

Особенности структурных и магнитных характеристик низкоразмерных систем на основе кобальта и меди

Е. Е. Шалыгина^а, А. В. Макаров, А. М. Харламова

*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет, кафедра магнетизма. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.
E-mail: ^аshal@magn.ru*

Статья поступила 26.12.2016, подписана в печать 11.04.2017.

Представлены результаты исследования структурных и магнитных характеристик низкоразмерных Co/Cu/Co-тонкопленочных систем, полученных магнетронным распылением на стеклянные подложки. Толщина слоев кобальта во всех образцах была равна 5 нм, а толщина медного слоя варьировалась от 0.5 до 4 нм. Обнаружено, что поле насыщения H_S изучаемых образцов осциллирует по величине с изменением толщины медного слоя с периодом порядка 1 нм. Максимальные значения H_S наблюдаются для тонкопленочных систем с толщиной слоя Cu $t_{Cu} = 1.4, 2.2$ и 3.2 нм. Петли гистерезиса, измеренные для этих образцов в магнитном поле, приложенном вдоль оси легкого намагничивания образца, имеют двухступенчатую форму, а образцы с другими значениями t_{Cu} — прямоугольную. Полученные данные объяснены наличием обменного взаимодействия между ферромагнитными слоями через медный разделительный слой и его осциллирующим поведением с изменением t_{Cu} .

Ключевые слова: магнитные свойства, обменное взаимодействие, петля гистерезиса, поле насыщения, тонкопленочные магнитные системы.

УДК: 537.622.4. PACS: 75.70.Ak, 75.75.-c.

Введение

Тонкие магнитные пленки привлекают внимание исследователей с середины XX в. Интерес к этим материалам обусловлен особенностями их физических свойств. В частности, в тонкопленочных системах, в которых размер вдоль одного из направлений соизмерим с длиной волны электрона, возможно наблюдение квантовых размерных эффектов, проявляющихся в изменении энергетического спектра образцов вдоль этого направления. В результате магнитные и транспортные свойства образцов изменяются. Например, в трехслойных и многослойных тонкопленочных системах, состоящих из чередующихся ферромагнитных и немагнитных (без ферромагнитного упорядочения) слоев субмикронной толщины, было обнаружено гигантское магнетосопротивление (ГМС), величина которого зависела от взаимной ориентации намагниченностей в ферромагнитных слоях. Было найдено, что величина ГМС в многослойных системах (сверхрешетках) может достигать нескольких десятков процентов [1]. Кроме того, в многослойных низкоразмерных тонкопленочных системах было обнаружено осциллирующее поведение обменного взаимодействия между ферромагнитными слоями с изменением толщины неферромагнитного слоя, а также квантовые размерные эффекты [2, 3]. Следует также отметить, что тонкие магнитные пленки и многослойные тонкопленочные системы, благодаря своим уникальным свойствам, получили широкое применение в устройствах микроэлектроники и нанoeлектроники. На их основе создаются новые материалы с заданными кинетическими и магнитными свойствами, разрабатываются

датчики магнитного поля и различные сенсоры [4]. Тонкопленочные системы используются также для хранения и записи информации в запоминающих устройствах, позволяя получить высокую плотность и скорость записи информации [5].

Большое количество экспериментальных работ посвящено исследованию магнитных характеристик многослойных тонкопленочных систем, в том числе трехслойных. В частности, в работах [6–11] были исследованы низкоразмерные тонкопленочные трехслойные ФМ/НФМ/ФМ-системы, в которых ФМ — ферромагнитные Fe или Co, а НФМ — Ag, Au, Zr, Ta, Mo, Pt, Pd, полупроводниковый Si, полуметаллический Bi. При изучении магнитных характеристик указанных выше образцов были обнаружены осцилляции значений поля насыщения при изменении толщины немагнитного слоя. Период этих осцилляций (кроме систем с Bi) был порядка 1.0–1.8 нм в диапазоне толщин ФМ до 10 нм и НФМ до 5 нм.

Несмотря на огромный накопленный экспериментальный материал, изучение магнитных свойств тонкопленочных магнитных структур по-прежнему представляет научный и практический интерес. При этом заслуживающей внимания проблемой является экспериментальный анализ влияния толщины и состава магнитных и немагнитных слоев на магнитные свойства тонкопленочных магнитных систем (ТПМС). Очевидно, что для корректного решения этого вопроса требуется изучение двух- и трехслойных образцов, поскольку в многослойных структурах наличие большого числа интерфейсов, как правило, усложняет интерпретацию экспериментальных данных. С этой точки зрения оказалось, что

трехслойные магнитные образцы с медным промежуточным слоем практически не изучались.

Целью настоящей работы является исследование влияния толщины медного слоя на структурные и магнитные характеристики низкоразмерных Co/Cu/Co-тонкопленочных систем.

