

13,01

## Влияние полярности напряжения смещения подложки на текстуру, микроструктуру и магнитные свойства пленок Ni, получаемых магнетронным распылением

© А.С. Джумалиев<sup>1,2</sup>, Ю.В. Никулин<sup>1,2</sup>, Ю.А. Филимонов<sup>1-3</sup>

<sup>1</sup> Саратовский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Саратов, Россия

<sup>2</sup> Саратовский государственный университет им. Н.Г. Чернышевского, Саратов, Россия

<sup>3</sup> Саратовский государственный технический университет им. Ю.А. Гагарина, Саратов, Россия

E-mail: yvnikulin@gmail.com

(Поступила в Редакцию 27 октября 2015 г.)

Для пленок Ni, получаемых магнетронным распылением при давлении рабочего газа  $P$ , соответствующем режиму пролета атомов распыленного материала мишени в области между мишенью и подложкой, близкому к бесстолкновительному, изучено влияние полярности напряжения смещения подложки  $U_s$  на микроструктуру, кристаллографическую текстуру и магнитные свойства пленок толщиной  $d \approx 15\text{--}420$  nm. Показано, что при  $U_s \approx -100$  V формируются пленки с текстурой Ni(111), микроструктура и магнитные параметры которых почти не меняются с толщиной. При  $U_s \approx +100$  V формируются пленки Ni(200), магнитные свойства и микроструктура которых существенно зависят от толщины  $d$ , что проявляется в наличии критической толщины  $d^* \approx 150$  nm, когда структура пленки по толщине становится неоднородной, петли перемагничивания изменяются от прямоугольных к закритическим и формируется полосовая доменная структура.

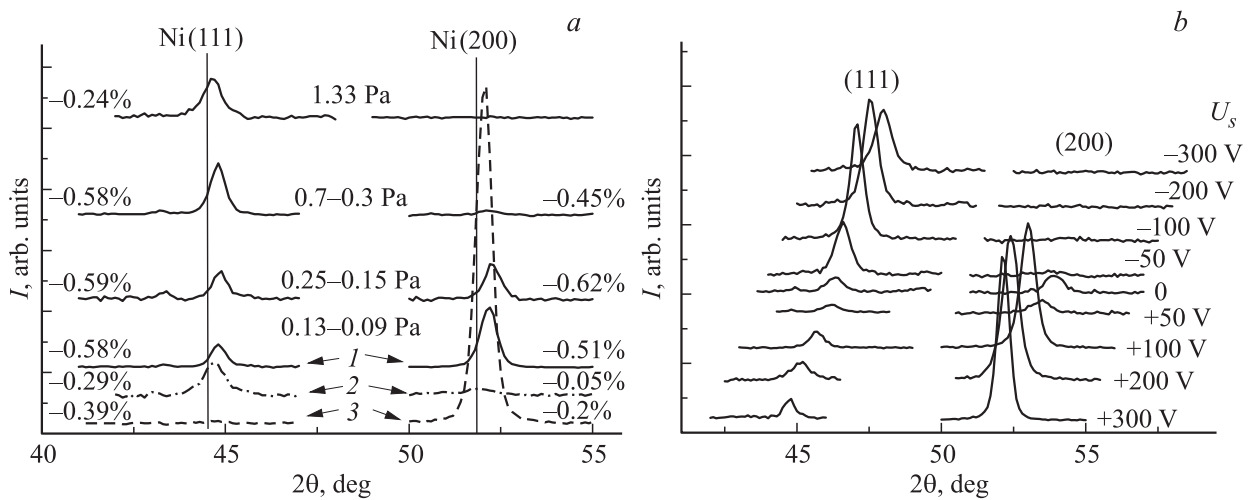
Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 16-37-60052).

