

在 Pd/Cu(100)表面上外延的超薄 Co 膜的结构和磁性

卢亚锋^{1,2)} M. Przybylski²⁾ 王文宏²⁾ 闫 龙²⁾ 石一生²⁾ J. Barthel²⁾

¹⁾ 西北有色金属研究院, 西安 710016)

²⁾ Max Planck Institute for Microstructure Physics, Weinberg 2, D-06120 Halle, Germany)

(2005 年 1 月 12 日收到, 2005 年 4 月 18 日收到修改稿)

利用脉冲激光溅射(PLD)和分子束外延(MBE)方法制备了超薄膜系统 Co/Pd/Cu(100)。脉冲激光溅射生长的单原子 Pd 层呈现了很好的二维生长模式。在这个 Pd 表面上,分子束外延生长的 Co 层直至 12 个原子层都表现了层层生长模式。利用俄歇电子谱(AES)和低能电子衍射(LEED)研究了该系统的表面结构。利用低温磁光克效应(MOKE)研究了系统的磁学性质。结构研究表明,Co 层由于面内晶格失配应力而具有一个四方正交结构;与对比样品 Co/Cu(100)的比较研究说明 Pd 层的存在强烈地改善了 Co 膜的起始生长模式和结构。磁光克效应测量表明, Pd 层的存在改变了 Co 层的磁学性质。

关键词: 薄膜的磁性质, 组织与形貌, 界面磁性

PACC: 7570A, 6855, 7570C

1. 引 言

Co 单晶具有 hcp 结构, 它的居里温度是 1395K。Co 原子的磁矩是 $1.72\mu_B$; 其磁矩的易轴在 [111] 方向。由于纳米薄膜在磁记录和存储装置技术方面的重要性, 近年来人们对 Co 与非磁性金属组成的人工异质结进行了广泛的研究。在非磁性金属衬底表面的低维系统中, Co 薄膜由于维度降低和磁性/非磁性金属界面的相互作用而引起的对称性破缺而具有与块样品不同的结构与磁性^[1]。因此增强的磁矩和所期望的磁各向异性可以在超薄膜或多层膜中以可控制的方式得到^[1-3]。

自从发现振荡的磁层间耦合行为^[4]和巨磁阻(GMR)效应^[5]以来, Co/Cu 异质结(包括单层膜和多层膜)得到了深入的研究。人们普遍认为, 在 Cu(100)衬底上对于厚度大于 2ML 的超薄 fcc Co 膜是以层层外延的方式生长的。由于晶格失配引起 1.9% 的界面应变强烈地影响着 Co 膜的磁性^[6,7]。最近在 Cu(100)衬底上外延的厚度小于 2ML 的 Co 膜的结构与磁性引起了特别的兴趣^[8-11]。在临界厚度 $d_c = 1.8\text{ML}$ 处存在居里温度的一个跳变。据认为这个跳变关联于一个磁亚稳相, 它与 1.8ML 处的岛的联合有关^[9-11]。这表明在超薄 Co 膜中磁性 with 结构存在一个强的关联。

在 Co-Pd 薄膜和多层膜中, 垂直磁各向异性和增强磁矩的存在引起了很大的关注。理论计算也预言了 3d 杂质在 Pd 基体中由于诱导的 Pd 自旋极化会产生巨磁矩, 因为 Pd 具有比 Co 更强的自旋-轨道耦合^[12]。在钯/铁磁界面, 第一层 Pd 可以获得约 $0.3\mu_B$ /原子磁矩, 然后随着 Pd 层远离界面而迅速衰减^[13]。基于 XMCD 技术的许多实验被用来研究在 Co/Pd 多层膜中 Co 原子增强的轨道磁矩^[14]。在这些多层膜中 Co/Pd 界面起着关键的作用。然而很少有报道超薄 Co/Pd(100)的结果。在 fcc Co 和 Pd 之间相当大的晶格失配(9.8%)极大地影响着 Co 膜的生长与结构($a_{\text{Co}} = 0.354\text{nm}$, $a_{\text{Pd}} = 0.389\text{nm}$)。为了避免 Co/Pd 之间大的晶格失配, 我们选择了 Cu(100)衬底和 Pd 中间层。Pd 层的厚度可以精确地控制, 因此允许更精确地分析 Co/Pd 界面磁性。在本工作中, Pd 层是借助于脉冲激光溅射(PLD)^[15]在 Cu(100)上外延生长的。这个单层 Pd 是共格生长在 Cu(100)衬底上, 因此与 Co/Pd(100)系统相比, 在 Pd/Cu(100)表面外延的 Co 层与 Pd 中间层之间具有一个小的晶格失配。因此在 Co/Pd/Cu(100)系统中, 我们获得了一个很好定义的 Co/Pd 界面。

