Структура и магнитная анизотропия пленок Co/Cu/Co

© Л.А. Чеботкевич, А.В. Огнев, Б.Н. Грудин

Дальневосточный государственный университет, 690950 Владивосток, Россия E-mail: lach@phys.dvgu.ru

(Поступила в Редакцию 16 декабря 2003 г.)

Исследовалось поведение энергии магнитной анизотропии поликристаллических ультрадисперсных пленок Co/Cu/Co с изменением толщины медных и кобальтовых слоев. Установлено влияние структурных изменений (размера и распределения дефектов, периода и амплитуды шероховатостей) на компоненты поверхностной и объемной анизотропии. Параметры структурных неоднородностей и их распределение по поверхности пленок определялись с использованием двумерных Фурье-спектров электронномикроскопических изображений пленок.

Работа поддержана федеральным бюджетом Российской Федерации "Исследование и разработки по приоритетным направлениям развития науки и техники гражданского назначения" Минпром России (договор № 3-02.ДВГУ в рамках государственного контракта № 40.012.1.1.1151) и бюджетом Минобразования России (грант "Молодые ученые России").

1. Введение

Наноструктурные объекты в последнее десятилетие являются предметом интенсивных исследований, поскольку на них базируется современная нанотехнология. Успехи в этих областях были достигнуты благодаря стремительному совершенствованию технологии получения и исследования микро- и наноструктур. Кроме практического применения многослойные магнитные структуры представляют интерес и как объекты с совершенно новыми магнитными и магниторезистивными свойствами. В настоящее время актуальными являются исследования, направленные на изучение влияния косвенной обменной связи на магнитные свойства многослойных пленок.

В настоящей работе исследуется влияние распределения структурных дефектов и шероховатостей поверхности на компоненты констант магнитной анизотропии Co/Cu/Co пленок.

2. Методика эксперимента

Образцы Со/Си/Со получали магнетронным распылением на постоянном токе в атмосфере рабочего газа Ar ($P_{\rm Ar} = 5 \cdot 10^{-3}$ Torr). Пленки осаждали на естественно окисленные монокристаллы (111)Si при комнатной температуре. Толщина слоев контролировалась по времени напыления. Скорость осаждения Со и Си составляла 0.1 и 0.08 nm/s соответственно. Структура пленок исследовалась методами электронной микроскопии и микродифракции электронов. Все исследуемые пленки — поликристаллические с размером зерна ~ 5–6 nm. Намагниченность измерялась индукционным методом на автоматизированном вибромагнетометре.

Для измерения поля анизотропии использовался метод ферроромагнитного резонанса (ФМР). Для определения угловой дисперсии осей анизотропии φ_a ис-

пользовалась методика, предложенная в работе [1], где величина угловой дисперсии осей анизотропии φ_a определялась по углу, в пределах которого не изменяется величина резонансного поля при вращении пленки в ее плоскости.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Методом ФМР измерялось поле магнитной анизотропии $H_a = (H_r^{h.a.} - H_r^{e.a.})/2$ пленок. Здесь $H_r^{h.a.}$ и $H_r^{e.a.}$ — резонансные поля в направлении оси трудного (ОТН) и легкого намагничивания (ОЛН) соответственно. Зависимость констант магнитной анизотропии $(K_u = H_a I_{eff}/2,$ где I_{eff} — намагниченность пленки) осажденных пленок (Co/Cu)_n от толщины кобальтовых слоев представлена на рис. 1. Значения K_u рассчитаны



Рис. 1. Зависимость константы наведенной магнитной анизотропии K_u от толщины ферромагнитных слоев Со для пленок Co/Cu(d_{Cu})/Co: $1 - d_{Cu} = 0.7$, $2 - d_{Cu} = 1.0$ и $3 - d_{Cu} = 1.6$ nm.