1. Изучаемые образцы и экспериментальные методики

Тонкопленочные Co/Cu/Co-системы были получены магнетронным распылением на стеклянные подложки. Перед напылением все подложки были тщательно вымыты ацетоном, этанолом и деионизированной водой, а затем высушены при 100°C . Шероховатость поверхностей подложек была порядка 0.5 нм. Сначала на стеклянную подложку напылялся слой тантала толщиной 5 нм, а затем слои Co и Cu. Процесс напыления выполнялся при комнатной температуре. Давление в вакуумной камере было 4×10^{-7} мбар, а давление аргона в процессе напыления пленок было порядка 3.8×10^{-3} мбар. Постоянное магнитное поле, равное 250 Э, было приложено параллельно подложке, чтобы создать ось легкого намагничивания (ОЛН). Толщина слоев кобальта во всех образцах была одинаковой и равна 5 нм. Толщина медного слоя варьировалась от 0.5 до 4 нм. Толщина каждого слоя определялась с учетом известных скоростей (2.6 нм/мин для Co и 2.0 нм/мин для Cu) и времени напыления для каждого материала. Скорость напыления была определена дополнительной процедурой калибровки с оценкой толщины с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ).

Микроструктура Co/Cu/Co-тонкопленочных систем была изучена рентгеновским методом с использованием $\text{Cu}K_\alpha$ -излучения. Морфология поверхности образцов была исследована с помощью атомного силового микроскопа. Полученные с помощью АСМ изображения были обработаны с использованием математических операций и фильтров программы «Nova», разработанной изготовителем АСМ [12]. Программа позволяет определять среднее арифметическое значение шероховатости R_a поверхности изучаемого образца.

Измерения магнитных характеристик Co/Cu/Co-образцов были выполнены на магнитооптическом и вибрационном магнитометрах. При измерениях на магнитооптическом магнитометре использовался экваториальный эффект Керра (ЭК), заключающийся в изменении интенсивности отраженного света от ферромагнетика при его намагничивании. Этот эффект пропорционален компоненте намагниченности, перпендикулярной плоскости падения света и параллельной поверхности образца. ЭК является эффектом первого порядка по намагниченности. Поскольку магнитооптические эффекты, наблюдаемые в отраженном свете, относительно малы ($\sim 10^{-2} - 10^{-4}$), то измерения этих эффектов

обычно проводят модуляционным методом. Преимущество данного метода заключается в том, что его применение позволяет устранить влияние колебаний источника света, влияние флуктуаций тока, и в силу того, что метод является дифференциальным, чувствительность его увеличивается по сравнению со статическим методом на 2–3 порядка, т.е. возможно измерение относительного изменения интенсивности отраженного света от перемагничиваемого образца вплоть до 10^{-5} . Сущность применяемой методики заключается в следующем. Исследуемый образец с помощью электромагнита перемагничивается переменным магнитным полем с частотой $f = 80$ Гц. Изменение намагниченности засвеченного участка поверхности под действием периодически изменяющегося внешнего магнитного поля приводит к изменению интенсивности отраженного света за счет магнитооптического эффекта. Это изменение регистрируется фотоприемником. В цепи приемника излучения возникают два сигнала: постоянное напряжение U_- , пропорциональное интенсивности света I_0 , отраженного от образца при отсутствии магнитного поля, и переменное напряжение U_\sim с частотой f , пропорциональное глубине модуляции интенсивности ΔI отраженного от образца света за счет магнитооптического эффекта, возникающего при изменении намагниченности от M до $-M$ под действием внешнего переменного магнитного поля. Постоянное напряжение U_- измеряется милливольтметром постоянного напряжения, а переменное напряжение U_\sim — селективным усилителем, с которого сигнал подается на фазовый детектор. Роль детектора сводится к подавлению сигналов с частотой следования, отличающейся от частоты опорного сигнала, который подается со звукового генератора, и регистрации изменения фазы сигнала. Величины магнитооптических сигналов определяются из соотношения $\delta = U_\sim/U_- = (I - I_0)/I_0$, где сигнал U_- пропорционален интенсивности света I_0 , отраженного от ненамагниченного образца. Сигнал $U_\sim \propto \Delta = (I - I_0)$, где I — интенсивность света, отраженного от намагниченного образца. Программное обеспечение Power Graph позволяет визуализировать и упрощать процессы регистрации, обработки и анализа данных. Следует отметить, что магнитооптический метод исследования магнитных материалов позволяет оперативно получать информацию о зависимости магнитных характеристик тонкопленочных систем от толщины как магнитных, так и немагнитных слоев.