2. 实验方法

我们利用 PLD 在多腔高真空系统中(背底压力

小于 2×10^{-8} Pa) 的 Cu(100) 衬底上外延 Pd 单层. 在溅射之前利用 Ar^+ 离子循环刻蚀 Cu(100) 单晶衬底并加以 900K 退火处理, 直至仅观察到 Cu AES 峰、锐的 LEED 斑点和原子级平坦的台阶. 在溅射 Pd 层过程中衬底的温度保持室温, 衬底置于离 Pd 靶 100—130mm 处. 激光能量设定为 325mJ. 溅射完 Pd 层后, Co 膜是利用分子束外延制备的. 整个溅射过程是利用反射高能电子衍射 (RHEED) 系统监控的. 利用 STM 观察样品的表面形貌. 样品的磁性由纵向和极向磁光克效应 (MOKE) 来确定.

3. 实验结果

图 1 给出了 Cu(100)/Pd(100) 衬底上 Co 和 Pd 层生长过程中反射高能电子衍射斑点强度随时间的变化. 在 1ML PLD Pd 层生长以后, RHEED 的强度几乎恢复到溅射前的水平, 表明 1ML Pd 具有极好的表面平整度. 光滑的 Pd 中间层为后来的 Co 膜的层-层外延生长提供了可能性. 我们的 RHEED 测量也显示了直至至少 11ML 的强度振荡行为 (见图 1(a)).

然而对于 Co/Pd(100) 膜 (见图 1(b)), 仅能观察到初始的两个清楚的振荡和第三、四个很弱的振荡. 这点源于 2ML 以后二维生长模式实际的消失. 从 RHEED 强度振荡所估计的单层 Co 的溅射时间对于 Co/Pd/Cu(100) 薄膜为 288s, 对于 Co/Pd(100) 薄膜为 250s. 他们的比值是 1.15. 这意味着在 Pd/Cu(100) 表面上的 Co 原子密度大于在 Pd(100) 表面上的. 很显然, 在完全相同的溅射条件下, 这个差异来源于晶格失配应变导致的 Co 表面原子密度的不同.

图 2 给出了 Co 薄膜在两个不同衬底上的低能电子衍射图. 1ML 的 PLD Pd/Cu(100) 层表现了清楚的 (1×1) LEED 斑点. 这点表明了共格生长特点, 尽管 Pd ($a_{\text{Pd}} = 0.389\text{nm}$) 和 Cu ($a_{\text{Cu}} = 0.361\text{nm}$) 之间也存在相当大的晶格失配 (7.8%). 但我们的确没有观察到 (2×2) LEED 图案. 这种由于 Pd-Cu 表面合金化而形成的再构经常在 TD Pd/Cu(100) 样品中观察到^[16]. (2×2) 不存在的原因很可能是由于脉冲激光溅射中的非常高的成核密度. 随着 Co 在 Pd 层上的外延生长, LEED 斑点直至 5ML 几乎未发生变化. 甚至对于 11ML Co, 我们仍可以观察到清楚的 (1×1) 结构 (见图 2(b)). 这种情况非常类似于 Co 直接外延在 Cu(100) 衬底的结果. 然而, 对于直接溅射在 Pd(100) 衬底的 Co 膜, 仅在小于 2—3ML Co 时才

