# Влияние толщины слоев на магнитные свойства и структурное состояние тербия в составе многослойных пленок [Tb/Ti]<sub>n</sub> и [Tb/Si]<sub>n</sub>

© А.В. Свалов,<sup>1</sup> В.О. Васьковский<sup>1</sup>, Н.Н. Щеголева,<sup>1</sup> Г.В. Курляндская<sup>1,2</sup>

 Уральский государственный университет им. А.М. Горького, 620083 Екатеринбург, Россия
 Университет Овиедо, 33007 Овиедо, Испания e-mail: andrey.svalov@usu.ru

(Поступило в Редакцию 23 августа 2004 г. В окончательной редакции 10 ноября 2004 г.)

Представлены результаты экспериментальных исследований объемной и поверхностной структур и магнитных свойств слоев Tb в составе многослойных пленок  $[Tb/Ti]_n$  и  $[Tb/Si]_n$ . Установлено, что с уменьшением толщины магнитных слоев происходит аморфизация Tb. Она сопровождается снижением температуры магнитного упорядочения и смещением температурного интервала магнитного гистерезиса, которое в методике ZFC-FC отражает разрушение кристаллической магнитной анизотропии. Определенную роль в этих изменениях играет материал немагнитных прослоек, разделяющих слои Tb.

## Введение

05:06:12

Малоразмерные объекты являются одним из приоритетов современного магнетизма. К таким объектам, в частности, относятся тонкие магнитные пленки, среди которых заметное место занимают пленки редкоземельных металлов. Они несут информацию о специфике косвенного обемнного взаимодействия и других фундаментальных свойств 4f-магнетиков в тонкопленочном состоянии [1,2], а также имеют перспективы практического применения в составе многослойных структур [3,4]. Наиболее исследованными в этом отношении являются пленки гадолиния [5–7], который среди редкоземельных металлов обладает наибольшей температурой Кюри. Несколько меньшей температурой магнитного упорядочения характеризуется тербий, но в отличие от гадолиния его атомы имеют несферичную электронную оболочку. Это служит предпосылкой высокой магнитной анизотропии, наличие которой определяет значительный практический потенциал Тb-содержащих пленочных сред. Данная работа посвящена изучению связи структурного состояния и магнитных свойств слоев Tb, включенных в состав многослойных пленок [Tb/Ti]<sub>n</sub> и  $[Tb/Si]_n$ .

## Образцы и методика эксперимента

Пленки были приготовлены на стеклянных подложках методом ионного высокочастотного распыления при скорости осаждения различных материалов ~ 0.1 nm/s. Предварительный вакуум в рабочей камере составлял  $1 \cdot 10^{-6}$  Torr, давление аргона во время горения разряда —  $2 \cdot 10^{-4}$  Torr. Образцы формировались путем последовательного осаждения слоев Tb различной толщины ( $h_{\rm Tb} = 2.5 \div 600$  nm) и прослоек немагнитного материала (Ti или Si), толщина которых составляла 2 nm. Общая толщина магнитной компоненты в многослойных образцах была постоянной (~ 200 nm). Каждый из образцов

имел буферный подслой и изолирующее покрытие из немагнитного материала.

Измерение магнитных свойств пленок выполнено на вращательном анизометре в диапазоне температур 80–300 К. Для анализа толщины образцов и морфологии поверхности пленок использовался атомный силовой микроскоп. Сведения о параметрах кристаллической структуры получены с помощью электронного микроскопа на менее толстых образцах (до 50 nm), осажденных на сколы кристаллов NaCl.

## Результаты и обсуждение

На рис. 1 показаны зависимости вращающего механического момента L от температуры T для однослойной пленки Tb (a) с  $h_{\text{Tb}} = 600$  nm и многослойных пленок  $[\text{Tb/Ti}]_n$  (b-d) и  $[\text{Tb/Si}]_n$  (e,f) с разной толщиной магнитных слоев. Кривые L(T) получены при увеличении T для двух исходных состояний каждого из образцов. Эти состояния реализованы путем охлаждения образцов без магнитного поля (ZFC -кривые 2) или в присутствии магнитного поля (FC -кривые 1), которое было ориентировано под углом 45° к плоскости пленок и имело напряженность 1 kOe. В аналогичном магнитном поле проводились измерения L.

