

05

## Зависимость микроструктуры и магнитных свойств аморфных пленок TbFeCo от типа и давления газа при распылении

© А.С. Камзин<sup>1</sup>, В.Р. Ганеев<sup>2</sup>, Л.Д. Зарипова<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Казанский (Приволжский) федеральный университет, Казань, Россия

E-mail: kamzin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 16 января 2012 г.)

В окончательной редакции 5 мая 2012 г.)

Методом магнетронного распыления получены аморфные пленки Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>. Исследованы зависимости микроструктуры и магнитных свойств этих пленок от типа и давления газа в камере распыления. Для экспериментов применялись газы Ar, Kr, и Xe в области давлений в камере распыления от 0.01 до 4 Па. Установлено, что при распылении в тяжелом газе (Kr) в исследованном диапазоне давлений невозможно получить пленки TbFeCo с осью легкого намагничивания, перпендикулярной плоскости пленок. При использовании Xe в области давлений ниже 1.0 Па в пленках TbFeCo наблюдается увеличение коэрцитивности, и форма петли гистерезиса приближается к прямоугольной. При распылении и осаждении в среде Ar при давлении ~ 0.67 Па получены аморфные пленки Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub> с магнитными характеристиками, удовлетворяющими требованиям к носителям информации с перпендикулярным типом записи. Таким образом, показано, что методом магнетронного распыления в атмосфере Ar при давлениях менее 1 Па можно получить аморфные пленки Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub> для магнитооптической записи информации со сверхвысокой плотностью.

### 1. Введение

Термагнитная или магнитооптическая (МО) запись информации широко применяется для долговременного хранения данных без затраты энергии. Впервые МО-метод перпендикулярной записи был описан в [1]. Для существенного повышения плотности магнитной записи информации в [2] было предложено перейти от продольного типа записи, когда намагниченность пленки ориентирована параллельно плоскости пленки, к перпендикулярному типу (в этом случае намагниченность пленки направлена перпендикулярно плоскости пленки). Использование перпендикулярного типа записи позволило значительно повысить плотность записи информации, и в настоящее время в основном применяется этот тип записи. Однако дальнейшее повышение плотности записи, т.е. переход к сверхвысокоплотной записи информации (СВПЗИ) требует создания новых материалов, например мозаичных носителей (bit-patterned media) (см. [3,4] и ссылки в них), в которых информация записывается на созданных специальным образом изолированных друг от друга наноразмерных магнитных областях в немагнитной матрице. Для СВПЗИ требуются магнетики, обладающие большой энергией магнитокристаллической анизотропии в направлении, перпендикулярном плоскости пленки, аморфной структурой, температурной и структурной стабильностью, высокой твердостью и антикоррозийностью и характеризующиеся прямоугольной петлей гистерезиса.

Многослойные системы и кристаллические пленки на основе Tb/Fe, Co/Pd или Co/Fe, пленки гексагональных

ферритов [5,6] активно исследуются в связи с тем, что в процессе синтеза можно модифицировать их свойства и получать материалы для СВПЗИ. Пленки Tb/Fe являются перспективными для сверхвысокоплотной магнитной записи информации. Так, энергия магнитной анизотропии  $K_u$  в многослойных системах Tb/Fe может быть повышена до величины  $7 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$  в случае оптимизированной двухслойной пленки толщиной ~ 1 nm [7]. Кроме того, применительно к СВПЗИ могут быть модифицированы и другие свойства пленок Tb/Fe, такие как температура Кюри  $T_c$  и намагниченность насыщения  $M_s$  (см. работу [8] и ссылки в ней). Добавление третьего элемента (например, Co) позволяет существенно повысить величину намагниченности насыщения  $M_s$  (до  $100 \text{ emu/cm}^3$  при комнатной температуре) и значения энергии одноосной магнитокристаллической анизотропии  $K_u$ , т.е. улучшить параметры для осуществления СВПЗИ.

Известен ряд работ, в которых исследовались методы получения и свойства пленок TbFeCo (см. [9–12] и ссылки там). Однако влияние условий синтеза, а также состава на свойства пленок TbFeCo изучены далеко не достаточно. В настоящей работе исследованы взаимосвязи между магнитными свойствами пленки TbFeCo и ее микроструктурой при различных условиях осаждения. Исследованы эффекты влияния различных газовых сред (Ar, Kr или Xe) на микроструктуру и свойства осаждаемых пленок TbFeCo, предназначенных для сверхвысокоплотной перпендикулярной магнитооптической записи информации.

