

MODULATION OF PERPENDICULAR MAGNETIC ANISOTROPY AND EXCHANGE BIAS IN [Co/Pd]-IrMn MULTILAYER NANO-ANTIDOT ARRAYS

Giap Van Cuong¹, Chu Van Thanh^{2,3}, Do Khanh Tung², Nguyen Thanh Huong², Do Hung Manh², Tran Dang Thanh², Nguyen Thi Ngoc Anh^{2,4*}

¹Hung Yen University of Technology and Education, ²Institute of Materials Science, VAST, ³International Training Institute for Materials Science (ITIMS), HUST, ⁴Graduate University of Science and Technology, VAST

ARTICLE INFO		ABSTRACT
Received:	07/6/2022	The manipulation of magnetic anisotropy and exchange bias field (H_{EB}) in ferromagnet/antiferromagnet (FM/AFM) thin films could be the key in the development of the next generation of spintronic devices. In this paper, the possible modulation of the magnetic anisotropy and H_{EB} was investigated by the structural parameters of the nanoporous FM/AFM multilayer films. The [Co/Pd]-IrMn multilayers were sputtered on flat SiO_2 and self-organized nanoporous oxide (Al_2O_3 , TiO_2) substrates with different pore size and surface morphology. The influence of surface morphology and pore size on the structure and magnetic of the nanoporous [Co/Pd] and [Co/Pd]-IrMn films were investigated carefully. All films (flat and porous ones) exhibit strong perpendicular magnetic anisotropy and large H_{EB} at room temperature, specially in the nanoporous TiO_2 -[Co/Pd]-IrMn film. Moreover, a significant increase of the coercivity as well as a reduction of the remanence of the developed nanoporous thin films, which depends on the pore size and surface morphology, was also observed.
Revised:	14/7/2022	
Published:	14/7/2022	
KEYWORDS		
Multilayer thin film		
Antidot arrays structure		
Perpendicular magnetic anisotropy		
Perpendicular exchange bias		
FM/AFM		

ĐIỀU BIẾN DỊ HƯỚNG TỪ VÀ TRƯỜNG TRAO ĐỔI DỊCH THEO PHƯƠNG VUÔNG GÓC TRONG CÁC MÀNG ĐA LỚP [Co/Pd]-IrMn CÓ CẤU TRÚC NANO DẠNG ANTIDOT ARRAYS

Giáp Văn Cường¹, Chu Văn Thành^{2,3}, Đỗ Khánh Tùng², Nguyễn Thanh Hương², Đỗ Hùng Mạnh², Trần Đăng Thành², Nguyễn Thị Ngọc Anh^{2,4*}

¹Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật Hưng Yên, ²Viện Khoa học vật liệu - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, ³Viện Đào tạo Quốc tế về Khoa học vật liệu (ITIMS), Trường Đại học Bách khoa Hà Nội, ⁴Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

THÔNG TIN BÀI BÁO		TÓM TẮT
Ngày nhận bài:	07/6/2022	Việc điều khiển tính dị hướng và trường trao đổi dịch (H_{EB}) trong các màng mỏng sắt từ/phản sắt (FM/AFM) từ được coi là chìa khóa trong sự phát triển các thiết bị spintronics thế hệ mới. Trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu khả năng điều biến dị hướng từ và H_{EB} dựa trên các thông số cấu trúc trong các màng nano xếp đa lớp FM/AFM. Các màng mỏng đa lớp [Co/Pd]-IrMn được phủ trên đế phẳng SiO_2 và trên các đế xốp nano Al_2O_3 và TiO_2 có kích thước lỗ xốp và độ nhám bề mặt khác nhau. Ảnh hưởng của hình thái bề mặt, kích thước lỗ xốp lên các đặc trưng cấu trúc và tính chất từ của các màng xốp đa lớp [Co/Pd] và [Co/Pd]-IrMn được khảo sát một cách kỹ lưỡng. Tất cả các màng (phẳng và xốp) đều thể hiện dị hướng từ mạnh và H_{EB} lớn theo phương vuông góc ở nhiệt độ phòng, đặc biệt trong màng xốp TiO_2 -[Co/Pd]-IrMn. Thêm nữa, sự tăng cường đáng kể lực kháng từ và sự giảm độ từ dư trong các màng xốp đã chế tạo, phụ thuộc vào kích thước lỗ xốp và hình thái bề mặt, cũng quan sát thấy.
Ngày hoàn thiện:	14/7/2022	
Ngày đăng:	14/7/2022	
TỪ KHÓA		
Màng mỏng đa lớp		
Cấu trúc antidot arrays		
Dị hướng từ vuông góc		
Trao đổi dịch theo phương vuông góc		
FM/AFM		

DOI: <https://doi.org/10.34238/tnu-jst.6122>

* Corresponding author. Email: ngocanhnt.vn@gmail.com

1. Giới thiệu

Gần đây, tính dị hướng từ và hiệu ứng trao đổi dịch theo phương vuông góc quan sát được ở nhiệt độ phòng trong các màng đa lớp sắt từ/kim loại quý như Co/Pt, Co/Pd khi gắn với một lớp phản sắt từ FeMn, IrMn đã thu hút được sự quan tâm nghiên cứu [1] – [5], kỳ vọng sẽ giúp tạo ra các thiết bị ghi từ vuông góc mật độ siêu cao, thậm chí vượt xa giá trị 1Tb/in² [1], [6], [7]. Khả năng điều biến tính dị hướng từ và trường trao đổi dịch trên các màng mỏng đa lớp [Co/Pd]-IrMn thông qua thay đổi số lớp, chiều dày các lớp vật liệu đã được báo cáo trước đây [8]. Gần đây, một số nghiên cứu trên các màng mỏng từ có cấu trúc nano thấp chiều (như dây nano, chấm (dot) hoặc phản chấm (antidot)) cho thấy có khả năng tăng cường dị hướng từ cũng như trường trao đổi dịch theo phương vuông góc so với các màng phẳng [9]. Tuy nhiên, các màng nanodot loại này vẫn gặp phải vấn đề về giới hạn siêu thuận từ khi kích thước các bit trở nên rất nhỏ. Một số nghiên cứu gần đây thực hiện trên các cấu trúc màng nano-antidot (phản chấm nano) như các màng xộp nano cho thấy rằng cấu trúc antidot không chỉ giúp tăng cường dị hướng từ vuông góc mà còn giúp vượt qua được giới hạn siêu thuận từ bởi trong cấu trúc loại này các bit thông tin không hoàn toàn tách rời nhau mà vẫn còn có một phần được nối với nhau [10]. Vì vậy, mật độ thông tin, độ ổn định từ tính trong các màng loại này kỳ vọng sẽ được tăng cường đáng kể so với các cấu trúc nano đã được nghiên cứu trước đó [9] - [12]. Để chế tạo các màng mỏng từ có cấu trúc antidot, các đế xộp nano Al₂O₃ và TiO₂ có cấu trúc lỗ xộp dạng tổ ong tự sắp xếp chế tạo bằng phương pháp anốt hóa hai bước có độ trật tự cao, mật độ cao ($10^{10} \div 10^{12}$ lỗ xộp/cm²), có khả năng điều khiển kích thước lỗ xộp thông qua các thông số công nghệ gần đây rất được quan tâm bởi phương pháp chế tạo rất đơn giản, chi phí thấp đồng thời có khả năng chế tạo mẫu trên diện tích rộng (> 1 cm²), phù hợp để ứng dụng trong thực tế [13], [14]. Do đó, mục tiêu của bài báo là nghiên cứu sự ảnh hưởng của kích thước lỗ xộp và hình thái bề mặt của đế xộp lên dị hướng từ, hiệu ứng trao đổi dịch, quá trình đảo từ theo phương vuông góc trong các màng đa lớp [Co/Pd]/IrMn có cấu trúc antidot phún xạ trên đế xộp Al₂O₃ và TiO₂ ở nhiệt độ phòng.