### 1. Введение

Интерес к изучению свойств пленок никеля (Ni) сохраняется в связи с их использованием при разработке устройств на принципах спинтроники [1–4], магноники [5] и фооники [5–8], а также сенсоров на основе композитных мультиферроидных структур [9,10] и магниточувствительных микроэлектромеханических систем (magMEMS) [11]. При этом кристаллографическая ориентация, текстура и микроструктурное строение пленок Ni, оказывают значительное влияние на такие структурно-чувствительные магнитные параметры как поляризация электронов [12], поле анизотропии на границе с другими металлами [13,14], намагниченность насыщения  $4\pi M$ , ширина линии ферромагнитного резонанса  $\Delta H$ , коэффициент прямоугольности петли гистерезиса  $M_r/M_s$  и поле коэрцитивности  $H_c$  [14–18], а также на тип доменной структуры [19]. Кроме того, текстура пленок определяет их механические [20–22] и электрические [23] свойства, склонность к окислению [24,25], а также перспективу использования в качестве ориентирующего подслоя [26]. По этой причине методам получения текстурированных пленок и исследованию их свойств уделяется большое внимание [12–35]. В данной работе приводятся результаты исследования влияния полярности напряжения смещения  $U_s$  на подложке на кристаллографическую текстуру, микроструктурное строение и магнитные свойства пленок Ni, полученных

магнетронным распылением. Показано, что при величинах давления аргона  $P$ , при которых режим пролета атомов в области между мишенью и подложкой близок к бесстолкновительному, подача на подложку положительного или отрицательного  $U_s$  (относительно „земли“) приводит к формированию пленок с текстурой (200) или (111) соответственно. Приведены результаты исследования зависимости магнитных и микроструктурных параметров пленок Ni(111) и Ni(200) от толщины  $d$  в диапазоне  $d \approx 15\text{--}420$  nm.

Отметим, что влияние отрицательного напряжения смещения на свойства пленок Ni полученных магнетронным распылением на неориентирующих подложках, к которым также относятся подложки SiO<sub>2</sub>/Si, ранее рассматривалось в работах [20–23,27–30]. В этих работах отмечалось, что подача на подложку  $U_s < 0$  оказывает влияние на формирование текстуры (111) и микроструктурные параметры пленки. Однако, возможность получения пленок Ni с какой-либо текстурой отличной от (111), в том числе и пленок Ni(200) за счет изменения полярности напряжения смещения  $U_s$  показана не была. Последнее обстоятельство связано с тем, что в отсутствие ориентирующего влияния подложки, как правило, растут пленки с такой текстурой, которой соответствует минимальная энергия поверхности (Ni(111) < Ni(200) < Ni(110)) [35]. До сих пор пленки Ni(200) на аморфных подложках удавалось получать либо за счет осаждения пленок в присутствии ион-



**Рис. 1.** *a* — дифрактограммы пленок Ni толщиной 300 nm, полученных при  $P \approx 1.33-0.09$  Pa и  $U_s \approx 0$ . Кривыми 1–3 показаны дифрактограммы пленок, выращенных при  $P \approx 0.13-0.09$  Pa при комнатной температуре подложки  $T_s \approx 300$  K (кривая 1),  $T_s \approx 77$  K (кривая 2) и  $T_s \approx 550$  K (кривая 3); *b* — дифрактограммы пленок Ni толщиной  $d \approx 100$  nm, выращенных при давлении рабочего газа  $P \approx 0.2$  Pa и напряжении смещения на подложке в диапазоне от  $-300$  V до  $300$  V. Сплошными вертикальными линиями на рисунке (*a*) показаны положения эталонных дифракционных линий Ni(111) и Ni(200) из базы данных Международного Центра по дифракционным данным (JCPDS, карточка № 04-0850). В процентах указаны значения  $\Delta a$  изменения межплоскостного расстояния  $a$  относительно эталонного значения  $a_b$  ( $\Delta a = a - a_b/a_b$ ;  $\Delta a > 0$  соответствует увеличению межплоскостного расстояния,  $\Delta a < 0$  соответствует уменьшению межплоскостного расстояния).