## 2. Эксперимент

Исследуемые образцы пленок TbFeCo для МО-записи информации были получены методом магнетронного распыления составной мишени в атмосфере Ar, Kr или Xe в камере распыления при давлениях  $P$  до 4 Па. Составная мишень была скомпонована из фольги чистого железа, часть площади которой закрывалась фольгами из Tb и Co, что позволяло строго дозировать состав напыляемых систем путем изменения соотношения площадей пластинок, из которых компоновалась мишень [13]. Пленки осаждались на подложки из алюминиевой фольги толщиной  $30\ \mu\text{m}$ , при этом подложка не подогревалась. В качестве материала подложек был выбран Al, потому что подслои Al должен приводить к увеличению анизотропии в направлении, перпендикулярном плоскости пленки TbFeCo [10,12]. Толщина полученных пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub> была  $\sim 200\ \text{nm}$ . Образцы для МО-записи информации были синтезированы с единственным слоем TbFeCo на подложке и предназначались для анализа и оценки статических магнитных свойств этой пленки.

Структура поверхности и поперечного сечения пленок наблюдалась с использованием сканирующего электронного и атомного силового микроскопов. Составы пленок определялись с помощью электронного микроанализатора, спектрометра тепловой дисперсии, магнитного силового микроскопа, а также методом масс-спектрометрии вторичных ионов. Магнитные характеристики были измерены с использованием магнитометра Керра и магнитометра с вибрирующим образцом при максимальных значениях магнитного поля 15 кОе. Для исследований структуры пленок и фазового анализа использовались рентгеновская дифрактометрия и конверсионная электронная мессбауэровская спектроскопия в геометрии обратного рассеяния. Волновой вектор гамма-излучения источника <sup>57</sup>Co(Rd) при измерениях эффекта Мессбауэра был направлен по нормали к поверхности исследуемой пленки.

## 3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 показана зависимость скорости осаждения пленок TbFeCo от давления Ar, Kr или Xe в камере распыления. При использовании Ar при распылении скорость осаждения пленки, как видно из рис. 1, не меняется во всем исследуемом диапазоне давлений. Скорость осаждения пленки при распылении в Kr с ростом давления понижается медленнее, чем в Xe. Значение скорости, которое на кривой 2 соответствует давлению 1.2 Па ( $\sim 8\ \text{nm/s}$ ), для кривой 3 достигается при давлении 0.7 Па. Происходит это потому, что при распылении в среде тяжелых газов увеличивается количество рассеиваемых частиц TbFeCo. Следовательно, скорость осаждения пленок понижается из-за уменьшения длины свободного пробега распыляемых частиц в вакуумной камере.

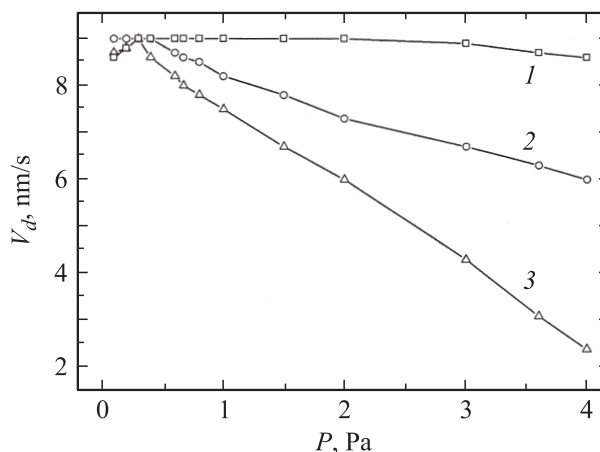


Рис. 1. Зависимость скорости осаждения  $V_d$  от типа и давления газа при распылении. 1 — Ar, 2 — Xe, 3 — Kr.

