

# PdMn/Co 多层膜的磁性和磁光特性研究\*

周 勋<sup>1,2)†</sup> 梁冰青<sup>1)</sup> 王 海<sup>1)</sup> 张臻蓉<sup>1)</sup> 陈良尧<sup>3)</sup> 王荫君<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室,北京 100080)

<sup>2)</sup>贵州师范大学物理与电子科学系,贵阳 550001)

<sup>3)</sup>复旦大学物理系,上海 200433)

(2002 年 11 月 14 日收到,2003 年 1 月 7 日收到修改稿)

用磁控溅射法制备了不同 Mn 含量的 PdMn/Co 磁性多层膜,通过 x 射线衍射对该多层膜系列进行结构分析,测定了不同 Mn 含量系列样品的磁滞回线、垂直各向异性及磁力显微镜图,分析了饱和磁化强度、磁畴和垂直各向异性变化的原因,通过测定该多层膜体系的克尔谱,简要分析了一定波长下克尔角随 Mn 含量增加而变化的物理机制.

关键词:多层膜,磁性,磁光

PACC:7570,7820L,7550S

## 1. 引 言

自 Carica 发现 Pd(Pt)Co 多层膜具有很强的垂直各向异性且在短波长处有较高的磁光克尔角和反射率以来,Pd(Pt)Co 多层膜被作为第二代磁光存储介质的候选材料进行了大量的研究<sup>[1-8]</sup>.为了提高该多层膜的性能,发现新的物理机制,人们在其磁性层或非磁性层内掺入第三元杂质,希望改变和提高 Pd(Pt)Co 多层膜的磁和磁光性能.主要工作如:Pt/CoNi 多层膜,与 Pt/Co 相比,降低了居里温度,然而其磁光克尔角和饱和磁化强度不变<sup>[3]</sup>;PdAu/Co(Au 的含量为 4.5at.%)多层膜的极向克尔角有少量增加,垂直各向异性没有下降<sup>[4]</sup>;PtAl/Co 和 PtCu/Co 多层膜分别在 680 及 770 nm 处克尔角相对于 Pt/Co 有一较大增加,PtCu/Co 的增强幅度达到 20%;PtAg/Co 多层膜在 770 nm 处的克尔角随掺杂浓度出现振荡<sup>[5]</sup>;PtNi/Co 多层膜的饱和磁化强度和克尔角随 Ni 掺杂量的增加出现振荡,铁磁性的 Ni 出现负极化或正极化现象,王荫君等用 RKKY 理论解释了这个现象<sup>[8]</sup>;在 Pd/Co 多层膜的 Co 层中掺入 Nb,影响了 Pd 层的极化,使其饱和磁化强度和层间耦合随 Pd 层厚度变化出现振荡<sup>[9,10]</sup>等等.同时,在多层膜中引入新界面以提高体系的垂直各向异性及磁光性能的研究

也引起了人们的重视.研究发现 Pt/Co/Pt/Pd 多层膜具有很强的垂直各向异性、高的矫顽力和良好的磁光特性<sup>[11]</sup>;Ni/Pt/Co/Pt 多层膜其  $T_c$  下降且当 Ni 层厚度不大时,克尔角较高<sup>[6]</sup>;Co/Cr/Pd 多层膜其垂直各向异性和克尔角随 Cr 层厚度的增加而下降等<sup>[12]</sup>.

在短波段使克尔角增大而又不引起磁特性下降过多的多层膜是近年来多层膜磁光介质研究的热点之一.在对 Pd(Pt)Co 进行掺杂浓度变化影响其磁光特性研究<sup>[3-5,8-10,13]</sup>的同时,对具有顺磁性的 Pd 层中掺入磁性元素后引起的极化现象对体系磁性及磁光特性影响的研究工作开展得较少.本研究利用磁控溅射,在 Pd/Co 多层膜的非磁性层中掺入少量的杂质 Mn,研究其磁性和磁光性能的变化,为 Pd/Co 多层膜在磁光存储方面的应用提供实验和理论依据.