| 1450 | | |
|------|--|--|
| | | |

| | | $K_v, 10^4$ | erg/cm ³ | | $K_s, 10^{-3} \mathrm{erg/cm^3}$ | | | | |
|-------------------|-------------------|--------------|---------------------|--------------|-----------------------------------|--------------|-----------|--------------|--|
| $d_{\rm Cu}$, nm | эксп | еримент | p | асчет | эксп | еримент | расчет | | |
| | до отжига | после отжига | до отжига | после отжига | до отжига | после отжига | до отжига | после отжига | |
| 0.7 1.0 1.6 | 7.1 7.5 6.9 | 2.3 | 7.3 | 5.7 | 1.3 5.5 5.0 | -7.0 | 5.8 | -8.6 | |

Таблица 1. Магнитная анизотропия пленок Co/Cu/Co до и после отжига при $T_{ann} = 350^{\circ}$ C, $t_{ann} = 30$ min

с учетом зависимости намагниченности от толщины ферромагнитных слоев ($I_{\text{eff}} = f(d_{\text{Co}})$) (рис. 2). С увеличением толщины кобальтовых слоев значение константы наведенной магнитной анизотропии возрастает и выходит на насыщение. В образцах с толщиной медной прослойки $d_{\text{Cu}} = 0.7$ nm величина наведенной магнитной анизотропии максимальна. Вероятно, это связано с наличием большого количества ферромагнитных мостиков в прослойке Cu и, как следствие, локального увеличения толщины слоев Co.

Величину энергии наведенной магнитной анизотропии $K_{u \text{ eff}}$ можно записать в виде феноменологического выражения [2,3]

$$K_{u\,\mathrm{eff}}=K_v+\frac{2K_s}{d_{\mathrm{Co}}},$$

где K_v и K_s — объемная и поверхностная компоненты наведенной магнитной анизотропии соответственно.

Компонента K_v вызвана анизотропным распределением объемных дефектов (границ между зернами, цепочек из межзеренных границ, микропор). Компонента поверхностной магнитной анизотропии K_s обусловлена морфологией границ раздела (интерфейсов Co/Cu). Коэффициент 2 возникает вследствие того, что каждый ферромагнитный слой имеет две межфазные границы. Если K_v и K_s — константы, то согласно феноменологическому закону с увеличением толщины ферромаг-



Рис. 2. Изменение намагниченности пленок Co/Cu/Co при увеличении толщины слоев кобальта. I — после осаждения, 2 — после отжига при $T_{ann} = 350^{\circ}$ C в течение $t_{ann} = 30$ min.

нитных слоев величина $K_{u\,\text{eff}}d_{\text{Co}}$ линейно возрастает. При $d_{\text{Co}} = -2k_s/K_v$ наблюдается кроссовер ОЛН из плоскости пленки в направление, перпендикулярное поверхности пленки. Величина поверхностной магнитной анизотропии $2K_s$ определялась экстраполяцией зависимости $K_{u\,\text{eff}}d_{\text{Co}} = f(d_{\text{Co}})$ к значению $d_{\text{Co}} = 0$. На рис. 3, *а* представлена зависимость $K_{u\,\text{eff}}d_{\text{Co}} = f(d_{\text{Co}})$ для пленок (Co/Cu)_n с различной толщиной d_{Cu} . Значения констант поверхностной анизотропии K_s приведены в табл. 1.

После отжига при температуре 350° С в течение 30 min компонента поверхностной анизотропии в пленках Co/Cu/Co меняет знак (рис. 3, *b*). Это может быть связано с тем, что в отожженных пленках произошла деградация промежуточной прослойки из-за увеличения размера зерен примерно в 6 раз (R = 28-30 nm) и в немагнитной прослойке образовалось много булавочных отверстий. Между слоями установилась ферромагнитная связь через булавочные отверстия, что позволяет рассматривать такие пленки как однослойные с толщиной, равной суммарной толщине ферромагнитных слоев. Эффективное увеличение толщины Со привело к тому, что вектору намагниченности стало выгодней лежать в плоскости пленки.

Величина объемной магнитной анизотропии, определенная как тангенс угла наклона кривой $K_{u\,\text{eff}}d_{\text{Co}} = f(d_{\text{Co}})$, для всех пленок примерно одинакова (табл. 1). В отожженных пленках объемная компонента наведенной магнитной анизотропии уменьшается.