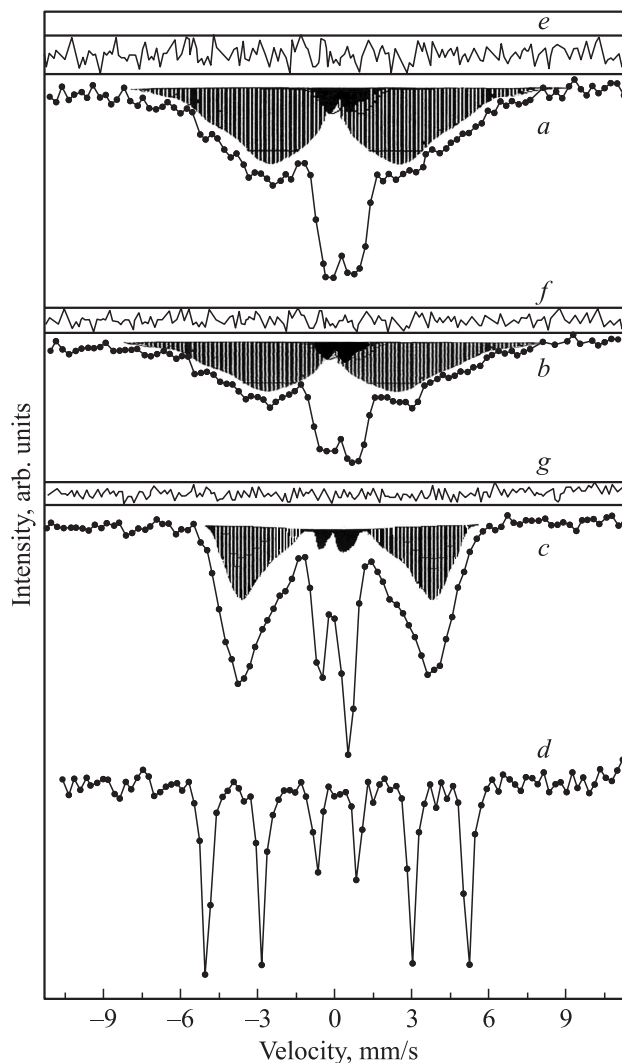
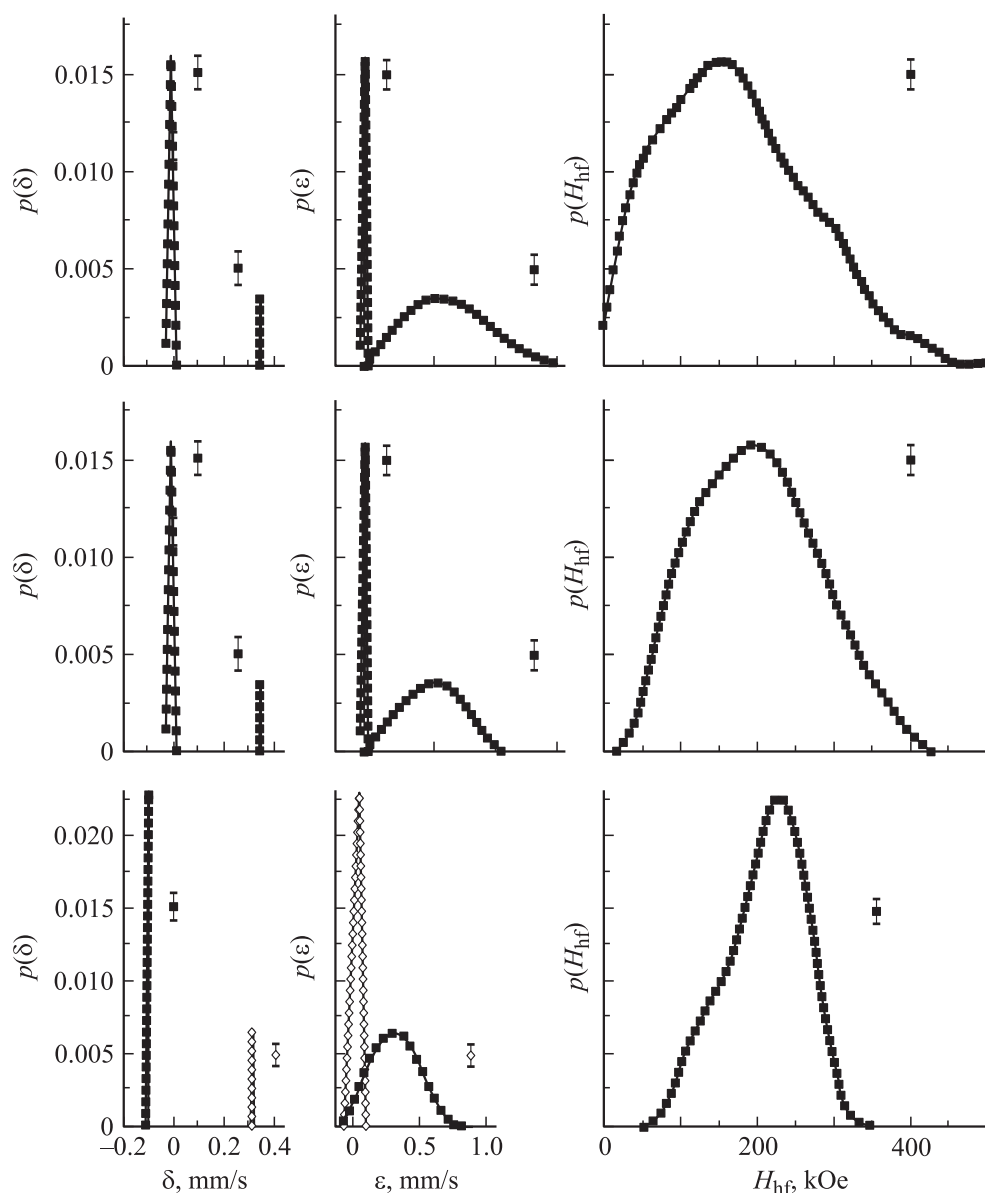