2. Phương pháp nghiên cứu

2.1. Chế tạo màng mỏng xộp có cấu trúc antidot

2.1.1. Chế tạo đế xộp

Đế xộp nano Al₂O₃ được chế tạo bằng phương pháp điện hóa hai bước theo quy trình sau:

Bước 1: Phún xạ màng Al với chiều dày 400 nm lên đế Si bằng hệ phún xạ magnetron.

Bước 2: Màng Al sau đó được làm sạch bằng acetone và methanol để loại bỏ bụi bẩn bám trên bề mặt.

Bước 3: Đánh bóng phiến nhôm trong hỗn hợp dung dịch HClO₄ và C₂H₅OH (tỉ lệ 1:4 về thể tích) tại 7 °C, thế đánh bóng là 20 V trong vòng 2 phút để loại bỏ lớp nhôm oxit tự nhiên và làm nhẵn bề mặt.

Bước 4: Điện hóa phiến Al lần thứ nhất trong dung dịch axit H₂SO₄ 2% ở nhiệt độ phòng. Thế điện hóa tăng từ 0 đến 25 V với tốc độ tăng 1 V/s sau đó giữ ổn định trong suốt thời gian điện hóa (không quá 35 phút). Quá trình điện hóa kết thúc thông qua việc ghi nhận độ giảm dòng anot dưới 30% giá trị cực đại.

Bước 5: Ăn mòn lớp nhôm oxit Al₂O₃ tạo ra trong quá trình điện hóa lần thứ nhất bằng hỗn hợp dung dịch H₃PO₄ và CrO₃ (tỷ lệ 1:3 về thể tích) tại 60-65 °C trong vòng 30 phút.

Bước 6: Điện hóa phiến Al lần thứ hai với điều kiện tương tự như điện hóa lần thứ nhất, thời gian phụ thuộc vào chiều dày mong muốn.

Bước 7: Mở rộng lỗ trong 0,1M H₃PO₄ tại nhiệt độ phòng với thời gian 15 phút.

Bước 8: Làm phẳng bề mặt màng xộp Al₂O₃ bằng ion plasma bằng khí Argon với áp suất cơ sở thấp ($\sim 3 \times 10^{-8}$ Torr) trong khoảng 60 phút.

Tương tự, để xốp nano TiO_2 cũng được chế tạo bằng phương pháp điện hóa hai bước bằng việc thay thế màng nhôm (Al) bởi màng Titan (Ti) theo quy trình như trên.

2.1.2. Chế tạo màng mỏng đa lớp

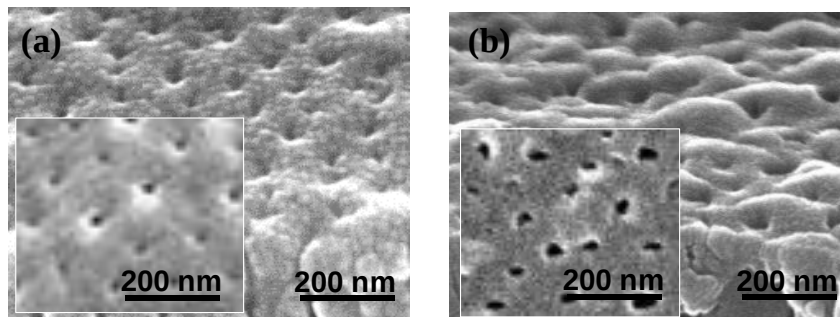
Các mẫu màng đa lớp sử dụng trong nghiên cứu này gồm có màng $\text{Ta(5)/Pd(3)/[Co(0,5)/Pd(1,0)]_5/\text{Co(0,5)/Pd(3)/Ta(5)}$ được viết tắt là $[\text{Co/Pd}]$, mẫu màng $\text{Ta(5)/Pd(3)/[Co(0,5)/Pd(1,0)]_5/\text{Co(0,5)/IrMn(6)/Pd(3)/Ta(5)}$ được viết tắt là $[\text{Co/Pd}]\text{-IrMn}$ với các số trong ngoặc là độ dày tính bằng nanomet. Các màng đa lớp này được tiến hành lắng đọng lên trên đế phẳng Si có phủ lớp ôxít mỏng SiO_2 (gọi là đế Si/ SiO_2) (gọi là màng phẳng) và trên các đế xốp Al_2O_3 và TiO_2 với kích thước lỗ xốp lần lượt vào khoảng 30 nm và 50 nm (gọi là màng xốp) bằng phương pháp phun xạ DC magnetron trên hệ phun xạ AJA. Các mẫu màng đa lớp được phun xạ ở áp suất cơ sở thấp ($\sim 3 \times 10^{-8}$ Torr), áp suất khí Argon được duy trì trong suốt quá trình phun xạ ở mức 5 mTorr cho lớp Co, Pd và 2,5 mTorr cho các lớp vật liệu Ta và IrMn. Công suất phun xạ trong khoảng 37,5÷150 W tương ứng với tốc độ phun xạ trong khoảng 0,18÷1,6 nm/s cho các lớp vật liệu. Nhiệt độ để được duy trì ở nhiệt độ phòng trong suốt quá trình phun xạ.