Петли гистерезиса исследуемых образцов были измерены при двух ориентациях внешнего магнитного поля H , приложенного параллельно поверхности образца и перпендикулярно плоскости падения света. В одном случае ориентация H была параллельна направлению ОЛН (направление D1), а в другом случае — перпендикулярно D1 (направление D2). Были измерены следующие зависимости:

$\delta(H)/\delta_S \propto M(H)/M_S$, где δ_S — значение ЭЭК при $M = M_S$, M_S — намагниченность насыщения образца. Кроме того, магнитные характеристики изучаемых образцов были измерены на вибрационном магнитометре VSM 7400 фирмы Lake Shore с чувствительностью 10^{-7} Гс·см³.

2. Экспериментальные результаты

Результаты исследований микроструктуры трехслойных Co/Cu/Co-образцов, полученные рентгеновским методом с использованием $\text{CuK}\alpha$ -излучения, представлены на рис. 1. Измерения рентгеновских спектров были проведены не только на трехслойных образцах, но и на «реперной» однослойной пленке кобальта толщиной 50 нм, осажденной непосредственно на стеклянную подложку.

Анализ данных, представленных на рис. 1, показал, что на рентгеновских спектрах, полученных для изучаемых образцов, отсутствуют пики, соответствующие линиям тантала. Это согласуется с литературными данными, согласно которым состояние пленок тантала при изменении толщины изменяется

от аморфного к кристаллическому с кубической или тетрагональной решеткой. При этом наличие подслоя тантала повышает степень текстуры пленки кобальта, так как на спектрах остается наиболее заметным только пик, соответствующий линии (002) гексагональной решетки кобальта. Положение этого пика для трехслойных образцов слегка сдвинуто влево относительно положения соответствующего пика для однослойной пленки кобальта. Это является свидетельством того, что на границе слоев тантала и кобальта происходит частичная взаимная диффузия, приводящая к некоторому увеличению параметра решетки кобальта, обусловленного большим размером атома тантала по сравнению с атомом кобальта. На спектре образца с самой толстой прослойкой меди становится заметным пик, соответствующий линии (111) гранецентрированной решетки меди. Было найдено, что размер кристаллитов кобальтовой пленки, оцененный по полуширине пиков, порядка ее толщины.

На рис. 2 представлены наиболее типичные АСМ-данные, полученные для изучаемых образцов,

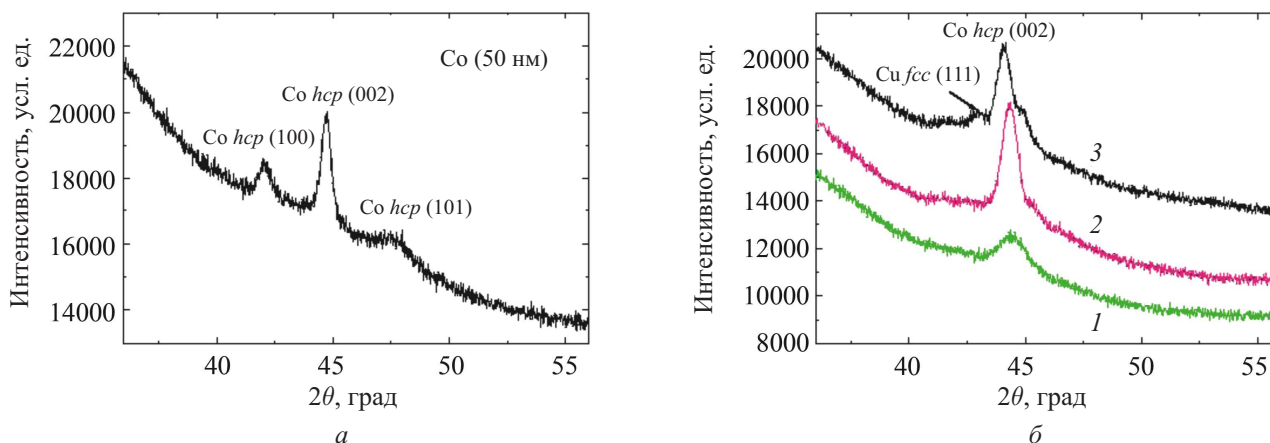


Рис. 1. Типичные рентгеновские спектры, наблюдаемые для изучаемых образцов: «реперной» однослойной пленки кобальта толщиной 50 нм, осажденной непосредственно на стеклянную подложку (а), и образцов на основе Та, Со и Си (б): кривые 1, 2, 3 — для Та/Со(5 нм)/Та, Та/Со(5 нм)/Си(1 нм)/Со(5 нм) и Та/Со(5 нм)/Си(4 нм)/Со(5 нм) соответственно

