

05,12

## Температурная зависимость магнитных свойств и магнитополевого поведения тонкопленочных трехслойных Co/Gd/Co систем

© А.М. Харламова<sup>1</sup>, А.В. Макаров<sup>1</sup>, А.В. Свалов<sup>2</sup>, Е.Е. Шалыгина<sup>1,¶</sup>

<sup>1</sup> Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

<sup>2</sup> Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

¶ E-mail: Shalygina.ee@gmail.com

Поступила в Редакцию 3 июня 2021 г.

В окончательной редакции 3 июня 2021 г.

Принята к публикации 3 июня 2021 г.

Представлены результаты исследований температурных зависимостей магнитных свойств и магнитополевого поведения тонкопленочных трехслойных Co/Gd/Co систем, полученных методом ионно-плазменного магнетронного распыления. Толщина слоев кобальта равна 5.0 nm, а слоев Gd,  $t_{Gd}$ , изменяется от 3.0 до 10.0 nm. Объемные магнитные характеристики образцов измерены на вибрационном магнитометре при ориентации внешнего магнитного поля параллельно плоскости образцов. Обнаружено влияние температуры и толщины Gd слоя на форму петель гистерезиса, значения магнитного момента  $m$  и коэрцитивной силы  $H_C$ . В частности, при изменении температуры от 100 до 300 K наблюдается уменьшение коэрцитивной силы, а при температуре больше 150 K увеличение магнитного момента. С ростом толщины гадолиния значение  $m$  уменьшается.

**Ключевые слова:** магнитные свойства, магнитополевого поведение, низкотемпературные измерения, редкоземельные металлы, тонкопленочные структуры.

DOI: 10.21883/FTT.2021.10.51402.136

### 1. Введение

Исследования тонкопленочных систем, содержащих 3d-переходные металлы (TM — Transition Metals) и редкоземельные металлы (REM — Rare Earth Metals), а также их сплавы являются актуальными в течение многих лет. Интерес к этим системам обусловлен высокими значениями магнитных моментов REM и, как следствие этого, перспективой их широкого практического применения [1].

Для указанных выше многослойных TM/REM структур наблюдается многообразие магнитных свойств, что предопределяет их активное применение, в практических приложениях, в частности, в магнитооптических записывающих устройствах [2]. Кроме того, ферромагнитные мультислойные REM/TM системы представляют интерес как модельные образцы при изучении обменного взаимодействия между REM (Gd, Dy, Tb и др.) и TM (Co, Fe) слоями, магнитное состояние которых в основном определяется конкуренцией обменной энергии и энергии Зеемана. Такие многослойные системы характеризуются антиферромагнитной межслойной связью между REM и TM. Фактически они представляют собой искусственные ферримагнетики с различными основными состояниями. Накопленный объем экспериментальных и теоретических данных значительно расширил представления о низкоразмерных магнитных материалах. В частности, установлено, что качество и свойство поверхности ферромагнитных материалов существенно влияют на их магнитные характеристики [3].

Обнаружена сильная зависимость магнитных свойств ультратонких магнитных пленок кобальта (Co) от толщины, а также от толщины и состава немагнитного слоя, напыленного между пленкой и подложкой [4]. Вместе с тем по-прежнему особое внимание заслуживают тонкопленочные системы на основе кобальта и редкоземельного гадолиния, что обусловлено следующими фактами. Ранее было установлено, что межслойное обменное взаимодействие в многослойных системах REM/TM подобно взаимодействию, существующему в REM/TM сплавах между магнитными моментами атомов REM и TM [1,5]. При этом следует иметь в виду, что магнитное упорядочение в RE металлах обусловлено дальнедействующим косвенным обменным взаимодействием, осуществляющимся через электроны проводимости. Вследствие этого магнитные свойства REM сильно зависят от структурного состояния реальных объектов [6]. При изучении тонкопленочных образцов с редкоземельными металлами наиболее активно используются слоистые металлические структуры, характеризующиеся высокими температурами магнитного упорядочения. Следует отметить, что среди REM гадолиний имеет самую высокую температуру ( $T$ ) магнитного упорядочения (температура Кюри —  $T_C = 293$  K). Кроме того, он является коллинеарным ферромагнетиком во всем температурном диапазоне ниже  $T_C$ . При понижении температуры ниже точки Кюри возникает ферромагнитная структура с ориентацией магнитного момента вдоль  $c$ -оси кристаллической решетки, которая сохраняется до 240 K. При  $T$  меньше 240 K магнитный момент отклоняется от  $c$ -оси

на некоторый угол, значение которого увеличивается при дальнейшем понижении температуры [6].

Анализ существующих данных показал, что большинство ранних исследований были в основном посвящены изучению многослойных структур на основе гадолиния. При интерпретации полученных экспериментальных данных, наблюдаемых для вышеуказанных образцов, приходилось учитывать наличие в слоистых структурах повторяющихся периодов. Было доказано, что для более корректного изучения магнитополевого поведения тонкопленочных систем, в частности, систем с гадолинием, целесообразно использовать трехслойные образцы [7]. При этом следует иметь в виду, что на сегодняшний день Gd, как в объемном, так и в тонкопленочном состоянии, остается наиболее перспективным материалом для практических приложений [8,9]. Ранее выполненные авторами данной работы исследования при комнатной температуре [10], показали, что форма петель гистерезиса и значение поля насыщения  $H_S$  трехслойных Co/Gd/Co зависят от толщины гадолиниевого слоя. Учитывая перспективность практического применения Co/Gd/Co образцов, изучение влияния температуры на магнитные свойства и магнитополовое поведение трехслойных Co/Gd/Co систем заслуживало внимания.

Актуальность экспериментальных исследований магнитных характеристик слоистых образцов с REM прослойкой, в частности, Co/Gd/Co систем при различных температурах, объясняется также необходимостью получения данных, востребованных при разработке новых слоистых структур для современных устройств микро- и нанoeлектроники. Принимая во внимание все вышеприведенные факты, можно с уверенностью утверждать, что получение новой информации о свойствах Co/Gd/Co тонкопленочных систем актуально, как с фундаментальной, так и практической точки зрения.

Цель настоящей работы — исследование влияния температуры ( $T$ ) при изменении  $T$  от 100 до 300 K на магнитные свойства и магнитополовое поведение трехслойных тонкопленочных Co/Gd/Co систем, состоящих из двух одинаковых слоев кобальта и редкоземельной гадолиниевого прослойки разной толщины.