## 2. 实验方法

利用磁控溅射方法在水冷的基片上制成(40 nm)Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>[(Co(0.33 nm)/Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>(0.8 nm)]<sub>20</sub>多层膜系列样品(x=0—20.8%),Pd 层采用射频溅射.系统本底优于  $5 \times 10^{-5}$  Pa,溅射时通以

\* 国家自然科学基金(批准号:19774072)和贵州省科学技术基金(批准号:20013078)资助的课题.

† E-mail: zhouxun99@hotmail.com

99.9995% 的高纯 Ar 气, 溅射压强为 0.8 Pa, 所有样品沉积在带 40 nm 厚的 Pd 或 PdMn 衬底的玻璃基底上, 使多层膜有较好的结构取向. Mn 的含量由放置在 Pd 靶上的 Mn 片和 Pd 靶的相对面积和位置确定, Co 层的厚度为 0.33 nm, 多层膜的周期为 20, 采用 Surface Profile Measuring Dektak3 膜厚仪测定溅射速率, 同时用 x 射线小角衍射加以验证以确定每一单层厚度, Co 和 Pd 的溅射速率分别为 0.11 和 0.10 nm/s, 整个溅射过程由计算机控制.

通过小角和大角 x 射线衍射分析样品调制周期和晶体结构, 用电感耦合等离子体发射光谱仪 (Therm Jarrel-ash Corp., IRIS/AP) 确定 Mn 在 Pd 层中的原子百分比. 用磁转矩仪在外场  $8 \times 10^5$  A/m 下测定垂直各向异性  $K_u$ , 精度优于 3%. 用北京大学交流梯度磁强计 (AGM) 测定其磁性参数, AGM 的磁矩精度和可重复性在 2% 以下. 用 Nano Scope 3A Nonmagnetic Version D-3000 型磁力显微镜观察样品表面磁畴, 在室温饱和场为  $8 \times 10^5$  A/m 下, 用复旦大学全自动磁光克尔谱仪测量光波波长在 250—800 nm 范围内的克尔谱, 精度优于  $0.01^\circ$ . 用于掺杂的 Pd/Co 多层膜具有 111 织构取向和良好的成层结构, 样品垂直膜面时的剩磁比  $M_r/M_s = 1$ ,  $K_u = 6 \times 10^5$  J/m<sup>3</sup>,  $H_c = 26000$  A/m, 在 632.8 nm 处其极向克尔角  $\theta_k \approx 0.16^\circ$ .

### 3. 分析和讨论

图 1 为系列样品 (40 nm) Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/ [Co(0.33 nm)Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>(0.8 nm)]<sub>20</sub> 多层膜的大角和小角 x 射线衍射谱, 其中 x 的变化范围为 0—11.8%. 由于每一单层厚度很小, 故所有样品都只有一个小角峰, 峰位并不随 Mn 掺杂量的增加而有明显变化, 小角峰位于  $2\theta \approx 7.1^\circ$  处, 由此可推断出该多层膜的调制周期与原设计的各样品的调制周期 1.1 nm 十分接近, 说明样品的原子层状生长特性较好. 样品的大角 x 射线衍射谱表明, 得到的所有样品的大角衍射均出现 Pd(111) 和 PdCo(111) 峰, 两个峰的位置不随 Mn 含量的增加而移动, 样品具有良好的 111 织构和良好的垂直各向异性<sup>[14]</sup>. 然而随 Mn 含量增大, 织构逐渐退化, 各向异性减小.

