

$\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜的结构和磁性^{*}

马平平¹⁾³⁾ 郑 鹤¹⁾ 王艾玲¹⁾ 崔利亚²⁾ 王荫君³⁾ 韩宝善³⁾ 陈金昌¹⁾³⁾†

1)(首都师范大学物理系, 北京 100037)

2)(冶金工业部钢铁研究总院, 北京 100081)

3)(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(1997 年 5 月 27 日收到; 1997 年 8 月 12 日收到修改稿)

系统地研究了 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜的结构与磁性. 除了特定的 $x=0.10-0.15$ 区间外, 在 Cu 浓度区间 $x=0.04-0.30$ 内, 随着中介 Pt 层内 Cu 浓度的增加, 导致各向异性 K_u 和剩余磁化强度 $M_{r\perp}$ 的单调下降. 这可能是由于 Cu 原子在 Pt 层中的无序造成的, 使 Pt 的晶面场对称性发生局域畸变, 从而引起上述参数的下降. 在特定区域内, 可能是形成了 PtCu 合金的有序相, 此时晶场对 Co 原子的作用就像只有 Pt 原子一样. 这是 Cu 掺入到 Pt 中介层后导致所得参数的可能原因.

PACC: 7570; 7560E; 8115C

1 引 言

从基础研究及应用角度来看, Pt/Co 多层膜是当前最活跃的课题之一. 从发现 Pd(Pt)/Co 多层膜具有垂直膜面各向异性以来^[1,2], 人们一直关注着产生垂直各向异性的起源. 产生垂直膜面各向异性与 Neel 表面各向异性、磁弹性能^[3]、磁晶各向异性^[4]及电子结构有关^[5,6]. 与此同时, 许多研究工作也集中在磁性层及非磁性层中掺入第三元素, 引起多层膜参数的改进, 其中特别关注的是有希望用于短波长(蓝光)的磁光存储介质的有力竞争者 Pt/Co 多层膜. 本文报道 Cu 掺入 Pt 中介层后引起 Pt/Co 多层膜的结构与诸如垂直膜面各向异性及剩余磁化强度 $M_{r\perp}$ 等磁性能的变化.

2 实 验

$\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 磁光多层膜 ($x=0, 0.03, 0.04, 0.05, 0.09, 0.10, 0.12, 0.14, 0.15, 0.20, 0.26, 0.29$) 利用 GP560B 型多功能磁控溅射台制备, 该溅射台本底真空度优于 2.6×10^{-5} Pa, 5 个靶位, 一次同时可溅射 16 个基片, 稳流相对误差为 $\pm 0.5\%$, 全部操作用微机自动控制. 氩气纯度达 99.999%, 氩气压为 1 Pa. 基片采用盖玻片或单晶硅.

样品 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x(45 \text{ nm})/[\text{Co}(0.35 \text{ nm})/\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x(1.08 \text{ nm})]_{20}$, 周期数为 20, 在基片

^{*} 北京市自然科学基金和中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室资助的课题.

[†] 通讯联系人.

与多层膜间溅射过渡层(buffer)Pt_{1-x}Cu_x(45 nm)是为了使多层膜具有较好的结构取向,同时也确保基片更为平整和清洁.采用 Surface Profile Measuring Dektak3 型膜厚测量仪来确定溅射速率,进而控制膜厚.用日立 S-4200 型扫描电子显微镜分析 Pt_{1-x}Cu_x/Co 多层膜中非磁性层中 Pt, Cu 元素所占的百分比,从而确定掺杂物 Cu 的含量 x .

通过 D/max-RB 型 X 射线衍射仪测定样品的小角及大角衍射峰,以便确定样品的调制周期及晶面间距.

用 TRT-2 型磁转矩仪在外场 $8 \times 10^5 \text{ A/m}$ 下测得有效垂直膜面的各向异性常数 K_u .

通过 LDJ-9600 型振动样品磁强计测定磁滞回线,以确定样品的饱和磁化强度 M_s 及垂直膜面的剩余磁化强度 M_r (精度为 10^{-4} emu , 相对误差小于 0.5%).