## 2. Образцы и методики исследования

Изучаемые трехслойные Co/Gd/Co образцы были получены при комнатной температуре методом ионно-плазменного магнетронного распыления на неохлаждаемые стеклянные подложки Corning 2845 с использованием Ta, Co и Gd мишеней. Перед процедурой напыления все подложки последовательно очищались в ультразвуковой ванне ацетоном, этанолом и деионизированной водой, а затем сушились при температуре 100°C. Шероховатость поверхности подложки была порядка 0.5 nm. В качестве буферного подслоя и верхнего слоя, защищающего образцы от окисления, наносились слои тантала (Ta) толщиной 5.0 nm. Базовое давление в вакуумной камере было  $4.0 \cdot 10^{-7}$  mbar. Давление аргона в процессе

напыления пленки достигало  $3.8 \cdot 10^{-3}$  mbar. Изготовление образцов осуществлялось при наличии магнитного поля  $H_{SUB} = 250$  Oe, приложенного параллельно плоскости подложки. Это предопределяло формирование плоскостной одноосной магнитной анизотропии.

Толщина слоев кобальта,  $t_{Co}$ , во всех трехслойных Co/Gd/Co образцах была равна 5.0 nm, а Gd,  $t_{Gd}$  — 3.0, 4.6, 6.0, 7.0, 9.0 и 10.0 nm. Толщина слоев была определена по скорости (11.0, 2.6 и 2.8 nm/min для Ta, Co и Gd соответственно) и времени напыления для каждого материала. Скорость напыления была определена также с помощью атомной силовой микроскопии (AFM). Разница значений толщины, полученных обеими методиками, не превышала 5%.

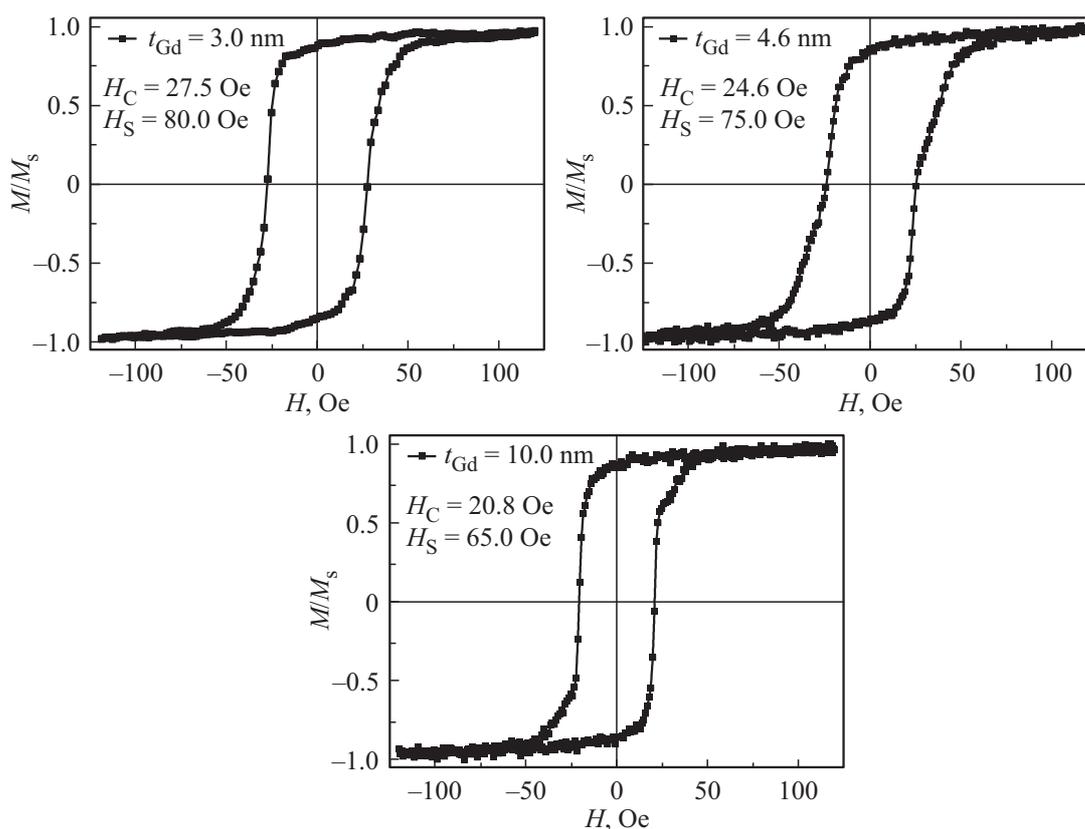
При выполнении низкотемпературных измерений, в отличие от выполненных нами ранее исследований [10], изучаемые образцы имели линейные размеры  $5 \times 5$  mm (вместо  $10 \times 10$  mm), что было обусловлено особенностями низкотемпературной экспериментальной установки.

Объемные магнитные характеристики Co/Gd/Co трехслойных образцов были измерены на вибрационном магнитометре „Lake Shore VSM 7400“ с чувствительностью  $10^{-5}$  emu. Внешнее перемагничивающее магнитное поле было приложено параллельно плоскости образца. Методы измерений магнитных характеристик изучаемых образцов на вибрационном магнитометре подробно описаны в работе [11]. Установка позволяет проводить измерения намагниченности в широком диапазоне температур с использованием различных температурных приставок. В данном случае для проведения низкотемпературных измерений используется продувной криостат. Принцип действия приставки основан на продуве хладагента через объем, в котором находится исследуемый образец. В качестве хладагента использовались пары жидкого азота.

