

Температурные зависимости намагниченности сверхрешеток Co/Cu (111)

К.В. Кутько, А.Н. Блудов, Ю.А. Савина, В.А. Пащенко

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: kkutko@ilt.kharkov.ua*

А.Г. Андерс

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина, пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61077, Украина

В.В. Зорченко, А.Н. Стеценко

*Национальный технический университет «Харьковский политехнический институт»
ул. Фрунзе, 21, г. Харьков, 61002, Украина*

Статья поступила в редакцию 17 июля 2012 г., после переработки 4 февраля 2013 г.

Установлено, что температурные зависимости намагниченности сверхрешеток Co/Cu (111) содержат ферромагнитный и парамагнитный вклады. Образцы серии $[\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Cu}(d_{\text{Cu}})]_{20}$ ($d_{\text{Cu}} = 9\text{--}21 \text{ \AA}$) выращены на слюде методом магнетронного напыления в условиях псевдоморфного роста слоев Co и Cu. Они имеют поликристаллическую структуру с размером зерен 80–100 Å. Оценки показывают, что парамагнитную часть намагниченности формируют ~48% атомов Co, содержащихся в образце. Предполагается, что наиболее вероятный механизм образования парамагнитной фазы связан с диффузионными процессами на границе раздела зерен.

Встановлено, що температурні залежності намагніченості надграток Co/Cu (111) містять феромагнітний та парамагнітний внески. Зразки серії $[\text{Co}(8 \text{ \AA})/\text{Cu}(d_{\text{Cu}})]_{20}$ ($d_{\text{Cu}} = 9\text{--}21 \text{ \AA}$) вирощені на слюді методом магнетронного напилювання в умовах псевдоморфного росту шарів Co та Cu. Вони мають полікристалічну структуру з розміром зерен 80–100 Å. Оцінки показують, що парамагнітну частину намагніченості формують ~48% атомів Co, що містяться в зразку. Припускається, що найбільш ймовірний механізм утворення парамагнітної фази пов'язаний з дифузійними процесами на границі розділу зерен.

PACS: 75.70.-i Магнитные свойства тонких пленок, поверхностей и интерфейсов;
75.60.Ej Кривые намагниченности, гистерезис, эффект Баркгаузена и подобные эффекты;
68.35.Fx Диффузия; формирование интерфейса.

Ключевые слова: магнитные сверхрешетки, температурная зависимость намагниченности, межзеренная диффузия.

Введение

Создание магнитных сверхрешеток (СР), содержащих слои магнитных (ферро-, ферри- или антиферромагнетиков) и немагнитных материалов, привело к существенному расширению представлений о возможных свойствах и перспективах применения магнитных материалов, например в спинтронике [1]. Весьма важ-

ным оказалось открытие обменного взаимодействия ферромагнитных слоев через тонкие [2] и толстые [3] прослойки немагнитных материалов, изменяющегося осциллирующим образом с изменением знака при увеличении толщины таких прослоек. Аналогичное взаимодействие было обнаружено также в СР из магнитных полупроводников, например в EuS с прослойками из PbS, PbSe, SrS [4] или в системе EuTe/PbTe [5], при-

чем оно наблюдалось даже для толщин прослоек, больших 100 \AA , однако не проявляло осциллирующего характера и было всегда антиферромагнитным.

Большой интерес представляет эффект гигантского магнитосопротивления, наблюдающийся на СР Fe/Cr [6], Co/Cu [7], Co/Ag [8] и других парах слоев. Кроме того, было обнаружено индуцированное ферромагнетиком намагничивание немагнитных слоев, например в системах Co/Pd [9], Co/Pt [10] и Co/Cu [11]. В магнитных сверхрешетках заметно изменяется такая важная характеристика, как магнитная анизотропия K_a , что приводит к существенной зависимости K_a от толщины немагнитных слоев, например в системах Co/Pd [12] и Co/Cu [13]. Большое внимание также уделяется изучению намагничивания гранулярных пленок [14], например, угловых зависимостей намагничивания гранул от внешнего магнитного поля [15].

Однако в литературе недостаточно представлены результаты систематических исследований поведения намагниченности магнитных СР как функции температуры, магнитного поля и толщины магнитных и немагнитных слоев. Данные по магнитным моментам одиночных тонких магнитных слоев или слоев в составе СР имеют довольно большой разброс, и их трудно соотнести друг с другом. Причина этого связана, скорее всего, с технологическими особенностями напыления слоев, которые влияют на кристаллическую структуру, шероховатость раздела слоев и их морфологию. Как известно [16–18], при малых толщинах магнитного слоя последний становится островковым, а СР фактически превращается в гранулированную пленку, что заметно изменяет ее магнитные свойства. В частности, для многослойной системы Co/Au (111), выращенной методом молекулярно-лучевой эпитаксии, установлено [19], что при толщине слоя кобальта менее 4 \AA зависимость $M(H)$ демонстрирует чисто суперпарамагнитное поведение при комнатной температуре, для которого характерны отсутствие гистерезиса и ненасыщаемость $M(H)$ в больших полях. При толщине слоя кобальта $d_{Co} > 5 \text{ \AA}$ эта зависимость демонстрирует гистерезис, характерный для магнитоустойчивого ферромагнитного состояния. Для многослойной системы Co/Cu (111) наличие суперпарамагнитной фазы наблюдается до толщины слоя кобальта $d_{Co} < 6 \text{ \AA}$, но уже при $d_{Co} = 2,5 \text{ \AA}$ и выше она сосуществует с ферромагнитным состоянием. Аналогичное сосуществование магнитоустойчивой и парамагнитной фаз установлено для образцов системы Co/Cu с $d_{Co} > 3,5 \text{ \AA}$, выращенных методом магнетронного распыления [20]. Наличие суперпарамагнетизма в образцах системы Co/Cu с $d_{Co} = 4\text{--}6,5 \text{ \AA}$ отмечено также в работах [21,22].