Как видно из рис. 1, для большинства исследованных образцов характерен сильный термомагнитный гистерезис вращающего момента. Он проявляется при T < 200 К и фактически отражает гистерезис в температурном изменении намагниченности. Такая особенность свойств, присущая в частности, спиновым стеклам [8], по-видимому обусловлена высокой кристаллической магнитной анизотропией, которой обладает тербий в области низких температур [9]. При охлаждении в магнитном поле из неупорядоченного магнитного состояния (режим FC) в слоях Тb возникает магнитная текстура, которая задает остаточную намагниченность и определенный вращающий момент. Режим ZFC приводит к



**Рис. 1.** Зависимости вращающего механического момента от температуры для однослойной пленки Tb толщиной 600 nm (*a*) и многослойных пленок  $[Tb/Ti]_n$  (*b*-*d*) и  $[Tb/Si]_n$  (*e*, *f*) с разной толщиной магнитных слоев  $h_{Tb}$ : 20 (*e*); 10 (*b*, *f*); 5 (*c*); 2.5 nm (*d*). Зависимости получены по методике *FC* (1)-ZFC (2)

размагниченному состоянию. Ниже температуры  $T_f$ , при которой выявляется различие между кривыми I и 2, использованное в эксперименте магнитное поле мало́ для эффективного намагничивания образцов. Отсюда пониженная намагниченность и соответственно меньший вращающий момент образцов.

Примечательно, что температура  $T_f$  варьируется в зависимости от толщины магнитных слоев и материала разделяющих их немагнитных прослоек. На рис. 2 (кривая 1) представлена зависимость  $T_f(h_{\text{Tb}})$ , которая показывает, что термомагнитный гистерезис при утончении слоев за счет введения немагнитных прослоек Ti смещается в область меньших температур. Для образца  $[\text{Tb}(2.5)/\text{Ti}]_{60}$  он вообще отсутствует во всем рассматриваемом температурном интервале (рис. 1, *d*). Не исключено, что при такой толщине слоев Tb ( $h_{\text{Tb}} = 2.5 \text{ nm}$ ) величина  $T_f$  становится меньше 80 К. Подобная картина наблюдается и в пленках  $[\text{Tb/Si}]_n$  с той только разницей, что температурный гистерезис становится малозаметным уже при  $h_{\text{Tb}} = 10 \text{ nm}$  (рис. 1, *f*).

На рис. 2 (кривые 2, 3) показаны также зависимости температуры магнитного упорядочения  $T_{ord}$  от толщины слоев Тb. Величина  $T_{ord}$  оценивалась из кривых L(T) путем линейной экстаполяции высокотемпературных

 $(T > T_f)$  участков до нулевого значения *L*. Несмотря на большую погрешность такой методики (±5 K), полученные данные позволяют констатировать постоянный уровень  $T_{ord}$  в широкой области  $h_{Tb}$ . Однако при толщине слоев Tb менее 10 nm в образцах [Tb/Ti]<sub>n</sub> или менее 20 nm в образцах [Tb/Si]<sub>n</sub> имеет место довольно сильное уменьшение  $T_{ord}$ . Подобная закономерность наблюдалась ранее в слоистых пленках Gd [7] при утончении магнитных слоев и была отнесена на счет нарастания микродеформаций кристаллической решетки, приводивших в конечном счете к аморфизации пленок. Соответствующее исследование Tb-содержащих слоистых пленок также выявило корреляцию между структурным состоянием и толщиной слоев Tb.