2.2. Các phép khảo sát, phân tích

Sau khi lắng đọng, các mẫu được từ hóa trong từ trường vuông góc với mặt phẳng mẫu bằng hệ đo các tính chất vật lý (Quantum Design PPMS® VersaLab™) tại Viện Khoa học vật liệu với từ trường lớn nhất đạt 30 kOe. Hình thái bề mặt của các mẫu được kiểm tra bằng phương pháp chụp ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) trên hệ Hitachi S-4800 FE-SEM) tại Viện Khoa học vật liệu, phương pháp hiển vi lực nguyên tử (AFM) trên hệ Solver P47-PRO (NT-MDT Spectrum Instruments) sử dụng đầu dò cacbon siêu nhọn NSG01_DLC với bán kính đầu dò cỡ 1 nm tại Đại học Tổng hợp Quốc gia Belarus. Tất cả các phép đo được tiến hành ở nhiệt độ phòng.

3. Kết quả và bàn luận

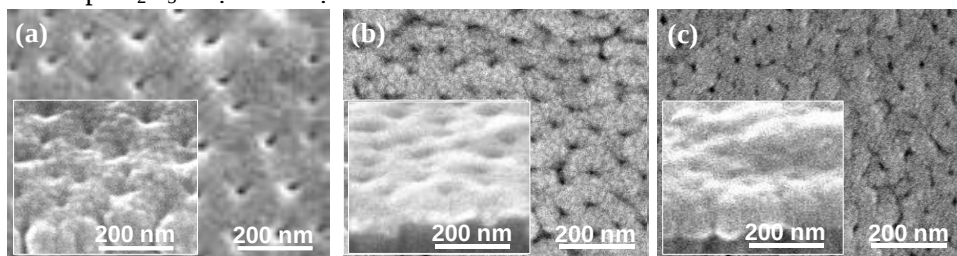
3.1. Đặc trưng hình thái cấu trúc



Hình 1. Ảnh SEM của (a) màng đế xốp Al_2O_3 và (b) TiO_2 chế tạo bằng phương pháp Anốt hóa hai bước chụp dưới góc 45° so với mặt phẳng màng. Hình chèn phía trong là ảnh của màng xốp chụp từ trên xuống theo hướng vuông góc với bề mặt mẫu.

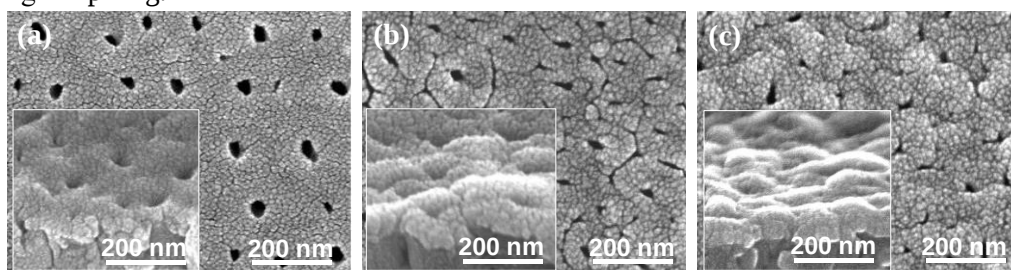
Hình thái học bề mặt của màng xốp nano Al_2O_3 và đế TiO_2 được thể hiện qua ảnh chụp SEM trên Hình 1. Kết quả chụp SEM cho thấy màng xốp Al_2O_3 với các lỗ xốp nano có đường kính trung bình vào khoảng 30 nm, các lỗ xốp được phân bố khá đồng đều trên toàn bộ bề mặt mẫu, bề mặt màng xốp là tương đối phẳng. Trong khi đó, màng xốp TiO_2 với các lỗ nano có đường kính trung bình lớn hơn (vào khoảng 50 nm), sự phân bố của lỗ xốp không đều, ngoài ra bề mặt màng cũng gồ ghề hơn so với màng xốp Al_2O_3 . Điều này có thể được lý giải bởi thông số điện hóa sử dụng là tối ưu cho chế tạo màng xốp Al_2O_3 nhưng chưa phải là tối ưu cho chế tạo màng xốp TiO_2 do hai vật liệu này có các đặc tính vật lý, hóa học không hoàn toàn giống nhau.

Hình ảnh SEM chụp bề mặt của đế xốp Al_2O_3 , màng xốp $[\text{Co}/\text{Pd}]$ và màng xốp $[\text{Co}/\text{Pd}]/\text{IrMn}$ phun xạ trên đế xốp Al_2O_3 được thể hiện trên Hình 2.



Hình 2. Ảnh SEM của (a) màng đế xốp Al_2O_3 , (b) màng xốp $\text{Al}_2\text{O}_3-[\text{Co}/\text{Pd}]$ và (c) màng xốp $\text{Al}_2\text{O}_3-[\text{Co}/\text{Pd}]_5-\text{IrMn}$ chụp từ trên xuống theo hướng vuông góc với bề mặt mẫu. Hình chèn phía trong là ảnh chụp ở góc nghiêng 45° so với bề mặt mẫu.

Kết quả chỉ ra rằng màng $[\text{Co}/\text{Pd}]$ phun xạ lên đế Al_2O_3 cũng có cấu trúc xốp, các lỗ xốp có dạng tròn và sắp xếp khá đều tương tự như của màng đế xốp, tuy vậy đường kính của các lỗ xốp nhỏ hơn so với của màng đế xốp. Kích thước trung bình của lỗ xốp của màng xốp $\text{Al}_2\text{O}_3-[\text{Co}/\text{Pd}]$ vào khoảng 20 nm, được phân bố khá đều, bề mặt màng khá phẳng (Hình 2b). Việc kích thước lỗ xốp sau khi phun xạ màng đa lớp $[\text{Co}/\text{Pd}]$ giảm so với kích thước lỗ xốp của đế xốp Al_2O_3 là do màng $[\text{Co}/\text{Pd}]$ phủ chồm lên gờ các lỗ xốp. Khi có thêm lớp IrMn (Hình 2c), kích thước các lỗ xốp tiếp tục giảm (với đường kính trung bình chỉ còn khoảng 15 nm), điều đó là do lớp IrMn, dày 6 nm, đã phủ chồm thêm lên lớp $[\text{Co}/\text{Pd}]$ ở gờ các lỗ xốp. Độ phẳng bề mặt của các mẫu có liên quan trực tiếp tới độ phẳng của đế xốp được dùng để phun xạ màng. Vì thế mặc dù độ gồ ghề của màng tăng khi phun xạ thêm lớp IrMn nhưng nhìn chung bề mặt của mẫu khi có thêm lớp IrMn vẫn tương đối phẳng.