Цель данной работы — исследование поведения намагниченности многослойной системы $[\text{Co}/\text{Cu}(111)]_{20}$ с толщиной ферромагнитных слоев $d_{Co} = 8 \text{ \AA}$ как функции температуры и толщины медных прослоек d_{Cu} ,

которая изменялась в интервале $9 \text{ \AA} \leq d_{Cu} \leq 21 \text{ \AA}$. На этих же образцах ранее был выполнен комплекс исследований по магнитной анизотропии, магнитосопротивлению и эффекту Керра, который показал, что величина K_a [13], магнитосопротивление [23], ширина линии ферромагнитного резонанса [13,24] и угол керровского вращения [25] зависят от величины d_{Cu} , несмотря на сохранение толщины кобальтовых слоев. Предполагается, что аналогичные эффекты проявляются и в поведении намагниченности этих СР.

2. Структура образцов и методика измерений

Образцы получали последовательной конденсацией кобальта и меди на слюду при комнатной температуре с использованием магнетронного способа распыления в вакуумной установке с остаточным давлением $\sim 10^{-6}$ Торр при давлении аргона $1,3 \cdot 10^{-3}$ Торр. Толщины слоев определяли с помощью многолучевой оптической интерферометрии с точностью не хуже 2%. Образцы включали в себя слой меди (50 \AA) на слюде, на котором формировались 20 пар слоев Co/Cu, причем толщина верхнего слоя меди для всех образцов составляла $12,5 \text{ \AA}$. Во избежание островкового роста толщина слоев кобальта выбрана одинаковой, равной 8 \AA для всех образцов серии. Толщина прослоек меди изменялась от 9 до 21 \AA от образца к образцу. Скорость конденсации кобальта и меди составляла $0,45$ и $0,58 \text{ \AA}/\text{с}$ соответственно.

Плоскости (111) Cu оказались параллельными поверхности подложки без каких-либо выделенных ориентаций других кристаллографических плоскостей зерен относительно слюды. Слои кобальта и меди нарастают друг на друге псевдоморфно (по механизму послойного роста), о чем свидетельствует отсутствие отдельных дифракционных колец для Co и Cu. То есть кольца не расщепляются, и профиль их интенсивности симметричен без каких-либо признаков асимметрии в виде двугорбости или бокового выпячивания профиля.

Электронно-микроскопические исследования отдельных от слюды образцов показали, что образцы имеют поликристаллическую структуру. Границы зерен проходят через всю толщину образца практически перпендикулярно к поверхности слюды (т.е. на толщине образца укладывается одно зерно). Зерна имеют равноосную форму в плоскости образца. Размеры зерен не сильно отличаются друг от друга и лежат в пределах $\sim 80\text{--}100 \text{ \AA}$ независимо от толщины медной прослойки. Эти данные свидетельствуют о том, что размеры зерен задаются первым сконденсированным слоем меди толщиной 50 \AA , на котором происходит формирование сверхрешетки Co/Cu. В результате кристаллическая структура представляет собой набор сильно вытянутых вдоль нормали к поверхности столбчатых зерен.

Малоугловое рентгеновское $\theta-2\theta$ сканирование показало наличие двух пиков и множество слабозатухающих осцилляций интенсивности отраженного рентгеновского пучка, свидетельствующих об однородности толщины образцов, малости шероховатости границ раздела слоев и наличии периодичности в СР.

Для измерения намагниченности вырезали круглые образцы диаметром 3 мм. Измерения намагниченности проводили на промышленном SQUID-магнитометре (PPMS Quantum Design) в интервале температур 2–400 К, магнитное поле напряженностью 2 кЭ прикладывали вдоль или перпендикулярно плоскости образцов.

Следует заметить, что магнитные моменты ферромагнитных слоев кобальта в исследуемых тонкопленочных образцах лежат в плоскости слоя из-за доминирующего магнитодипольного вклада в эффективную магнитную анизотропию [13]. Ферромагнитная обменная межслоевая связь через электроны проводимости медных прослоек превращает образец в целом в ферромагнитную систему, которая должна находиться в состоянии насыщения при $T = 0$ К. Антиферромагнитная межслоевая связь, максимумам которой в системе Co/Cu соответствуют толщины медных слоев 9 и 18 Å, должна приводить к появлению угловой фазы в магнитных полях, меньших обменного поля, максимальное значение которого для $d_{\text{Cu}} = 9$ Å составляет $H_{\text{ex}} \approx 2,58$ кЭ [13]. Однако различного рода дефекты идеальной слоистой структуры, и в первую очередь межслоевые магнитные «закоротки» на границах зерен, а также шероховатость интерфейсов, создающая магнитодипольную межслоевую связь, образуют и в этом случае связанную ферромагнитную систему для значительной доли слоев кобальта. Величину этой доли оценить сложно, и остаточные проявления антиферромагнитной межслоевой связи могут сохраняться. Как будет видно из дальнейшего изложения, с ними связаны аномалии зависимости $M(T)$, наблюдаемые в исследуемых образцах с $d_{\text{Cu}} = 9$ и 10 Å при перпендикулярной ориентации магнитного поля.