На рис. 3 в качестве примера приведены дифрактограммы и изображения микроструктуры для двух пленок  $[Tb/Si]_n$  с различной толщиной слоев Tb: 5 (*a*) и  $20\,\mathrm{nm}~(b,c)$ . Налицо существенное различие в их структурных характеристиках. Образец с тонкими слоями Tb не имеет выраженных линий на дифрактограмме и дает мелкую рябь в темнопольном изображении (рис. 3, *a*). То и другое являются явными признаками аморфного состояния. Второй образец пребывает в поликристаллическом состоянии. Об этом можно судить об оформленной системе дифракционных линий и присутствию в темнопольном изображении ярких пятен, образованных областями когерентного рассеяния. Соответствующий анализ показывает, что они относятся к ГПУ кристаллической решетки Тb. Типичный размер кристаллитов составляет 5-10 nm.

Таким образом, для Tb, как и для Gd, по мере уменьшения толщины слоев наблюдается переход от мелкокристаллического к аморфному состоянию. Причем радикальный структурные преобразования протекают в диапазоне  $h_{\rm Tb}$  от 20 до 5 nm. Как было показано выше, именно при этих толщинах наблюдается и значительное изменение магнитных свойств, в частности уменьшение



**Рис. 2.** Зависимости температуры магнитного упорядочения  $T_{\text{ord}}$  ( $\blacktriangle$ , •) и температуры возникновения термомагнитного гистерезиса  $T_f$  ( $\triangle$ ,  $\circ$ ) от толщины слоев Tb многослойных пленок [Tb/Ti]<sub>n</sub> ( $\bigstar$ ,  $\triangle$ ) и [Tb/Si]<sub>n</sub> ( $\bullet$ ,  $\circ$ ).

Журнал технической физики, 2005, том 75, вып. 7



**Рис. 3.** Изображения микроструктуры и дифрактограммы пленок  $[Tb/Si]_n$ , полученные на электронном микроскопе в темном поле (a, b) и светлом поле (c) при разной  $h_{Tb}$ : a - 5; b, c - 20 nm. Кружками отмечены положения диаграммы при формировании темнопольных изображений; цифры — значения межплоскостных расстояний, соответствующие центрам выделенных дифракционных рефлексов.

температуры *T*<sub>ord</sub>. Отсюда можно заключить, что именно аморфизация приводит к эффективному ослаблению обменного взаимодействия. Это не удивительно, поскольку флуктуации межатомных расстояний, накладываясь на осциллирующую с расстоянием энергию обменного взаимодействия РЗМ, фрустрируют систему атомных магнитных моментов. Однако в этом содержится и отличие пленок Tb от пленок Gd, в которых заметное снижение  $T_{ord}$  имеет место уже в рамках кристаллической фазы при достаточно высоком уровне дефектности последней [7].

Наряду с Tord структурно-чувствительной величиной представляется и температура  $T_f$ . Ее снижение при аморфизации указывает на связь термомагнитного гистерезиса с кристаллической магнитной анизотропией, которая разрушается при структурном превращении. В литературе имеются сведения о спин-стекольном поведении некоторых аморфных сигналов, содержащих тербий: Tb-Cr [10], Tb<sub>90</sub>Si<sub>10</sub> [11], Tb [12]. Однако характерное значение температуры T<sub>f</sub> для них составляет ~ 50 К. В перечисленных случаях термомагнитный гистерезис связывается с дисперсией локальной магнитной анизотропии, которой обладают ионы Tb из-за несферичности 4*f*-электронной подоболочки. Вероятно, ее параметры имеют иную температурную зависимость по сравнению с макроскопической магнитной анизотропией, обусловливающей термомагнитный гистерезис в поликристаллических слоях Тb. Отсюда и существен другой, в частности меньший, уровень T<sub>f</sub>, свойственный аморфному состоянию.

Как отмечалось выше и видно из рис. 1 и 2, определенную роль в изменении магнитных свойств слоев



**Рис. 4.** Изображения поверхности образцов и величины дисперсии амплитуды шероховатости  $R_{rms}$  для образцов  $[Ti/Tb (10 nm)]_{20} (a)$  и  $[Si/Tb (10 nm)]_{20} (b)$ .