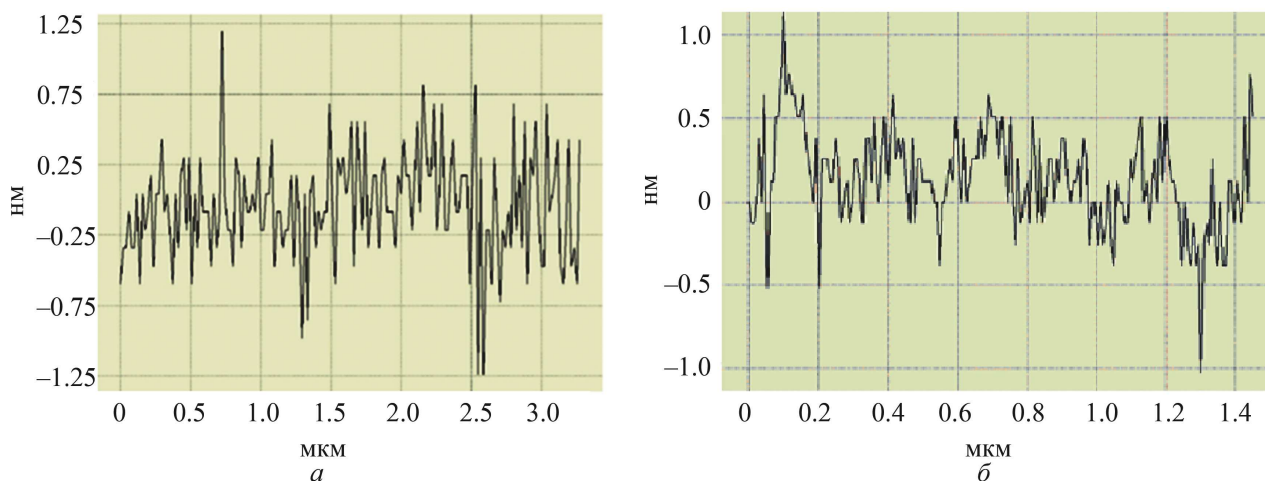


Рис. 2. АСМ-данные, наблюдаемые для тонкопленочных образцов Co/Cu/Co с толщиной медного слоя 1.4 нм (а) и 2.2 нм (б). Средняя шероховатость образцов $R_a \approx 0.3$ нм

как описано выше, с использованием математических операций и фильтров программы «Nova».

В целом анализ АСМ-данных показал, что средняя шероховатость изучаемых образцов (R_a) не превышает 0.5 нм, что свидетельствовало о хорошем качестве поверхности изучаемых образцов.

Результаты магнитных измерений, полученные с помощью магнитооптического (черные и зеленые кривые) и вибрационного (красные кривые) магнитометров, представлены на рис. 3–6. Измерения проводились на открытом воздухе при комнатной температуре.

Результаты магнитных измерений позволили построить график зависимости поля насыщения (H_S) от толщины медного слоя (рис. 7). Значения H_S определялись из петель гистерезиса. Фактически оценивалась величина магнитного поля, при котором намагниченность достигает более 98% от максимального значения.

Остановимся на анализе и обсуждении полученных результатов. Петли гистерезиса, измеренные

вдоль направлений D1 и D2 (рис. 3, а), различаются. Следует отметить, что различие петель гистерезиса, измеренных вдоль направлений D1 и D2, наблюдалось для всех образцов при измерениях как на магнитооптическом магнитометре, так и на вибрационном. Этот факт свидетельствует о наличии наведенной магнитной анизотропии в плоскости образца с осью легкого намагничивания, параллельной D1, совпадающей с направлением магнитного поля, приложенного в процессе его напыления. Согласно существующим представлениям [13], основным механизмом, обуславливающим наведенную магнитную анизотропию, является парное упорядочение атомов.

Петли гистерезиса, измеренные в магнитном поле, параллельном направлению D2, имеют наклонную форму с достаточно малыми значениями коэрцитивной силы и остаточной намагниченности. В этом случае перемагничивание образцов осуществляется за счет вращения вектора намагниченности.