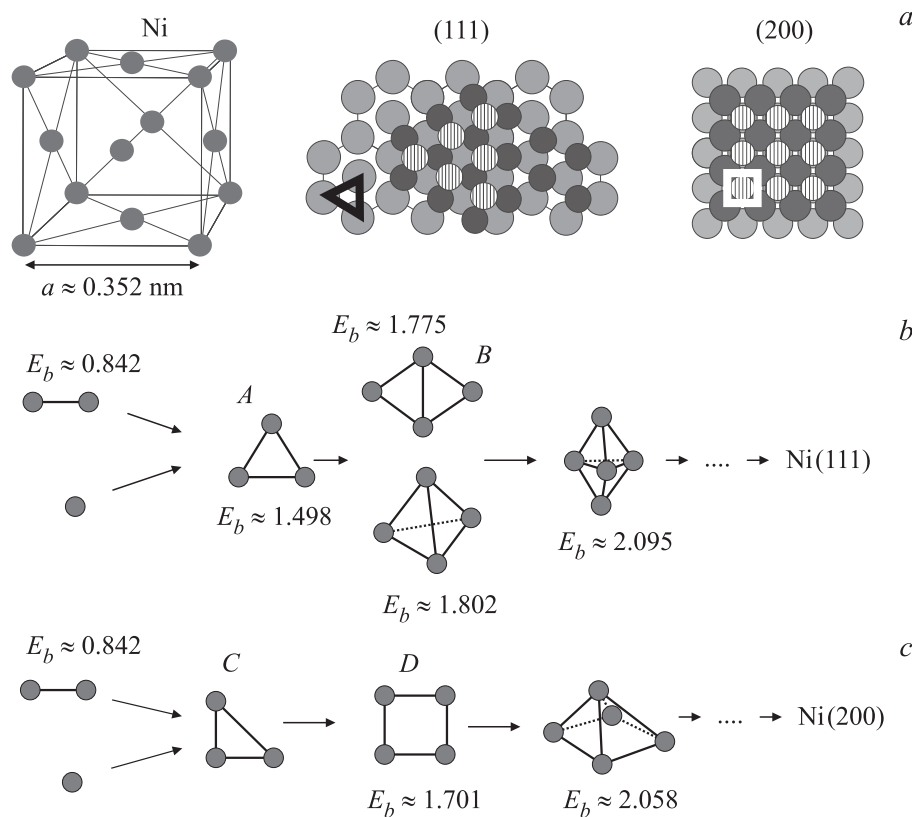
ной бомбардировки [33], либо за счет распыления при низком давлении рабочего газа [16]. В данной работе показана возможность перестройки текстуры с Ni(111) на Ni(200) за счет смены полярности напряжения смещения. Следует также отметить, что на сегодняшний день, почти не обсуждалась связь микроструктурного строения пленок Ni(200) и Ni(111), получаемых магнетронным распылением, с процессами перемагничивания, СВЧ магнитными параметрами и морфологией поверхности пленок. В данной работе будет показано, что учет такой связи позволяет объяснить ранее наблюдавшийся эффект перестройки доменной структуры в пленках Ni толщиной  $d$  большей некоторой критической толщины [16]. Кроме того, в литературе отсутствует сравнение магнитных параметров пленок Ni(111) и Ni(200), полученных методом магнетронного распыления. С учетом этого, в работе будет показано, что магнитные параметры пленок с текстурами (111) и (200), полученных при разной полярности  $U_s$ , заметно различаются. Также будет проведено сравнение параметров пленок Ni(111) полученных при разных значениях давления аргона  $P$  и напряжениях смещения подложки.

## 2. Формирование текстурированных пленок Ni(111) и Ni(200) и методы исследования

Осаждение пленок Ni осуществлялось с помощью планарной магнетронной распылительной системы на базе установки ВУП-5. Предельное остаточное давле-

ние в рабочей камере не превышало 0.2 mPa. Для напыления использовались мишени из никеля чистотой 99.95% (Williams) и аргон марки ОЧ (99.998%). Расстояние между мишенью и подложкой составляло  $L \approx 75$  mm. На мишень подавалось напряжение величиной  $U \approx -480$  V. В качестве подложек использовались пластины Si(100) с термически окисленным слоем SiO<sub>2</sub> толщиной 300 nm и среднеквадратичной шероховатостью поверхности  $\sigma \approx 0.3$  nm. Подложки подвергались очистке в ацетоне с одновременной обработкой в ультразвуке и, непосредственно перед напылением, термическому отжигу при  $T_a \approx 650$  K в течение 30 min.