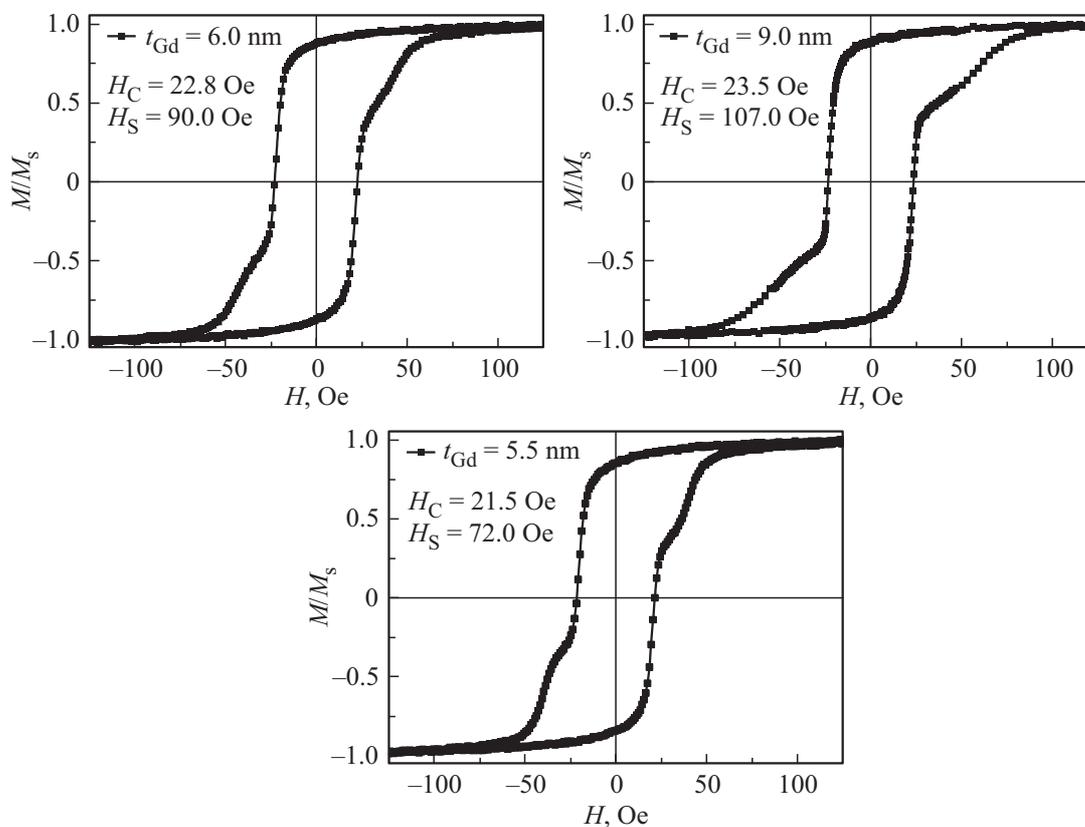
Измерения петель гистерезиса были выполнены в температурном диапазоне от 100 до 300 K. Стабильность температуры при выполнении измерений сохранялась в интервале 0.1–1.0 K и определялась из соотношения — необходимая точность/длительность измерений. Исследуемый образец крепился на штوك из стекловолокна („fiberglass“) при помощи медицинского клея. Этот способ вносит минимальный вклад диамагнитного сигнала в суммарный магнитный момент и позволяет работать в диапазоне температур от 4.2 K до 450 K [12].

## 3. Результаты исследований и их обсуждение

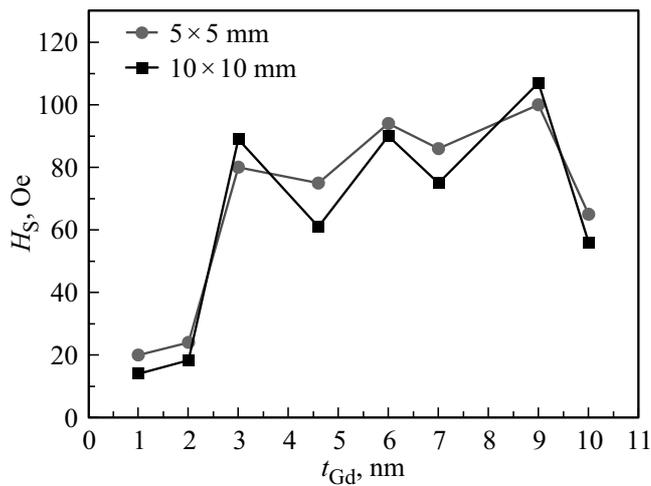
Результаты проведенных рентгеноструктурных исследований свидетельствовали о том, что слои кобальта во всех изучаемых образцах имеют нанокристаллическую структуру. Кроме того, измерения, выполненные с помощью атомного силового микроскопа, показали, что в случае образцов размером  $5 \times 5$  mm средняя шероховатость их поверхности,  $R_a$ , также как и для ранее изучаемых образцов размером  $10 \times 10$  mm не превышает



**Рис. 1.** Типичные петли гистерезиса, наблюдаемые для изучаемых Co/Gd/Co образцов размером  $5 \times 5$  mm при комнатной температуре в магнитном поле, приложенном параллельно оси легкого намагничивания.



