Однонаправленная анизотропия в пленочных системах (*RE*-*TM*)/NiFe

© В.А. Середкин, Р.С. Исхаков, В.Ю. Яковчук, С.В. Столяр*, В.Г. Мягков

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия * Красноярский государственный университет, 660041 Красноярск, Россия

E-mail: sva@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 12 августа 2002 г. В окончательной редакции 14 октября 2002 г.)

> Исследованы квазистатические магнитные характеристики двухслойных обменно-связанных пленок TbFe/NiFe и DyCo/NiFe, обладающих однонаправленной анизотропией. Обнаружены характерные температуры, при которых наблюдается исчезновение однонаправленной анизотропии, связанное с процессами, происходящими в магнитожестком слое. Анализируются механизмы возникновения однонаправленной анизотропии, связанные с наличием гетерофазности в магнитожестком слое.

Работа выполнена при поддержке фонда ККФН-РФФИ (грант № 02-02-97717).

Явление однонаправленной анизотропии в ферромагнетиках, проявляющееся в смещении петли магнитного гистерезиса вдоль оси полей, было открыто Майклджоном и Бином в окисленных порошках кобальта [1]. Тогда же была установлена физическая причина этого явления. Как оказалось, причиной однонаправленной анизотропии выступает обменное взаимодействие на границе раздела ферромагнетик/антиферромагнетик при условии коллинеарной ориентации намагниченностей ферромагнетика и одной из подрешеток антиферромагнетика. Детально этот эффект исследовался на пленочных системах NiFe/NiFeMn и NiFe/FeMn [2-4]. В [5,6] впервые были получены двухслойные системы (*RE-TM*)/NiFe, где (*RE*-*TM*) DyCo или TbFe — ферромагнетик с перпендикулярной магнитной анизотропией (ПМА), NiFe ферромагнетик (пермаллой) с одноосной анизотропией и намагниченностью в плоскости образца. Такие системы непосредственно после напыления (без отжига) также обладают однонаправленной анизотропией, причем величина смещения петли гистерезиса NiFe по оси полей (ΔH) намного превосходит величины, наблюдавшиеся в [1-4] (рис. 1, *a*).

Удивительным оказалось следующее обстоятельство. Согласно существующим сегодня представлениям о магнитной структуре ферримагнитных сплавов компенсационных составов RE-TM, в исследованных нами двухслойных пленках (RE-TM)/NiFe ориентации векторов эффективных намагниченностей индивидуальных слоев взаимно ортогональны и, следовательно, обменно не связаны. Поэтому наблюдаемые особенности кривых перемагничивания слоя NiFe в этих двухслойных системах интерпретироваться в рамках известных представлений не могут.

Настоящая работа посвящена исследованию статических магнитных свойств, а также температурных зависимостей статических магнитных характеристик в двухслойных обменно-связанных пленках DyCo/NiFe, TbFe/NiFe с однонаправленной анизотропией, предпринятому с целью установления реальной магнитной микроструктуры пленок ферримагнитных сплавов RE-TMкомпенсационных составов. Отметим, что тонкие ферримагнитные пленки сплавов RE-TM, получаемые в широкой области концентраций в виде твердых раство-



Рис. 1. Типичная кривая перемагничивания (a) и кривые вращательных моментов (b) пленочной системы RE-TM/NiFe (1) и NiFe (2).

ров, характеризуются магнитной компенсацией, изображаемой на плоскости концентрация-температура линией $x_c(T_c)$, вблизи которой данные материалы становятся наиболее магнитожесткими. В области температуры Т_с в таких пленках обычно наблюдаются аномалии: ступенчатые кривые намагничивания, аномальные магнитооптические кривые, аномальные холловские зависимости и т.д., не получившие до сих пор должного объяснения. Необходимость дальнейшей интерпретации экспериментального материала требует поиска новых подходов к исследованиям тонких пленок ферримагнитных сплавов RE-TM. На наш взгляд, для этой цели может быть использован второй слой с известными магнитными свойствами. Поэтому исследование магнитных явлений в двухслойных пленках (RE-TM)/NiFe для компенсационных составов (*RE*-*TM*) представляет общефизический интерес.

