру нанесенной пленки Ni с сильно выраженной (111)-ориентацией. Постоянная решетки, рассчитанная по положению 2θ -рефлекса, составляла $3.53\ \text{\AA}$. Найденная ориентация пленки (111) представляется естественной, поскольку в этом случае рассогласование между постоянной решетки (100)-ориентированной Si ($5.2\ \text{\AA}$) и атомами Ni в плоскости пленки ($4.99\ \text{\AA}$) минимально. Контролировать таким способом более тонкие пленки не представлялось возможным из-за низкой интенсивности отраженного излучения.

При проведении измерений измерительный зонд ССМ погружался в дьюар с жидким азотом, расположенным внутри двойного пермаллового экрана. Поворот зонда вокруг вертикальной оси на 360° позволяет измерить горизонтальную компоненту остаточного магнитного поля. Ее максимальная величина оказалась близкой к $2.5\ \mu\text{T}$. Переменный ток величиной около $300\ \mu\text{A}$ подавался в калибровочный виток (рис. 1), его магнитное изображение позволяло произвести установку образца внутри поля сканирования ССМ (порядка $8 \times 8\ \text{mm}$). Измеренная величина магнитного поля над центральной частью витка позволяет определить расстояние h между образцом и

сквидом, которое в наших экспериментах варьировалось от 100 до $400\ \mu\text{m}$ и определяло пространственное разрешение прибора.

3. Результаты измерений

Исследовались магнитные свойства пленок Ni с толщиной от 8 до $200\ \text{\AA}$, покрытых слоем Au. Изображения регистрировались после охлаждения образца в остаточном магнитном поле от температуры $T \approx 400\ \text{K}$ до температуры кипения жидкого азота. При сканировании пленки толщиной $26\ \text{\AA}$ был получен слабый магнитный сигнал, соответствующий ориентации вектора намагниченности в плоскости пленки. При приложении магнитного поля величиной $4000\ \text{A/m}$, направленного параллельно плоскости пленки, отношение сигнал–шум увеличилось до значений более 100 , и магнитное изображение стало четким (рис. 2). Острые пики максимума и минимума B_z -компоненты магнитного поля располагались у противоположных краев исследуемой пленки, обозначенной на рис. 2 штриховой линией. Симметричность изображения (положительный и отрицательный отклики равны по величине) обусловлена ориентацией вектора намагниченности в плоскости пленки. Наличие только двух пиков на магнитном изображении всей пленки, размеры которой существенно превосходят пространственное разрешение ССМ, можно интерпретировать как указание на монокристаллическую структуру.

Изменение компоненты $B_z(x, y)$ по отношению к фоновому сигналу $B_z(0, 0)$, записанному вдали от пленки, было рассчитано из изменения величины выходного напряжения сквида ΔV_{out} , известного значения коэффициента обратной связи электроники сквида $\Delta V_{\text{out}}/\Phi_0$ (здесь Φ_0 — квант магнитного потока) и предварительно измеренной эффективной площади сквида A_{eff} [22,23].

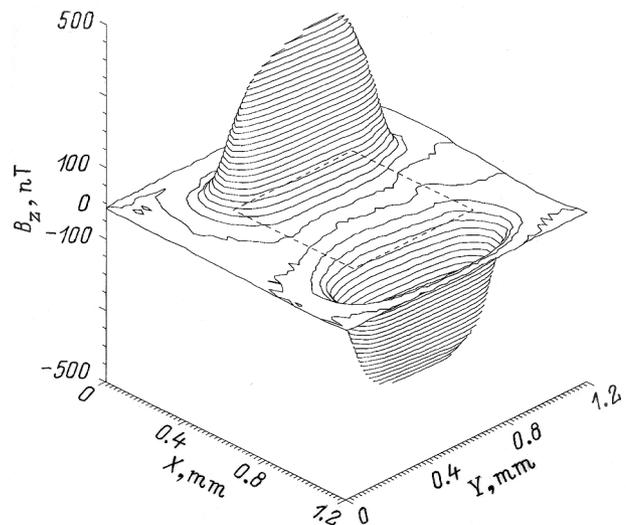


Рис. 2. Магнитное изображение пленки Ni толщиной $26\ \text{\AA}$ размером $0.6 \times 0.6\ \text{mm}$ в приложенном магнитном поле величиной $4000\ \text{A/m}$, направленном параллельно оси Y.