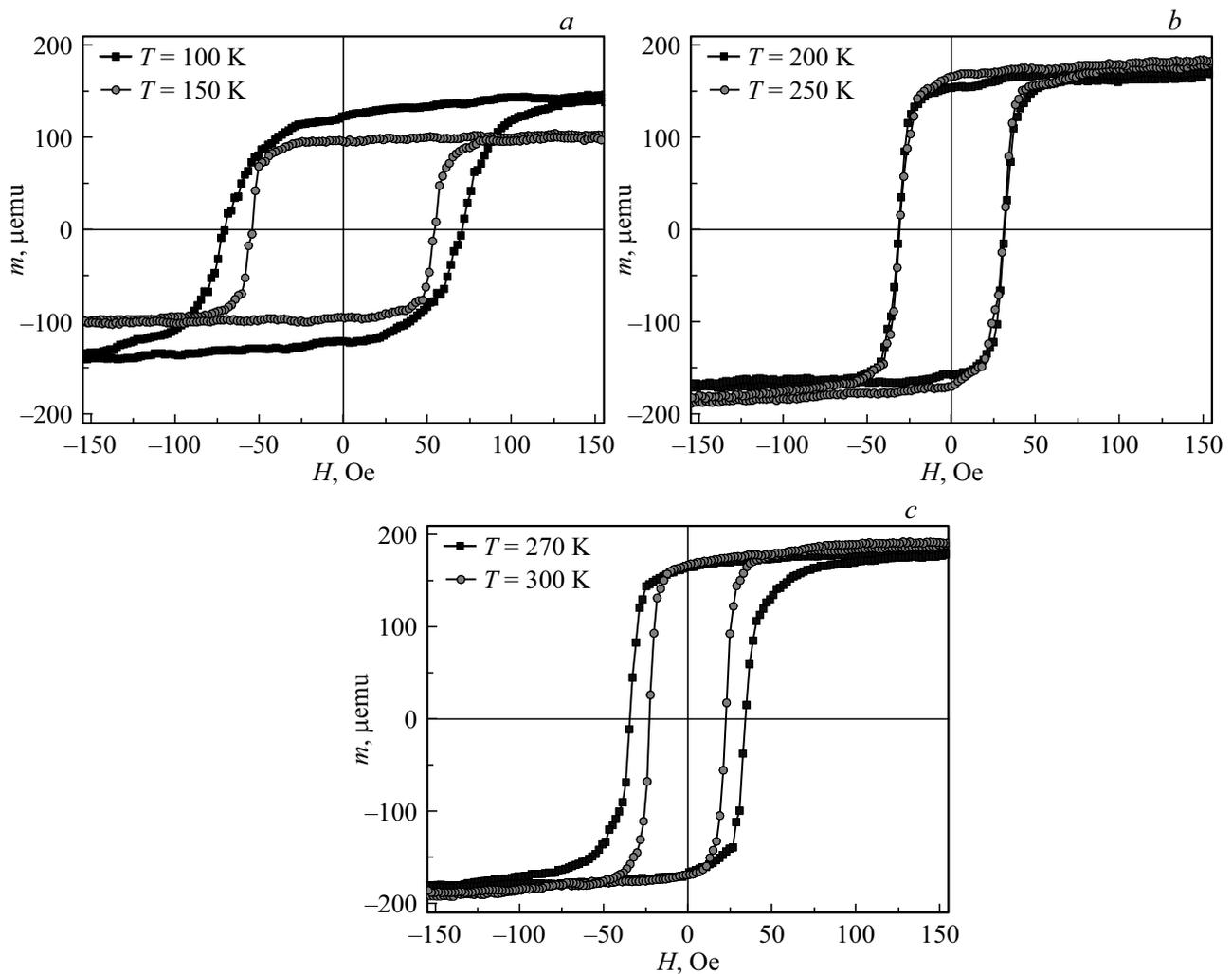
**Рис. 2.** Типичные петли гистерезиса, наблюдаемые для изучаемых Co/Gd/Co образцов размером  $10 \times 10$  mm при комнатной температуре в магнитном поле, приложенном параллельно оси легкого намагничивания.



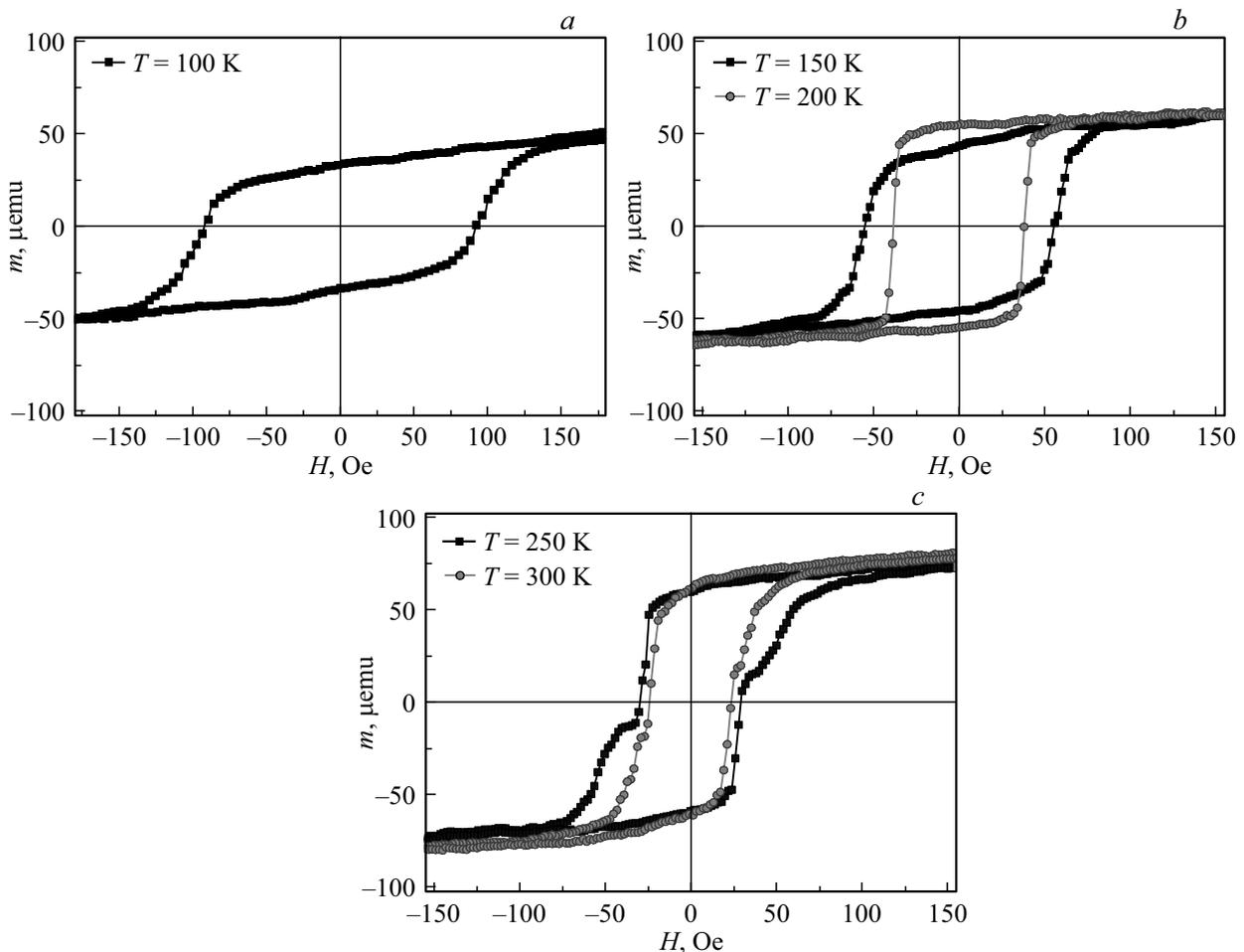
**Рис. 3.** Зависимости поля насыщения  $H_S$ , наблюдаемые при комнатной температуре для изучаемых Co/Gd/Co образцов с линейными размерами  $5 \times 5$  mm и  $10 \times 10$  mm с различной толщиной Gd слоя.