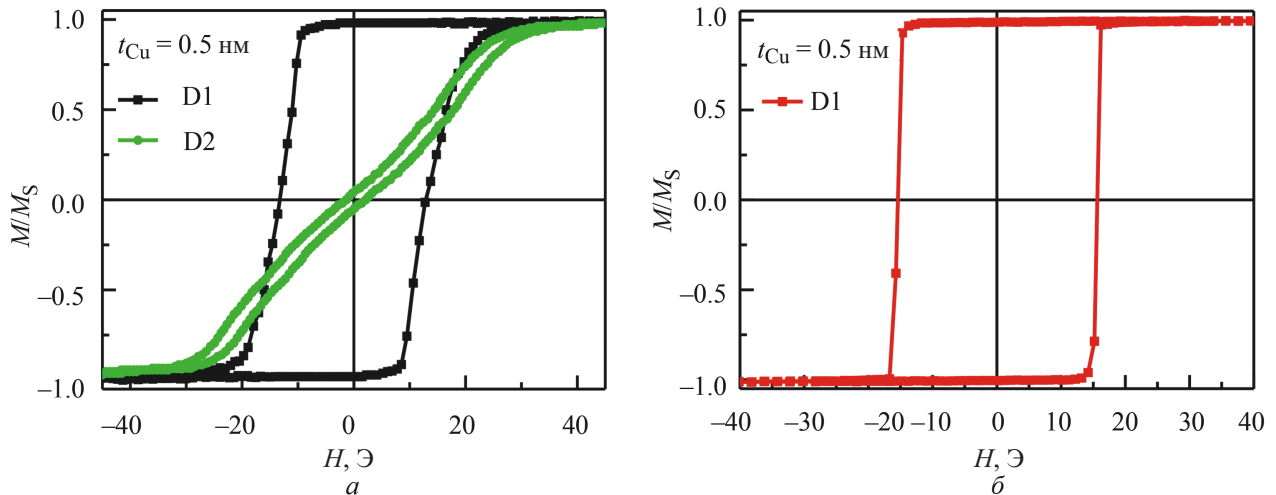


Рис. 3. Петли гистерезиса, полученные для образца Co/Cu/Co с $t_{Cu} = 0.5$ нм в магнитном поле, приложенном вдоль направлений D1 и D2, на магнитооптическом магнитометре (а) и на вибрационном магнитометре в магнитном поле, приложенном вдоль направления D1 (б)

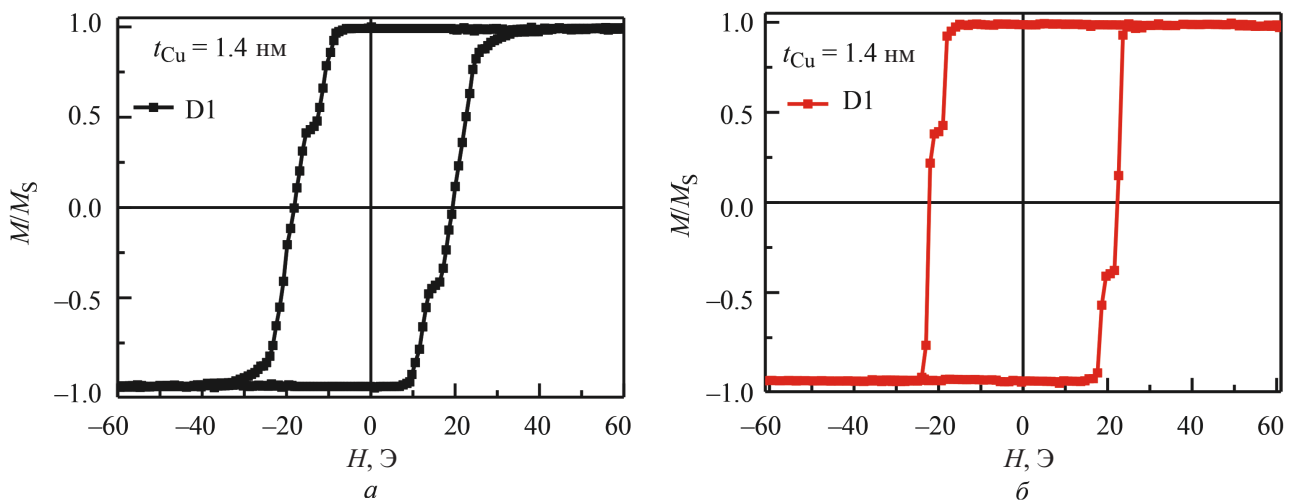


Рис. 4. Петли гистерезиса, полученные на магнитооптическом (а) и вибрационном (б) магнитометрах для образца Co/Cu/Co с $t_{Cu} = 1.4$ нм в магнитном поле, приложенном вдоль направления D1