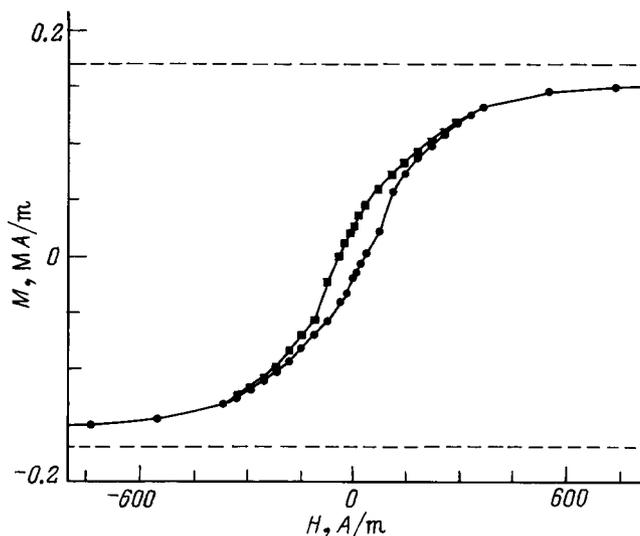


Рис. 3. Петля гистерезиса пленки Ni толщиной 26 Å в параллельном приложенном магнитном поле.

Зависимость величины объемной намагниченности 26 Å пленки Ni от параллельного приложенного поля показана на рис. 3. Эта гистерезисная кривая была получена путем последовательных измерений максимальной величины B_z при изменении величины приложенного магнитного поля от +4000 до -4000 А/м и обратно. Результаты показывают, что величина намагниченности насыщения данной пленки равна 0.17 МА/м и достигается при напряженности поля около 2500 А/м. Эта величина намагниченности насыщения приблизительно в 3 раза меньше, чем для объемного Ni. Петля гистерезиса (рис. 3) указывает на наличие магнитного упорядочения в образце с температурой фазового перехода выше 77 К. Общий вид зависимости $M(H)$ позволяет предположить, что данное упорядочение имеет ферромагнитный характер. Коэрцитивная сила близка к 35 А/м, а остаточный магнитный момент составляет 0.028 МА/м. При приложении к пленке Ni толщиной 26 Å перпендикулярного магнитного поля с максимальной величиной 70 А/м сигнал оказался ниже уровня шума сквида, и изображение получить не удалось.

Попытки зарегистрировать изображения образцов с толщинами 15 и 8 Å в параллельном и перпендикулярном магнитных полях при расстояниях 100 μm между сквидом и образцом показали, что величина их намагниченности меньше порога чувствительности прибора. Таким образом, при изменении толщины пленки Ni от 26 до 15 Å намагниченность уменьшилась более чем на два порядка величины (рис. 4).

В отличие от пленок с толщиной 26 Å изображения пленок Ni с толщиной 43 и 84 Å, записанные после их охлаждения в нулевом поле, демонстрировали четкие пары симметричных положительных и отрицательных пиков, расположенных на противоположных углах квадратного образца пленки. Такие изображения соответ-

ствуют однодоменной магнитной структуре с осью легкого намагничивания, расположенной в плоскости пленки по диагонали ее квадрата. При приложении параллельного намагничивающего поля величиной порядка 4000 А/м магнитный момент пленки поворачивался по направлению поля и пики сдвигались к положению, показанному на рис. 2, а. Подобные результаты были получены и для пленки Ni с толщиной 200 Å без золотого покрытия.