1. Образцы и методика эксперимента

Двухслойные обменно-связанные пленки (RE-TM)/NiFe получены методом термического испарения в вакууме $\sim 3 \cdot 10^{-6}$ Torr. В качестве подложек использовались покровные стекла. Последовательное напыление слоев RE-TM и NiFe производилось из трех независимых испарителей с кольцевым катодом. Ферримагнетик (ТbFe или DyCo) представлял собой пленку с перпендикулярной магнитной анизотропией $\sim 3-5\cdot 10^5 \, {\rm erg/cm^3}$ и коэрцитивной силой, равной $\sim 5-7\,\mathrm{kOe}$. Исследования, выполненные ранее методом электронной микроскопии [7,8], свидетельствуют, что ферримагнитный слой представляет собой аморфный или нанокристаллический сплав с размером зерна ~ 5 nm, ферромагнетик — пленку NiFe с одноосной анизотропией в плоскости образца. Для формирования одноосной анизотропии в NiFe в процессе напыления в плоскости образца прикладывалось постоянное магнитное поле 20 Ое. Толщина ферримагнетика (h) составляла 70 nm, а толщина NiFe варьировалась от 50 до 700 nm. Двухслойные образцы получены в разных последовательностях: 1 — слой ферримагнетика или докомпенсационного послекомпенсационного состава напылялся непосредственно на подложку, затем напылялся слой NiFe; 2 — непосредственно на подложку напылялся слой NiFe, а на него напылялся слой ферримагнетика. Следует отметить, что для случая 1 размер кристаллитов в слое NiFe составляет $\sim 10 - 15 \, {\rm nm}$, так как здесь на формирование кристаллической структуры пермаллоевого слоя существенное влияние оказывает аморфность (нанокристалличность) слоя ферримагнетика (TbFe, DyCo).

Статические магнитные параметры кривых перемагничивания, а также их температурные зависимости измерялись на петлескопе в полях до 250 Ое на частоте 50 Hz. Измерения вращательных механических моментов при комнатной температуре проводились на крутильном магЧисленные значения коэрцитивной силы и поля смещения двухслойных пленок DyCo/NiFe для различных толщин NiFe

| Толщина, nm | H_c , Oe | ΔH , Oe |
|-------------|------------|-----------------|
| 50 | 4 | 60 |
| 100 | 2.5 | 26 |
| 150 | 1.5 | 14 |
| 300 | 0.7 | 6 |
| 400 | 0.4 | 4 |
| 700 | 0.3 | 2 |

нитометре в полях до 12 kOe. В указанных методиках в процессе измерений перемагничивающее поле прикладывалось в плоскости образца, а ферримагнитный слой RE-TM всегда находился в насыщенном состоянии (при комнатной температуре).

Предварительно был проведен широкий технологический поиск с целью оптимизации процесса получения пленочных структур с обменной однонаправленной анизотропией. Наиболее приемлемые с точки зрения практического применения величины изучаемых параметров получены для ферромагнитных пленок с содержанием никеля (Ni) — 80–83%, т. е. для стандартных пермаллоев с нулевой магнитострикцией.

В таблице приведены значения магнитных параметров полученных нами двухслойных пленок DyCo/NiFe с обменной однонаправленной анизотропией в зависимости от толщины ферромагнитного слоя.

2. Экспериментальные результаты

На крутильном магнитометре при комнатной температуре были измерены зависимости механических моментов L от угла φ для двухслойной системы DyCo/NiFe с однонаправленной анизотропией и пленок NiFe с одноосной анизотропией (рис. 1, *b*). Аналогичные зависимости получены и для систем с ферримагнетиком TbFe.

Из измерений зависимости $L(\varphi)$ в диапазоне углов от 0 до 360° можно вычислить константы одноосной и однонаправленной анизотропии K_u и K_o соответственно. Воспользуемся простым методом расчета величин K_u и K_o . Для константы одноосной анизотропии получим выражение

$$\frac{L(\varphi) + L(\varphi + \pi)}{2} = K_u \sin 2\varphi, \qquad (1)$$

а для константы однонаправленной анизотропии

$$\frac{L(\varphi) - L(\varphi + \pi)}{2} = K_o \sin 2(\varphi - \gamma_o), \qquad (2)$$

где γ_o — угол между осью легкого намагничивания (ОЛН) и направлением однонаправленной анизотропии.

Численные значения K_u и K_o , а также их зависимости от толщины слоя NiFe для обменно-связанных систем с однонаправленной анизотропией DyCo/NiFe, TbFe/NiFe приведены на рис. 2.



Рис. 2. Зависимость констант одноосной (K_u) и однонаправленной (K_o) анизотропии пленочной системы (RE-TM)/NiFe от толщины NiFe.

Как следует из приведенных на рисунке результатов, константы одноосной и однонаправленной анизотропии пленочных систем TbFe/NiFe и DyCo/NiFe имеют сходный характер зависимости от толщины пленки NiFe.