Были проведены оценки поверхностной магнитной анизотропии на основе реальной структуры для исследуемых пленок Со/Си/Со. Согласно [4,5], поверхностную магнитную анизотропию можно представить в виде $K_s = K_0 + \Delta K$, где K_0 — константа поверхностной (граничной) анизотропии для идеальной границы, а ΔK — анизотропия, обусловленная шероховатостью границ раздела.

В случае идеальной границы раздела граничная анизотропия в многослойных пленках обусловлена псевдодипольным взаимодействием пар атомов и равна [4]: $K_0 = 3aNW$, где a — постоянная решетки, N — количество атомов в единице объема, $W = W_{\rm CoCo} + W_{\rm CuCu} - 2W_{\rm CoCu}$ — энергия псевдодипольного взаимодействия атомов Co-Co, Cu-Cu, Co-Cu соответственно. Константа анизотропии для идеального интерфейса равна $K_0 = 8.64 \cdot 10^{-2}$ erg/cm².



Рис. 3. Зависимость $K_u d_{Co}$ от толщины слоев Со. a — после осаждения, b — после отжига при $T_{ann} = 350^{\circ}$ С в течение $t_{ann} = 30$ min для пленок Co/Cu(d_{Cu})/Co. $1 - d_{Cu} = 0.7$, $2 - d_{Cu} = 1.0$ и $3 - d_{Cu} = 1.6$ nm.



Рис. 4. Изображение морфологии поверхности пленки методом ACM и значения дисперсии амплитуды σ и длины шероховатости l.

В реальных пленках на величину анизотропии идеального интерфейса оказывают влияние различные причины: шероховатость границ раздела слоев, диффузионное размытие интерфейса, нанокристаллическая структура.

Вклад шероховатостей границ раздела в компоненту поверхностной анизотропии рассчитывался как [4]: $\Delta K_r = -2K_0(\sigma/\lambda)^2$, где σ — дисперсия амплитуды шероховатости (отклонение от средней плоскости), λ период шероховатостей, определяемых из статистически обработанных изображений топографии поверхностей, полученных методом ACM (рис. 4). Для исследуемых образцов $\Delta K_r = -1 \cdot 10^{-5} \text{ erg/cm}^2$.

При определении вклада поликристалличности предполагалось, что ориентация кристаллитов равновероятна. Тогда величину поверхностной анизотропии, обусловленную поликристаллической структурой, можно представить в виде [4]: $\Delta K_p = -0.6K_0$ = $-5.18 \cdot 10^{-2} \text{ erg/cm}^2$.

В процессе осаждения слоев, а также последующей термической обработки возможно диффузионное размытие границ раздела образца. Величина этой компоненты поверхностной анизотропии имеет вид [4]: $\Delta K_d = -K_0(1 - a/h_d)$, где a — параметр решетки, h_d — глубина диффузионного размытия межфазной границы. При $h_d = 1-2$ межатомных расстояния $\Delta K_d = -2.88 \cdot 10^{-2} \text{ егg/cm}^2$.

В этом случае компонента поверхностной магнитной анизотропии реальных границ раздела равна $K_s = 5.8 \cdot 10^{-3} \text{ erg/cm}^2$. Представленный результат согласуется с экспериментально измеренными значениями поверхностной магнитной анизотропии в пленках (Co/Cu)_n (табл. 1).

После отжига при $T_{ann} = 350^{\circ}$ С в пленках происходит деградация межфазных границ из-за увеличения размера зерен и взаимной диффузии. Если положить, что глубина диффузного размытия межфазной границы h_d в отожженных пленках соизмерима с шириной межфазной границы, то K_s меняет знак, что согласуется с экспериментально определенным значением энергии поверхностной анизотропии (табл. 1).