С целью определения характера влияния кремниевой подложки на ориентацию и величину магнитного момента пленки нами были приготовлены и исследованы образцы пленок Au/Ni/Pt/Si(100) с буферным слоем Pt толщиной 100 nm. Параметр решетки платины, равный 3.9 Å, имеет промежуточное значение между значениями параметров Si и Ni, что приводит к уменьшению растяжения слоев Ni пленки. Изображение распределения B_z -компоненты магнитного поля приведено на рис. 5.

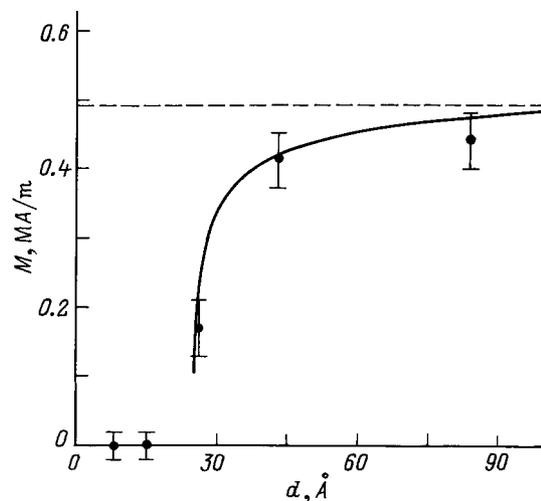


Рис. 4. Зависимость намагниченности насыщения от толщины пленок Au/Ni/Si(100).

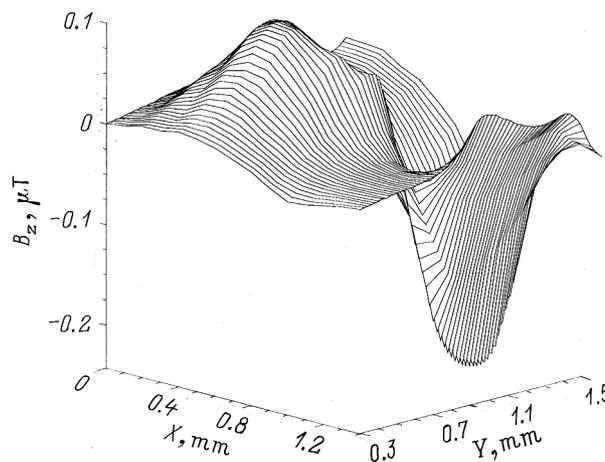


Рис. 5. Магнитное изображение пленки Ni толщиной 30 Å, напыленной на буферный слой Pt, в магнитном поле величиной 4000 А/м, направленном параллельно оси Y.

4. Обсуждение результатов

Начнем обсуждение с наиболее простого случая относительно толстых пленок Au/Ni/Si(100) с толщиной 43 и 84 Å. Как следует из результатов измерений при $T = 77$ К, в них наблюдается ферромагнитное упорядочение. Величина намагниченности насыщения при этом близка к объемной (рис. 4), что согласуется с теоретическими представлениями [15].

Обнаруженная ориентация намагниченности в плоскости пленки может быть следствием ряда факторов. Во-первых, при такой ориентации практически отсутствует поле размагничивания пленки; во-вторых, вследствие растяжения пленки Ni кремниевой подложкой направление легкого намагничивания может лежать в плоскости пленки; и/или, в-третьих, тем, что температура 77 К для этих пленок находится между точкой магнитного фазового перехода и температурой переориентации T_R [24].

Доменная структура толстых пленок оказалась мало чувствительной к приложенному магнитному полю независимо от того, параллельно или перпендикулярно плоскости пленки оно направлено (в наших экспериментах поля имели величины до 4000 и 70 А/м соответственно).