0.5 nm, и практически не зависит от толщины Gd слоя. Это свидетельствовало о том, что толщина слоя гадолиния в основном не влияет на свойства поверхности исследуемых образцов, а, следовательно, шероховатость поверхности не должна оказывать влияние на магнитные характеристики Co/Gd/Co тонкопленочных систем.

Измерения петель гистерезиса Co/Gd/Co образцов были выполнены на вибрационном магнетометре при двух ориентациях внешнего магнитного поля, приложенного параллельно поверхности образцов. В одном случае направление  $H$  было параллельно ориентации магнитного поля, приложенного в процессе напыления образцов (направление  $D1$ ), а в другом — перпендикулярно  $D1$  (направление  $D2$ ). Было обнаружено, что, как и в случае, ранее изучаемых нами образцов с линейными размерами  $10 \times 10$  mm [10], форма петель гистерезиса при комнатной температуре и ориентации магнитного поля параллельно  $D1$  и  $D2$  различаются. Этот факт свидетельствовал о наличии наведенной магнитной анизотропии (МА) с осью легкого намагничивания (ЕА), параллельной



**Рис. 4.** Петли гистерезиса, наблюдаемые для образца с  $t_{Gd} = 3.0$  nm при  $T = 100$  K и  $150$  K (a),  $T = 200$  K и  $250$  K (b),  $T = 270$  K и  $300$  K (c) в магнитном поле, приложенном параллельно оси легкого намагничивания.



**Рис. 5.** Петли гистерезиса, наблюдаемые для образца с  $t_{\text{Gd}} = 4.6 \text{ nm}$  при  $T = 100 \text{ K}$  (a),  $T = 150 \text{ K}$  и  $200 \text{ K}$  (b),  $T = 250 \text{ K}$  и  $300 \text{ K}$  (c) в магнитном поле, приложенном параллельно оси легкого намагничивания.

направлению магнитного поля, приложенного в процессе изготовления образцов. Согласно существующим данным [13], основным механизмом, обуславливающим наведенную магнитную анизотропию, является парное упорядочение атомов. Кроме того, было установлено, что форма петель гистерезиса, наблюдаемая в магнитном поле, приложенном параллельно ЕА, зависит от линейных размеров изучаемых образцов. На рис. 1 и 2 приведены типичные петли гистерезиса, наблюдаемые для образцов размером  $5 \times 5 \text{ mm}$  и  $10 \times 10 \text{ mm}$  при комнатной температуре в магнитном поле, приложенном параллельно ЕА.

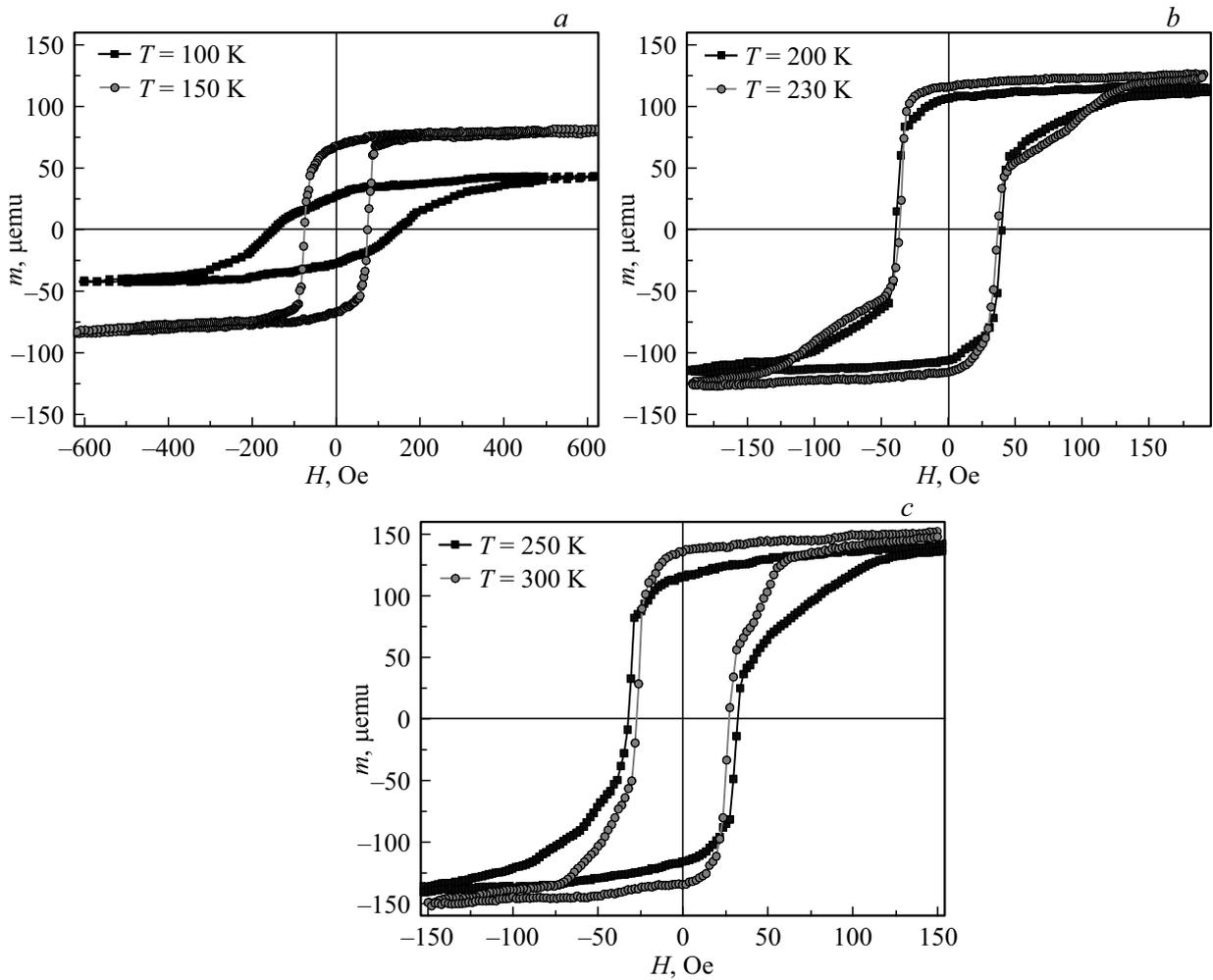
На рис. 3 приведены зависимости поля насыщения от толщины гадолиниевого слоя, наблюдаемые для Co/Gd/Co образцов с линейными размерами  $5 \times 5$  и  $10 \times 10 \text{ mm}$ .