Имея целью исследование влияния полярности потенциала смещения подложки на текстуру пленок, прежде всего был определен интервал давлений рабочего газа  $P$ , при котором это влияние наиболее заметно. При этом мы учитывали, что при нулевом напряжении смещения  $U_s \approx 0$  (подложка „заземлена“) понижение  $P$  способствует формированию текстуры (200) [16,36], которая при достаточно низких давлениях ( $P \approx 0.13-0.09$  Pa) начинает доминировать. На рис. 1, *a* представлены дифрактограммы пленок Ni толщиной  $d \approx 300$  nm, осажденных при  $U_s \approx 0$  и давлении аргона  $P \approx 1.33-0.09$  Pa ( $v \approx 24-17$  nm/min). Дифрактограммы получались с помощью дифрактометра ДРОН-4 с фокусировкой по плоскому образцу в геометрии Брэгга–Брентано (схема  $\Theta - 2\Theta$ , Cu-K $\alpha$ -излучение,  $\lambda \approx 0.15418$  nm). Величина межплоскостного расстояния  $a_{[hkl]}$  вдоль кристаллографической оси  $[hkl]$ , совпадающей с направлением нормали к пленке, определялась по формуле Брэгга–Вульфа  $2 \cdot a_{[hkl]} \cdot \sin \Theta = n \cdot \lambda$ ,



**Рис. 2.** *a* — схематическое изображение гранцентрированной кубической (гкц) решетки Ni и кристаллографических плоскостей Ni(111) и Ni(200); *b, c* — схематическое изображение этапов образования кластеров, рост которых приводит к формированию текстуры Ni(111) — *b* и Ni(200) *c*. Рядом с изображениями кластеров указаны энергии связи  $E_b$  (eV/atom) [38].

где  $\Theta$  — угол падения излучения, отсчитываемый от плоскости пленки,  $n = 1$ . Из рисунка видно, что пленки, выращенные при  $P \approx 1.33\text{--}0.3$  Па формируются с текстурой (111). В области давлений  $P \approx 0.25\text{--}0.15$  Па пленка формируется без выраженного текстурирования — на дифрактограмме наблюдаются близкие по интенсивности дифракционные линии Ni(111) и Ni(200). Снижение давления до  $P \approx 0.13\text{--}0.09$  Па приводит к формированию в пленке текстуры Ni(200).

Изменение текстуры пленок при снижении  $P$ , показанное на рис. 1, *a*, обусловлено энергетическими процессами, происходящими на поверхности подложки и в пространстве между распыляемой мишенью и подложкой [16,26,36]. Эти энергетические процессы, связанные с потерей энергии атомами распыленного материала из-за столкновений с атомами и ионами рабочего газа при движении к подложке, оказывают влияние на увеличение миграционной способности (МС) адатомов по подложке при снижении давления рабочего газа. Так, среднее расстояние, которое атом Ni при  $P \approx 1.33$  Па пролетает в пространстве между подложкой и мишенью до столкновения с атомом рабочего газа, составляет около 5 мм, тогда как при  $P \approx 0.09$  Па около 55 мм. Поэтому увеличение  $P$  до 1.33 Па приводит к тому, что каждый из распыленных атомов Ni испытывает около 15 столкновений с атомами и ионами аргона в проме-

жутке между мишенью и подложкой и поэтому имеет меньшую энергию при подлете к подложке, чем при низком  $P$ , когда происходит только одно столкновение. Уменьшение энергии атомов Ni приводит к снижению их способности мигрировать по поверхности подложки и способствует образованию зародышей меньшего размера, чем при низком давлении аргона [37].

Стадии формирования кристаллических плоскостей Ni(200) и Ni(111) схематически показаны на рис. 2. При низкой МС адатомов Ni на подложке ( $P \approx 1.33\text{--}0.3$  Па) наиболее устойчивым из зародышей, образование и рост которого приводит к формированию кристаллитов Ni(111) (рис. 2, *a, b*), является кластер A из трех атомов, на каждый атом в котором приходится по 2 одинаковые связи. В процессе роста кластер A может распадаться или присоединить к себе еще один атом и стать кластером из четырех атомов, расположенных в виде ромба или в виде пирамиды (кластеры B), увеличив тем самым свою энергию связи [38]. Дальнейшее увеличение размеров кластеров B приведет к увеличению их энергии связи и стабильности кластеров и, в итоге, к образованию кристаллитов Ni(111).