Выше было отмечено, что в отличие от [2–4] полученные нами двухслойные обменно-связанные пленки имеют резкую границу между слоями, следовательно, удельная энергия поверхностного взаимодействия E_S у всех образцов должна быть одинакова и не должна зависеть от толщины слоя NiFe (в то же время величина однонаправленной анизотропии обратно пропорциональна толщине слоя NiFe [9]). Отметим также, что эффективная магнитная толщина поверхностного обменного взаимодействия между слоями $\Delta h_{\rm eff}$, вычисленная нами в работе [10], составляет ~ 50 nm.

Температурные исследования зависимостей коэрцитивной силы H_c и поля смещения ΔH для двухслойных пленок (RE-TM)/NiFe с однонаправленной анизотропией при перемагничивании переменным полем выполнены в диапазоне температур от 20 до +140°C, причем магнитное поле прикладывалось как в направлении ОЛН, так и в направлении оси трудного намагничивания (ОТН) слоя NiFe (рис. 3, 4). Следует отметить, что в важном с точки зрения практического применения интервале температур от -50 до +60°C величины статических магнитных параметров H_c и ΔH изменяются незначительно.

Из кривых, представленных на рис. 3,4, видно, что существует некоторая температура (~ 60 и ~ 90°С для TbFe/NiFe и DyCo/NiFe соответственно), при которой наблюдается резкое изменение величин H_c и ΔH , а также почти полное исчезновение однонаправленной анизотропии, т.е. петля гистерезиса становится практически симметричной относительно нулевого значения поля.

При перемагничивании вдоль ОТН петля гистерезиса слоистой пленочной системы TbFe/NiFe не раскрыта и имеет практически симметричный вид относительно нуля прикладываемого поля *H*. При нагревании пленочной системы от комнатной температуры до 90°C магнитная



Рис. 3. Температурный цикл нагрев-охлаждение для пленочной системы TbFe/NiFe: *а* — вдоль ОЛН, *b* — вдоль ОТН.



Рис. 4. То же, что на рис. 3, для DyCo/NiFe: *a* — вдоль ОЛН, *b* — вдоль ОТН.

система не претерпевает никаких изменений. В области $\sim 90^{\circ}$ наблюдается резкое раскрытие петли гистерезиса, характеризующееся коэрцитивной силой H_c^* . В [11] наблюдался аналогичный характер изменения коэрцитивной силы пленок DyCo при их нагревании и перемагничивании вдоль ОТН. По сравнению с пленочной системой с TbFe для системы DyCo/NiFe такой же переход происходит при более высокой температуре ($\sim 100^{\circ}$ C).

3. Обсуждение результатов

Полученные двухслойные пленки нами Dy22Co78/Ni81Fe19 являются обменно-связанными системами. Петли гистерезиса, снятые со слоя NiFe в направлении оси легкого намагничивания, характеризуются полем смещения ΔH , численные значения которого определяются толщинами индивидуальных слоев (см. таблицу). В то же время наличие большой перпендикулярной магнитной анизотропии в магнитожестком ферромагнитном слое DyCo, а также одинаковость магнитооптических характеристик, полученных с разных поверхностей одноосной пленки DyCo, указывает на то, что для реализации необходимого обменного поля в ферромагнитной пленке NiFe в слое DyCo должны существовать перколяционные области, выходящие на его внешние поверхности. В этих областях вектор намагниченности "подрешетки атомов Со" должен быть расположен в плоскости пленки. Обменное взаимодействие данных областей с пермаллоем приводит, по нашему мнению, к однонаправленной обменной анизотропии. Таким образом, статические магнитные характеристики слоя сплава NiFe являются индикатором магнитной микроструктуры слоя сплава DyCo.

Мы считаем, что магнитная неоднородность сплава DyCo (наличие областей, составляющих большую часть сплава, в которых вектор намагниченности "подрешетки атомов Со" перпендикулярен плоскости пленки, и существование областей, в которых вектор намагниченности "подрешетки атомов Со" параллелен плоскости пленки) является следствием гетерофазности данных сплавов. Действительно, согласно результатам (микрофотографиям), полученным с использованием электронной микроскопии, тонкие пленки сплава DyCo [7,8], являются аморфным либо нанокристаллическим гетерофазным сплавом. Для ответа на вопрос, каков локальный фазовый состав исследуемых пленок гетерофазного сплава DyCo, необходимо рассмотреть термодинамически стабильную фазовую диаграмму кристаллических сплавов DyCo. Отметим, что диаграммы состояний плавкости сплавов RE (Ho, Tb, Dy, Er, Gd и т.д.)–TM (Fe, Co) похожи, и на них представлен ряд стехиометрических соединений: *RE*₂*TM*₁₇, *RETM*₅, *RE*₂*TM*₇, *RETM*₃, *RETM*₂, RE₄TM₃ [12]. Отличие заключается лишь в температурном интервале стабильности этих стехиометрических соединений.