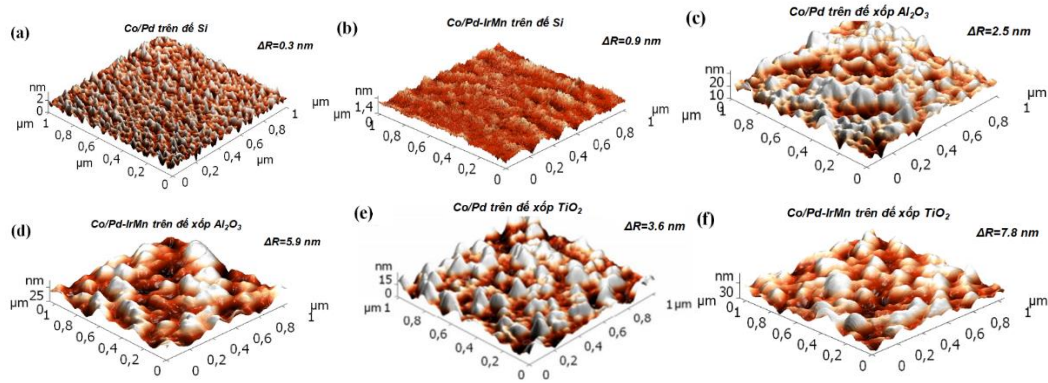
Hình 3. Ảnh SEM của (a) màng đế xốp TiO_2 , (b) màng xốp $\text{TiO}_2-[\text{Co}/\text{Pd}]$ và (c) màng xốp $\text{TiO}_2-[\text{Co}/\text{Pd}]-\text{IrMn}$ chụp từ trên xuống theo hướng vuông góc với bề mặt mẫu. Hình chèn phía trong là ảnh chụp ở góc nghiêng 45° so với bề mặt mẫu.

Hình 3 là ảnh SEM của đế xốp TiO_2 và các màng xốp $[\text{Co}/\text{Pd}]$, $[\text{Co}/\text{Pd}]/\text{IrMn}$ được phun xạ trên đế xốp TiO_2 . Ảnh chụp ở góc 90° so với mặt phẳng mẫu cho thấy các lỗ xốp của màng xốp TiO_2 có đường kính trung bình khoảng 50 nm, giảm dần với các màng xốp $[\text{Co}/\text{Pd}]$ ($\sim 30\div 35$ nm) và $[\text{Co}/\text{Pd}]-\text{IrMn}$ (~ 25 nm). Các lỗ xốp phân bố tương đối đều trên toàn bộ mặt phẳng màng. Tuy nhiên, khi quan sát ảnh chụp ở góc nghiêng 45° so với mặt phẳng màng ta thấy rõ sự không bằng phẳng của các màng phun xạ trên đế xốp TiO_2 so với màng phun xạ trên đế xốp Al_2O_3 .

Để xác định một cách định lượng độ nhám bề mặt của các đế xốp cũng như các màng đa lớp phun xạ lên trên các đế xốp, các mẫu được tiến hành chụp ảnh hiển vi lực nguyên tử (AFM).

Độ nhám bề mặt của màng phẳng $\text{SiO}_2-[\text{Co}/\text{Pd}]$ và màng xốp $\text{Al}_2\text{O}_3-[\text{Co}/\text{Pd}]$ xác định bằng ảnh chụp hiển vi lực nguyên tử (AFM) cho giá trị lần lượt vào khoảng 0,3 nm và 2,5 nm (Hình 4a và 4c). Khi có thêm lớp IrMn dày 6 nm, độ nhám của màng tăng đáng kể, màng phẳng $\text{SiO}_2-[\text{Co}/\text{Pd}]-\text{IrMn}$ và màng xốp $\text{Al}_2\text{O}_3-[\text{Co}/\text{Pd}]-\text{IrMn}$ có giá trị độ nhám bề mặt tương ứng vào khoảng 0,9 nm và 5,9 nm (Hình 4a và 4d). Độ nhám tăng khi phun xạ các màng $[\text{Co}/\text{Pd}]$ và

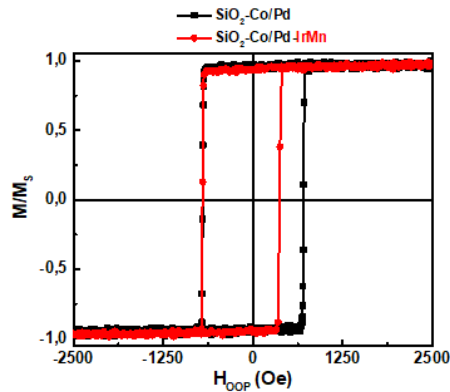
[Co/Pd]/IrMn xác định bằng AFM hoàn toàn phù hợp với kết quả quan sát được từ các ảnh chụp SEM ở trên. Độ nhám bề mặt của màng phẳng SiO_2 -[Co/Pd] và màng xốp TiO_2 -[Co/Pd] xác định bằng AFM cho giá trị lần lượt vào khoảng 0,9 nm và 3,6 nm (Hình 4b và 4e). Khi có thêm lớp IrMn dày 6 nm, độ nhám tăng đáng kể, màng phẳng SiO_2 -[Co/Pd]/IrMn và màng xốp TiO_2 -[Co/Pd]-IrMn có giá trị độ nhám bề mặt tương ứng vào khoảng 0,9 nm và 7,8 nm (Hình 4b và 4f).



Hình 4. Ảnh AFM của các màng phẳng (a) SiO_2 -[Co/Pd], (b) SiO_2 -[Co/Pd]-IrMn, và các màng xốp (c) Al_2O_3 -[Co/Pd], (d) Al_2O_3 -[Co/Pd]-IrMn (e) TiO_2 -[Co/Pd], (f) TiO_2 -[Co/Pd]-IrMn. ΔR là giá trị độ nhám bề mặt trung bình.