图 2 为 PdMn/Co 多层膜样品磁滞回线, 测量时外磁场垂直膜面. 从所测的结果可以看到, 回线的矩形比在少量掺杂时变化较小, 当掺杂量增加时, 剩磁

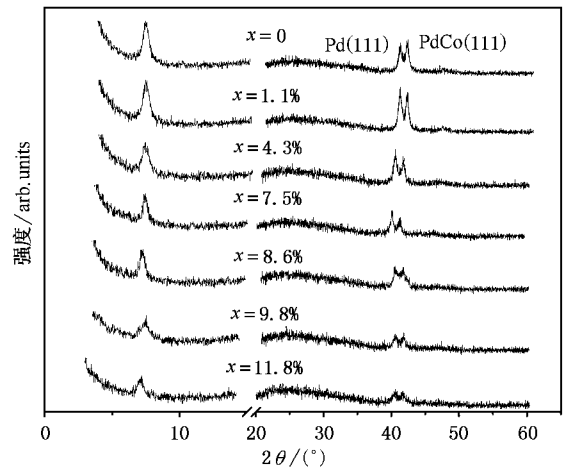


图 1 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜系列样品的大角 x 射线衍射图

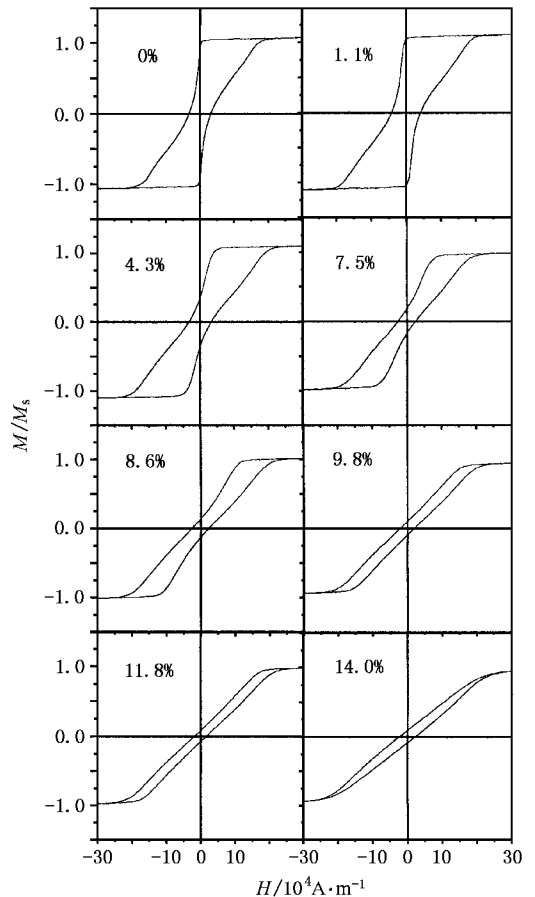


图 2 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜系列样品的磁滞回线, x=0—14.0%

比减小, 矩形比变差. 样品的矫顽力减小, 蜂腰状回线的倾斜度随 Mn 含量的增加而增大.

许多研究发现<sup>[15,16]</sup>, 具有垂直各向异性的 Pt/Co 或 Pd/Co 多层膜的磁滞回线呈蜂腰状, 即在低磁场时, 回线迅速反转磁化, 而随着磁场的逐渐增大, 回

线磁化减慢,呈现长长的“尾巴”,并在磁场足够大时饱和.我们的纯 Pd/Co 多层膜样品的磁滞回线也呈同样的蜂腰状特征,这是由于 Pt/Co 或 Pd/Co 多层膜的最初几层界面较为平滑.随着多层膜层数的增加,后形成的膜结构其界面则较为粗糙.在 Pt/Co 多层膜中,当层数较小时,回线为矩形状,当层数较大时,回线则渐呈蜂腰状.因此,最初几层界面为较平滑的膜结构,引起回线迅速反转磁化,而后形成的界面较为粗糙的膜结构则使回线磁化减慢,回线呈现长“尾”状.

另一方面,随着 Mn 含量增加,蜂腰状回线的倾斜度增大,这是由于样品的垂直膜面各向异性逐渐减小的缘故.垂直各向异性的减小,使得磁矩在垂直膜面的磁化变得困难,因此饱和场增加;同时垂直各向异性的减小,又使磁矩在垂直膜面的剩磁减小.因此,蜂腰状回线的倾斜度随 Mn 含量的增加而增大,这与下面所述的各向异性的测量结果是一致的.