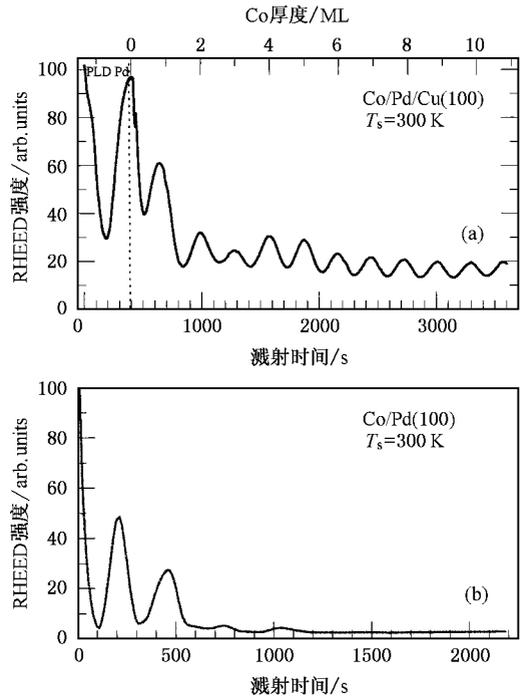


图 1 (a) Cu(100) 衬底上 Pd 和 Co 层生长过程中 RHEED 强度随时间的振荡, Pd 层是利 PLD 制备的 (b) 热蒸发 (TD) Co 在 Pd(100) 衬底上外延生长时的 RHEED 强度振荡

可以观察到 (1×1) LEED 结构 (见图 2(d)). 这个层厚对应于在 RHEED 中所能观察到层-层生长模式的范围. 随着 Co 层厚度增加, LEED 斑点很快退化成带有强的模糊背底的结构. 这个可以归于 2ML 以上三维生长机理所致. 由于厚度增加而引起的堆积的表面粗糙度也加剧了 LEED 斑点的退化.

利用 RHEED 技术通过测量 $(-1, 0)$ 和 $(1, 0)$ 斑点的间距变化确定了面内晶格常数随 Co 层厚度的变化 (见图 3). 对于 1ML Pd 中间层, 它的面内晶格常数 (0.3607nm) 非常接近于 Cu 衬底的晶格常数. 这说明 Pd 层承受了约 7.3% 的面内晶格应变. 对于接着沉积的 Co 层, 它与 Pd 层的晶格失配小于 1.9%. 因此我们可以理解在 Co/Pd/Cu(100) 体系中二维生长模式出现的原因. 随着 Co 层厚度的增加, 面内晶格常数缓慢地减小, 在 11ML 时接近 0.3577nm. 这个值仍然大于 Co 的晶格常数. 这说明 Co 层中的晶格失配应力没有完全释放. 实际上, 在 Co/Pd/Cu(100) 样品中 Co 层的面内晶格常数与在 Co/Cu(100) 系统中的变化一致^[17]. 1ML Pd 中间层的存在并没有显著改变 Co 层的结构. 我们认为 Co/Pd/Cu(100) 中 Co 膜的弹性应力态与 Co/Cu(100) 相同.