При высокой МС адатомов на подложке ( $P \approx 0.13\text{--}0.09$  Па) одним из наиболее устойчивых кластеров малого размера, формирование и рост которого может привести к образованию кристаллитов

Ni(200), является кластер  $D$ . Критическим зародышем для него является кластер  $C$  из трех атомов (рис. 2,  $d$ ), в котором два атома имеют неравные связи. Такой кластер является гораздо менее устойчивым, с точки зрения энергии связи, по сравнению с кластером  $A$  [38]. После образования он либо распадается на димер и мономер, либо перестраивается в кластер  $A$ , либо, до того, как распадется, может успеть присоединить к себе один адатом и стать устойчивым кластером  $D$ , дальнейший рост которого приведет к формированию кристаллитов Ni(200). Но, для того чтобы успеть до распада присоединить к себе атом, необходимо, чтобы адатомы на поверхности подложки двигались быстро (высокая МС). Поэтому, в условиях низкой МС ( $P \approx 1.33-0.3$  Па) кластеры  $D$  просто не успевают зародиться, и в пленке формируется только кристаллическая фаза Ni(111). В качестве подтверждения данного предположения на рис. 1,  $a$  приведены дифрактограммы пленок, осажденных при  $P \approx 0.09$  Па и  $T_s \approx 77$  К (низкая миграционная способность) и  $P \approx 0.09$  Па и  $T_s \approx 550$  К (высокая миграционная способность адатомов). Из рисунка видно, что при низкой МС в пленке доминирует кристаллическая фаза Ni(111), тогда как при высокой МС формируется хорошо текстурированная пленка Ni(200).

На рис. 1,  $b$  показано поведение текстуры пленок Ni толщиной  $d \approx 100$  нм в области переходных давлений  $P \approx 0.2$  Па в зависимости от полярности напряжения смещения  $U_s$ . Видно, что при  $U_s < 0$  формируются пленки Ni(111), тогда как при  $U_s > 0$  в пленках доминирует текстура Ni(200). Такое поведение текстуры пленок следует связать с тем, что при  $P \approx 0.25-0.09$  Па подача напряжения смещения разной полярности способна изменить миграционную способность адатомов на подложке, и, как следствие, существенно изменить кинетику формирования кристаллических плоскостей, показанную на рис. 2. Действительно, при  $U_s < 0$  формирование пленки происходит под деструктивным влиянием ионной бомбардировки на стадии зародышеобразования. В результате бомбардировки имеется постоянная конкуренция между процессами объединения адатомов в кластеры типа  $A-D$  (рис. 2) и процессами разрушения кластеров  $A-D$  на димеры и мономеры под действием бомбардировки ионами аргона. В результате такой конкуренции адатомы никеля либо вообще не успевают объединяться в кластеры и формируют аморфную часть пленки, либо объединяются в кластеры типа  $A$ , которые обладают большей скоростью образования [37], большей энергией связи по сравнению с кластерами типа  $C$  и  $D$  [38] и поэтому труднее разрушаются под действием ионной бомбардировки. Увеличение размеров кластеров типа  $A$  и  $B$  в процессе роста пленки приводит к формированию в ней кристаллической фазы Ni(111). Наоборот, при  $U_s > 0$  бомбардировка растущей пленки ионами аргона отсутствует. При этом существенно возрастает ток электронов через подложку, что приводит к ее нагреву до  $T_s \approx 430-450$  К и способствует формированию пленок Ni(200) аналогично тому, как это происходит в случае

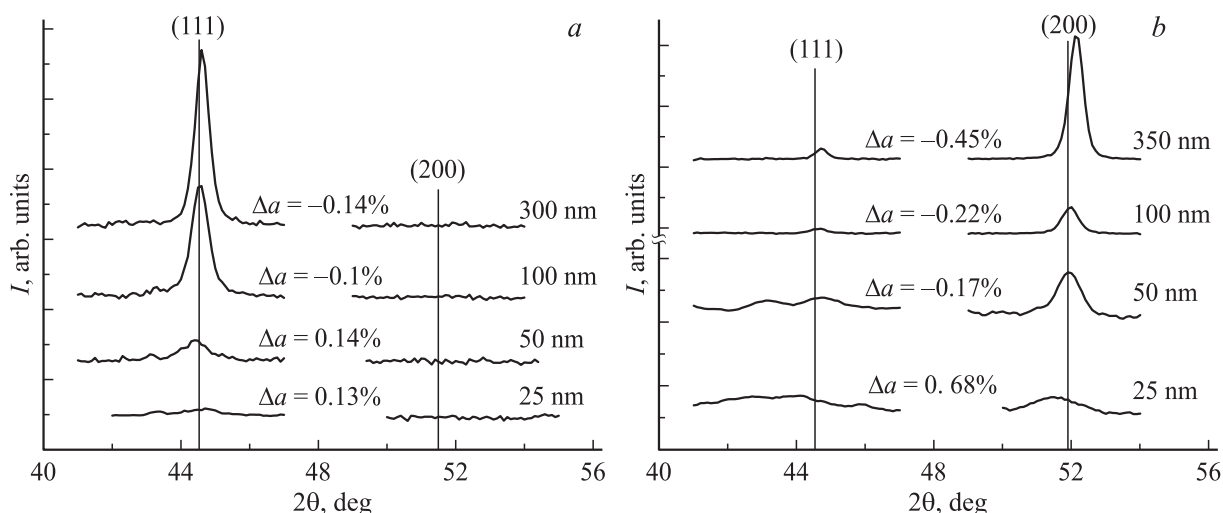
термического нагрева — см. дифрактограмму на рис. 1,  $a$  для пленки, осажденной на подложку при  $T_s \approx 550$  К.