Анализ данных, приведенных на рисунках 1–3, показал следующее. Поле насыщения,  $H_S$ , изучаемых образцов зависит от толщины гадолиниевого слоя. Наиболее сильное изменение  $H_S$  (в частности, уменьшение) наблюдается для обеих серий образцов при  $t_{\text{Gd}} = 10.0 \text{ nm}$ . Для образцов размером  $5 \times 5 \text{ mm}$  в от-

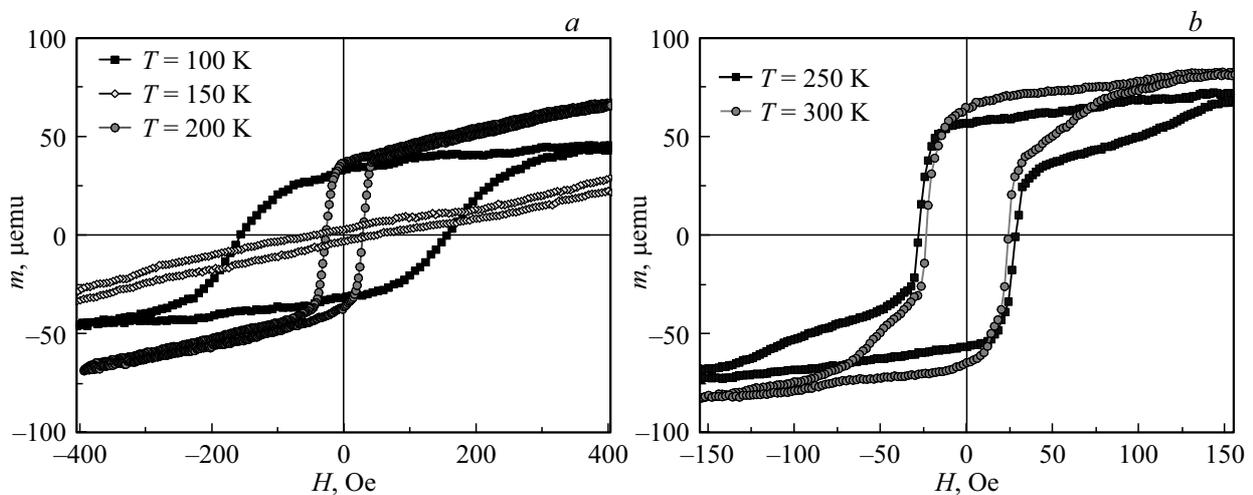
личие от образцов  $10 \times 10 \text{ mm}$  осцилляции значений  $H_S$  с ростом толщины гадолиниевого слоя менее заметны. Обнаруженные для обеих серий изучаемых образцов зависимости  $H_S$  от толщины гадолия были объяснены наличием обменного взаимодействия между слоями кобальта через прослойку гадолия [10].

Особого внимания заслуживают петли гистерезиса, наблюдаемые при низких температурах для Co/Gd/Co образцов с линейными размерами  $5 \times 5 \text{ mm}$ , приведенные на рис. 4–7.

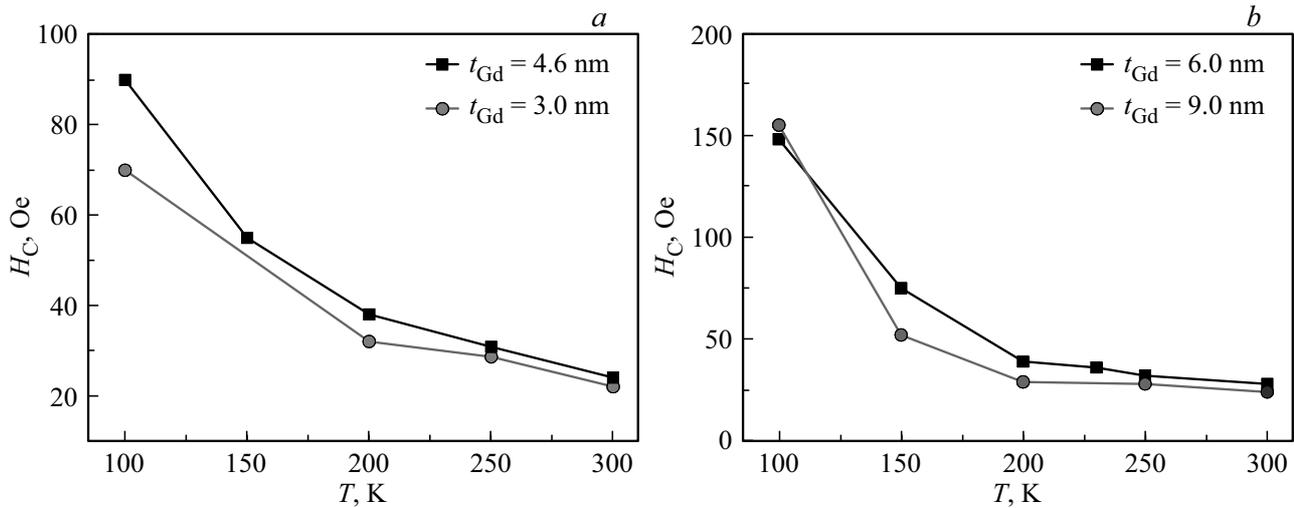
Результаты приведенных выше измерений позволяют получить информацию о значениях поля насыщения,  $H_S$ , коэрцитивной силе,  $H_C$ , и величине магнитного момента изучаемых образцов, а также оценить влияние температуры на указанные выше магнитные характеристики. Однако следует отметить, что анализ полученных экспериментальных данных свидетельствовал о том, что при  $T = 100 \text{ K}$  намагниченность насыщения и поле насыщения  $H_S$  не всегда достигаются. В связи с этим ниже на рис. 8 и 9 приведены только зависимости коэрцитивной силы и магнитного момента при изменении температуры от 100 до 300 К.