Таким образом, для всех образцов исследуемой серии в магнитном поле 2 кЭ может реализоваться насыщенное ферромагнитное состояние [26]. Для образцов с $d_{\text{Cu}} = 9$ и 10 Å реализуется угловая фаза, в которой в направлении внешнего магнитного поля ориентированы не менее $H/H_{\text{ex}} \approx 75\%$ намагниченности слоев кобальта.

3. Результаты измерений и их обсуждение

На рис. 1 представлены температурные зависимости магнитных моментов $M(T)$ для образцов с толщиной медной прослойки от 9 до 21 Å в магнитном поле $H = 2$ кЭ при ориентациях внешнего поля параллельно (рис. 1(a)) и перпендикулярно (рис. 1(б)) плоскости образца. Значения намагниченности для параллельной

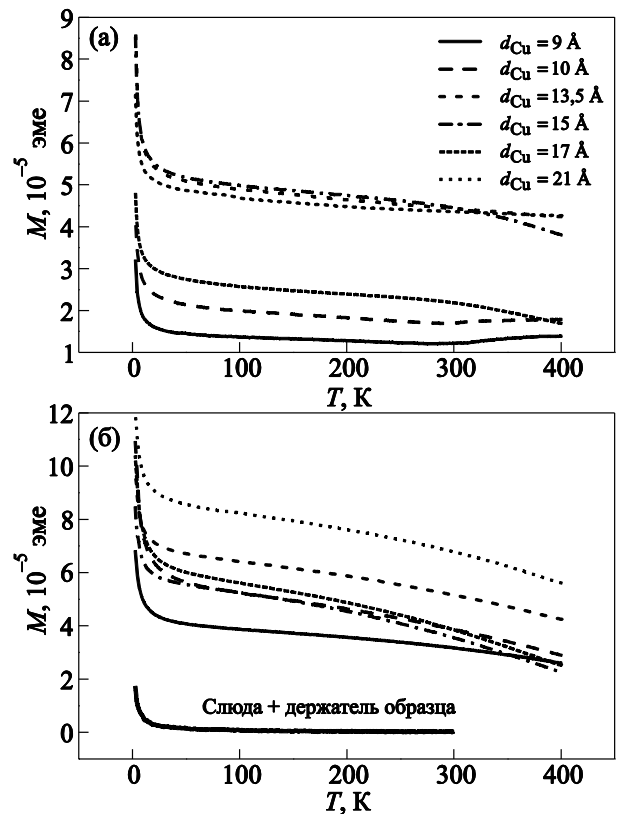


Рис. 1. Температурные зависимости магнитных моментов M образцов исследуемой системы $[\text{Co}(8 \text{ Å})/\text{Cu}(d_{\text{Cu}})]_{20}$ с толщиной медной прослойки от 9 до 21 Å в магнитном поле $H = 2$ кЭ при ориентациях внешнего поля перпендикулярно (а) и параллельно (б) плоскости образца.

ориентации превосходят значения для перпендикулярной во всем диапазоне температур, поскольку минимум энергии анизотропии определяет ориентацию магнитных моментов слоев в плоскости слоя [13]. За исключением образцов с $d_{\text{Cu}} = 9$ и 10 Å, величина $M(T)$ монотонно возрастает при понижении температуры от 400 К, и в области температур ~ 20 –50 К начинается резкий подъем зависимости $M(T)$.

Для образцов с $d_{\text{Cu}} = 9$ и 10 Å в магнитном поле, перпендикулярном слоям, виден отчетливый минимум в области ~ 300 К, который отсутствует для других образцов. Этот минимум может быть связан с тем, что при $d_{\text{Cu}} = 9$ Å для СР Co/Cu наблюдается максимум антиферромагнитного обменного взаимодействия слоев кобальта через медные прослойки. Это взаимодействие препятствует выходу намагниченности из плоскости слоев и уменьшает проекцию магнитных моментов слоев кобальта на направление магнитного поля, ортогональное плоскости образца (см., например, [23]). При понижении температуры величина антиферромагнитной связи возрастает [27], и при фиксированном значении магнитного поля магнитный момент вдоль направления поля будет уменьшаться. С другой стороны, одновременно с этим величина намагничен-

ности слоев будет возрастать. Конкуренция этих противоположных тенденций, скорее всего, и определяет появление минимума на зависимости $M(T)$. В образце с $d_{\text{Cu}} = 10 \text{ \AA}$, по-видимому, сохраняется еще достаточно сильное антиферромагнитное взаимодействие слоев кобальта, что также приводит к появлению минимума на $M(T)$.

Резкий рост зависимости $M(T)$ в области низких температур свидетельствует, что для части магнитных атомов в объеме образца характерно парамагнитное поведение, в результате которого эта часть атомов, имея слабую обменную связь с ферромагнитно-упорядоченной структурой внутри слоев кобальта, может совершать колебания вследствие тепловых флуктуаций. Проекция магнитных моментов этих атомов на направление поля увеличивается при понижении температуры из-за ослабления тепловых флуктуаций, что характерно для парамагнитного состояния. Возникает естественный вопрос о природе наблюдаемого парамагнетизма. Его источниками могут служить неконтролируемые парамагнитные примеси в слюдяных подложках или в держателе образца, используемом в эксперименте, медные прослойки образцов и, наконец, исходно сплошные слои кобальта, часть атомов которых может переходить в парамагнитное (или суперпарамагнитное) состояние.