3.2. Đặc trưng từ tính

3.2.1. Đặc trưng từ tính của màng phẳng [Co/Pd] và [Co/Pd]-IrMn



Hình 5. Đường cong từ hóa theo phương vuông góc của của màng đa lớp SiO_2 -[Co/Pd] (ký hiệu bằng đường nét liền với các điểm thực nghiệm hình vuông), của màng SiO_2 -[Co/Pd]/IrMn (ký hiệu bằng đường nét liền với các điểm thực nghiệm hình tròn)

Hình 5 biểu diễn đường cong từ hóa của màng phẳng SiO_2 -[Co/Pd] (đường màu đen) và SiO_2 -[Co/Pd]₅-IrMn (đường màu đỏ) đo theo phương vuông góc với mặt phẳng mẫu và với từ trường cực đại là 14 kOe. Kết quả đo VSM cho thấy đường cong từ hóa theo phương vuông góc của hai mẫu đều có dạng rất vuông, độ vuông (squareness ratio) $S = M_R/M_S \sim 1$, thể hiện tính dị hướng theo phương vuông góc cao, quá trình đảo từ xảy ra đột ngột. Có thể nói cơ chế đảo từ trong các màng mỏng loại này chủ yếu là cơ chế quay đô-men trong khi sự đóng góp của cơ chế dịch chuyển vách đô-men là không đáng kể. Có thể quan sát một cách rõ ràng rằng màng SiO_2 -[Co/Pd] có đường cong từ hóa đối xứng qua trục tọa độ với giá trị $H_{C1} = H_{C2} = 670$ Oe, trong đó H_{C1} là giá trị lực kháng từ ứng với từ trường quét theo chiều âm (-) sang (+), và H_{C2} là giá trị lực kháng từ tương ứng với từ trường quét theo chiều ngược lại. Kết quả này phù hợp với một số nghiên cứu trước đây về dị hướng từ vuông góc cao trong màng [Co/Pd] [15]. Khi có

thêm lớp phản sắt từ IrMn đường cong từ hóa bị dịch về phía bên trái theo hướng của từ trường ngoài thể hiện hiệu ứng trao đổi dịch ở nhiệt độ phòng. Kết quả VSM của màng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]-IrMn}$ cho thấy độ vuông của đường cong từ hóa hầu như không đổi ($M_R/M_S \sim 1$) so với màng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$, điều đó có nghĩa màng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]-IrMn}$ vẫn duy trì được tính dị hướng theo phương vuông góc cao. Để đánh giá định lượng các giá trị H_C , H_{EB} trong các mẫu màng mỏng này, lực kháng từ H_C và trường trao đổi dịch H_{EB} được xác định từ đường cong từ hóa, kết quả được biểu thị trong Bảng 1.

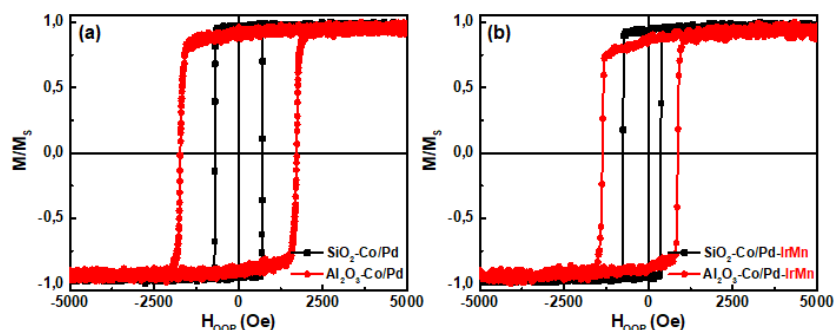
Bảng 1. Giá trị H_C và H_{EB} theo phương vuông góc của các mẫu $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$ và $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$

Tên mẫu	H_C (Oe)	H_{EB} (Oe)
$\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$	670	0
$\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]/IrMn}$	595	98

Có thể thấy giá trị của lực kháng từ H_C trong hai mẫu màng là tương đối cao dù có sự giảm nhẹ ở màng [Co/Pd]-IrMn (lần lượt là $H_C = 670$ Oe và 595 Oe). Tuy nhiên, khi có thêm lớp IrMn, hiệu ứng trao đổi dịch theo phương vuông góc ở nhiệt độ phòng quan sát được là rõ ràng và giá trị trường trao đổi dịch là khá cao ($H_{EB} = 98$ Oe) do tương tác trao đổi sắt từ/phản sắt từ (FM/AFM), điều này cũng phù hợp với các kết quả nghiên cứu đã được công bố trong hệ vật liệu FM/AFM trong đó lớp FM có dị hướng từ vuông góc [2], [16]. Giá trị H_C trong màng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{/IrMn}$ có sự giảm nhẹ so với giá trị H_C trong màng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$ là do dị hướng từ tinh thể của IrMn ($7,8 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$) [17] lớn hơn dị hướng từ của màng (Co/Pd $6,5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$) [18].

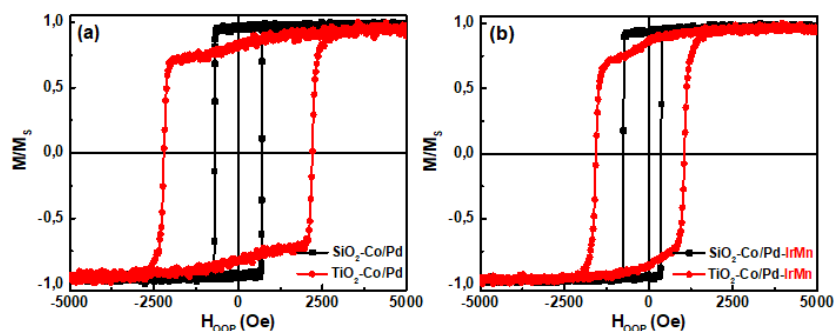
3.2.2. Đặc trưng từ tính của màng xốp đa lớp Co/Pd và Co/Pd-IrMn