Рис. 2. Мессбауэровские спектры пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, осажденных при давлении  $P = 0.67\ \text{Pa}$  в Kr (a), Xe (b) и Ar (c). d — спектр фольги  $\alpha\text{-Fe}$  (приведен для сравнения). e-g — разности между экспериментальными и модельными спектрами.



**Рис. 3.** Функции распределения эффективных магнитных полей  $H_{\text{hf}}$ , деленного пополам квадрупольного расщепления  $\varepsilon$  и химических сдвигов  $\delta$  для пленок  $\text{Tb}_{30}\text{Fe}_{60}\text{Co}_{10}$  осажденных при давлении  $P = 0.67$  Па в атмосфере Kr (верхний ряд), Xe (средний ряд) и Ag (нижний ряд).

Экспериментальные мессбауэровские спектры (МС) пленок  $\text{Tb}_{30}\text{Fe}_{60}\text{Co}_{10}$ , полученных при распылении и осаждении в атмосфере Ag, Xe или Kr при давлении в камере распыления  $P$  равном 0.67 Па, показаны на рис. 2. МС пленок  $\text{TbFeCo}$  представляют собой типичные спектры аморфных сплавов и состоят из набора линий поглощения, возникающих из-за различий при переходе от одной позиции, занимаемой мессбауэровским изотопом  $^{57}\text{Fe}$ , к другой. Это приводит к квазинепрерывному изменению параметров сверхтонких взаимодействий, определяемых по МС аморфного вещества.

МС пленок  $\text{TbFeCo}$ , показанные на рис. 2а, состоят из широких зеемановских линий поглощения гамма-квантов ионами железа, находящимися в магнитной

фазе. Интенсивности третьих линий МС больше, чем вторых, что указывает на присутствие в спектре дополнительных (кроме зеемановских) линий. Математический анализ экспериментальных МС был проведен с использованием программы, созданной Русаковым с соавторами [14]. При обработке спектров аморфного вещества в первую очередь анализируется распределение эффективных магнитных полей  $H_{\text{hf}}$ , возникающее из-за пространственной неоднородности окружения мессбауэровского изотопа  $^{57}\text{Fe}$ . Затем определяются функция распределения квадрупольного смещения (КС) и функция распределения химических сдвигов (ХС) в предположении о возможной линейной корреляции между  $H_{\text{hf}}$  и КС, а также между  $H_{\text{hf}}$  и ХС. Величина КС — это квадрату-