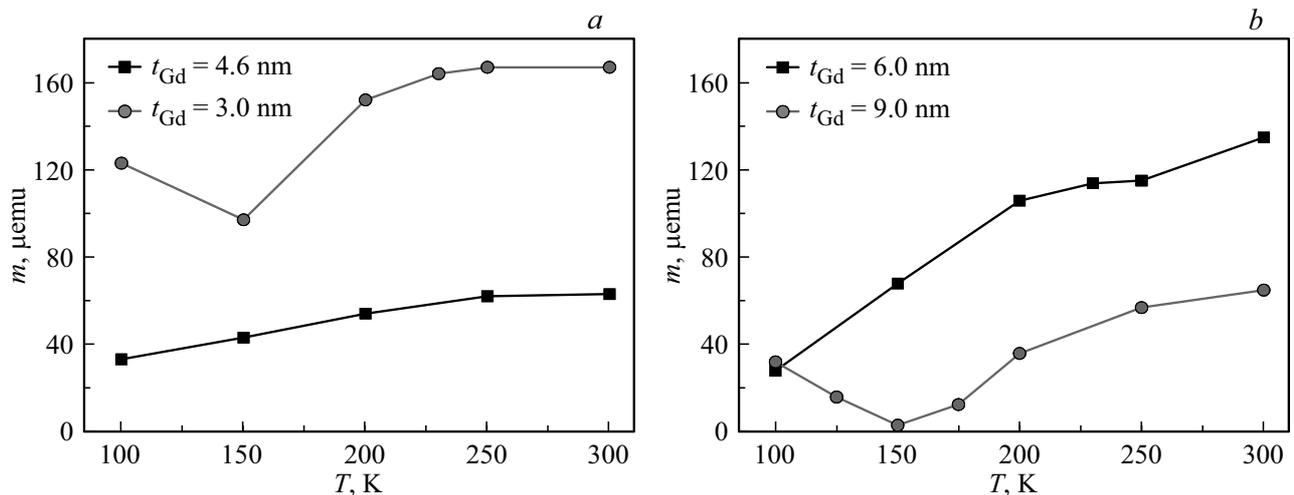
**Рис. 6.** Петли гистерезиса, наблюдаемые для образца с  $t_{\text{Gd}} = 6.0$  nm при  $T = 100$  K и  $150$  K (a),  $T = 200$  K и  $230$  K (b) и  $T = 250$  K и  $300$  K (c) в магнитном поле, приложенном параллельном оси легкого намагничивания.



**Рис. 7.** Петли гистерезиса, наблюдаемые для образца с  $t_{\text{Gd}} = 9.0$  nm при  $T = 100$  K,  $150$  K и  $200$  K (a) и  $T = 250$  K и  $300$  K (b) в магнитном поле, параллельном оси легкого намагничивания.



**Рис. 8.** Зависимости коэрцитивной силы  $H_C$  от температуры, наблюдаемые для образцов с различной толщиной Gd слоя в магнитном поле, параллельном оси легкого намагничивания. а)  $t_{Gd} = 3.0$  nm и  $t_{Gd} = 4.6$  nm; б)  $t_{Gd} = 6.0$  nm и  $t_{Gd} = 9.0$  nm.



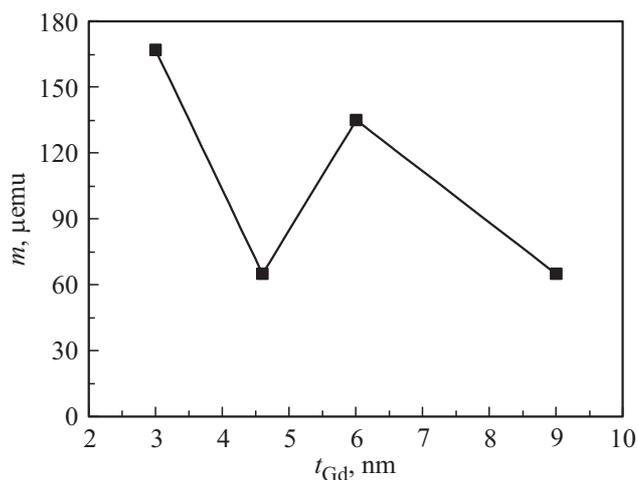
**Рис. 9.** Зависимости магнитного момента  $m$  от температуры, наблюдаемые для образцов с различной толщиной Gd слоя в магнитном поле, параллельном оси легкого намагничивания. а)  $t_{Gd} = 3.0$  nm и  $t_{Gd} = 4.6$  nm; б)  $t_{Gd} = 6.0$  nm и  $t_{Gd} = 9.0$  nm.

Анализ данных, приведенных на рис. 8, показал следующее. Значения коэрцитивной силы изучаемых образцов с увеличением температуры от 100 до 300 К уменьшаются. Обнаруженное изменение  $H_C$  при  $T > 100$  К подобно наблюдаемым для Fe/Gd и Co/Gd образцов в работах [14] и [15], соответственно. Согласно существующим данным, опубликованным в работах [14,15], такая зависимость  $H_C(T)$  свидетельствует о ферримагнитном характере изучаемых трехслойных систем, обусловленном изменением суммарного магнитного момента при изменении температуры [15].

Вместе с тем приведенные на рис. 9 зависимости магнитных моментов  $m$  от температуры свидетельствуют о наличии следующих особенностей. Образцы с толщиной гадолия 4.6 и 6.0 nm характеризуются практически линейным ростом магнитных моментов с

увеличением температуры. При этом значения  $m$  при  $T = 100$  К совпадают, а при  $T = 300$  К различаются. Кроме того, значение  $m$  при  $t_{Gd} = 6.0$  nm больше, чем при  $t_{Gd} = 4.6$  nm. Чтобы объяснить этот факт, были измерены магнитные моменты образцов при комнатной температуре с различной толщиной гадолиниевого слоя. Результаты измерения приведены на рис. 10.