用 Nano Scope 3A, Nonmagnetic Version D-3000 型磁力显微镜观察样品表面的磁畴.

3 实验结果

3.1 Pt_{1-x}Cu_x/Co 系列样品的结构测定

Pt(45 nm)/[Co(0.35 nm)/Pt(1.08 nm)]₂₀ 多层膜样品的 X 射线衍射谱如图 1 所示. Pt/Co 多层膜有两个小角衍射峰, 分别在 $2\theta = 6^\circ, 12^\circ$, 大角衍射峰分别在 $2\theta = 39.6^\circ, 40.65^\circ, 45.95^\circ$ 出现 Pt(111), Pt/Co(111) 及 Pt(200) 峰, 其中以 Pt/Co(111) 峰最强.

Pt_{1-x}Cu_x/Co 的 X 射线衍射分析如图 2 所示 ($x = 0, 0.03, 0.04, 0.05, 0.09, 0.10,$

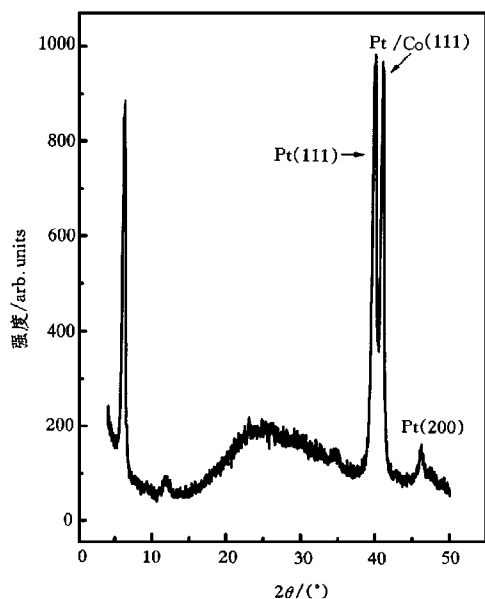


图 1 Pt(45 nm)/[Co(0.35 nm)/Pt(1.08 nm)]₂₀ 多层膜 X 射线的小角及大角衍射谱

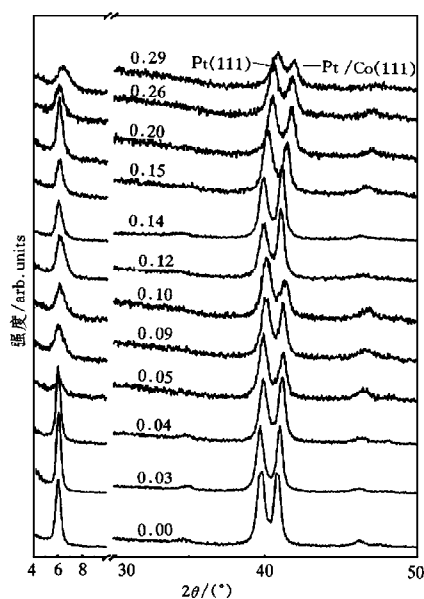


图 2 Pt_{1-x}Cu_x(45 nm)/[Co(0.35 nm)/Pt_{1-x}Cu_x(1.08 nm)]₂₀ 多层膜 X 射线衍射的小角及大角衍射谱 ($x = 0, 0.03, 0.04, 0.05, 0.09, 0.10, 0.12, 0.14, 0.15, 0.20, 0.26, 0.29$)

0.12, 0.14, 0.15, 0.20, 0.26, 0.29). 我们发现 Cu 的掺入, 第二小角峰消失, 但小角峰位置基本不变, 可认为掺杂后膜层厚度及周期调制结构基本不变. 但是大角衍射峰的测定表明, 在 Pt 中掺入 Cu 后, $\text{Pt}(111)$, $\text{Pt}/\text{Co}(111)$ 峰发生了位移. 图 3 中给出了 $\text{Pt}(111)$ 和 $\text{Pt}/\text{Co}(111)$ 峰所对应的面间距 $d_{\text{Pt}(111)}$ 及 $d_{\text{Pt}/\text{Co}(111)}$ 随 Cu 含量 x 的变化关系.