Hình 6 là kết quả đo đường cong từ hóa theo phương vuông góc của các mẫu màng phẳng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$, $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]-IrMn}$ và màng xốp $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}$, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$. Đường cong từ hóa của các mẫu màng đa lớp [Co/Pd] cho thấy các mẫu phún xạ trên đế phẳng SiO_2 và đế xốp Al_2O_3 đều có dị hướng từ theo phương vuông góc cao, thể hiện ở giá trị H_C cao và độ vuông S của đường cong từ hóa ~ 1 , cơ chế đảo từ trong các mẫu đều chủ yếu là cơ chế quay đô-men. Đáng chú ý, H_C trong các màng [Co/Pd] phún xạ trên đế xốp Al_2O_3 được tăng cường đáng kể so với các màng phún xạ trên đế phẳng Si/SiO_2 (H_C của màng xốp gấp 2,4 lần so với màng phẳng, lần lượt là 1700 Oe và 670 Oe). Nguyên nhân là do tại gờ các lỗ xốp có sự hình thành các pha từ mềm với các mô-men từ sắp xếp không trật tự trong khi hướng của các mô-men từ trong phần phẳng của mẫu có phương vuông góc với mặt phẳng mẫu, vì vậy các các lỗ xốp đóng vai trò như các điểm ghim từ cục bộ trong quá trình từ hóa mẫu [19] khiến cho mẫu xốp bị “cứng” hơn so với mẫu màng phẳng [20], [21]. Khi có thêm lớp phản sắt từ IrMn, đường cong từ hóa đo ở nhiệt độ phòng trong cả hai mẫu màng phẳng và màng xốp [Co/Pd]-IrMn đều bị dịch về phía bên trái theo hướng của từ trường, thể hiện hiệu ứng trao đổi dịch theo phương vuông góc ở nhiệt độ phòng trong hệ vật liệu đã chế tạo. Độ vuông của đường cong từ hóa trong các mẫu có lớp IrMn có sự giảm nhẹ so với mẫu Co/Pd, có thể được giải thích là do sự ảnh hưởng của độ nhám bề mặt cao ở trong các mẫu màng xốp, dẫn đến các mô-men từ trong lớp phản sắt từ sắp xếp không hoàn toàn đồng nhất theo phương vuông góc, tạo thành các đô-men từ. Độ vuông của đường cong từ hóa trong mẫu xốp ($S = 0,92$) giảm nhẹ so với mẫu phẳng ($S = 0,95$) có thể được giải thích là do ảnh hưởng của pha từ mềm và cơ chế dịch chuyển vách đô-men trong quá trình từ hóa. Tuy nhiên giá trị trường trao đổi dịch H_{EB} gần như không có sự thay đổi so với màng phẳng ($H_{EB} \sim 95$ Oe). Điều đó chứng tỏ việc sử dụng đế xốp Al_2O_3 với kích thước lỗ xốp nhỏ 30 nm giúp tăng cường H_C nhưng không có ảnh hưởng lớn tới trường trao đổi dịch H_{EB} . Nguyên nhân có thể do kích thước lỗ xốp nhỏ, bề mặt của đế Al_2O_3 có độ gồ ghề thấp nên sự đóng góp của các mô-men từ (bất trật tự) tại gờ các lỗ xốp là nhỏ không đáng kể so với mô-men từ trong phần phẳng của mẫu (theo phương vuông góc) vì thế không ảnh hưởng nhiều tới tương tác bề mặt giữa các lớp vật liệu, tương tác giữa lớp FM/AFM vì thế cũng không có sự thay đổi đáng kể.



Hình 6. Đường cong từ hóa theo phương vuông góc với mặt phẳng màng của các màng phẳng (a) $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$ và (b) $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ (ký hiệu bằng đường nét liền với các điểm thực nghiệm hình vuông) và các màng xấp (a) $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}$ và (b) $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ (ký hiệu bằng đường nét liền với các điểm thực nghiệm hình tròn)

Hình 7 là kết quả đo đường cong từ hóa theo phương vuông góc của mẫu màng phẳng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$, $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ (mẫu đối chứng) và màng xấp $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}$, $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$. Đường cong từ hóa của các mẫu màng $[\text{Co/Pd}]$ cho thấy các mẫu phún xạ trên đế xấp TiO_2 có độ hướng từ theo phương vuông góc được tăng cường đáng kể, thể hiện ở giá trị H_C cao ($H_C = 2200$ Oe) gấp 3,3 lần so với mẫu màng phẳng ($H_C = 595$ Oe) và gấp 1,27 so với màng phún xạ trên đế xấp Al_2O_3 ($H_C = 1700$ Oe) (Bảng 2). Lực kháng từ H_C được tăng cường đáng kể so với mẫu màng phẳng là do các lỗ xấp đóng vai trò như các điểm ghim từ trong quá trình từ hóa mẫu. Mức độ tăng cường H_C ở hai mẫu màng xấp khác nhau có thể là do sự khác biệt về độ nhám bề mặt và kích thước lỗ xấp của hai đế xấp Al_2O_3 và TiO_2 . Khi thêm lớp phản sắt từ IrMn, hiệu ứng trao đổi dịch lớn đều quan sát được ở nhiệt độ phòng trong các mẫu. Giá trị trường trao đổi dịch H_{EB} theo phương vuông góc của mẫu $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ lớn hơn 2,4 lần so với màng phẳng $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ và với màng xấp $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$. Cũng có thể thấy độ vuông của đường cong từ hóa trong cả hai mẫu $[\text{Co/Pd}]$ và $[\text{Co/Pd}]\text{-IrMn}$ phún xạ trên đế xấp TiO_2 có sự suy giảm rõ rệt so với các mẫu phún xạ trên đế phẳng SiO_2 và đế xấp Al_2O_3 . Sự giảm độ vuông của đường cong từ hóa trong các màng xấp có thể giải thích dựa trên sự khác biệt về kích thước lỗ xấp và độ nhám bề mặt của các đế xấp dẫn đến sự hình thành các đô-men từ trong các lớp vật liệu hoặc tại các mặt tiếp giáp và các pha từ mềm tại các gờ lỗ xấp (sắp xếp không trật tự) và có hướng khác với hướng của các mô-men từ trong phần phẳng của mẫu (có phương vuông góc với mặt phẳng mẫu) là lớn hơn trong các mẫu phún xạ trên màng xấp TiO_2 [2]. Nói cách khác độ vuông của đường cong từ hóa sẽ giảm khi độ nhám bề mặt tăng và kích thước lỗ xấp tăng, khiến phần đóng góp của các mô-men từ (bất trật tự) tại gờ các lỗ xấp và các đô-men từ tăng. Sự khác nhau về H_{EB} trong các mẫu cũng có thể được giải thích là do kích thước đô-men của lớp AFM thay đổi, thậm chí hướng của các đô-men của lớp AFM ở lớp tiếp giáp với lớp FM cũng thay đổi (có các mô-men từ có thể không nằm trong mặt phẳng) khi độ nhám bề mặt của đế dùng để phún xạ khác nhau [22] hoặc khi cấu trúc nano có kích thước khác nhau [10], [12], [23], [24]. Sự tăng cường đáng kể giá trị H_C trong màng xấp $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ còn có thể được giải thích là do tại các gờ lỗ xấp, cấu trúc vật liệu không duy trì được trạng thái cách biệt giữa các lớp mà có sự hình thành các pha hợp kim từ mềm có vai trò như điểm ghim từ trong quá trình từ hóa và thành phần pha từ mềm này trong màng $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ là lớn hơn trong màng $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ do kích thước lỗ xấp cũng như độ nhám của màng TiO_2 lớn hơn. Sự tăng cường pha từ mềm thể hiện rõ ở sự giảm độ vuông của đường cong từ hóa của màng xấp $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ [2]. Độ nhám bề mặt cao dẫn đến có sự trộn lẫn một lượng spin của lớp FM với spin của lớp AFM khiến H_{EB} tăng [22]. Vì độ nhám của màng xấp TiO_2 cũng lớn hơn của màng xấp Al_2O_3 nên H_{EB} của màng $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$ lớn hơn của màng $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-[Co/Pd]}_5\text{-IrMn}$.