Анализ данных, приведенных на рис. 10, показал следующее. Магнитный момент образца с толщиной слоя гадолия  $t_{Gd} = 6.0$  nm больше, чем при  $t_{Gd} = 4.6$  nm. Причиной такого поведения является наличие обменного взаимодействия между слоями кобальта и гадолия. Подобная разница магнитных моментов сохраняется при  $T > 100$  К, что и предопределяет увеличение магнитных моментов  $m$  при  $t_{Gd} = 6.0$  nm по сравнению с образцом с  $t_{Gd} = 4.6$  nm.



**Рис. 10.** Зависимость магнитного момента  $m$  от толщины слоя гадолиния при комнатной температуре.

Из рис. 10 видно, что магнитные моменты образцов с толщиной гадолиния 3.0 и 9.0 nm также различаются. При этом магнитный момент образца с толщиной гадолиния 3 nm значительно больше, чем для образца с  $t_{Gd} = 9.0$  nm. Кроме того, для этих образцов наблюдается более сложная зависимость магнитных моментов от температуры. В частности, для образца с  $t_{Gd} = 9.0$  nm при  $T = 150$  K наблюдается точка компенсации магнитных моментов, а для образца с  $t_{Gd} = 3.0$  nm — уменьшение  $m$  примерно на 38% по сравнению с магнитным моментом при  $T = 300$  K.

Наконец, необходимо отметить следующий важный факт. Известно, что согласно существующим данным [16], изменение значений магнитного момента кобальта при увеличении температуры в диапазоне от 100 до 300 K не превышает 10%. Это означает, что обнаруженное экспериментально уменьшение магнитного момента Co/Gd/Co изучаемых образцов с ростом толщины гадолиния определяется в основном его вкладом в суммарный магнитный момент образцов.

#### 4. Заключение

В диапазоне температур от 100 до 300 K были экспериментально исследованы зависимости магнитных свойств и магнитополевого поведения низкоразмерных тонкопленочных Co/Gd/Co трехслойных систем, состоящих из двух одинаковых по толщине слоев кобальта и редкоземельной гадолиниевой прослойки разной толщины. Было обнаружено, что магнитополевого поведение образцов зависит от температуры и толщины образцов. В частности, для изучаемых тонкопленочных систем с толщиной гадолиния 4.6 и 6.0 nm наблюдался рост значений магнитного момента,  $m$ , при увеличении температуры от 100 до 300 K. При этом значение  $m$  для образца с  $t_{Gd} = 6.0$  nm было больше, чем для образ-

ца с  $t_{Gd} = 4.6$  nm. Этот факт был объяснен наличием обменного взаимодействия между слоями кобальта и гадолиния и его немонотонной зависимостью от толщины гадолиниевых слоев. Для образца с толщиной гадолиния 9.0 nm при температуре, равной 150 K, была обнаружена точка компенсации магнитных моментов, а для образца с  $t_{Gd} = 3.0$  nm наблюдалось уменьшение магнитного момента  $m$  примерно на 38%, по сравнению с образцом при  $T = 300$  K. Эти данные были объяснены влиянием гадолиния на суммарный магнитный момент образцов. С увеличением температуры от 100 до 300 K значения коэрцитивной силы,  $H_C$ , уменьшаются, что свидетельствовало о ферромагнитном характере изучаемой трехслойной системы.

Выше описанные результаты проведенных исследований могут быть полезны при разработке новых тонкопленочных систем на основе переходных и редкоземельных металлов для практических применений в современных устройствах микро- и нанoeлектроники, а также спинтроники.

#### Благодарности

Авторы выражают благодарность В.Н. Лепаловскому за получение Co/Gd/Co тонкопленочных образцов.

#### Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке из государственного бюджета, раздел 0110 (для тем по госзаданию) в рамках НИР „Фундаментальные проблемы физики магнитных наносистем“.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] T. Morishita, Y. Togami, K. Tsushima. *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 1, 37 (1985).
- [2] J.B. Pelka, W. Paszkowicz, A. Wawro, L.T. Baczewski, O. Seeck. *J. Alloys Compd.* **328**, 1–2, 253 (2001).
- [3] E.E. Shalyguina, L.M. Bekoeva, N.I. Tsidaeva. *Sens. Act. A* **81**, 1–3, 216 (2000).
- [4] E.E. Шалыгина, Л.В. Козловский, Ду Сяньбо, А.М. Ливенцов. Письма в ЖТФ **20**, 20, 42 (1994).
- [5] L.T. Baczewski, M. Piecuch, J. Durand, G. Marchal, P. Delecroix. *Phys. Rev. B* **40**, 16, 11237 (1989).
- [6] С.А. Никитин. Магнитные свойства редкоземельных металлов и их сплавов. МГУ, М. (1989). 247 с.
- [7] С.И. Воробьев, О.В. Шутылева, И.М. Пазуха, А.Н. Чорноус. *ЖТФ* **84**, 11, 66 (2014).
- [8] A.M. Tishin, Y.I. Spichkin. *The magnetocaloric effect and its applications*. Institute of Physics Publishing, Bristol, Philadelphia. Taulor & Francis Group (CRC Press), Boca Raton, Florida (2016). 476 p.
- [9] C.W. Miller, D.V. Williams, N.S. Bingham, H.J. Srikanth. *J. Appl. Phys.* **107**, 9, 09A903 (2010).

- [10] А.М. Харламова, А.В. Свалов, В.Н. Лепаловский, Е.Е. Шальгина. *ФТТ* **61**, 3, 460 (2019).
- [11] Н.С. Перов, В.В. Родионова, М.В. Прудникова, А.Б. Грановский, В.Н. Прудников. МГУ, М. (2016). 44 с.
- [12] И.Д. Родионов. Магнитные, магнитокалорические и магнитотранспортные свойства сплавов на основе Ni–Mn–In. МГУ, М. (2019). 142 с.
- [13] S. Chikazumi. *Physics of Ferromagnetism*. Oxford University Press, Oxford (2009). 668 p.
- [14] S. Demirtas, A.R. Koymen. *J. Appl. Phys.* **95**, 9, 4949 (2004).
- [15] A.B. Chizhik, S.L. Gnatchenko, D.N. Merenkov, L.T. Baczewski, A. Wawro, H. Szymczak, H. Gamari-Seale. *J. Appl. Phys.* **84**, 9, 5105 (1998).
- [16] P.J.H. Bloemen, W.J.M. de Jonge, F.J.A. den Broeder. *J. Magn. Mater.* **93**, 105 (1991).

*Редактор Т.Н. Василевская*