3.2 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 系列样品的 K_u 随 x 的变化

用转矩仪测量了所有样品的各向异性常数 K_u 随 x 的变化曲线, 如图 4 所示. 很明显, 随着 x 的增加, K_u 单调下降. 但在 $x \approx 0.10-0.15$ 出现一个峰值, 当 $x > 0.15$ 后, K_u 又单调下降.

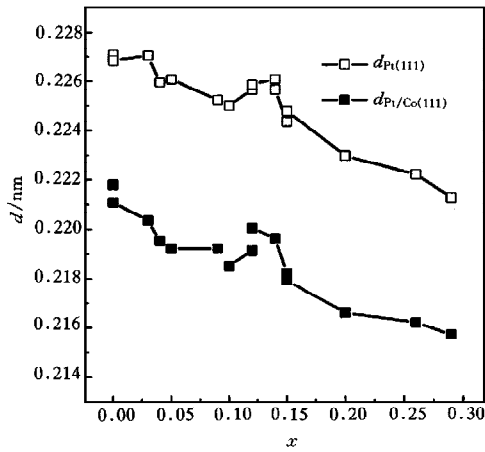


图 3 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜系列的晶面间距 $d_{(111)}$ 随 x 的变化曲线

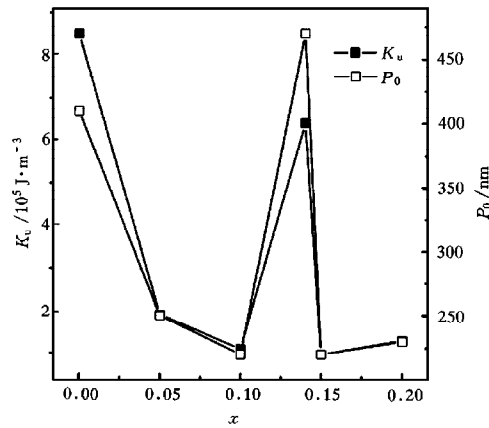


图 4 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜系列的 K_u 和畴宽 P_0 随 x 的变化曲线 ($x = 0, 0.05, 0.10, 0.14, 0.15, 0.20$)

3.3 当磁场垂直膜面时 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 系列样品的磁滞回线

在 $H_{\text{max}} = 16 \times 10^5 \text{ A/m}$ 下测定 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 系列样品的磁滞回线, 所得结果见图 5. 外场 H 与膜面垂直, 可以看出当 $x \approx 0.10-0.15$ 与 $x = 0$ 的样品一样. 回线的矩形比明显地好于其他成分, 尤其当 $x = 0.14$ 时, 与 $x = 0$ 的回线基本一致, 表明样品具有很好的垂直各向异性.

由图 5 得到的垂直膜面的剩余磁化强度 $M_{r\perp}$ 随 x 的变化曲线见图 6. 它的变化与 K_u 随 x 的变化相似.

3.4 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜表面的磁畴观察

在剩磁状态下, 用磁力显微镜分别观察 $x = 0, 0.05, 0.10, 0.14, 0.15, 0.20$ 下的磁力显微图像, 分别显示在图 7(a)–(f). 发现畴结构与 K_u 及 $M_{r\perp}$ 有紧密联系. 由此可见, 图 7(a) ($x = 0$) 与图 7(d) ($x = 0.14$) 的形状十分相似, 它们具有相同的畴宽和明暗对比度, 表明它们有相同的磁性能. 图 7(b), (c), (e), (f) 有很好的短带状或点状畴出现, 且明暗对比