Рассмотрим указанные выше вклады. Намагниченность слюдяных подложек, полученных после механического удаления металлических слоев образцов, измеряли в независимом эксперименте. Сначала слюдяную подложку помещали на тот же держатель, на котором ранее исследовали образцы, после чего отдельно определяли намагниченность держателя. Измерения проводили в интервале температур 2–300 К в магнитном поле $H = 2 \text{ кЭ}$. Оказалось, что слюдяная подложка демонстрирует слабые парамагнитные свойства, ее магнитная восприимчивость не зависит от температуры и определяется, скорее всего, ван-Флековским вкладом. В намагниченности держателя присутствуют диамагнитный и парамагнитный вклады, но парамагнетизм остается незначительным при минимальной температуре эксперимента (2 К). Усредненная по всем образцам результирующая намагниченность слюдяной подложки с держателем представлена на рис. 1(б), поправка на ее величину учтена в последующих расчетах намагниченности образцов.

Другим источником парамагнетизма могут являться медные прослойки образцов. Парамагнетизм немагнитных слоев в многослойных структурах, в том числе и в системе Co/Cu, исследован в последние годы довольно интенсивно в связи с проблемой межслоевого обмена. При этом установлено [28,29], что обменная связь между ферромагнитными слоями возникает при образовании спин-поляризованных состояний электронов проводимости в квантовой яме, в качестве которой

рассматривается немагнитный слой, в данном случае медь. Максимуму косвенного межслоевого обмена соответствует достижение квантовым состоянием уровня Ферми, что приводит к возрастанию электронной плотности состояний на уровне Ферми $N(E_F)$ и, соответственно, увеличению паулиевского парамагнетизма электронов меди.

Дополнительное возрастание величины $N(E_F)$ может вызываться гибридизацией s - и p -электронных состояний меди с d -состояниями электронов кобальта, происходящей вблизи межслоевого интерфейса [30]. Кроме того, пространственное распределение электронной плотности в условиях квантовых размерных эффектов для слоев меди рассматривается в ряде случаев в качестве причины, влияющей на структуру и свойства интерфейса, в первую очередь на его шероховатость [31].

Однако следует отметить, что суммарная степень магнитной поляризации меди в системе Co/Cu не очень велика. Так, величина магнитного момента атома меди, определенная для системы Co(10 Å)/Cu(13 Å), составляет 0,01 μ_B , а для системы Co(10 Å)/Cu(4 Å) — 0,05 μ_B [31], что много меньше магнитного момента атома кобальта, равного 1,71 μ_B и рассчитанного для объемной ГЦК модификации с намагниченностью 1400 Гс [33]. Поэтому следует полагать, что значительный по величине парамагнитный вклад в исследованных образцах вносят не медь и не держатель образца, а часть атомов кобальта, которые занимают позиции, не связанные обменным взаимодействием с остальными атомами в кобальтовых слоях. Скорее всего, эти позиции должны формироваться в результате диффузии кобальта и располагаться вблизи интерфейсов, образуя изолированные атомы или парамагнитные (суперпарамагнитные) кластеры.

Специфические магнитные свойства интерфейсов в системе Co/Cu, служащих источником парамагнетизма, наблюдались и ранее. В работе [22] установлено, что в многослойных образцах Co/Cu толщина слоя интерфейса составляет 1,2 Å. При комнатной температуре этот слой парамагнитен, при 5 К он становится магнитоупорядоченным, но его средняя намагниченность составляет только 40% от значения намагниченности для объемного кобальта. Влияние суперпарамагнетизма интерфейсов на магнитосопротивление образцов системы Co/Cu обсуждалось в работе [34]. Однако последовательные исследования природы, причин и механизмов возникновения парамагнетизма интерфейсов в литературе отсутствуют.

4. Обработка результатов и модельные представления

Таким образом, для всех исследованных нами образцов в эксперименте наблюдаются два вклада в зави-

симось $M(T)$: «ферромагнитная» составляющая M^* , медленно изменяющаяся при понижении температуры, и «парамагнитный» вклад $M_i(T)$, резко возрастающий при $T \rightarrow 0$ К. Для выделения парамагнитной части полагаем, что в низкотемпературной области величина M^* постоянна, и ее можно вычесть из суммарной величины намагниченности, т.е. $M_i(T) = M(T) - M^*$. Для определенности в качестве M^* можно принять значение $M(T)$ при $T^* = 80$ К, но ниже будет показано, что выбор точки T^* существенно не влияет на количественные результаты.

Предположим, что «парамагнитная» часть намагниченности описывается функцией Ланжевена $M_i(T) = M_i(0)L(x)$, где $x = \mu H/k_B T$, μ — магнитный момент парамагнитного кластера, $M_i(0) = N\mu$, N — число кластеров. При $T \rightarrow 0$ К, когда аргумент функции Ланжевена $x \gg 1$, саму функцию можно представить в виде $L(x) \cong 1 - (1/x)$, а «парамагнитную» часть намагниченности как $M_i(T \rightarrow 0) = M_i(0)[1 - k_B T/\mu H]$. Преобразовав это выражение к виду

$$M_i(T \rightarrow 0)^{-1} \cong \frac{1}{M_i(0)} \left[1 + \frac{k_B T}{\mu H} \right], \quad (1)$$

получим линейную зависимость величины $[M_i(T \rightarrow 0)]^{-1}$ от температуры, которая отсекает от оси ординат значение $[M_i(0)]^{-1}$. На рис. 2 показан пример построения подобной зависимости для одного из образцов исследуемой серии. Три набора экспериментальных точек соответствуют выбору разных значений для T^* (50, 80 и 100 К). Как указывалось выше, все они дают одинаковое значение величины отсечки, получаемое линейной экстраполяцией точек к $T = 0$ К и равное в данном случае $[M_i(0)]^{-1} = (8145 \pm 310) \text{ эме}^{-1}$. Подобные построения выполнены для всех образцов исследованной серии, и результаты определения величины $M_i(0)$ как функции толщины медных слоев для ориентации $\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$ представлены в табл. 1.