如果将 Co 直接沉积在 Pd(100) 衬底上, 我们发

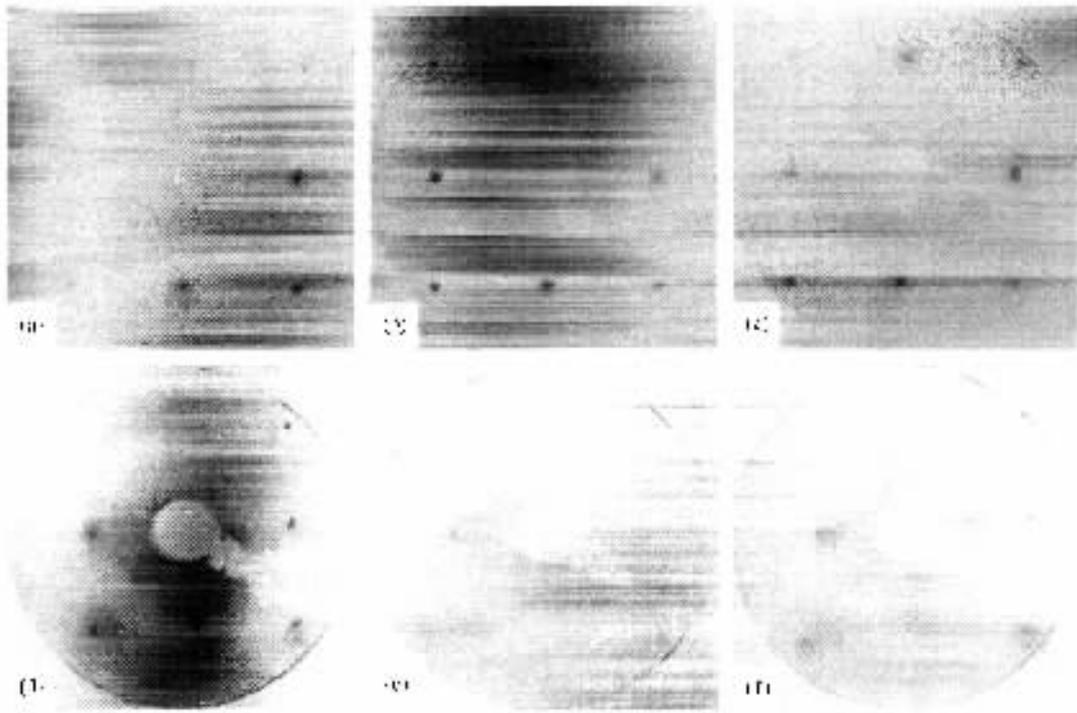


图 2 Co 在 1ML Pd/Cu(100) 上的 LEED 图样 (a) 1ML (b) 3ML (c) 5ML Co 在 Pd(100) 上的 LEED 图样 (d) 2ML (e) 4ML (f) 8ML LEED 图样是在电子束能量为 78eV 时获得的

现只有开始三层 Co 膜是由与 Pd 衬底相同的面内晶格常数(见图 3(b)). 这点提示一个由于 9.8% 界面晶格失配引起的高应变态. 3ML 以后的面内晶格常数很快减小到 Co 的体晶格常数值. 在这个厚度范围内我们已经观察不到 RHEED 强度振荡. 在 3ML 以上, Co 膜中的应力已经完全释放. 在这个厚度范围内也没有观察到清楚的 LEED 图样, 这暗示一个三维生长导致的粗糙表面.

图 4(a) 给出了利用 MOKE 测量的样品纵向克尔转动随 Co 层厚度的变化. 测量温度是 70K. 外磁场加在衬底的 [110] 方向. 应该指出的是, 在整个膜厚范围内我们没有探测到极向 MOKE 信号. 在 70K 当膜厚超过 0.5ML 时, 在 Pd(100) 和 Pd/Cu(100) 上的 Co 膜都呈现铁磁有序. 从 0.5ML 到 2ML(区域 I), Co/Pd/Cu(100) 和 Co/Pd(100) 表现了相同的层厚依赖性. 2ML 以上(区域 II), 我们得到不同的 MOKE 对 Co 膜厚度的依赖关系. Co/Pd/Cu(100) 的线性斜率明显大于 Co/Pd(100) 的线性斜率.