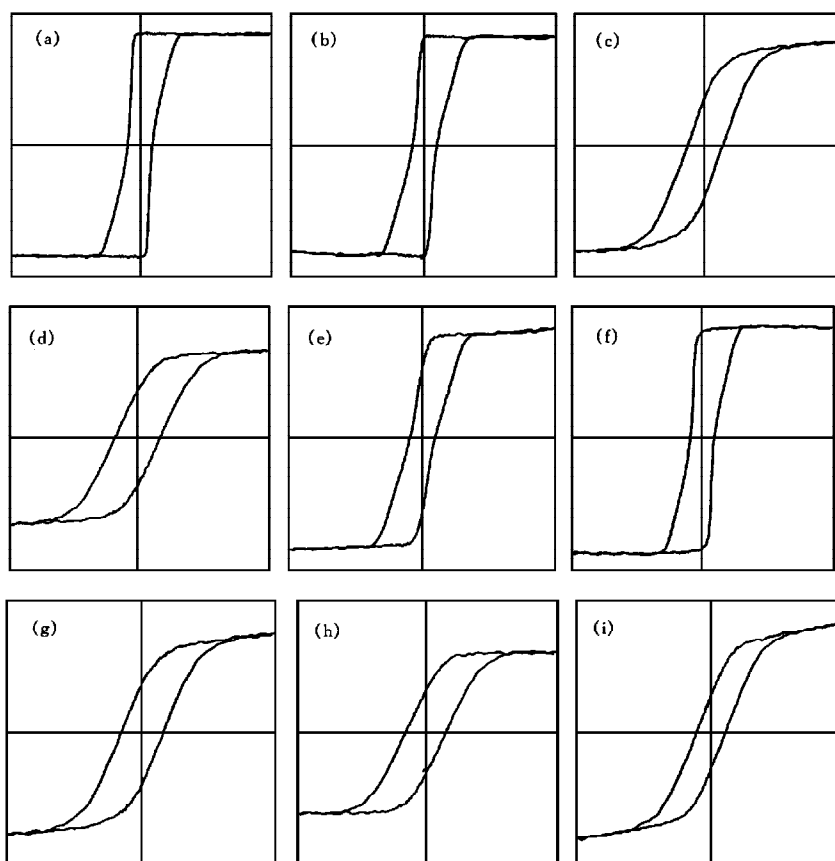


图5 磁场垂直于膜面时 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜样品的磁滞回线 (a)–(i) 分别对应 $x=0, 0.03, 0.05, 0.10, 0.12, 0.14, 0.15, 0.20, 0.29$

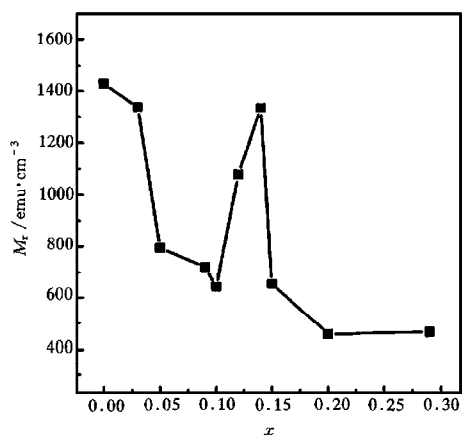


图6 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜系列的 $M_{\perp}$ 随 x 的变化曲线

度很弱, 证明具有弱的垂直各向异性.