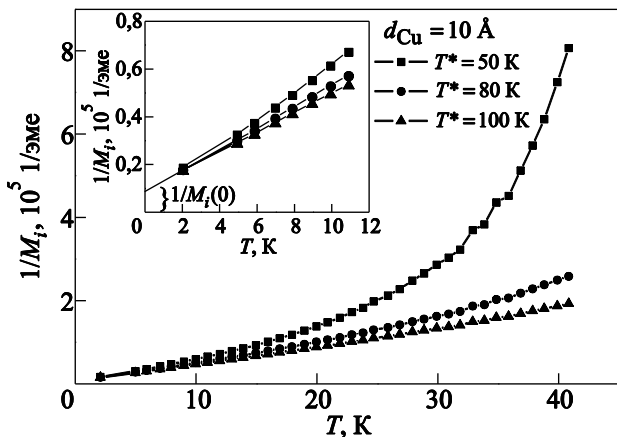


Рис. 2. Зависимость $1/M_i$ от температуры для образца с $d_{Cu} = 10$ Å, $\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$. Три набора экспериментальных точек соответствуют выбору разных значений T^* . На вставке: $1/M_i(T)$ в интервале температур от 0 до 12 К.

Таблица 1. Параметры намагниченности для CP $[\text{Co}(8 \text{ Å})/\text{Cu}(d_{Cu})]_{20}$ ($T^* = 80$ К)

d_{Cu} , Å	M^* , 10^{-5} эме	$M_i(0)$, 10^{-5} эме	M_{sum} , 10^{-5} эме	M_{sum} , Гс
	$\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$	$\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$	$\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$	$\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$
9	3,97	6,48±0,17	10,45	925
10	5,41	12,28±0,47	17,69	1565
13,5	6,55	6,27±0,3	12,82	1135
15	5,39	6,61±0,2	11,99	1060
17	5,79	9,41±0,25	15,2	1345
21	8,37	7,15±0,29	15,52	1373

В таблице указано измеренное значение намагниченности образцов M^* при температуре $T^* = 80$ К. Считая, что при дальнейшем понижении температуры намагниченность ферромагнитной фазы изменяется незначительно, оценим суммарную намагниченность обеих фаз при $T = 0$ К для каждого образца. Из данных, представленных в таблице, следует, что среднее значение суммарной намагниченности равно $12,9 \cdot 10^{-5}$ эме, что при объеме кобальта в образцах $1,13 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3$ составляет 1150 Гс. Это неплохо согласуется со значением намагниченности кобальта в ГЦК фазе.

Среднее значение $M_i(0)$ для всей серии исследуемых образцов $\sim 8 \cdot 10^{-5}$ эме. Оценим количество атомов кобальта, участвующих в формировании этой намагниченности. При значении магнитного момента одного атома кобальта $1,71 \mu_B = 1,585 \cdot 10^{-20}$ эме это количество составляет $5,05 \cdot 10^{15}$ атомов. Напомним, что для ГЦК кобальта с ребром ячейки $3,54 \text{ Å}$ межатомное расстояние в плоскости [111] составляет $2,5 \text{ Å}$, в одном атомном слое кобальта для образца диаметром 3 мм содержится $1,3 \cdot 10^{14}$ атомов, т.е. $1,04 \cdot 10^{16}$ атомов кобальта во всем многослойном образце. Приведенные оценки показывают, что $\sim 48\%$ из них участвуют в образовании парамагнитных кластеров.

Рассмотрим вопрос о происхождении столь значительной парамагнитной фазы в образцах исследуемой системы. Наиболее вероятно, ее появление связано с процессами диффузии кобальта в слои меди, которые существенно облегчаются вследствие отмечавшейся выше зернистой структуры образцов. Хорошо известно, что коэффициент диффузии по границам зерен D_b на 5–6 порядков превосходит коэффициент объемной диффузии D для плоскостного режима [35,36]. В результате диффузионного процесса часть атомов кобальта покидает позиции в своих слоях и сравнительно быстро выносятся по межзеренным границам внутрь медных слоев, где процесс объемной диффузии кобальта внутрь зерен меди продолжается, хотя и с заметно меньшей скоростью. Как следствие, атомы кобальта, оторванные от ферромагнитных слоев и перенесенные в объем медных прослоек, должны проявлять парамагнитные свойства.