图 4(b) 表示了二个系统的矫顽力行为. 可以看到, 在整个膜厚范围内, Co/Pd/Cu(100) 的矫顽力小于 Co/Pd(100) 的, 特别是在低厚度区. 实际上, Co/Pd/Cu(100) 的 H_c 与 Co/Cu(100) 的 H_c 处于同一量

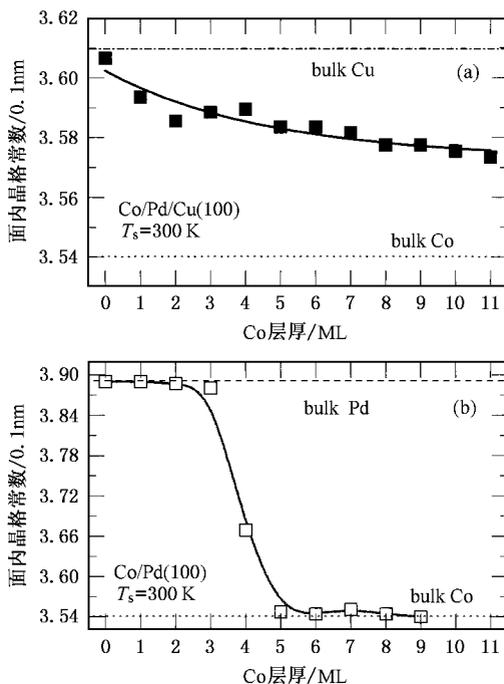


图 3 利用 RHEED 测量(-1,0)和(1,0)斑点的距离确定 Co 膜的面内晶格常数. 体 Co, Pd, Cu 的晶格常数数值用线来表示.

级. 低于 2ML 时 Co/Pd(100) 增加的 H_c 也许来源于应力的贡献.

值得注意的是,在本实验中所讨论的饱和克尔转动实际上相应于剩磁时的克尔转动.这是因为我们在测量中得到的是方形 MOKE 曲线.如果假定 MOKE 信号强度正比于薄膜的磁矩,那么厚度依赖的线性 MOKE 意味着 2ML 以上 Co 膜中的铁磁有序.

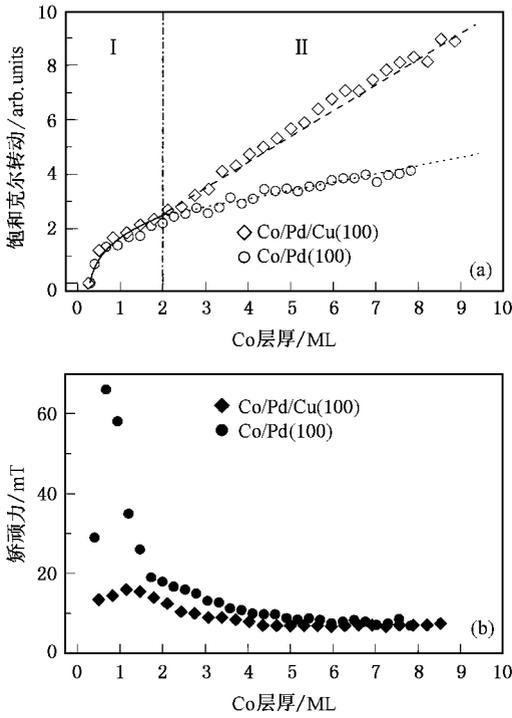


图 4 (a) 饱和克尔转动随 Co 层厚度的变化 (b) 矫顽力随 Co 层厚度的变化 (MOKE 测量时外磁场沿着衬底的 $[110]$ 方向, 测量温度为 70K)

现在我们来比较 Co/Pd/Cu(100) 和 Co/Cu(100) 的磁性, 因为这两个系统表现了相似的应力态和层-层生长模式. 通过比较试图探索 Pd 中间层在决定界面磁性中的作用. 因为对于 Co/Cu(100) 在低于临界厚度 $d_c = 1.8\text{ML}$ 存在一个磁亚稳相^[9], 因此选择 3ML 厚 Co 膜以避免一些不可靠因素. 为此首先在 Cu(100) 上制备一个楔形 Pd 中间层, 厚度从 0 到 1.5ML 然后在其上溅射 3ML TD Co 膜. 图 5 给出了 MOKE 的测量结果. 如果考虑到共格生长的 Pd 层 (0—1.5ML) 具有与 Cu(100) 衬底相同的的面内晶格常数, Pd 层的存在并不造成对 3ML Co 层附加的结构上的影响, 因此直接比较这两个系统的磁性是可能的. 为了方便起见, 我们将在两个方向 $[100]$ 和 $[110]$ 上的测量结果归一到参考样品 (3ML TD Co /Cu(100)) 的相应值. 我们发现所测量的 MOKE 强度直