С учетом указанного выше для исследования влияния полярности напряжения смещения подложки на структурные и магнитные свойства пленок Ni(111) и Ni(200) были получены 2 серии пленок толщиной 15–420 нм при  $P \approx 0.2$  Па и  $T_s \approx 300$  К. При этом в одном случае на держатель подложек подавалось напряжение смещения относительно земли  $U_s \approx -100$  В ( $I_s \approx 0$ ) (серия № 1) и в другом случае  $U_s \approx 100$  В ( $I_s \approx 130$  мА) (серия № 2). Скорость напыления составляла  $v \approx 17$  нм/мин ( $U_s \approx -100$  В) и  $v \approx 25$  нм/мин ( $U_s \approx 100$  В). Выращенные пленки не покрывались защитным покрытием перед извлечением на атмосферу.

Морфология поверхности выращенных пленок Ni(111) и Ni(200) исследовалась методом сканирующей-туннельной микроскопии (СТМ) (Solver P-47, NT-MDT). Доменная структура пленок исследовалась методом магнитно-силовой микроскопии (МСМ) (Solver P-47, NT-MDT). Микроструктура пленок изучалась методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) (Auriga, Carl Zeiss). Толщина пленок определялась методом профилометрии (Dectak 150, Veeco) с точностью 5%. Эффективная намагниченность насыщения  $4\pi M$  и ширина линии ферромагнитного резонанса  $\Delta H$  определялись методом ферромагнитного резонанса (ФМР) на частоте 9.9 GHz при комнатной температуре в касательной геометрии намагничивания аналогично [39]. Петли перемагничивания получались методом вибромагнитометрии (ВМ) при комнатной температуре в касательной к поверхности пленки геометрии намагничивания.

### 3. Структурные свойства

Характер изменения дифрактограмм при изменении толщины пленки  $d$ , а также характер микроструктурного строения пленок Ni(111) (серия № 1) и Ni(200) (серия № 2) показан на рис. 3 и 4. На рис. 4 для сравнения также приведены изображения микроструктурного строения пленок Ni, полученных при значениях  $P \approx 1.33-0.3$  Па,  $U_s \approx 0$  (текстура Ni(111) (рис. 4,  $a1$ )) и  $P \approx 0.25-0.2$  Па,  $U_s \approx 0$ , текстура Ni(111)/Ni(200) (рис. 4,  $a2$ ). Отметим, что пленки, осаждаемые при  $P \approx 1.33-0.3$  Па, формируются с текстурой (111), обладают столбчатой микроструктурой и имеют высокую пористость (рис. 4,  $a1, b1$ ). В области давлений  $P \approx 0.25-0.2$  Па пленка формируется без выраженного текстурирования и при этом имеет переходный тип микроструктурного строения, для которого характерно изменение микроструктуры от квазиоднородной к квазистолбчатой при критической толщине  $d^*$ . Снижение давления до  $P \approx 0.13-0.09$  Па приводит к значительному улучшению текстуры Ni(200), при этом переходный тип микроструктурного строения становится более выраженным.



**Рис. 3.** *a, b* — дифрактограммы пленок Ni толщиной  $d \approx 25\text{--}350$  nm, выращенных при давлении рабочего газа  $P \approx 0.2$  Pa и напряжении смещения на подложке (*a*)  $U_s \approx 100$  V (текстура Ni(111)) и (*b*)  $U_s \approx 100$  V (текстура Ni(200)). Сплошными вертикальными линиями на рисунках (*a–b*) показаны положения эталонных дифракционных линий Ni(111) и Ni(200) из базы данных Международного вентра по дифракционным данным (JCPDS, карточка № 04-0850).