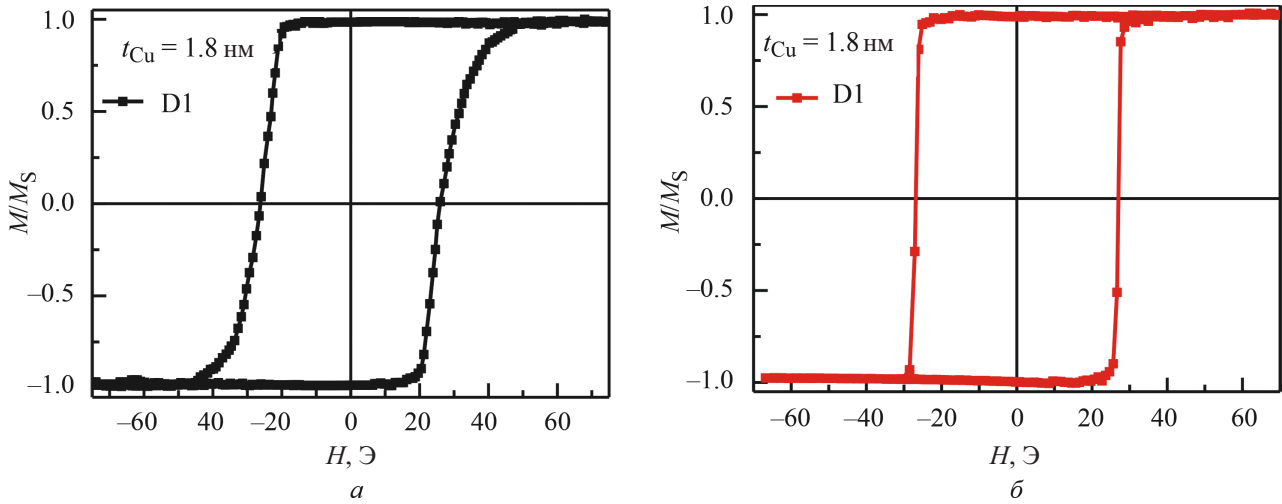


Рис. 5. Петли гистерезиса, полученные на магнитооптическом (а) и вибрационном (б) магнитометрах для образца Co/Cu/Co с $t_{\text{Cu}} = 1.8$ нм в магнитном поле, приложенном вдоль направления D1

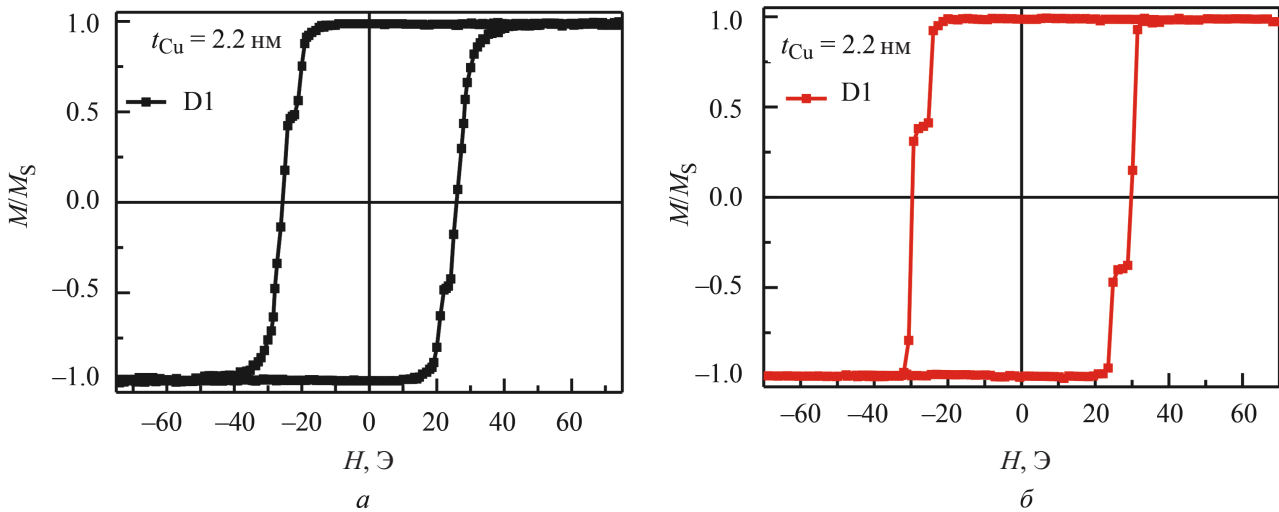


Рис. 6. Петли гистерезиса, полученные на магнитооптическом (а) и вибрационном (б) магнитометрах для образца Co/Cu/Co с $t_{\text{Cu}} = 2.2$ нм в магнитном поле, приложенном вдоль направления D1

Форма петель гистерезиса в поле, параллельном направлению D1, зависит от толщины немагнитного слоя. В частности, было обнаружено, что существуют трехслойные системы, характеризующиеся почти прямоугольными петлями гистерезиса (рис. 3, 5), и трехслойные системы с более сложной формой петель гистерезиса (рис. 4, 6). Значения H_S изучаемых образцов осциллируют по величине с изменением толщины медного слоя (рис. 7). Максимальные значения H_S наблюдаются для образцов с $t_{\text{Cu}} = 1.4$, 2.2 и 3.2 нм. При этих значениях t_{Cu} петли гистерезиса имеют двухступенчатую форму. Согласно расчету, выполненному К. А. Звездиным в работе [14], и экспериментальным результатам [6–11, 15–18] двухступенчатые и прямоугольные петли гистерезиса наблюдаются соответственно при наличии антипараллельной и параллельной ориентаций намагниченности в соседних магнитных слоях. Таким образом, полученные экспериментальные данные можно объяснить наличием обменного взаимодействия между ферромагнитными слоями через медную прослойку и его осциллирующим поведением с изменением

t_{Cu} — переход от ферромагнитного (Ф) к антиферромагнитному (АФ) взаимодействию.