至 1.0ML 随 Pd 层厚线性增加, 然后在 1.0ML 到 1.5ML 几乎保持不变. 与 3ML Co/Cu(100) 相比, 3ML Co/1ML Pd/Cu(100) 的 MOKE 强度增加了约 20%. 沿着两个方向 $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 100 \rangle$ 样品具有相同的 MOKE 厚度依赖性.

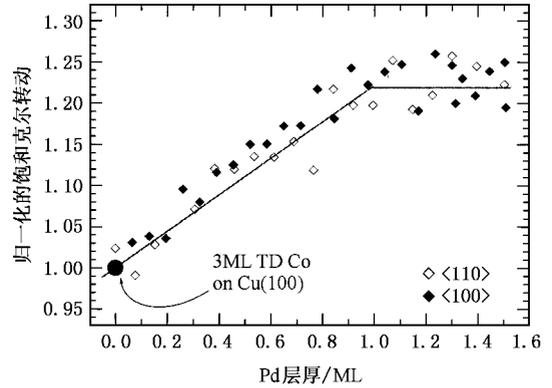


图 5 在楔形 Pd 中间层上 3ML Co 膜的饱和克尔转动随 Pd 层厚度的变化 (测量温度为 70K. MOKE 信号强度归一到 3ML TD Co/Cu(100) 的相应值)

为了澄清 Co/1ML Pd/Cu(100) 中增加的磁光响应的来源, 我们测量了 1ML Pd/Cu(100) 和 Cu(100) 表面上三个不同厚度 Co 层 (3, 6, 9ML) 的克尔转动 (见图 6). 对每一个 Co 层厚所给出的克尔强度都是测量了至少 3mm 长距离上的平均值, 因此测量误差可以排除. 对于 Co/1ML Pd/Cu(100), 我们观察到一个依赖于 Co 层厚度的 MOKE 强度的增加, 但单位 Co 层厚度的增量是常数. 这个增加量与图 5 中的测量一致.

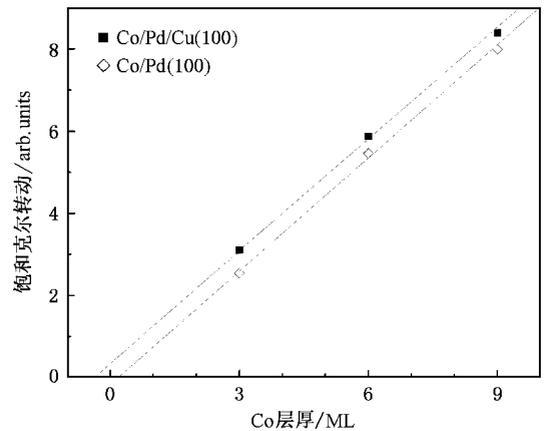


图 6 Co/1ML Pd/Cu(100) 和 Co/Cu(100) 饱和 MOKE 强度的比较 (测量温度为 70K)

我们也测量了 2ML Co /Pd/Cu(100) 样品 MOKE

信号的温度依赖关系以确定它的居里温度. 由于我们样品加热系统的限制, 500K 以上的 MOKE 数据是依赖磁化强度的指数率 $M(1 - T/T_c)^3$ 外推确定的. 2ML Co/Pd/Cu(100) 的 T_c 为 515K, 这个值非常接近于 2ML Co/Pd(100) 的 T_c 值 (~560K), 却远远高于 2ML Co/Cu(100) 的 T_c 值 (~340K)^[9]. 如果在 Co/Pd 界面的 Pd 由于 Co 的极化而具有了诱导磁矩, 那么 Pd 的诱导磁矩可以增强 Co 层的 T_c . 类似的行为也在 Fe/Pd(100) 薄膜中被发现^[18,19]. 超薄 Fe 膜的 T_c 强烈地依赖于 Fe-Pd 相互作用^[18]. 因此 Co/Pd/Cu(100) 中的 T_c 提高可以解释为 Co/Pd 界面效应.