Для оценки объемной компоненты магнитной анизотропии, обусловленной распределением структурных

| Пленки Со/Си/Со | Частотные диапазоны | | | | | | | | | | | |
|---------------------------|---------------------|------------|------------------|------------------|------------|------------------|------------------|------------|------------------|------------------|------------|------------------|
| | первый | | | второй | | | третий | | | четвертый | | |
| | λ_1 , nm | γ_1 | $	heta_1,^\circ$ | λ_2 , nm | γ_2 | $	heta_2,^\circ$ | λ_3 , nm | <i>¥</i> 3 | $	heta_3,^\circ$ | λ_4 , nm | γ_4 | $	heta_4,^\circ$ |
| До отжига После отжига | 23.4 | 1.0 | _ | 54 44.0 | 1.6 1.1 | 0 120 | 72 | 2.6 | 175 _ | 104.5 85.0 | 2.3 1.4 | 170 100 |

Таблица 2. Параметры распределения структурных неоднородностей по поверхности Со/Си/Со пленки



Рис. 5. *а*, *b* — электронно-микроскопическое изображение структуры Co/Cu/Co пленки; *c*, *d* — зависимость интегральной энергии частотных характеристик в кольцевых зонах от длины волны; *e*, *f* — двумерные Фурье-спектры. *a*, *c*, *e* — до отжига, *b*, *d*, *f* — после отжига при $T_{ann} = 350^{\circ}$ C в течение $t_{ann} = 30$ min. На частях *e*, *f* по радиусам отложены периоды неоднородностей λ .

| | Частотные диапазоны | | | | | | | | | | |
|---------------------------------------|---------------------|------------|------------|------------|----------------------------|------------|----------------------------|------------|--|--|--|
| Co/Cu/Co | пер | вый | BTC | рой | тре | тий | четвертый | | | | |
| | l_1 , nm | d_1 , nm | l_2 , nm | d_2 , nm | <i>l</i> ₃ , nm | d_3 , nm | <i>l</i> ₄ , nm | d_4 , nm | | | |
| До отжига T _{ann} = 350°С | 5 | 1 | 10 74 | 1 2 | 20 | 1 | 30 203 | 1 2 | | | |

Таблица 3. Размеры структурных неоднородностей

неоднородностей необходимо знать не только линейные размеры неоднородностей, но и их взаимную ориентацию и распределение по пленке. Электронномикроскопические изображения пленок визуализируются иерархией структурных неоднородностей. Однако получить количественные оценки распределения дефектов для многослойных структур сложно. Для оценки параметров структурных неоднородностей проводился спектральный Фурье-анализ электронно-микроскопических изображений. Были получены цифровые двумерные спектры Фурье, которые рассчитывались на ЭВМ. Двумерный Фурье-спектр каждого изображения разбивался на 36 кольцевых секторов. В каждом секторе определялась средняя мощность спектральных компонент, характеризующая частотный состав изображения. Затем исследовалась спектральная энергия структурных неоднородностей, входящих в разные частотные диапазоны. Интегральные частотные характеристики для удобства выражены в эквивалентных длинах волн λ . На рис. 5 представлена зависимость интегральной энергии частотных характеристик в кольцевых зонах от длины волны пространственных неоднородностей. Спектральный Фурье-анализ электронно-микроскопических изображений структуры трехслойных пленок показал, что спектр структурных неоднородностей имеет несколько максимумов, т. е. несколько выделенных периодов в распределении неоднородностей. Распределение структурных неоднородностей в пленке оценивалось по энергии спектральных составляющих в радиальных спектрах, в которые входят наблюдаемые локальные максимумы. Полученные двумерные Фурье-спектры позволили определить коэффициент анизотропности распределения γ дефектов по пленке и угол разориентации дефектов θ , входящих в разные частотные диапазоны. Параметры структурных неоднородностей приведены в табл. 2. Можно выделить четыре типа неоднородностей (периодов неоднородностей), соответствующих локальным максимумам энергии (табл. 2). После отжига в пленке выявлено всего два локальных максимума (рис. 5).

С учетом параметров структурных неоднородностей пленки до и после отжига были проведены оценки объемной компоненты магнитной анизотропии K_v , обусловленной структурными дефектами.