Рис. 5. Схематическое изображение участка фазовой диаграммы (a) и предполагаемая конфигурация векторов намагниченности фаз (b) в системе DyCo/NiFe.

На рис. 5, а схематически показан участок фазовой диаграммы при комнатной температуре в координатах (G, C), где G — термодинамический потенциал Гиббса, С — концентрация, в интервале составов, близких к составу исследуемых нами пленок. Здесь приведены термодинамические потенциалы G_i, изображенные в виде парабол, соответствующие стехиометрическим соединениям DyCo5, Dy2Co7, DyCo3. Линия, описывающая значение потенциала Гиббса расплава (жидкой фазы), отмечена штрих-пунктиром. При переводе кристаллического сплава в аморфное либо нанокристаллическое состояние происходит, во-первых, увеличение абсолютных значений потенциалов, во-вторых, уширение парабол, описывающих значения потенциалов G_i индивидуальных фаз. Суперпозиция кривых G_i для сплавов в нанокристаллическом состоянии на рис. 5, а изображена жирной линией. Состав исследованных нами пленок сплава DyCo на диаграмме рис. 5, а указан стрелками. Линия АВ демонстрирует возможный фазовый состав реализующейся механической смеси фаз Φ_1 и Φ_2 . Поскольку стехиометрические соединения DyCo₅, Dy₂Co₇, DyCo₃ имеют схожие плотноупакованные структуры [12], кристаллические структуры фаз Φ_1 и Φ_2 также близки. Однако, в отличие от кристаллических структур стехиометрических соединений DyCo₅, Dy₂Co₇, DyCo₃, их магнитные характеристики при комнатной температуре существенно различаются [12,13]. При комнатной температуре в кристалле DyCo₅ намагниченность подрешетки атомов Co больше намагниченности подрешетки атомов Dy, $M_{\rm Co} > M_{\rm Dy}$. B случае кристалла DyCo₃ ситуация обратная.

Итак, предположим, что доминирующей фазой в пленках DyCo является фаза Ф₂, у которой при комнатной температуре $M_{\rm Dv} > M_{\rm Co}$. Суммарная намагниченность М_s этой фазы ортогональна плоскости пленки. Именно это фаза, по нашему мнению, формирует интегральные магнитные характеристики пленки сплава Dy₂₂Co₇₈. В фазе Φ_1 , являющейся примесной, $M_s = M_{Co} - M_{Dy}$. Возможно, что ближний порядок фазы Φ_1 близок стехиометрическому соединению DyCo5. Малый размер зерна (~ 5 nm) нанокристаллического гетерофазного сплава и наличие обменного взаимодействия между подрешетками атомов Со фаз Φ_1 и Φ_2 приводят к тому, что $M_{\rm Co}$ фазы Φ_1 параллельна плоскости исследуемых пленок. Предполагаемая конфигурация векторов намагниченностей 3d металлов в двухслойных пленках Dy₂₂Co₇₈/Ni₈₁Fe₁₉ приведена на рис. 5, b. Обменное взаимодействие между намагниченностью слоя Ni₈₁Fe₁₉ и $M_{\rm Co}$ фазы Φ_1 является причиной существования однонаправленной обменной анизотропии в двухслойных пленках Dy₂₂Co₇₈/Ni₈₁Fe₁₉.

Теперь обсудим температурные зависимости поля смещения $\Delta H(T)$. Приведенные на рис. 4 кривые $\Delta H(T)$ достаточно убедительно фиксируют особенность при $T \sim 90^{\circ}$ С. Необходимо обратить внимание на то, что при температуре компенсации ферримагнитного магнитожесткого слоя Dy₂₂Co₇₈ ($T_c \sim 27^{\circ}$ С) никаких особенностей на зависимостях $\Delta H(T)$ не регистрируется. Это еще раз косвенно указывает на то обстоятельство, что температура компенсации определяется фазой Φ_2 , у которой $M_{\rm Co}$ ортогональна плоскости пленки и, следовательно, не участвует в обменном взаимодействии с намагниченностью слоя сплава пермаллоя.