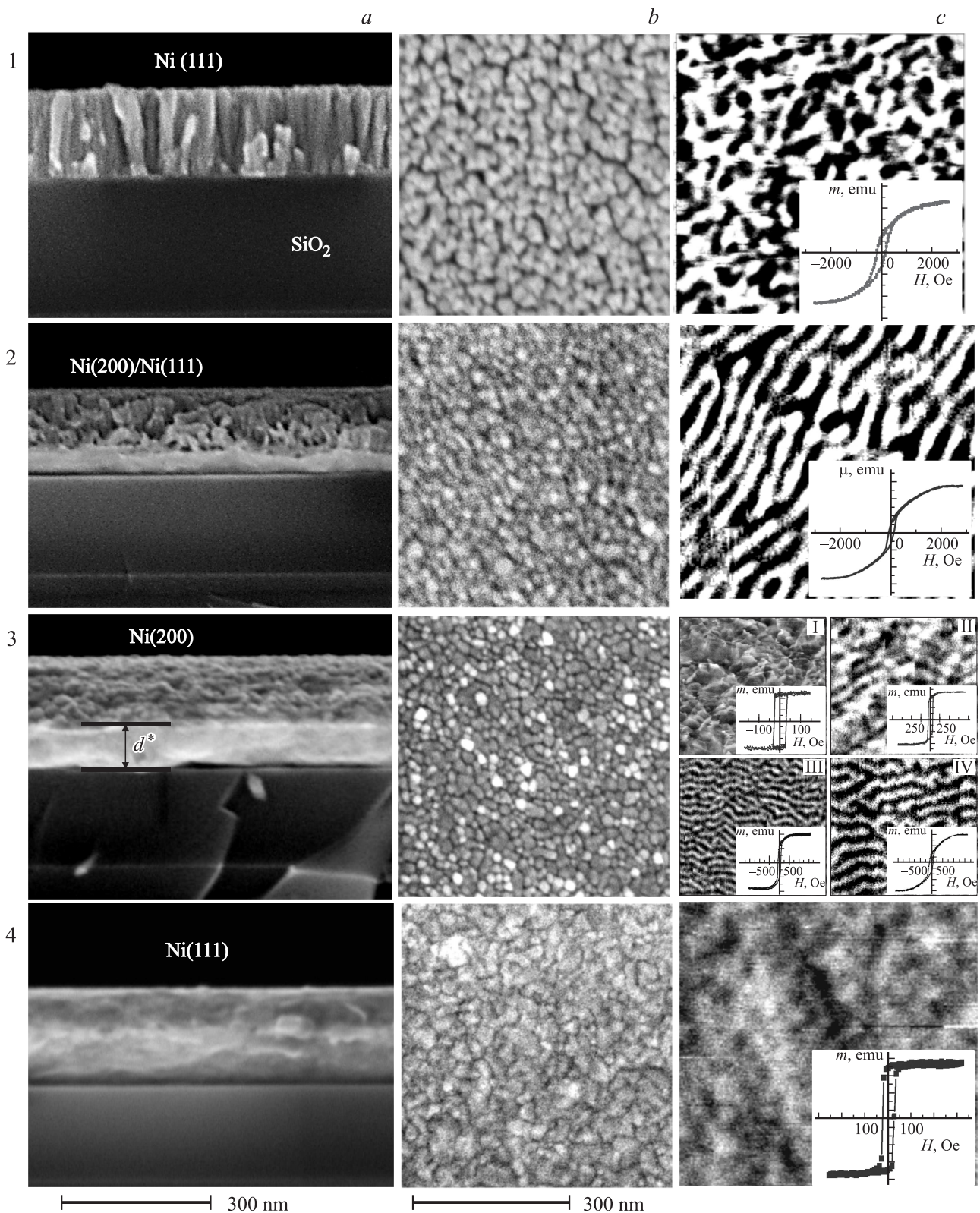
На рис. 3, *a, b* представлены дифрактограммы пленок толщиной  $d \approx 25\text{--}350$  nm, выращенных при  $P \approx 0.2$  Pa на подложках, к которым во время осаждения пленки было приложено напряжение смещения различной полярности:  $U_s \approx 100$  V ( $I_s \approx 130$  mA) и  $U_s \approx -100$  V ( $I_s \approx 0$ ). При выбранных ростовых условиях осаждение пленок при  $U_s \approx 100$  V приводит к формированию текстурированных пленок Ni(200) с переходным типом микроструктурного строения, тогда как при  $U_s \approx -100$  V формируются пленки Ni(111) с квазиоднородной структурой (рис. 4, *a3, a4*). Из дифрактограмм видно, что уже при толщине  $d \approx 25$  nm в пленках присутствует кристаллическая фаза и пленки являются текстурированными. При этом, как было показано в [14] малые значения интенсивности дифракционной линии и ее большая ширина для пленок толщиной  $d < 50$  nm свидетельствуют о высоком содержании аморфной фазы. С ростом толщины пленки Ni(200) происходит увеличение степени текстурированности пленки и размера зерен, о чем свидетельствует рост отношения интенсивности дифракционной линии  $I_{(200)}$  к  $I_{(111)}$  с 1.2 до 10 и уменьшение ширины дифракционных линий Ni(111) и Ni(200). Следует отметить, что для пленок, выращенных при  $U_s \approx 100$  V, наряду с дифракционной линией Ni(200) наблюдается дифракционная линия Ni(111), тогда как для пленок, выращенных при напряжении смещения  $U_s \approx -100$  V на дифрактограммах присутствует только линия Ni(111). Сосуществование двух кристаллических фаз в пленках Ni(200) обуславливает их более низкую кристалличность по сравнению с пленками Ni(111).