Оценим для образцов исследуемой серии отношение концентрации продиффундировавших атомов кобальта к их исходной концентрации в условиях сосуществования зернограничного и объемного потоков [36]. Обычно считается, что межзеренная диффузия реализуется в приграничных слоях зерен толщиной 3–5 Å. Она должна распространяться по границам зерен на расстояние, равное в нашем случае половине толщины медной прослойки, поскольку последняя покрыта слоями кобальта с обеих сторон. Рассчитанное отношение можно получить в соответствии с выражением, приведенным в [36]:

$$N(x, y, z) = N_0 \exp \left[-y \left(\frac{\sqrt{\pi} D_b \delta}{2\sqrt{D}} \right)^{-1/2} t^{-1/4} \right] \times \left(1 - \operatorname{erf} \frac{x}{2D^{1/2}} \right). \quad (2)$$

Здесь y — расстояние распространения межзеренной диффузии, для исследованных образцов оно составляет в среднем 5 Å; $\delta = 5$ Å — толщина слоя межзеренной диффузии; x — глубина проникновения диффузии от боковой поверхности внутрь зерна, в данном случае это радиус зерна $x = 50$ Å; t — время диффузионного процесса, т.е. возраст образцов ($t \approx 10$ лет = $3 \cdot 10^8$ с). Образцы сохраняли при комнатной температуре, которая определяет величину коэффициента диффузии согласно выражению

$$D_b = A \exp(-E_b/RT), \quad (3)$$

где A — численный множитель в пределах 2–6 см²/с [37], $R = 1,987$ кал/(моль·К) — газовая постоянная, E_b — энергия активации диффузионного механизма. Для межзеренной диффузии кобальта в матрицу меди ее среднее значение $E_b = 22$ ккал/моль [36,38], что приводит к величине коэффициента межзеренной диффузии $D_b = 4 \cdot 10^{-16}$ см²/с. Как сказано выше, коэффициент плоскостной диффузии в этом случае $D = 4 \cdot 10^{-22}$ см²/с, и выражение (2) приводит к величине отношения $N/N_0 \approx 0,4$. Естественно, разнообразие механизмов зернограничной диффузии и разброс зерен образцов по размерам делает реальный процесс диффузии неоднородным, однако полученная оценка показывает, что относительное количество кобальта, проникшего в объем медных прослоек, может оказаться значительным.

По-видимому, приведенный выше расчет переоценивает долю атомов кобальта, проникших в объем меди, поскольку последний должен представлять собой интерметаллический сплав типа $\text{Co}_{0,25}\text{Cu}_{0,75}$. Это маловероятно, так как взаимная растворимость этих материалов не превышает 0,2 ат.% даже при 500 °С [39]. Однако образования сплава можно избежать, если считать процесс ограниченным диффузией атомов кобальта по границам зерен с дальнейшей их фиксацией на

этих границах. Простые оценки показывают, что при среднем диаметре зерен 80 Å на боковой поверхности зерна меди в одном атомном слое ~ 100 атомов, т.е. $\sim 5 \cdot 10^{13}$ мест диффузионного внедрения атомов кобальта на один интерфейс. Другими словами, примерно 40% атомов из верхнего (или нижнего) атомного слоя кобальта, примыкающего к интерфейсу, могут в результате диффузии расположиться на межзеренной границе меди. Будучи оторванными от массива кобальтового слоя на 1–2 межатомных расстояния, они сформируют парамагнитный вклад в намагниченность. В этом случае отношение N/N_0 составит величину $\approx 0,2$ в расчете на весь образец.

Уместно заметить, что индивидуальный магнитный момент парамагнитного кластера, оцененный из наших экспериментов, составляет для обеих ориентаций поля (40–60) μ_B , что соответствует 25–35 атомам кобальта. Эта величина сравнима с числом мест, доступных для диффузии кобальта на боковой поверхности зерен меди, что позволяет считать этот процесс основной причиной образования парамагнитных кластеров в исследуемой системе Co/Cu (111).

Поскольку приведенная оценка величины $N/N_0 \approx 0,2$ заметно ниже полученной в эксперименте, возникает вопрос о дополнительных источниках парамагнетизма в наших образцах. Скорее всего, они должны быть связаны с шероховатостью интерфейсов, создающей дополнительные возможности для относительной изоляции отдельных атомов кобальта или их групп. Эти возможности будут усилены за счет частичного заполнения кобальтовых узлов решетки атомами меди, проникающими в интерфейсный слой за счет диффузии. Однако отсутствие теоретических моделей для описания этих эффектов затрудняет получение количественных данных.

Свидетельством образования парамагнитных кластеров в исследуемой системе является наличие дополнительной резонансной линии, обнаруженной нами при исследовании ферромагнитного резонанса на образцах этой серии [13,24]. Это дополнительное поглощение в виде одиночной симметричной линии шириной $\sim 1,5$ кЭ с эффективным g -фактором равным ≈ 2 практически не имеет угловой зависимости и наблюдается на всех образцах. Качественно такое поведение соответствует ЭПР поглощению за счет изолированных кластеров атомов кобальта, внедренных в решетку меди. Как упоминалось выше, для атомов кобальта $g = 2,16$, а их медное окружение кубической симметрии, обладающее малой кристаллографической анизотропией, обеспечивает практически полную изотропность такого поглощения. Однако оценки концентрации кластеров путем измерения абсолютной интенсивности этого поглощения оказались затруднительны, поскольку в спектре присутствует еще одно дополнительное ЭПР поглощение, обусловленное электронами прово-

димости в стенках резонатора, наложенное на кластерную линию. Для электронов проводимости эффективный g -фактор равен 2, и их линия ЭПР поглощения наблюдается даже на резонаторе без образца и имеет примерно такую же ширину линии, что и для кластеров кобальта.

5. Заключение

Проведенные исследования температурной зависимости намагниченности многослойной системы, состоящей из ферромагнитных слоев кобальта, разделенных прослойками диамагнитной меди, демонстрируют наличие дополнительной парамагнитной фазы в образцах. Учитывая низкую степень магнитной поляризации атомов меди, наблюдаемый парамагнетизм должен объясняться искажениями идеальной слоистой системы, природу которых можно связать с межслоевой диффузией, существенно ускоренной из-за зернистой структуры многослойных образцов.