Hình 7. Đường cong từ hóa theo phương vuông góc với mặt phẳng màng của các màng phẳng (a) $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]}$; (b) $\text{SiO}_2\text{-[Co/Pd]-IrMn}$ (ký hiệu bằng đường nét liền với các điểm thực nghiệm hình vuông) và các màng xốp (a) $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]}$; (b) $\text{TiO}_2\text{-[Co/Pd]-IrMn}$ (ký hiệu bằng đường nét liền với các điểm thực nghiệm hình tròn)

Bảng 2 là bảng tổng hợp các giá trị H_C , H_{EB} và $S = M_R/M_S$ theo phương vuông góc của các mẫu Co/Pd và Co/Pd-IrMn phun xạ trên đế phẳng SiO_2 và trên các đế xốp Al_2O_3 và TiO_2 thu được từ đường cong từ hóa.

Bảng 2. Giá trị H_C , H_{EB} và M_R/M_S theo phương vuông góc của các mẫu Co/Pd và Co/Pd-IrMn phun xạ trên đế phẳng SiO_2 và trên các đế xốp Al_2O_3 và TiO_2

Tên mẫu	Đề sử dụng	H_C (Oe)	H_{EB} (Oe)	M_R/M_S
Co/Pd	SiO_2	670	0	0,98
	Al_2O_3	1734	0	0,96
	TiO_2	2200	0	0,9
Co/Pd-IrMn	SiO_2	595	98	0,95
	Al_2O_3	970	95	0,92
	TiO_2	1300	240	0,88

Từ các kết quả thu được cho thấy dị hướng từ theo phương vuông góc trong màng từ đa lớp [Co/Pd] và [Co/Pd]/IrMn có cấu trúc nano dạng antidots được tăng cường đáng kể so với cấu trúc màng phẳng, thể hiện qua giá trị H_C , H_C tăng khi kích thước lỗ xốp tăng. Thật vậy, do ở cấu trúc antidot, các lỗ xốp có vai trò như những khuyết tật/sai hỏng cản trở chuyển động của các vách đô-men khiến cho vật liệu trở nên cứng, sự đóng góp của thành phần pha từ mềm tăng khi kích thước lỗ xốp và/hoặc độ nhám bề mặt tăng [2].

Các kết quả khảo sát trên các màng xốp sử dụng đế xốp Al_2O_3 và TiO_2 cho thấy vai trò của kích thước của các lỗ xốp cũng như độ nhám bề mặt ảnh hưởng đến sự hình thành pha từ mềm hình thành tại gờ các lỗ xốp, vì vậy bên cạnh tương tác trao đổi FM/AFM còn phải kể đến sự đóng góp của tương tác trao đổi đàn hồi FM/FM giữa hai pha sắt từ cứng/mềm (hard/soft exchange magnet). Thông qua thay đổi kích thước của các lỗ xốp cũng như độ nhám bề mặt của đế xốp được sử dụng, có thể điều khiển các tương tác FM/AFM và FM/FM, từ đó điều khiển/tăng cường H_C và H_{EB} trong các màng nano xốp đa lớp Co/Pd và [Co/Pd]-IrMn.

4. Kết luận

Bài báo đã đưa ra một phương thức chế tạo các cấu trúc nano từ tính dạng antidot đơn giản với khả năng điều biến các tham số cấu trúc một cách linh hoạt. Sự phụ thuộc của tính chất từ trong các màng phẳng và các màng xốp đa lớp [Co/Pd] và [Co/Pd]-IrMn vào hình thái bề mặt và kích thước lỗ xốp đã được nghiên cứu kỹ lưỡng. Kết quả nghiên cứu chỉ ra được rằng tất cả các màng [Co/Pd] và [Co/Pd]-IrMn, phẳng và xốp, đều có tính dị hướng từ theo phương vuông góc

cao ở nhiệt độ phòng thể hiện qua giá trị H_C cao và độ vuông của đường cong từ hóa $S \sim 1$. Trường trao đổi dịch cao ở nhiệt độ phòng cũng được quan sát trong các màng [Co/Pd]-IrMn ($H_{EB} > 90$ Oe). Đặc biệt, trường khử từ và/hoặc trường trao đổi dịch cao theo phương vuông góc quan sát được trong các mẫu màng xếp phún xạ trên đế xếp TiO_2 , giá trị trường khử từ cao nhất ($H_C = 2200$ Oe) đạt được trong mẫu màng xếp TiO_2 -[Co/Pd] và trường trao đổi dịch cao nhất ($H_{EB} = 240$ Oe) đạt được trong mẫu màng xếp TiO_2 -[Co/Pd]-IrMn. Có thể nói H_C và H_{EB} hoàn toàn có thể điều biến được thông qua sự thay đổi hình thái học bề mặt của các đế xếp được sử dụng. Nghiên cứu này mở ra cách tiếp cận mới trong chế tạo các cấu trúc nano từ dạng mảng antidot hướng đến các ứng dụng cho các linh kiện từ và Spintronics thế hệ mới có mật độ cao.

Lời cảm ơn

Công trình này được thực hiện với sự hỗ trợ về kinh phí thông qua đề tài Khoa học Công nghệ tại Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam thuộc Chương trình phát triển nhóm nghiên cứu xuất sắc, mã số NCXS01.04/22-24.

TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

- [1] J. Sort, V. Baltz, F. Garcia, B. Rodmacq, and B. Dieny, "Tailoring perpendicular exchange bias in [Pt/Co]-IrMn multilayers," *Physical Review B*, vol. 71, 2005, Art. no. 054411.
- [2] W.-B. Wu, J. Kasiuk, T. N. A. Nguyen, J. Fedotova, J. Przewoźnik, C. Kapusta, O. Kupreeva, S. Lazarouk, K. T. Do, T. H. Nguyen, H. K. Vu, D. L. Vu, and J. Åkerman, "Complex magnetic ordering in nanoporous [Co/Pd]₅-IrMn multilayers with perpendicular magnetic anisotropy and its impact on magnetization reversal and magnetoresistance," *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 22, 2020, Art. no. 101039.
- [3] J. Feng, H. F. Liu, H. X. Wei, X. G. Zhang, Y. Ren, X. Li, Y. Wang, J. P. Wang, and X. F. Han, "Giant Perpendicular Exchange Bias in a Subnanometer Inverted (Co/Pt)_n/Co/IrMn Structure," *Physical Review Applied*, vol. 7, 2017, Art. no. 054005.
- [4] C. Y. Tsai, J.-H. Hsu, P. Saravanan, and K. F. Lin, "Study on the occurrence of spontaneously established perpendicular exchange bias in Co₄₉Pt₅₁/IrMn bilayers," *Journal of Applied Physics*, vol. 115, 2014, Art. no. 17D726.
- [5] H. Gao and Y. Liu, "Exchange bias of [Pt/Co]/IrMn with two-directional isotropy," *AIP Advances*, vol. 9, 2019, Art. no. 015132.
- [6] C. H. Marrows, "Three-dimensional exchange bias in {Co/Pd}/N/FeMn," *Physical Review B*, vol. 68, 2003, Art. no. 012405.
- [7] Z. Y. Liu and S. Adenwalla, "Closely linear temperature dependence of exchange bias and coercivity in out-of-plane exchange-biased [Pt/Co]₃/NiO(11Å) multilayer," *Journal of Applied Physics*, vol. 94, 2003, Art. no. 1105.
- [8] T. H. Nguyen, T. T. T. Nguyen, T. T. H. Cao, H. M. Dinh, H. M. Do, D. L. Vu, V. D. Nguyen, and T. N. A. Nguyen, "Turnable perpendicular exchange bias and coercivity in [Co/Pd]/IrMn multilayers," *TNU Journal of Science and Technology*, vol. 200, no. 07, pp. 141-148, 2019.
- [9] J. Sort, B. Dieny, M. Fraune, C. Koenig, F. Lunnebach, B. Beschoten, and G. Güntherodt, "Perpendicular exchange bias in antiferromagnetic-ferromagnetic nanostructures," *Applied Physics Letters*, vol. 84, 2004, Art. no. 3696.
- [10] D. Tripathy and A. O. Adeyeye, "Perpendicular anisotropy and out-of-plane exchange bias in nanoscale antidot arrays," *New Journal of Physics*, vol. 13, 2011, Art. no. 023035.
- [11] M. Futamoto and M. Ohtake, "Development of Media Nanostructure for Perpendicular Magnetic Recording," *Journal of the Magnetism Society of Japan*, vol. 41, no. 6, pp. 108-126, 2017.
- [12] D. Tripathy, A. O. Adeyeye, and N. Singh, "Exchange bias in nanoscale antidot arrays," *Applied Physics Letters*, vol. 93, 2008, Art. no. 022502.
- [13] G. Ali, C. Chen, S. H. Yoo, J. M. Kum, and S. O. Cho, "Fabrication of complete titania nanoporous structures via electrochemical anodization of Ti," *Nanoscale Research Letters*, vol. 6, 2011, Art. no. 332.
- [14] A. K. Kasi, "Fabrication of Anodic Aluminum Oxide (AAO) Nano-Porous Membrane on Both Sides of Aluminum Sheet," 2nd International Conference on Mechanical and Electronics Engineering (ICMEE 2010), Kyoto, Japan, August 1-3, 2010.

- [15] Q. Peng, H. Liu, and Shen Ye, "Adsorption of Organic Carbonate Solvents on a Carbon Surface Probed by Sum Frequency Generation (SFG) Vibrational Spectroscopy," *Journal of Electroanalytical Chemistry*, vol. 800, pp. 134-143, 2016.
- [16] F. Garcia, J. Sort, B. Rodmacq, S. Auffret, and B. Dieny, "Large anomalous enhancement of perpendicular exchange bias by introduction of a nonmagnetic spacer between the ferromagnetic and antiferromagnetic layers," *Applied Physics Letters*, vol. 83, 2003, Art. no. 3537.
- [17] S. Jenkins, R. W. Chantrell, T. J. Klemmer, and R. F. L. Evans, "Magnetic anisotropy of the noncollinear antiferromagnet IrMn₃," *Physical Review B*, vol. 100, no. 22, 2019, Art. no. 220405.
- [18] S. Tacchi, T. N. A. Nguyen, G. Gubbiotti, M. Madami, G. Carlotti, M. G. Pini, A. Rettori, V. Fallahi, R. K. Dumas, and J. Åkerman, "[Co/Pd]-CoFeB exchange spring magnets with tunable gap of spin wave excitations," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 47, no. 49, 2014, Art. no. 495004.
- [19] T. N. A. Nguyen, J. Kasiuk, W.-B. Wu, J. Fedotova, J. Przewoźnik, C. Kapusta, O. Kupreeva, S. Lazarouk, T. T. H. Cao, T. T. T. Nguyen, H. M. Dinh, K. T. Do, T. H. Nguyen, H. K. Vu, D. L. Vu, and J. Åkerman, "Correlation of magnetic and magnetoresistive properties of nanoporous Co/Pd thin multilayers fabricated on anodized TiO₂ templates," *Scientific Reports*, vol. 10, 2020, Art. no. 108381.
- [20] W.-B. Wu, J. Kasiuk, T. N. A. Nguyen, J. Przewoźnik, J. Fedotova, C. Kapusta, O. Kupreeva, S. Lazarouk, K. T. Do, T. H. Nguyen, H. K. Vu, H. L. Pham, D. L. Vu, and J. Åkerman, "Influence of interfacial magnetic ordering and field-cooling effect on perpendicular exchange bias and magnetoresistance in nanoporous IrMn/[Co/Pd] films," *Journal of Applied Physics*, vol. 127, 2020, Art. no. 223904.
- [21] S. Dijken, J. Moritz, and J. M. D. Coey, "Correlation between perpendicular exchange bias and magnetic anisotropy in IrMn/[Co/Pt]_n and [Pt/Co]_n/IrMn multilayers," *Journal of Applied Physics*, vol. 97, 2005, doi: 10.1063/1.1861964.
- [22] A. P. Malozemoff, "Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces," *Physical Review B*, vol. 35, no. 7, pp. 3679-3682, 1987.
- [23] T. N. A. Nguyen, J. Fedotova, J. Kasiuk, V. Bayev, O. Kupreeva, S. Lazarouk, D. H. Manha, D. L. Vua, S. Chung, J. Åkerman, V. Altynovf, and A. Maximenko, "Effect of flattened surface morphology of anodized aluminum oxide templates on the magnetic properties of nanoporous Co/Pt and Co/Pd thin multilayered films," *Applied Surface Science*, vol. 427, pp. 649-655, 2018.
- [24] M. Salabeldeen, V. Vega, A. Ibabe, M. Jaafar, A. Asenjo, A. Fernandez, and V. M. Prida, "Tailoring of Perpendicular Magnetic Anisotropy in Dy 13 Fe 87 Thin Films with Hexagonal Antidot Lattice Nanostructure," *Nanomaterials*, vol. 8, no. 4, 2018, Art. no. 227.