польное расщепление, деленное пополам. При анализе МС было установлено, что максимальное соответствие „модельного“ спектра экспериментальному имеет место в случае описания последнего двумя типами парциальных спектров. К первому типу относятся парциальные спектры, обладающие зеемановским расщеплением и описывающие магнитную фазу пленки. Вклад этих линий представляют заштрихованные области на рис. 2. Второй тип — парамагнитные спектры ионов железа, находящихся в неупорядоченном состоянии. Вклад этих спектров представлен на рис. 2 затемненными областями. На основе МС пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub> (рис. 2) установлено, что доля магнитной фазы составляет 94 ± 1.0%, а парамагнитной — 6 ± 1.0%. Эти результаты согласуются с данными, полученными методом рентгеновской дифракции. Анализ величин ХС указывает, что парамагнитная составляющая обусловлена ионами железа, находящимися в окисном состоянии.

Из экспериментальных МС были получены функции распределения величин H<sub>hf</sub>, КС и ХС. На рис. 3 приведены функции распределения величины H<sub>hf</sub>. Как видно из рисунка, для магнитной фазы функции распределения КС и ХС очень узкие. Это указывает на незначительность корреляции параметров H<sub>hf</sub> и КС, а также H<sub>hf</sub> и ХС.

Значение H<sub>hf</sub>, соответствующее максимуму распределения, в случае пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, осажденных в атмосфере Kr, составляет 201 кОе, полуширина кривой p(H<sub>hf</sub>) равна 275.4 кОе. Максимум функции распределения эффективных полей p(H<sub>hf</sub>) в Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, полученных при осаждении в Хе, находится в области значений H<sub>hf</sub> ≈ 155.7 кОе, полуширина кривой p(H<sub>hf</sub>) равна 258.4 кОе. В случае пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, осажденных в атмосфере Ar, максимум функции распределения p(H<sub>hf</sub>) смещен к существенно большим величинам, чем для пленок, осажденных в атмосферах Kr и Хе, и достигается при 222.5 кОе.

При этом полуширина кривой распределения p(H<sub>hf</sub>) существенно уменьшается, достигая 125 кОе. Координата максимума p(H<sub>hf</sub>) для пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, осажденных в Хе, близка к значению H<sub>hf</sub> = 225 кОе для сплавов Tb(Fe,Co)<sub>1.5</sub>, обладающих высокой магнитострикцией, а также к положению максимума 210 кОе для аморфных сплавов TbFe<sub>2</sub> [15]. Такое положение максимума H<sub>hf</sub> = 222.5 кОе подразумевает сильное 3d–3d обменное взаимодействие. Магнитный момент 3d-ионов (M<sub>3d</sub>) можно определить путем масштабирования, принимая ⟨H<sub>hf</sub>⟩ = 330 кОе и M<sub>3d</sub> = 2.2 μ<sub>B</sub>/atom для α-Fe. В результате получаем M<sub>3d</sub> = 1.48 μ<sub>B</sub>/atom. Такое большое значение магнитного момента 3d-ионов при комнатной температуре указывает на то, что в рассматриваемом сплаве содержание Со достаточно велико для эффективного ферромагнитного взаимодействия, а количества ионов Fe достаточно для наведения большого магнитного момента.

Направление магнитных моментов и соответственно ориентация оси легкого намагничивания (ОЛН) определяются в мессбауэровской спектроскопии из соотношения интенсивностей вторых (пятых) и первых (шестых)