Качественная картина формирования значительного парамагнитного вклада в намагниченность изученных образцов состоит в следующем. Диффузионный процесс обеспечивает образование парамагнитных (суперпарамагнитных) кластеров кобальта на боковой поверхности зерен меди. Межслоевая диффузия обеспечивает также обратный процесс перемещения атомов меди в объем кобальта, затрагивая, в основном, его верхний атомный слой, дополнительно деформированный шероховатостью интерфейса. В результате два атомных слоя кобальта (из номинальных четырех), примыкающие к верхнему и нижнему интерфейсам, демонстрируют парамагнитные свойства и обеспечивают наблюдаемый в эксперименте $\sim 50\%$ объем парамагнитной фазы.

В заключение заметим, что многослойная система Co/Cu обычно считается весьма стабильной из-за малой взаимной растворимости образующих ее материалов и, как следствие, малого коэффициента плоскостной диффузии. Однако мелкозернистая структура пленок, существующая в исследуемых образцах, приводит к резкому ускорению межзеренных диффузионных процессов, т.е. к сравнительно быстрому (в нашем случае ~ 10 лет) формированию парамагнитной фазы в системе, исходно состоящей из слоев ферромагнитного и немагнитного металлов.

1. J.F. Gregg, I. Petej, E. Jouguelet, and C. Dennis, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, R121 (2002).
2. P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky, and H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2442 (1986); S.S.P. Parkin, N. More, and K.P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).
3. Jen-Hwa Hsu and D.R. Sahu, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 192501 (2005); Jen-Hwa Hsu, Zhi-Long Xue, and D. Sahu, *J. Appl. Phys.* **101**, 09D114 (2007).

4. H. Kępa, J. Kutner-Pielaszek, J. Blinowski, A. Twardowski, C.F. Majkrzak, T. Story, P. Kacman, R.R. Gałazka, K. Ha, H.J.M. Swagten, W.J.M. de Jonge, A.Yu. Sipatov, V. Volobuev, and T.M. Giebultowicz, *Europhys. Lett.* **56**, 54 (2001); H. Kępa, C.F. Majkrzak, A. Sipatov, A.G. Fedorov, T.A. Samburskaya, and T.M. Giebultowicz, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 124207 (2009).
5. H. Kępa, G. Springholz, T.M. Giebultowicz, K.I. Goldman, C.F. Majkrzak, P. Kacman, J. Blinowski, S. Holl, H. Krenn, and G. Bauer, *Phys. Rev. B* **68**, 024419 (2003).
6. M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
7. S.S.P. Parkin, R. Bhadra, and K.P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2152 (1991); D.H. Mosca, F. Petroff, A. Fert, P.A. Schroeder, W.P. Pratt, Jr., and R. Laloe, *J. Magn. Magn. Mater.* **94**, L1 (1991).
8. W.P. Pratt, Jr., S.-F. Lee, J.M. Slaughter, R. Loloee, P.A. Schroeder, and J. Bass, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3060 (1991); S. Araki, *J. Appl. Phys.* **73**, 3910 (1993).
9. R.H. Victora and J.M. MacLaren, *J. Appl. Phys.* **69**, 5652 (1991); W.R. Bennett, C.D. England, D.C. Person, and C.M. Falco, *J. Appl. Phys.* **69**, 4384 (1991); Shi-shen Yan, Yi-hua Liu, and Liang-mo Mei, *Phys. Rev. B* **52**, 1107 (1995).
10. H. Nemoto and Y. Hosoe, *J. Appl. Phys.* **97**, 10J109 (2005).
11. P. Swaminathan, R.A. Rosenberg, G.K. Shenoy, J.S. Palmer, and J.H. Weaver, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 202506 (2007).
12. D.G. Stinson and S.-C. Shin, *J. Appl. Phys.* **67**, 4459 (1990).
13. А.И. Каплиенко, Э.П. Николова, К.В. Кутько, А.Г. Андерс, В.В. Зорченко, А.Н. Стеценко, *ФНТ* **31**, 471 (2005) [*Low Temp. Phys.* **31**, 358 (2005)].
14. С.М. Рябченко, А.А. Тимофеев, В.М. Калита, А.Ф. Лозенко, П.А. Троценко, В.А. Стефанович, М. Мунаката, *ФНТ* **36**, 861 (2010) [*Low Temp. Phys.* **36**, 682 (2010)].
15. В.М. Калита, С.М. Рябченко, *ФНТ* **38**, 253 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 199 (2012)].
16. J. Xu, M.A. Howson, E. Kolb, P. Veillet, and A. Petford-Longe, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 35 (1999).
17. M. Shima, L. Salamanka-Riba, T.P. Moffat, and R.D. McMichael, *J. Magn. Magn. Mater.* **198–199**, 52 (1999).
18. J. Xu, M.A. Howson, B.J. Hickey, D. Greig, P. Veillet, and E. Kolb, *J. Magn. Magn. Mater.* **156**, 379 (1996).
19. J. Xu, M.A. Howson, B.J. Hickey, D. Greig, E. Kolb, P. Veillet, and N. Wiser, *Phys. Rev. B* **55**, 416 (1997).
20. Д.Л. Халяпин, П.Д. Ким, J. Kim, И.А. Турпанов, А.Я. Бетенькова, Г.В. Бондаренко, Т.Н. Исаева, I. Kim, *ФТТ* **52**, 1665 (2010).
21. S. Nafis, J.A. Woollam, Z.S. Shan, and D.J. Sellmyer, *J. Appl. Phys.* **70**, 6050 (1991).
22. Z.S. Shan, S. Nafis, J. Woollam, S.H. Liou, and D.J. Sellmyer, *J. Appl. Phys.* **73**, 6347 (1993).
23. В.В. Зорченко, А.Н. Стеценко, А.Г. Андерс, К.В. Кутько, *ФНТ* **31**, 665 (2005) [*Low Temp. Phys.* **31**, 505 (2005)].
24. K.V. Kutko, A.I. Kaplienko, E.P. Nikolova, A.G. Anders, V.V. Zorchenko, and A.N. Stetsenko, *Funct. Mater.* **15**, 359 (2008).