Пленки промежуточных значений толщин (около 25 Å) также показали наличие ферромагнитного упорядочения, однако, с уменьшенной величиной намагниченности насыщения. Последнее, скорее всего, вызвано тем, что температура образца $T = 77$ К оказалась близкой к точке фазового перехода для данной толщины пленки.

Альтернативной причиной может быть островковая (кластерная) структура пленки, вероятность возникновения которой возрастает с уменьшением толщины. Ранее ферромагнитное упорядочение с намагниченностью, ориентированной в плоскости пленки, наблюдалось при радиусе кластеров менее 30 Å, например, в случае достаточно тонких (около 30 монослоев) пленок Fe [24]. Таким образом, уменьшение намагниченности пленок Ni в интервале толщин 15–30 Å может быть следствием образования кластеров.

Для пленок Ni толщиной 8 и 15 Å при существующем уровне чувствительности ССМ магнитный момент, соответствующий ферромагнитному упорядочению, не был зарегистрирован. Можно предположить, что точка магнитного фазового перехода этих пленок ниже 77 К, хотя могут играть роль и другие механизмы [5,25]. Возможно, что при таких толщинах пленка имеет островковую структуру и находится в суперпарамагнитном состоянии, которое наблюдалось, например, для пленок Fe толщиной менее 39 Å [5]. При этом в [5] было высказано предположение, что возникновение суперпарамагнетизма является типичным для магнитных пленок, образующих островки в процессе роста.

Характер распределения магнитного поля над поверхностью пленки Au/Ni/Pt/Si, в частности асимметрия положительного и отрицательного максимумов, указывает на наличие компоненты магнитного момента, перпендикулярного плоскости пленки. Таким образом, наличие

буферного слоя существенно изменило энергию магнитной анизотропии пленки. Этот факт дает основания предположить, что устранение растяжения монослоев Ni приведет к ориентации магнитного момента данного образца пленки перпендикулярно ее плоскости. Помимо изменения ориентации магнитного момента полученные нами экспериментальные данные указывают на весьма существенное уменьшение величины магнитного момента атомов Ni, что может свидетельствовать о заметной перестройке энергетического спектра пленки с буферным слоем.

Что касается характеристик магнитного микроскопа, то, как видно из результатов, чувствительности прибора оказалось достаточно для измерения гистерезисных кривых пленок толщиной более 26 Å в приложенных магнитных полях величиной ± 4000 А/м, если поле ориентировано параллельно плоскости образца и плоскости сквида. В случае перпендикулярного намагничивающего поля было возможно проводить измерения при значениях поля намагничивания не более 70 А/м, так как в больших полях происходило подавление критического тока джозефсоновских переходов сквида. Для измерений в полях с напряженностью более 100 А/м должны использоваться сквиды с субмикронными джозефсоновскими контактами.

Пространственное разрешение в магнитном изображении наблюдаемых объектов и разрешение по магнитному полю в использовавшейся версии магнитного микроскопа оказались близкими к $100 \mu\text{m}$ и $10^{-15} \text{Am}^2 / \text{Hz}^{1/2}$ соответственно. Оба эти параметра могут быть улучшены при уменьшении расстояния между сквидом и образцом [14].

В заключение можно отметить, что применение разработанного метода магнитной сканирующей сквид-микроскопии позволяет получать изображение пространственного распределения одной из компонент магнитного поля ультратонких пленок магнитных материалов и определять с высокой точностью, недоступной другим устройствам, значения их локальной намагниченности в области малых значений воздействующих полей.

Мы благодарны С.И. Красносвободцеву, Л.В. Матвеец, А.В. Павлоцкому, И.Г. Прохоровой, С.Н. Полякову, Н.Н. Уханскому и И.И. Венгусу за помощь на различных этапах работы.

Работа поддерживалась Российским фондом фундаментальных исследований (проекты № 96-02-19250 и 96-02-18127a) и INTAS (грант N 93-2777-ext).