При ферромагнитном обмене между магнитными слоями наблюдаются прямоугольные петли гистерезиса. В этом случае процессы перемагничивания трехслойных тонкопленочных структур аналогичны процессам перемагничивания тонких однослойных пленок в поле, параллельном ОЛН, т.е. осуществляются за счет необратимого роста зародышей перемагничивания.

В образцах с АФ-обменом между магнитными слоями компоненты намагниченности в пленках кобальта, параллельные ОЛН, при $H = 0$ антипараллельны, т.е. рассматриваемая тонкопленочная структура подобна одноосному антиферромагнетику. В этом случае поле насыщения H_S значительно больше, чем H_S , в образцах с ферромагнитным обменом, что обусловлено дополнительными затратами энергии на преодоление антиферромагнитного обмена между магнитными слоями.

Анализ данных, приведенных на рис. 7, показывает, что период осцилляций поля насыщения (Δ)

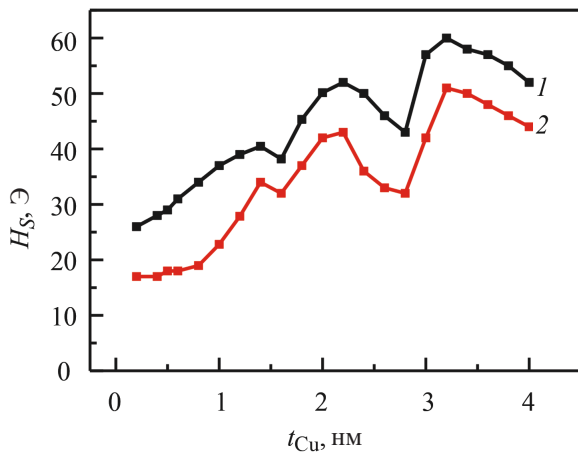


Рис. 7. Зависимости значений поля насыщения от толщины медного слоя, наблюдаемые для Co/Cu/Co-образцов: кривые 1, 2 получены с использованием петель гистерезиса, измеренных на магнитооптическом и вибрационном магнитометрах соответственно

порядка 1 нм. Следует отметить, что в упомянутых выше многослойных системах Co/Pt [15], Fe/Cr [16], Fe/Mo [17], Fe/Cu [18] период осцилляций H_S был также порядка 1 нм. Наблюдаемые осцилляции изначально объяснялись тем, что поляризация электронов проводимости немагнитного слоя, взаимодействующих с магнитными моментами магнитных металлов, является основным механизмом обмена между магнитными слоями, разделенными немагнитной прослойкой, т.е. реализуется косвенный обмен РККИ-типа. Вместе с тем согласно механизму обменного взаимодействия между магнитными слоями через немагнитный разделительный слой посредством РККИ-взаимодействия, период осцилляций Λ должен быть порядка π/κ_F [19–21], где κ_F — волновой вектор Ферми. Для большинства металлов π/κ_F порядка 0.3–0.4 нм. Обнаруженное значение Λ было больше, чем π/κ_F . Наличие более длинного периода осцилляций H_S в тонкопленочных системах с металлическими немагнитными прослойками было объяснено несколько позже влиянием квантовых размерных эффектов, проявляющихся в изменении электронной структуры ультратонкого магнитного слоя (появление так называемых Quantum Well States, QWS's) по сравнению с объемными образцами [22, 23]. В этом случае рассчитанное с учетом QWS's значение Λ было равно 1–1.2 нм.

Заключение

Исследованы магнитные свойства трехслойных Co/Cu/Co-образцов. Обнаружены осцилляционные зависимости поля насыщения с изменением толщины немагнитного медного слоя. Найденные зависимости $H_S(t_{Cu})$ объяснены наличием обменного взаимодействия между ферромагнитными слоями через

немагнитную прослойку и его осцилляционным поведением как функции t_{Cu} . Экспериментально найденный период осцилляций H_S ($\Lambda \sim 1$ нм) согласуется с расчетным значением Λ , полученным в теоретических работах, учитывающих квантовые размерные эффекты в ультратонких магнитных пленках, появляющихся в изменении электронной структуры пленки по сравнению с объемным образцом.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 15-02-02077).

Авторы выражают огромную благодарность А. В. Свалову и Г. В. Курляндской за предоставленные для проведения исследований образцы.