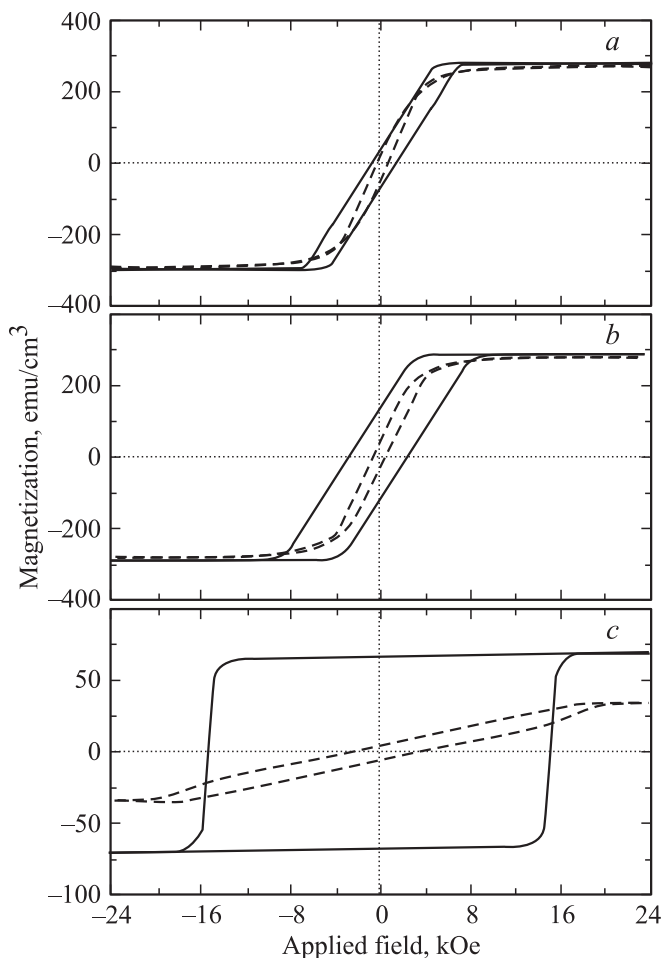


Рис. 4. Петли гистерезиса пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, осажденных при давлении P = 0.67 Па в Kr (a), Хе (b) и Ar (c), полученные при комнатной температуре в магнитном поле, приложенном параллельно (штриховая линия) и перпендикулярно (сплошная линия) плоскости пленки.

линий (A<sub>2,5</sub>/A<sub>1,6</sub>) зеемановского секстиплета по формуле A<sub>2,5</sub>/A<sub>1,6</sub> = 3(1 - cosθ)/(4sinθ). Здесь θ — угол, определяющий ориентацию эффективного магнитного поля (магнитного момента) на ядре мессбауэровского изотопа относительно направления волнового вектора гамма-излучения. Поскольку в наших экспериментах волновой вектор гамма-излучения был ориентирован по нормали к поверхности исследуемого образца, здесь θ — угол отклонения магнитных моментов от нормали к поверхности пленки.

Из данных математической обработки МС пленок было найдено, что в случае пленок Tb<sub>30</sub>Fe<sub>60</sub>Co<sub>10</sub>, осажденных в атмосфере Kr или Хе, отношение A<sub>2,5</sub>/A<sub>1,6</sub> = 0.047 ± 0.026. Этому значению соответствуют три варианта ориентации магнитных моментов: 1) средний угол (θ) составляет 15 ± 4°; 2) в случае равновероятного распределения магнитных моментов по углам в виде „зонтика“ угол θ, соответствующий вершине „зонтика“, равен 21 ± 6°; 3) основная доля (93 ± 4%) магнитных моментов ионов железа в пленке парал-

лельна нормали к поверхности пленки  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , а остальная часть ( $7 \pm 4\%$ ) моментов ориентирована параллельно поверхности пленки.

В случае пленок  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , полученных при осаждении в Ag, отношение  $A_{2,5}/A_{1,6} = 0.0 \pm 0.02$ , и этому значению соответствует только величина  $\theta = 0$ . Следовательно, магнитные моменты в  $Tb_{26}Fe_{65}Co_9$  ориентированы параллельно нормали к поверхности пленки. Полученное в [16] усредненное значение  $\theta = 18^\circ$  для аморфных пленок  $TbNFe_{0.55}Co_{0.45}O_{1.5}$ , близко к величине  $\theta = 15^\circ$ , найденной нами для  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , осажденных в Kг или Хе. Данные о структурных особенностях и фазовых состояниях пленок, полученные с помощью мессбауэровской спектроскопии, согласуются с результатами рентгеновской дифракции.

Следует отметить, что МС пленок  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , полученных при распылении в Ag в области давлений выше 1 Pa, аналогичны МС пленок, осажденных в атмосфере Kг или Хе. Анализ МС пленок  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , полученных осаждением в Ag в области давлений выше 1 Pa, указывает, что с повышением давления газа уменьшается количество магнитных моментов ионов железа, ориентированных параллельно нормали к поверхности.