Ть с толщиной играет материал немагнитных прослоек. В частности, в пленках, содержащих прослойки Si, тенденции к ослаблению магнетизма и разрушению кристаллической магнитной анизотропии начинают проявляться при несколько бо́льших h<sub>Tb</sub>, чем в пленках с прослойками Ті. Это может быть следствием межслойной диффузии и образования переходных областей переменного состава. Причем примесь Si — эффективного аморфизатора в большей степени способствует деградации кристаллического состояния Tb, чем примесь Ті. Кроме того, не исключены различия в глубине проникновения немагнитных атомов разного сорта в Тb или в морфологии немагнитных прослоек из разных материалов. Некоторые сведения по указанному вопросу можно получить из анализа структуры поверхности пленок, полагая, что она в определенной степени отражает состояние межслойных границ.

На рис. 4 показаны изображения поверхностей пленок  $[Tb(10 \text{ nm})/Ti]_{20}$  (*a*) и  $[Tb(10 \text{ nm})/Si]_{20}$  (*b*), полученные с помощью атомного силового микроскопа. Видно их существенное различие: рельеф поверхности образца с прослойками Si содержит более крупные элементы, чем образец с прослойками Ti. Соответсвующим образом соотносятся и величины дисперсии амплитуды шероховатости  $R_{rms}$  (рис. 4), характеризуя поверхность образца  $[Tb(10 \text{ nm})/Ti]_{20}$  как более гладкую. Эти различия, в частности, можно интерпретировать как показатель большего эффективного перемешивания Si и Tb на границе слоев, приводящего к более эффективной аморфизации редкоземельного металла.

#### Заключение

Проведенное исследование показывает, что в Tb, входящем в состав многослойных пленок  $[Tb/Ti]_n$  и  $[Tb/Si]_n$ , при уменьшении толщины магнитных слоев в области  $h_{Tb} < 20$  nm происходит структурный переход из мелкокристаллического в аморфное состояние. Он сопровождается уменьшением температуры магнитного упорядочения и ослаблением термомагнитного гистерезиса, которое в свою очередь свидетельствует о разрушении кристаллической магнитной анизотропии. На эффективность структурных и магнитных преобразований влияет материал немагнитных прослоек, разделяющих слои Tb. В частности, кремний способствует образованию аморфного состояния и изменению магнитных свойств Tb при большей толщине слоев.

Авторы благодарны И. Гойкурия (Университет Страны Басков, Бильбао, Испания) за помощь в проведении АСМ исследований.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 04-02-16485а), программы "Университеты России" (проект ур.01.01.060) и программы "Ramon у Cajal" Министерства науки и техники Испании.

#### Список литературы

- Dufour C., Dumesnil K., Mougin A. et al // J. Phys. 1997. Vol. 9. N 9. P. L131–L136.
- [2] Hindmarch A.T., Hickey B.J. // J. Phys. Rev. Lett. 2003. Vol. 91. N 11. P. 116 601 (4).
- [3] Tsunshima S. // J. Magn. Magn. Mater. 1996. Vol. 156. N 1–3.
  P. 283–286.
- [4] Shan Z.S., Sellmyer D.J. // Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths. Vol. 22. Amsterdam. 1996. P. 81.
- [5] Majkrzak C.F., Cable J.W., Kwo J. et al // J. Appl. Phys. 1987. Vol 61. N 8. P. 4055–4057.
- [6] Farle M. // Rep. Prog. Phys. 1998. Vol. 61. P. 755–793.
- [7] Васьковский В.О., Свалов А.В., Горбунов А.В. и др. // ФТТ. 2001. Т. 43. Вып. 4. С. 672–677.
- [8] Huang C.Y. // J. Magn. Magn. Mater. 1985. Vol. 51. N 1–3. P. 1–74.
- [9] Никитин С.А. // Магнитные свойства редкоземельных металлов и их сплавов. М.: Московский ун-т, 1989. 248 с.
- [10] Stognei O.V., Rapp Ö. // J. Magn. Magn. Mater. 1999. Vol. 196–197. P. 266–268.
- [11] Hauser J.J. // Phys. Rev. B. 1986. Vol. 34. N 5. P. 3212-3215.
- [12] *Hauser J.J.* // Sol. St. Commun. 1985. Vol. 55. N 2. P. 163–166.