Список литературы

1. Parkin S.S.P., Li Z.G., Smith D.J. // Appl. Phys. Lett. 1991. **58**. P. 2710.
2. Parkin S.S.P., More N., Roche K.P. // Phys. Rev. Lett. **64**. P. 2304.
3. Coehoorn R. // Giant magnetoresistance and magnetic interactions in exchange-biased spin-valves // Handbook of Magnetic Materials / Ed. by K. H. J. Buschow. **15**. Elsevier, 2003. P. 1–197.
4. Svalov A.V., Aseguinolaza I.R., Garcia-Arribas A. et al. // IEEE Trans. Magn. 2010. **46**, N 2. P. 333.
5. Касаткин С.И., Васильева Н.П., Муравьев А.М. // Спинтронные магниторезистивные элементы и приборы на их основе. М.: ИПУ РАН, 2005.
6. Shalygina E.E., Shin Kyung-Ho // J. Magn. Magn. Mater. 2000. **220**. P. 167.
7. Shalygina E.E., Maximova G.V., Komarova M.A. et al. // Solid State Phenom. 2009. **162–163**. P. 253.
8. Shalygina E.E., Rojnovskaya A.A., Shalygin A.N. // Solid State Phenom. 2012. **190**. P. 914.
9. Shalygina E.E., Rojnovskaya A.A., Shalygin A.N. // Techn. Phys. Lett. 2011. **37**, N 20. P. 80.
10. Shalygina E.E., Gan'shina E.A., Kharlamova A.M. et al. // Solid State Phenom. 2015. **233**. P. 653.
11. Shalygina E., Svalov A., Kharlamova A. et al. // Japan. J. of Appl. Phys.. 2016. **55**. 07MF01.
12. <http://www.ntmdt.ru>
13. Chikazumi S. Physics of Magnetism. New York; London; Sydney: John Wiley & Sons, 2001.
14. Звездин К. // Физика твердого тела. 2000. **42**. С. 116.
15. Lin C.J., Gorman G.L., Lee C.H. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 1991. **93**. P. 194.
16. Wang Y., Levy P.M., Fry J.L. // Phys. Rev. Lett. 1990. **65**. P. 2732.
17. Brubaker M.E., Mattson J.E., Sowers C.H., Bader S.D. // Appl. Phys. Lett. 1991. **58**. P. 2306.
18. Bennett W.R., Schwarzscher W., Egelhoff W.F. // Phys. Rev. Lett. 1990. **65**. P. 3169.
19. Ruderman M.A., Kittel C. // Phys. Rev. 1954. **96**. P. 99.
20. Bruno P., Chappert C. // Phys. Rev. Lett. 1991. **67**. P. 1602.
21. Yafet Y. // Phys. Rev. B. 1987. **36**. P. 3948.
22. Stiles M.D. // Phys. Rev. B. 1993. **48**. P. 7238.
23. Bruno P.J. // Phys. Rev. B. 1995. **52**. P. 411.

The features of the structural and magnetic characteristics of low-dimensional thin-film systems based on cobalt and copper**E. E. Shalygina^a, A. V. Makarov, A. M. Kharlamova***Department of Magnetism, Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University.**Moscow 119991, Russia.**E-mail: ^ashal@magn.ru.*

The results of investigation of the structural and magnetic characteristics of Co/Cu/Co thin-film systems obtained by magnetron sputtering on glass substrates are presented. The thickness of the cobalt layer in all samples was 5 nm and the thickness of the copper layer was varied from 0.5 to 4 nm. The saturation field H_S of the studied samples was found to oscillate in magnitude with changes in the copper-layer thickness with a period on the order of 1 nm. The maximum values of H_S are observed for the thin-film systems with $t_{Cu} = 1.4, 2.2,$ and 3.2 nm. The hysteresis loops measured for these systems in a magnetic field applied along the easy magnetization axis of the samples have a two-stage shape, while for the samples with other values of t_{Cu} the hysteresis loops are rectangular. These data are explained by the presence of exchange coupling between the ferromagnetic layers through a copper spacer and its oscillating behavior with changing t_{Cu} .

Keywords: magnetic properties, exchange interaction, hysteresis loop, saturation field, thin-film magnetic systems.

PACS: 75.70.Ak, 75.75.-c.

Received 26 December 2016.

English version: *Moscow University Physics Bulletin*. 2018. **72**, No. 1. Pp. 112–117.

Сведения об авторах

1. Шалыгина Елена Евгеньевна — доктор физ.-мат. наук, гл. науч. сотрудник, профессор; тел.: (495) 939-24-35, e-mail: shal@magn.ru.
2. Макаров Андрей Владимирович — магистрант, тел.: (495) 939-24-35, e-mail: andrey6257@gmail.com.
3. Харламова Анна Михайловна — мл. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-24-35, e-mail: anna-h-m@mail.ru.