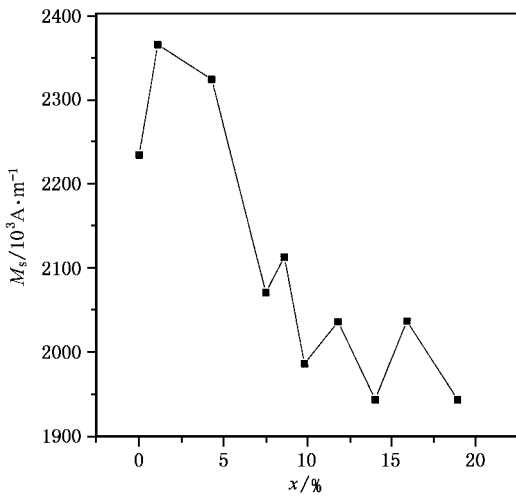


图 3 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜饱和磁化强度随 Mn 含量的变化

图 3 为 PdMn/Co 多层膜系列样品饱和磁化强度随 Mn 含量增加的曲线,饱和磁化强度在 Mn 含量较小时增加,而当 Mn 含量增加时有较大的减少.在本实验中,由于 Mn 原子无序地分布在 Pd 层中,PdMn 层具有类稀释磁性合金行为.当 Mn 元素掺杂量较小时,Mn-Mn 原子间距离较大,由 RKKY 作用引起 Mn-Mn 原子间耦合可能为铁磁耦合,对磁矩的贡献为正,从而出现在 Mn 含量较小时样品的饱和磁化强度值大于未掺杂的纯 Pd/Co 多层膜的饱和磁化强度.而当 Mn 元素掺杂量较大时,Mn-Mn 之间的耦合诱导磁矩反平行排列<sup>[17]</sup>,Pd-Mn,Mn-Co 原子之间也分别为反铁磁耦合,使系统的磁矩减小.同时,大量

Mn 原子的存在,严重稀释了 Co 原子对 Pd 原子的极化,使磁矩减小.因此,当 Mn 元素掺杂量较大时,多层膜的饱和磁化强度小于未掺杂的 Pd/Co 多层膜的饱和磁化强度,并随 Mn 含量的增加逐渐减小.实验中,当 Mn 元素掺杂量较大时,多层膜的饱和磁化强度随 Mn 含量的增加,呈现波动的现象.一方面,这可能是由于样品的 Mn 含量的误差和/或测量误差所致.另一方面,由于磁化强度波动的幅度不是很大,因此,需要作进一步更细致的研究,以确定其波动现象及可能的机制.

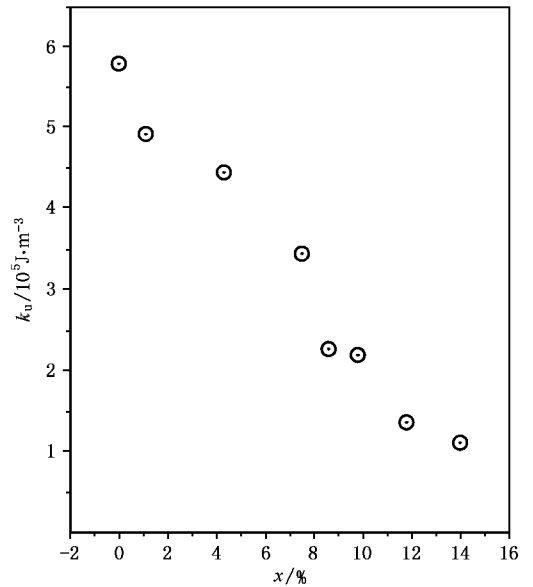


图 4 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜随 Mn 含量的增加垂直各向异性的变化

图 4 给出了磁转矩仪测定样品的垂直各向异性随 Mn 含量变化的关系.可以看出,具有良好的 PdCo (111) 结构的 Pd/Co 多层膜,具有很大的垂直各向异性<sup>[18]</sup>.随 Mn 含量的增加,垂直各向异性总的趋势是减小的.一般认为,自旋轨道耦合是垂直各向异性存在的根本原因,Bruno<sup>[19]</sup>通过理论计算超薄过渡族金属膜(001)和(111)面的磁晶各向异性性能时,考虑了自旋轨道耦合和轨道磁矩的影响,得到磁晶各向异性与自旋轨道耦合参数的平方关系,Daalderop 等<sup>[21]</sup>认为 Pd/Co 多层膜系统中 Co-3d 和 Pd-4d 的高度杂化导致 Pd 的 d 能带的劈裂对 Pd/Co 体系中强垂直各向异性有很大贡献.王鼎盛等<sup>[20]</sup>用微扰理论计算得出了由于晶场效应的减弱,使轨道能级的劈裂减小造成磁晶各向异性减小的结果.从本实验中的 x 射线衍射图来看,随 Mn 含量的增加,Pd(111)和 PdCo(111)所对应的大角峰有减弱的趋势,说明