4. 分析讨论

首先讨论 Co/Pd/Cu(100) 薄膜的生长模式和结构. 在 Co/Cu(100) 外延膜中, 由于 2ML 以前双层生长模式的出现^[11], 通常 RHEED 强度的第一个振荡缺失. 然而在 Co/Pd/Cu(100) 中, 我们的确发现了层-层生长模式, 甚至在起始生长阶段中. 对于异质外延系统按照简单的基于表面自由能的热力学判据, 对于 Co/Cu(100) 的情况, 层-层生长模式在能量上并不是有利的, 因为它们的表面能之间满足这样的关系: $\gamma_{Co} - \gamma_{Cu} > \gamma_i$ ($\gamma_{Co} = 2.55 \text{Jm}^{-2}$; $\gamma_{Cu} = 1.85 \text{Jm}^{-2}$; $\gamma_i = 0.25 \text{Jm}^{-2}$). 应变的 Pd 中间层的存在可能改变了 Co/Pd/Cu(100) 系统中的热力学关系. 尽管我们目前仅知道 $\gamma_{Pd} = 2.05 \text{Jm}^{-2}$, 但是可能大的界面能有助于层-层生长的出现.

Co 在 Pd/Cu(100) 和 Pd(100) 表面上原子密度的差别来源于 Co/Pd/Cu(100) 上减小的原子间距. 只要共格外延存在, Co 层将保持 Pd 中间层的晶格常数. 因此为了填满一个单原子层所需要的原子数将由于

减小的原子间距而不同. 假定在两种情况下开始的两层 Co 都是共格外延的, 我们估计的原子密度比是 $a_{Co-on-Pd}^2/a_{Co-on-Pd/Cu}^2 \sim 1.16$. 这个值非常接近于溅射一个 Co 单原子层所需要的时间比 (1.15). 显然溅射一个 Co 单原子层所需要的溅射时间的差别实际上是 Co 晶格在 Pd/Cu(100) 和 Pd(100) 表面上相干外延的结果.

对于 Co/Pd(100) 2ML 以上的 Co 很可能由于界面应变弛豫而演变成类似于 fcc 体相的结构. 在晶格应变弛豫过程中大量的结构缺陷容易形成, 从而造成了结构上的长程无序. 这也与 RHEED 的强度振荡失缺和模糊的 LEED 图样结果一致. 对于 Co 在 Pd/Cu(100) 表面上, Co 层具有与 Co/Cu(100) 系统相似的应变的 fct 结构^[7].

图 6 的结果却显示了与 Co/Cu(100) 相比, Co/Pd/Cu(100) 的 MOKE 强度对 Co 层厚度线性依赖关系中相同的斜率和附加的增加. 附加的克尔强度也许来源于 Co/Pd 界面效应. 应该强调的是, Co 与 Cu(100) 之间 Pd 单原子层所引起的 MOKE 信号的增加并不依赖于 Co 膜的厚度 (见图 6). 仅基于 MOKE 的测量无法直接断定两个系统的磁矩区别, 进一步的理论分析和实验工作是必要的.

5. 结 论

我们借助于 RHEED, LEED 和 MOKE 测量研究了 Co/Pd/Cu(100) 系统的结构与磁性. 与 Co/Pd(100) 比较, 生长与结构的改善归因于在 Cu(100) 衬底上 Co 与 Pd 层之间减小的界面晶格失配. 与 Co/Cu(100) 相比, Co/Pd/Cu(100) 系统的 MOKE 强度的增强显然与 Pd 的存在有关.