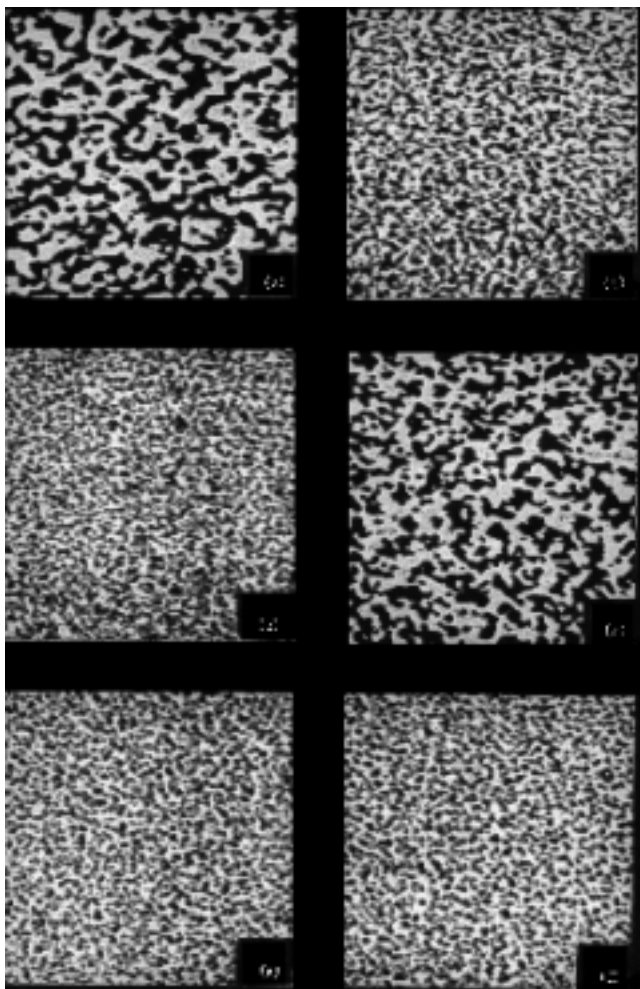


图 7 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜样品的磁力显微形貌图
(a)–(f) 分别对应 $x=0, 0.05, 0.10, 0.14, 0.15, 0.20$

4 讨 论

1. 图 1 及图 2 说明, 所制备 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜具有较好的原子层状生长特性和化

学成分调制的周期结构. 我们认为前者是在溅射辉光放电区必须保证稳流的精度, 后者是保证镀层组分的稳定. 为此我们曾采用不同形式的 PtCu 复合靶, 包括方块镶嵌靶、圆形镶嵌靶、小方块镶嵌靶及扇形镶嵌靶等多种形式, 其中以扇形镶嵌靶的效果最佳, 便于控制膜层的组分和靶的组分差别最小. 从图 1 可见, Pt/Co 多层膜有两个小角峰, 在 $2\theta=6^\circ$, 12° , 由它推断的周期 D 与设计要求的 1.43 nm 十分接近. 大角衍射表明, Pt/Co(111) 峰最强, 说明多层膜有良好的织构, 整个膜主要沿(111)方向生长. 该样品有良好的垂直膜面各向异性, $K_u=8.5\times 10^5\text{ J/m}^3$; 在垂直膜面加场时其矩形比很好, $M_r/M_s=1$. 当 Cu 掺入后, 第二小角峰消失, 表明 Cu 的掺入将影响界面的各向异性. 所有样品的小角峰基本在一个位置, 可认为掺杂后膜层厚度及周期调制结构基本不变. 大角衍射分析表明在 Pt 中掺入 Cu 后, Pt(111), Pt/Co(111) 峰发生右移, 意味着 Cu 的掺入导致晶格收缩. 由图 3 可见, 面间距 $d_{\text{Pt}(111)}$, $d_{\text{Pt/Co}(111)}$ 随掺杂量 x 的增加而单调下降, 但在 $x\approx 0.10-0.15$ 范围内, 面间距增加. 这可能是由于在此区间内形成了 PtCu 合金相而引起晶格膨胀导致面间距增加.

2. Pt/Co 的垂直各向异性起源于界面, 在界面处贵金属的自旋-轨道耦合对各向异性起着重要作用^[5,6]. 当掺入 Cu 原子后, 如果 Cu 原子在 Pt 层中排列为无序时, 则晶场的对称性在某种程度上遭破坏. 计算表明^[6], Cu/Co 多层膜具有垂直膜面各向异性, 但它太小不足以克服退磁能, 因此, Cu/Co 多层膜表现出平面各向异性. 于是我们认为在 $\text{Pt}_{1-x}\text{Cu}_x/\text{Co}$ 多层膜中, 在界面处当 Co 原子的近邻为 Cu 原子时, Co 原子的磁矩取向平行膜面; 当 Co 原子的近邻为 Pt 原子时, Co 原子的磁矩取向垂直膜面, 于是对所有的 Co 原子而言, 其中有些 Co 原子受平面各向异性场的作用, 有些则受垂直各向异性场的作用, 对于不同取向的 Co 原子之间还存在静磁能. 所以对 Cu 原子掺杂的 Pt/Co 多层膜, 显示出无规各向异性(见图 8)而不是单轴磁各向异性. 因此, 沿垂直膜面方向测得的各向异性较少, 这可解释图 6 中 $M_{r\perp}$ 值小的原因.