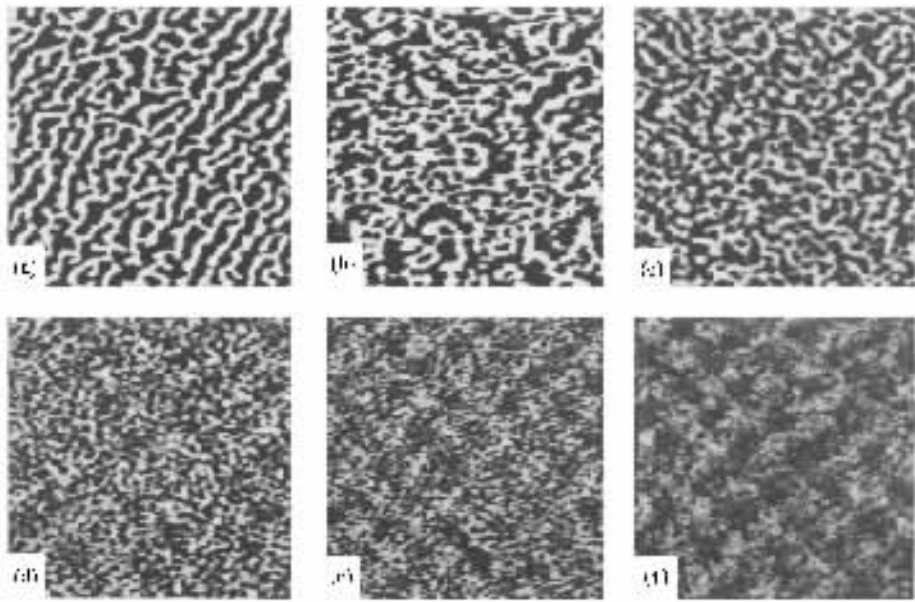


图 5 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜典型样品随 Mn 含量增加的磁力图 (a)  $x = 0$  ,(b)  $x = 1.1\%$  ,(c)  $x = 4.3\%$  ,(d)  $x = 8.6\%$  ,(e)  $x = 11.8\%$  ,(f)  $x = 14\%$

(111) 结构退化,从而晶场使 Pd-4d 能带的劈裂发生了变化,这一因素可能造成体系的垂直各向异性的下降.这与郑敏所做的 PdCu/Co 体系垂直各向异性减小是类似的<sup>[18]</sup>.

图 5 为随 Mn 含量增加的 PdMn/Co 多层膜样品的磁力显微镜图谱(扫描范围为 5 nm × 5 nm,针尖抬起高度为 30 nm).从图 5 可见,Pd/Co 多层膜的磁畴是条状畴,条畴的衬度反差较大,材料具有强的垂直各向异性.当有少量 Mn 掺入时(如  $x = 1.1\%$ ),磁力

图的条畴宽度稍有增加,其余所有样品的条畴宽度和衬度反差均随 Mn 含量的增加而减小,表明样品垂直各向异性的减小.由于磁畴结构是静磁能和畴壁能平衡的结果,静磁能倾向于减小条畴宽度,而畴壁能的存在倾向于增加条畴的宽度<sup>[21]</sup>.在本实验中,随 Mn 含量的增加条畴宽度变小,说明磁畴的畴壁能减小了.