Исчезновение сдвига петли гистерезиса слоя Ni₈₁Fe₁₉ при $T > 90^{\circ}$ С указывает на то, что выше данной температуры плоскостная проекция $M_{\rm Co}$ фазы Φ_1 существенно уменьшается. Мы считаем, что это обусловлено магнитным фазовым переходом в фазе Ф₁. При данной температуре возможен, на наш взгляд, ряд магнитных превращений: 1 — переход фазы Φ_1 в парамагнитное состояние (температура Кюри); 2 — T ~ 90°С является точкой компенсации фазы Φ_1 ; 3 — при $T \sim 90^{\circ}$ С происходит ориентационный фазовый переход, при котором намагниченность фазы Ф1 выходит из плоскости пленки и устанавливается параллельно оси Z. Подобные фазовые переходы характеры для стехиометрических соединений RE_xTM_y [14]. Для идентификации особенностей магнитного превращения в пленках сплава Dy₂₂Co₇₈ при $T \sim 90^{\circ}$ С необходимо привлечение дополнительных экспериментальных методик.

Таким образом, в данной работе исследованы статические магнитные характеристики двухслойных обменно-связанных пленок DyCo/NiFe, TbFe/NiFe, обладающих однонаправленной анизотропией. Слой NiFe представляет собой магнитомягкий ферромагнитный сплав, у которого ось легкого намагничивания расположена в плоскости пленки. Слой ферримагнетика DyCo, характеризующийся интегральной перпендикулярной анизотропией, представляет собой гетерофазную нанокристаллическую систему, состоящую как минимум из двух фаз. Вектор намагниченности подрешетки 3d металла одной из составляющих гетерофазного ферримагнитного сплава параллелен плоскости пленки. Наличие обменного взаимодействия между намагниченностью слоя пермаллоя и плоскостной составляющей вектора намагниченности гетерофазного магнитожесткого сплава, на наш взгляд, является причиной существования однонаправленной анизотропии в исследуемых пленках. Регистрируемый магнитный переход при $T \sim 90^{\circ} \text{C}$ (при которой исчезает однонаправленная анизотропия в исследуемых двухслойных пленках) происходит в одной из составляющих нанокристаллического гетерофазного сплава Dy₂₂Co₇₈. Данное магнитное превращение на пленках сплава DyCo регистрируется впервые. Для выяснения его природы необходимо использовать дополнительные методы исследования.

Список литературы

- [1] W.H. Meiklejohn, C.P. Bean. Phys. Rev. 105, 3, 904 (1957).
- [2] А.А. Глазер, Р.И. Тагиров, А.П. Потапов, Я.С. Шур. ФТТ 8, 10, 3022 (1966).
- [3] А. Йелон. Физика магнитных пленок. Мир, М. (1973). Т. 6. 228 с.
- [4] В.С. Горнаков, В.И. Никитенко, А.И. Шапиро, Р.Д. Шул, Кай Лу, Н.Дж. Гекемейер, С.Л. Чен. В сб. трудов XVII Межд. школы-семинара "Новые магнитные материалы микроэлектроники". МГУ, М. (2000).
- [5] В.А. Середкин, Г.И. Фролов, В.Ю. Яковчук. Письма в ЖТФ 9, 23, 1446 (1983).
- [6] В.В. Поляков, Г.И. Фролов, А.Г. Владимиров, В.Ю. Яковчук. Тез. докл. VII Всесоюзной конференции "Проблемы магнитных измерений и магнитоизмерительной аппаратуры". Л. (1990). С. 97.
- [7] Л.И. Вершинина, Н.Д. Захаров, С.З. Склюев, Г.И. Фролов, В.Ю. Яковчук. ФММ 66, 2, 278 (1988).
- [8] Е.М. Артемьев, Л.И. Вершинина, В.Г. Мягков, С.З. Склюев, Г.И. Фролов, В.Ю. Яковчук. ФММ 2, 77 (1990).
- [9] В.А. Середкин, Г.И. Фролов, В.Ю. Яковчук. ФММ 63, 3, 457 (1987).
- [10] Р.С. Исхаков, В.Ю. Яковчук, С.В. Столяр, Л.А. Чеканова, В.А. Середкин. ФТТ 43, 8, 1462 (2001).
- [11] Г.В. Попов, В.А. Середкин, Г.И. Фролов, В.Ю. Яковчук. ФММ 2, 61 (1990).
- [12] Е.М. Савицкий, В.Ф. Терехова. Металловедение редкоземельных металлов. Наука, М. (1975). 271 с.
- [13] Е.В. Щербакова, А.С. Ермоленко. ФММ 59, 2, 344 (1985).
- [14] А.С. Ермоленко, Е.В. Розенфельд, Ю.П. Ирхин, В.В. Келарев, А.Ф. Рожда, С.К. Сидоров, А.Н. Пирогов, А.П. Вохмятин. ЖЭТФ 69, 1743 (1975).