3. 当 $x=0.14$ 时 K_u 出现了峰值, 可能是出现了 PtCu 合金的有序结构. 证据是: (a) $d_{\text{Pt}(111)}$, $d_{\text{Pt/Co}(111)}$ 有较大的晶面间距(见图 3); (b) 与其他掺杂量相比, $x=0.14$ 样品有很好的 Pt/Co(111) 织构(见图 2). 总而言之, 如果部分的 Pt 原子被 Cu 原子无规则地取代, d 指数的减少归因于尺寸效应; 若形成 PtCu 合金的有序相, d 指数将增加. 形成 PtCu 合金有序相的假设可以间接从 PtCu 相图中得到证实^[7]. 当形成有序合金时, 晶场的对称性没有被破坏. 如同只有 Pt 原子时一样, 此时对称晶场对 Co 原子的影响, 使 Co 原子磁矩的排列仍是共线磁结构. 因此 $x=0.14$ 的 K_u 和纯 Pt/Co 多层膜显出相同的变化. 这一点由图 7 的磁畴形貌的观察中也能得到证实.

4. 我们把图 7 的畴宽 P_0 (黑畴到白畴) 随 x 的变化也一并在图 4 给出. K_u 与 P_0 成正比, 两者随 x 的变化规律相似.

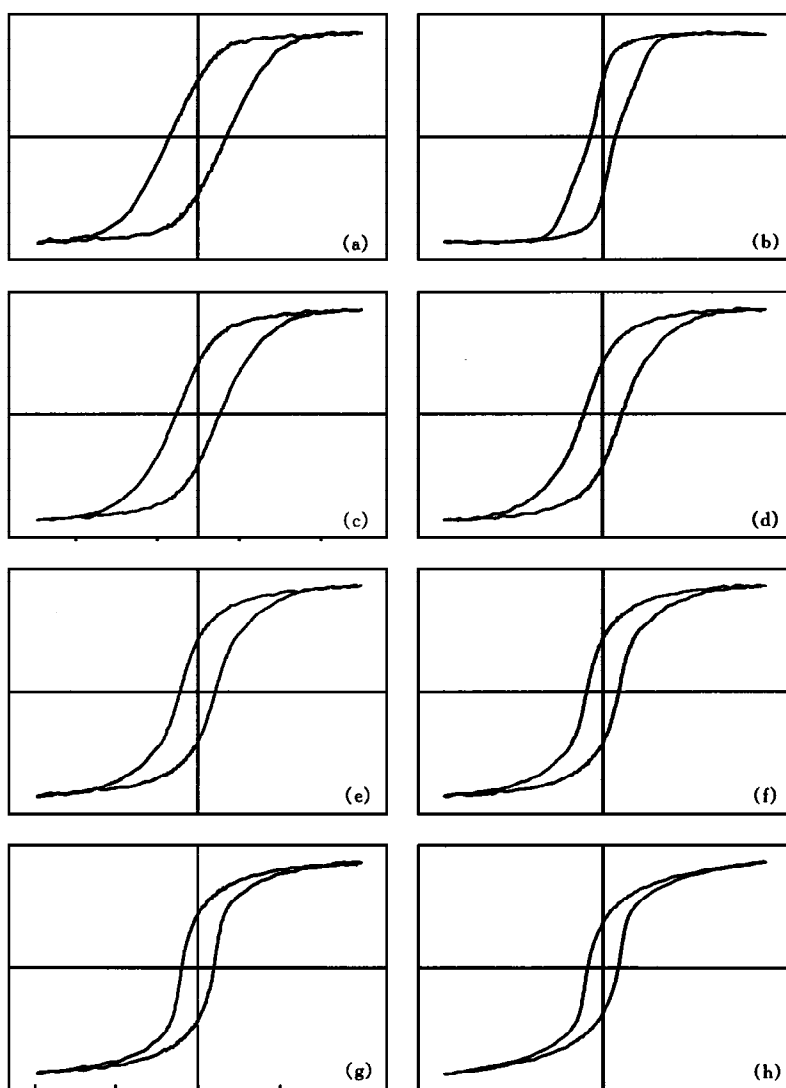


图8 $\text{Pt}_{0.9}\text{Cu}_{0.1}/\text{Co}$ 多层膜沿不同方向加场时所测得的磁滞回线 0° 定义为磁场垂直于膜面方向(图中角度为外场与垂直膜面方向之间的夹角), (a)—(h) 分别对应夹角为 $0^\circ, 5^\circ, 15^\circ, 25^\circ, 35^\circ, 50^\circ, 70^\circ, 90^\circ$

5 结 论

1. 由 X 射线衍射表明, 在 $x=0.00-0.30$ 区域内, 随 x 的增加 $d_{(111)}$ 指数单调下降, 晶格收缩, 这归因于原子的尺度效应. 但 $x \approx 0.10-0.15$ 是例外, 此时 $d_{(111)}$ 增加, 晶格膨胀, 这可能是由于形成了 PtCu 合金的有序相.

2. 在 $x < 0.10$ 内 K_u 和 $M_{r\perp}$ 随 x 增加单调下降, 是由于无规掺杂 Cu 引起各向异性的无序性造成的. 在 $x = 0.14$ 时 K_u 和 $M_{r\perp}$ 出现峰值, 可能是由于形成 PtCu 合金的有序相所致.

3. 由磁滞回线和剩磁状态下的磁畴结构表明, $x = 0.14$ 的掺杂样品与纯 Pt/Co 样品具有相同的回线与畴结构, 其他掺杂成分均有较低的 K_u 值及相似的短带状或点状畴.

- [1] R. F. Carcia, A. D. Meinelat, A. Suna, *Appl. Phys. Lett.*, **47**(1985), 178.
- [2] W. B. Zeper, F. J. A. M. Greidanus, P. F. Carcia *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **65**(1989), 4971.
- [3] C. H. Lee, Hui He, F. J. Lamelas *et al.*, *Phys. Rev.*, **B42**(1990), 1066.
- [4] L. Fritsche, J. Noffke, H. Echarat, *J. Phys. F*, **17**(1987), 493.