Таким образом, методом магнетронного распыления при давлении Ag в камере распыления 0.67 Pa получены аморфные пленки  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , обладающие хорошими магнитными характеристиками и ОЛН, ориентированной по нормали к поверхности пленки. Это подтверждается петлями гистерезиса исследованных пленок, приведенными на рис. 4. Синтезированные пленки  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$  удовлетворяют требованиям, предъявляемым к материалам для магнитной записи „перпендикулярного“ типа.

#### 4. Заключение

В пленках  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$  толщиной  $\sim 10$  nm, осажденных методом магнетронного распыления, исследованы зависимости магнитных свойств и ориентации ОЛН от типа и давления газа в камере распыления. Установлено, что осажденные пленки  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$  являются аморфными, причем пленки, полученные осаждением в Ag при давлении 0.67 Pa, обладают лучшими магнитными характеристиками по сравнению с осажденными при больших давлениях (4 Pa). Изучены режимы осаждения пленок  $TbFeCo$ , удовлетворяющих требованиям к материалам для магнитной записи „перпендикулярного“ типа. Исследования методом мессбауэровской спектроскопии показали, что в пленках  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , распыленных в атмосфере Kг или Хе, ОЛН ориентирована под углом  $15 \pm 4^\circ$  относительно нормали к поверхности пленки, тогда как в пленках  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , полученных в Ag в области давлений 0.67 Pa, ОЛН перпендикулярна поверхности пленки. Таким образом, методом магнетронного распыления в атмосфере Ag при давлении 0.67 Pa получены аморфные пленки  $Tb_{30}Fe_{60}Co_{10}$ , обладающие хорошими магнитными характеристиками, удовлетворяющими требованиям, предъявляемым к материалам для сверхвысокоплотной магнитной записи информации.

#### Список литературы

- [1] H. Saga, H. Nemoto, H. Sakeda, M. Takahashi. Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 1839 (1999).
- [2] S. Iwasaki, Y. Nakamura. IEEE Trans. Magn. **13**, 5, 1272 (1977).
- [3] M.A. Bashir, T. Schrefl, J. Dean, A. Goncharov, G. Hrkac, D.A. Allwood, D. Suess. J. Magn. Magn. Mater. **324**, 269 (2012).
- [4] Fumiko Akagi, Masaki Mukoh, Masafumi Mochizuki, Junko Ushiyama, Takuya Matsumoto, Harukazu Miyamoto. J. Magn. Magn. Mater. **324**, 309 (2012).
- [5] S. Li, Y. Ishihara, X. Liu, A. Morisako. Abstracts of the Perpendicular Magnetic Recording Conf. Japan (2010). 18aD-18.
- [6] Xiaoxi Liu, Akimitsu Morisako. J. Magn. Magn. Mater. **303**, e277 (2006).
- [7] Y. Fujiwara, T. Masaki, X. Yu, M. Sakurai, S. Tsunashima, S. Iwata, K. Suzuki. Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 5097 (1997).
- [8] Yukiko Kubota, Xiaowei Wu, Ganping Ju. J. Magn. Magn. Mater. **310**, 2665 (2007).
- [9] M. Tofizur Rahman, Xiaoxi Liu, Mitsunori Matsumoto, Akimitsu Morisako. J. Appl. Phys. **97**, 10C515 (2005).
- [10] S. Miyanishi, K. Kojima, J. Sato, J. Takayama, H. Fuji, A. Takahashi, K. Ohta. J. Appl. Phys. **93**, 7801 (2003).
- [11] F. Richomme, J. Teillet, D.T. Huong Giang, N.H. Duc. J. Magn. Magn. Mater. **272–276**, 2086 (2004).
- [12] А.С. Камзин, Akimitsu Morisako, Xiaoxi Liu. Письма в ЖТФ **34**, 23, 21 (2008).
- [13] А.С. Камзин, Л.А. Григорьев, А.Б. Шерман, И.С. Бараш. СФХТ **6**, 64 (1993).
- [14] В.С. Русаков. Изв. РАН. Сер. физ. **63**, 7, 1093 (1999).
- [15] M. Viret, D. Vignoles, D. Cole, J.M.D. Coey, W. Allen, D.S. Daniel. J.F. Gregg. Phys. Rev. B **53**, 8464 (1996).
- [16] T.M. Danh, T.M. Duc, H.N. Thanh, J. Teillet. J. Appl Phys **87**, 7208 (2000).