Для нахождения результирующей константы магнитной анизотропии определяли поле анизотропии. В осажденных пленках неоднородности, входящие в первый диапазон, распределены по пленке изотропно ($\gamma = 1$) (рис. 5, *e*). Изотропно распределенные дефекты (напряжения) не вносят вклада в наведенную магнитную анизотропию. В осажденных пленках присутствует три, а после отжига — две системы анизотропно распределенных дефектов, вносящих вклад в магнитную анозотропию (табл. 2 и рис. 5, *e*, *f*). Поле анизотропии, обусловленное объемными дефектами в осажденной пленке, равно

$$H_a^{v} = \begin{cases} H_2^2 + H_3^2 + H_4^2 - 2H_2H_3\cos(\theta_3 - \theta_2) + \\ + 2H_4[H_2^2 + H_3^2 - 2H_2H_3\cos(\theta_3 - \theta_2)]^{1/2} \times \\ \times \cos(\theta_2 - \theta_4 + \gamma) \end{cases}^{1/2},$$

$$\gamma = \arccos \frac{H_3\cos(\theta_3 - \theta_2) - H_2}{[H_2^2 + H_3^2 - 2H_2H_3\cos(\theta_3 - \theta_2)]^{1/2}}.$$

Для отожженной пленки

$$H_a^v = [H_2^2 + H_4^2 + 2H_2H_4\cos(\theta_4 - \theta_2)]^{1/2}$$

Здесь H_i — компоненты поля анизотропии, обусловленные неоднородностями *i*-го диапазона, которые рассчитывались по формуле

$$H_i = 2(N_b - N_a)(\Delta I)^2 c_i / I_{\text{eff}},$$

где N_a, N_b — размагничивающие факторы вдоль осей *a* и *b* дефекта, ΔI — скачок намагниченности на границе дефекта, c_i — концентрация дефектов *i*-го типа. $\Delta I = I_s - I_{def}$; так как $I_{eff} = I_s V + I_{def}(1 - V)$, где *V* — объем зерен, то $\Delta I = (I_s - I_{eff})/(1 - V)$, где



Рис. 6. Зависимость отношения $\Delta I/I_s$ (1) и размера зерна R (2) от температуры отжига Co/Cu/Co пленок.

 I_s — табличное значение, а V и I_{eff} определены экспериментально (рис. 6). Концентрация дефектов каждого диапазона определялась как $c_i = S_i/1 \text{ cm}^2$, $S_i = S_0 n_i$, где $S_0 = l \cdot d$ — площадь отдельного дефекта *i*-го диапазона, а $n_i = 1/\lambda_i^2$ — плотность дефектов *i*-го диапазона. Здесь l и d — длина и ширина дефектов *i*-го диапазона соответственно (табл. 3). Рассчитанные значения объемных компонент магнитной анизотропии $K_v = H_a^v I_f/2$ приведены в табл. 1. Видно хорошее согласие рассчитанных значений с экспериментально измеренными значениями.

4. Заключение

В результате проведенных исследований было установлено следующее.

1) В поликристаллических, мелкодисперсных и многослойных пленках присутствует иерархия структурных неоднородностей, отличающихся размерами, периодами (плотностью) и распределением по поверхности пленок.

2) Термическая обработка сопровождается изменением размеров, периодов и распределения структурных неоднородностей по пленке.

3) Длинноволновые шероховатости поверхности не вносят вклада в поверхностную анизотропию.

4) Деградация немагнитной прослойки сопровождается изменением знака поверхностной магнитной анизотропии в Co/Cu/Co пленках с тонкими ферромагнитными слоями.

5) Оценки компонент энергии поверхностной и объемной анизотропии на основе реальной структуры поликристаллических многослойных пленок согласуются с экспериментально измеренными значениями.

Список литературы

- [1] Ю.В. Корнев, Т.В. Бородина. ФММ 55, 3, 472 (1983).
- [2] M. Kowalewski, C.M. Schneider, B. Heinrich. Phys. Rev. B 47, 14, 8748 (1993).
- [3] D. Givord, O.F.K. McGrath, C. Meyer, J. Rothman. J. Magn. Magn. Mater. 157/158, 245 (1996).
- [4] Д.Б. Розенштерн, М.Г. Тетельман, А.А. Фраерман. Поверхность 4, 15 (1993).
- [5] P. Bruno. Phys. Rev. B 39, 865 (1989).