- [5] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly, M. F. H. Schuurmans, *Phys. Rev.*, **B42**(1990), 7270.
- [6] D. S. Wang, R. Wu, A. J. Freeman, *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 869.
- [7] 何纯孝、马光辰、王文娜等, 贵金属相图(冶金工业出版社, 北京, 1983), p. 73.

STRUCTURAL AND MAGNETIC PROPERTIES OF Pt_{1-x}Cu_x/Co MULTILAYERS

MA PING-PING¹⁾³⁾ ZHENG WU¹⁾ WANG AI-LING¹⁾ CUI LI-YA²⁾

WANG YIN-JUN³⁾ HAN BAO-SHAN³⁾ CHEN JIN-CHANG¹⁾³⁾

1)(Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037)

2)(Central Iron and Steel Research Institute, MMI, Beijing 100081)

3)(Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing 100080)

(Received 27 May 1997; revised manuscript received 12 August 1997)

ABSTRACT

The structural and magnetic properties of Pt_{1-x}Cu_x/Co multilayers have been investigated. Increasing the concentration of Cu in the Pt spacer layers results in monotonic decrease of the anisotropy and remanence, in a range of x from 0.04—0.30 except in a special range of 0.10—0.15. The reduction of these parameters is related to the growth of random anisotropy because a random distribution of Cu atoms in the Pt spacer layers causes a local distortion of crystal symmetry of Pt. In the special range, an order CuPt phase may appear. In such a case cobalt atoms are affected by a symmetric crystal field like that produced by Pt. These may be the possible explanation of the measured parameters after the doping of Cu in the Pt spacerlayers.

PACC: 7570; 7560E; 8115C