用全自动扫描磁光克尔谱仪在室温下测定了入

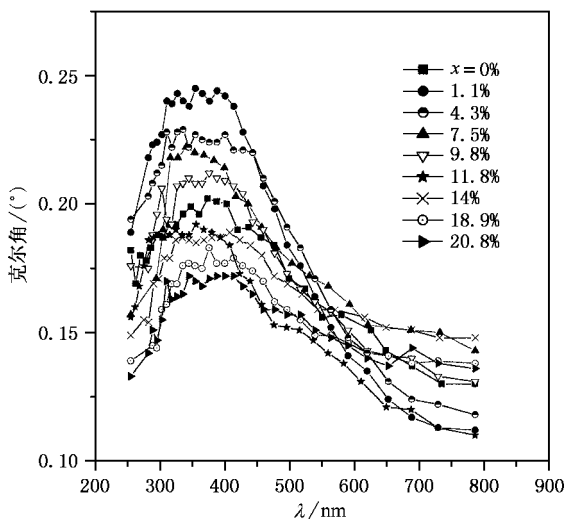


图 6 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜系列样品的磁光克尔角随 Mn 含量增加的变化

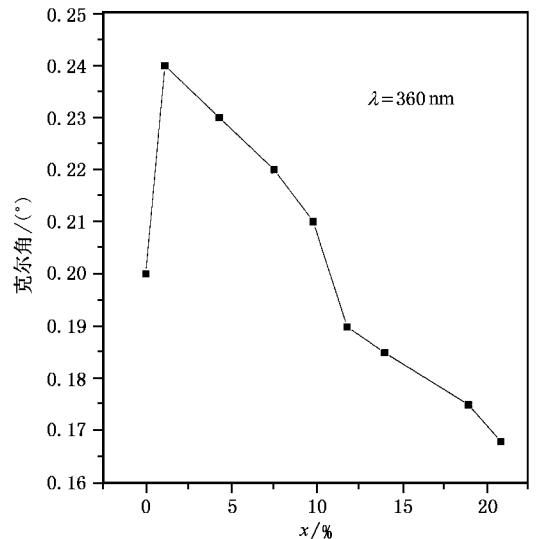


图 7 Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>/Co 多层膜系列样品在 360 nm 处克尔角随 Mn 含量增加的变化

射光波长为 250—800 nm 范围内的系列样品饱和极向克尔谱,结果如图 6 所示.对于 Pd/Co 多层膜,克尔角峰值约为  $0.2^\circ$ ,所有的样品在 360 nm 附近均出现峰包.当  $x < 9.8\%$  (掺杂量较小)时,样品的磁光克尔角大于 Pd/Co 多层膜的,随掺杂浓度增大克尔角降低;当  $x > 11.8\%$ ,样品的克尔角小于纯 Pd/Co 多层膜的,随掺杂浓度增大克尔角降低,这类类似于郑敏等<sup>[22]</sup>所做的 PtNi/Co 多层膜体系克尔角的变化规律.所有样品的克尔角峰包随 Mn 掺杂浓度的增加向长波段稍有侧移,克尔谱的形状基本不变且在  $x = 1.1\%$  时克尔角处于峰值位置.

从宏观理论上,磁光克尔效应可表示为  $\varphi_K = \theta_K - i\epsilon_K = \tilde{\sigma}'_{xy}/i\tilde{\sigma}'_{xx}\tilde{n}$ ,其中  $\theta_K$  为克尔转角, $\epsilon_K$  为椭圆率, $\tilde{\sigma}'_{xy}$ , $\tilde{\sigma}'_{xx}$  和  $\tilde{n}$  分别为电导张量的非对角元、对角元和圆偏振光的折射率.从微观机制来看,铁磁金属中的磁光效应源于带内和带间的跃迁,在可见光范围,带内跃迁局限于长波段,带间跃迁发生在短波

段<sup>[23]</sup>.图 7 为选定波长 360 nm 下克尔角随 Mn 含量增加的变化情况,由于 Mn 的掺入可能使克尔角的电导张量的对角元和非对角元以及光学常数相对于 Pd/Co 多层膜而言发生了变化,故体系的克尔角发生了变化.

## 4. 结 论

在磁控溅射所得的 PdMn/Co 多层膜中,当 Mn 含量较小时,由于 Mn 原子正极化的贡献,饱和磁化强度有所增大,Mn 含量较大时,稀释了 Co 原子对 Pd 原子的极化导致饱和磁化强度减小;随 Mn 含量的增加,样品的磁畴宽度减小、磁畴反差减弱,畴壁能减小.由于 111 织构被削弱,垂直各向异性下降.在克尔谱中,由于影响克尔角的电导张量对角元、非对角元及光学常数的变化,引起了克尔角随 Mn 含量先增加后减小的涨落.