25. И.Н. Лукиенко, Н.Ф. Харченко, В.В. Зорченко, А.Н. Стеценко, *ФНТ* **33**, 1304 (2007) [*Low Temp. Phys.* **33**, 992 (2007)]; I.M. Lukienko, M.F. Kharchenko, V.V. Zorchenko, and A.N. Stetsenko, *Funct. Mater.* **15**, 56 (2008).
26. К.В. Кутько, А.И. Каплиенко, Э.П. Николова, А.Г. Андерс, В.В. Зорченко, А.Н. Стеценко, *ФНТ* **35**, 1114 (2009) [*Low Temp. Phys.* **35**, 869 (2009)].
27. С.Н. Marrows, R. Loloee, and B.J. Hickey, *J. Magn. Magn. Mater.* **184**, 137 (1998); S. Schwieger, J. Kienert, and W. Nolting, *Phys. Rev. B* **71**, 174441 (2005).
28. P. Bruno, *Phys. Rev. B* **52**, 411 (1995); P. Bruno, *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 9403 (1999).
29. J.E. Ortega, F.J. Himpsel, G.J. Mankey, and R.F. Willis, *Phys. Rev. B* **47**, 1540 (1993); Z.Q. Qiu and N.V. Smith, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, R169 (2002); M.D. Stiles, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 322 (1999).
30. J.F. Janak, *Phys. Rev. B* **16**, 255 (1977).
31. V.N. Antonov, L. Uba, S. Uba, A.N. Yaresko, A.Ya. Perlov, and V.V. Nemoshkalenko, *ФНТ* **27**, 579 (2001) [*Low Temp. Phys.* **27**, 425 (2001)]; A.V. Smirnov and A.M. Bratkovski, *Phys. Rev. B* **54**, 17371 (1996).
32. M.G. Samant, J. Stohr, S.S.P. Parkin, G.A. Held, B.D. Hermsmeier, F. Herman, M. Van Schilfgaarde, L.-C. Duda, D.C. Mancini, N. Wassdahl, and R. Nakajima, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1112 (1994).
33. S. Pizzini, A. Fontaine, C. Giorgetti, E. Dartyge, J.-F. Bobo, M. Piecuch, and F. Baudelet, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1470 (1995).
34. D. Barlett, F. Tsui, D. Glick, L. Lauhon, T. Mandrekar, and R. Clarke, *Phys. Rev. B* **49**, 1521 (1994); I. Bakonyi, L. Péter, Z. Rolik, K. Kiss-Szabó, Z. Kupay, J. Tóth, L.F. Kis, and J. Pádár, *Phys. Rev. B* **70**, 054427 (2004); L. Péter, V. Weihnacht, J. Tóth, J. Pádár, L. Pogány, C.M. Schneider, and J. Bakonyi, *J. Magn. Magn. Mater.* **312**, 258 (2007); R. Clarke, D. Barlett, F. Tsui, B. Chen, and C. Uher, *J. Appl. Phys.* **75**, 6174 (1994).
35. И. Каур, В. Густ, *Диффузия по границам зерен и фаз*, Наука, Москва (1991).
36. В.В. Богданов, *Диффузия в кристаллах*, ХНУ, Харків (2006).
37. С.А. Mackliet, *Phys. Rev.* **109**, 1964 (1958); M. Sakamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **13**, 845 (1958).
38. Б.С. Бокштейн, *Диффузия в металлах*, Metallurgia, Москва (1978).
39. T. Nishizawa and K. Ishida, *Bull. Alloy Phase Diagrams* **5**, 161 (1984).

The temperature dependences of magnetization in the Co/Cu (111) superlattices

K.V. Kutko, A.N. Bludov, Yu.A. Savina,
V.A. Pashchenko, A.G. Anders,
V.V. Zorchenko, and A.N. Stetsenko

It is found that there are ferromagnetic and paramagnetic contributions in the temperature dependences of magnetization of Co/Cu (111) superlattices. The type of the samples [Co(8 Å)/Cu(d_{Cu})]₂₀ ($d_{Cu} = 9-21$ Å) were grown on a mica by using the magnetron sputtering method. They have a polycrystalline structure with a grain size of about 80–100 Å. The numerical calculations have shown that the paramagnetic contribution in magnetization is formed by 48% of Co atoms contained in the sample. We have assumed that the most probable mechanism of the paramagnetic phase formation is connected with the diffusion processes at grain boundaries.

PACS: **75.70.-i** Magnetic properties of thin films, surfaces, and interfaces;
75.60.Ej Magnetization curves, hysteresis, Barkhausen and related effects;
68.35.Fx Diffusion; interface formation.

Keywords: magnetic superlattices, temperature dependence of magnetization, intergranular diffusion.