Список литературы

- [1] N.D. Mermin, H. Wagner. *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- [2] L. Onsager. *Phys. Rev.* **65**, 117 (1944).
- [3] M. Sakurai, N. Imamura, K. Hirano, T. Shinjo. *J. Magn. Magn. Mater.* **147**, 16 (1995).
- [4] R. Bergholz, U. Gragmann. *J. Magn. Magn. Mater.* **45**, 389 (1984).

- [5] M. Weber, R. Koch, K.H. Rieder. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1166 (1994).
- [6] G. Bochi, H.J. Hug, D.I. Paul, B. Stiefel, A. Moser, I. Parashikov, H.-J. Güntherodt, R.C. O'Handley. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1839 (1995).
- [7] F. Huang, M.T. Kief, G.J. Mankey, R.F. Willis. *Phys. Rev.* **B49**, 3962 (1994).
- [8] G. Bochi, C.A. Ballentine, H.E. Inglefield, C.V. Thompson, R.C. O'Handley, H.J. Hug, B. Stiefel, A. Moser, H.-J. Güntherodt. *Phys. Rev.* **B52**, 7311 (1995).
- [9] A. Oral, S.J. Bending, M. Henini. *J. Vac. Sci. Technol.* **B14**, 2, 1202 (1996).
- [10] C.F. Majkrzak, J. Kwo, M. Hong, Y. Yafet, D. Gibbs, C.L. Chien. *J. Bohr. Adv. Phys.* **40**, 99 (1991).
- [11] G.H. Lander. Invited paper submitted to the 21st Rare Earth Research Conf. Duluth, Minnesota. (July 7–12, 1996). To be published in *Journal of Alloys and Compounds*.
- [12] G.M. Watson, D. Gibbs, G.H. Lander, B.D. Gaulin, L.E. Berman, H. Matzke, W. Ellis. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 751 (1996).
- [13] L.N. Vu, M.S. Wistron, D.J. Van Harlingen. *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1693 (1993).
- [14] J.R. Kirtley, M.B. Ketchen, K.G. Stawaisz, J.Z. Sun, W.J. Gallagher, S.H. Blanton, S.J. Wind. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1138 (1995).
- [15] V.L. Moruzzi, P.M. Marcus, K. Schwarz, P. Mohn. *Phys. Rev.* **B34**, 1784 (1986).
- [16] J.I. Lee, Soon C. Hong, A.J. Freeman, C.L. Fu. *Phys. Rev.* **B47**, 810 (1993).
- [17] J. Vogel, G. Panaccione, M. Sacchi. *Phys. Rev.* **B50**, 7157 (1994).
- [18] B. Schulz, K. Baberschke. *Phys. Rev.* **B50**, 13 467 (1994).
- [19] J. Shen, J. Giergiel, J. Kirschner. *Phys. Rev.* **B52**, 8454 (1995).
- [20] A. Aspelmeier, M. Tischer, M. Farle, M. Russo, K. Baberschke, D. Arvanitis. *J. Magn. Magn. Mater.* **146**, 256 (1995).
- [21] F. Huang, G.J. Mankey, M.T. Kief, R.F. Willis. *J. Appl. Phys.* **73**, 6760 (1993).
- [22] O.V. Snigirev, K.E. Andreev, A.M. Tishin, S.A. Gudoshnikov, J. Bohr. *Phys. Rev.* **B55**, 1429 (1997).
- [23] S.A. Gudoshnikov, N.N. Ukhansky, I.I. Vergrus, K.E. Andreev, A.M. Tishin, O.V. Snigirev. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **7**, 2542 (1997).
- [24] Ar. Abanov, V. Kalatsky, V.L. Pokrovsky, W.M. Saslow. *Phys. Rev.* **B51**, 1023 (1995).
- [25] C.P. Flynn, M.B. Salamon. Synthesis and properties of single crystal nanostructures. *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earth*. V. 22 / Ed. K.A. Gschneidner, L. Eyring. North-Holland, Amsterdam (1996). Ch. 147.