- [ 1 ] Garcia P F 1988 *J. Appl. Phys.* **63** 5066
- [ 2 ] Daalderop G H O, Kelly P J and Schuurmans M F H 1990 *Phys. Rev. B* **42** 7270
- [ 3 ] Meng Q, Drent W P V, Lodder J C *et al* 1996 *J. Magn. Magn. Mater.* **156** 296
- [ 4 ] Ha J G, Kyuno K and Yamamoto R 1996 *J. Phys. Condens Matter* **8** 677
- [ 5 ] Wang Y J, Guo Z H, Zhu D K *et al* 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 3957
- [ 6 ] Wang H, Zhou Y S, Zheng W *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** S151 (in Chinese) [王 海、周云松、郑 鹤等 1999 物理学报 **48** S151]
- [ 7 ] Wang H, Zhou Y S *et al* 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 1117
- [ 8 ] Wang Y J, Zheng M, Li J *et al* 1998 *Phys. Rev. B* **58** 3228
- [ 9 ] Yan S S, Lin Y H 1995 *Phys. Rev. B* **52** 1107
- [ 10 ] Liu Y H, Zheng M, Ma X D *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 6137
- [ 11 ] Xiao Y, Xu J H, Rao K V 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 6267
- [ 12 ] Zhou X, Liang B Q *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 159 (in Chinese) [周 勋、梁冰青等 2001 物理学报 **50** 159]
- [ 13 ] Liang B Q, Chen X, Zhou X *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2059 in Chinese [梁冰青、陈 薰、周 勋等 2000 物理学报 **49** 2059]
- [ 14 ] Lin C J, Gorman G L, Lee C H *et al* 1991 *J. Magn. Magn. Mater.* **93** 194
- [ 15 ] Bennett L H, Torre E D and Fry R A 2001 *Phys. B* **306** 228
- [ 16 ] Phillips G N, Grady K O, Meng Q *et al* 1996 *IEEE Trans. on Magn.* **32** 4070
- [ 17 ] Wang J, Wang Y J, Li J *et al* 1999 *Phys. Rev. B* **59** 11866
- [ 18 ] Zheng M, Zhu W K and Wang Y J 1996 *Solid State Communications* **99** 483
- [ 19 ] Brouno P 1989 *Phys. Rev. B* **39** 865
- [ 20 ] Wang D S, Wu R and Freeman A J 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 869
- [ 21 ] Zhang Z R 2002 *Ph. D. Thesis* (Beijing: Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [张臻蓉 2002 博士论文 (北京:中国科学院物理研究所)]
- [ 22 ] Zheng M, Shang C H, Wang Y J *et al* 1997 *J. Appl. Phys.* **81** 5656
- [ 23 ] Wang C S, Callaway J 1994 *Phys. Rev. B* **9** 4897

# A study on magnetic and magneto-optical properties of PdMn/Co multilayers \*

Zhou Xun<sup>1,2)†</sup> Liang Bing-Qing<sup>1)</sup> Wang Hai<sup>1)</sup> Zhang Zhen-Rong<sup>1)</sup> Chen Liang-Yao<sup>3)</sup> Wang Yin-Jun<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>( State Key Laboratory for Magnetism , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 ,China )

<sup>2)</sup>( Department of Physical and Electronic Science , Guizhou Normal University , Guiyang 550001 ,China )

<sup>3)</sup>( Department of Physics , Fudan University , Shanghai 200433 ,China )

( Received 14 November 2002 ; revised manuscript received 7 January 2003 )

## Abstract

Co/Pd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub> multilayers with Mn concentration  $x = 0$  to 20.8% have been sputtered on a glass substrate with 40 nm thick Pd or PdMn buffer. With the combination of small- and large-angle x-ray analyses , the crystal structure of the samples were investigated. Hysteresis loop and perpendicular magnetic anisotropy ( PMA ) were measured by means of an alternating-gradient magnetometer and magnetic torque. Domain structure was observed by magnetic force microscopy. Saturation magnetization , PMA and the Kerr rotation spectrum of the samples were investigated. It is shown that the change of Kerr rotation with the increase of Mn concentration in Pd could be ascribed to the variation of diagonal and off-diagonal elements of the dielectric tensor.

**Keywords :** multilayers , magnetic , magneto-optical

**PACC :** 7570 , 7820L , 7550S

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China( Grant No. 19774072 ) and by the Natural Science Foundation of Guizhou Province , China( Grant No. 20013078 ).

† Communication author ,E-mail :zhouxun99@hotmail.com