[1] Heinrich B and Bland J A C 1994 *Ultrathin Magnetic Structures I and II*, (Berlin: Springer-Verlag).
 [2] Wu Y Z, Ding H F, Jing C et al 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 461 [in Chinese] 吴义政、丁海峰、敬超等 1998 *物理学报* **47** 461
 [3] Zhou Y S, Xie D, Chen J C et al 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 153 [in Chinese] 周云松、解东、陈金昌等 2001 *物理学报* **50** 153
 [4] Parkin S S P, More N and Roche K P 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 2304
 [5] Baibich M N, Broto J M, Fert A, Nguyen Van Dau F, Petroff F, Etienne P, Creuzet G, Friederich A and Chazelas J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472

[6] Krams P, Lauks F, Stamps R L, Hillebrands B and Guntherodt G 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 3674
 [7] Schneider C M, Bressler P, Schuster P, Kirschner J, Miguel J J De and Miranda R 1990 *Phys. Rev. Lett.* **64** 1059
 [8] Fassbender J, Allenspach R and Durig U 1999 *Surface Science* **383** L742
 [9] Bovensiepen U, Pouloupoulos P, Platow W, Farle M and Baberschke K, 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **192** L386
 [10] Nouvertne F, May U, Bamming M, Rampe A, Korte U and Guntherodt G 1999 *Phys. Rev. B* **60** 14382

- [11] Pouloupoulos P , Jensen P J , Ney A , Lindner J and Baberschke K 2002 *Phys. Rev. B* **65** 064431
- [12] Oswald A , Zeller R and Dederichs P H 1986 *Phys. Rev. Lett.* **56** 1419
- [13] Blugel S , Drittler B , Zeller R and Dederichs P H 1989 *Appl. Phys. A : Solids Surf.* **49** 547
- [14] Wu Y , Stohr J , Hermsmeier B D , Samant M G and Weller D 1992 *Phys. Rev. Lett.* **69** 2307
- [15] Yang G Z , Lü H B , Zhou Y L *et al* 1998 *Chin. Phys.* **7** 622
- [16] Pope T D , Anderson G W , Griffiths K and Norton P R 1991 *Phys. Rev. B* **44** 11518
- [17] Fassbender J , May U , Schirmer B , Jungblut R M , Hillebrands B and Guntherodt G 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 4476
- [18] Strandburg K J , Hall D W , Liu C and Bader S D 1992 *Phys. Rev. B* **46** 10818
- [19] Choi H J , Kawakami R K , Escorcia-Aparicio E J , Qiu Z Q , Pearson J , Jiang J S , Li D and Bader S D 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 1947

Structure and magnetism of Co ultrathin films grown on Pd/Cu(100) monolayer

Lu Ya-Feng^{1,2)} M. Przybylski²⁾ Wang Wen-Hong²⁾ Yan Long²⁾ Shi Yi-Sheng²⁾ J. Barthel²⁾

¹⁾(Northwest Institute for Nonferrous Metal Research , Xi'an 710016 , China)

²⁾(Max Planck Institute for Microstructure Physics , Weinberg 2 , D-06120 Halle , Germany)

(Received 12 January 2005 ; revised manuscript received 18 April 2005)

Abstract

We have grown epitaxial Co films on a single monolayer of Pd on Cu(100) substrate at room temperature. The interlayer of Pd was grown by pulsed laser deposition , whereas the Co layer was prepared by thermal deposition. A layer-by-layer growth mode continues until at least 11 ML Co layers in comparison to 4 ML on Pd(100) substrate , which is due to a reduced lattice mismatch between Co and the Pd/Cu(100) substrate in comparison to the Co on Pd(100) system. Compared to Co films on Pd(100) , a larger slope of the thickness dependence of longitudinal magneto-optical Kerr rotation has been found in the Co/Pd/Cu(100) films with thickness above 2 ML. We have also found an increase of longitudinal magneto-optical Kerr rotation for Co/Pd/Cu(100) in comparison to Co/Cu(100) system which may be attributed to the Co/Pd interface effect.

Keywords : magnetic properties of films , structure and morphology , interfacial magnetic properties

PACC : 7570A , 6855 , 7570C