Необходимо отметить, что с ростом толщины пленки происходит увеличение деформации кристаллической структуры, которое проявляется в уменьшении межплоскостного расстояния  $a$  (рис. 3, *a, b*). При тол-

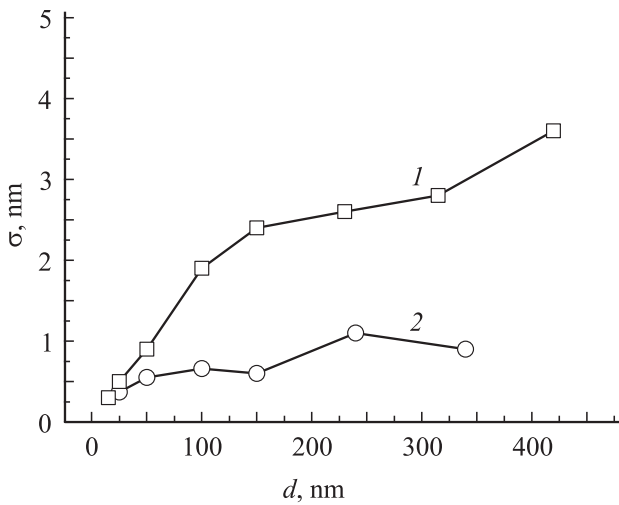
щине 25 nm для пленок с обеими текстурами межплоскостное расстояние  $a$  увеличено по сравнению со значением для порошкового эталона  $a_b$  (JCPDS), причем для пленок с текстурой (200) величина  $\Delta a = a - a_b/a_b$  достигает  $\Delta a \approx 0.68\%$ . С ростом толщины пленки межплоскостное расстояние проявляет тенденцию к уменьшению для пленок с обеими текстурами. При этом для пленок Ni(200) при  $d \approx 350$  nm значения  $\Delta a \approx -0.45\%$  почти в 3 раза превышают значения  $\Delta a \approx -0.14\%$  для пленок Ni(111). Большие значения  $\Delta a$  и соответственно большая деформация кристаллической структуры пленок Ni(200) связаны с различием значений модуля Юнга  $Y$  для направлений  $\langle 100 \rangle$  и  $\langle 111 \rangle$ . Для объемного никеля они составляют  $Y_{[100]} \approx 121$  GPa и  $Y_{[111]} \approx 262$  GPa [40]. Меньшие значения  $Y$  в направлении  $\langle 100 \rangle$  позволяют кристаллитам Ni(200) легче растягиваться или сжиматься по сравнению с кристаллитами Ni(111), что, в конечном счете, способствует минимизации упругих напряжений в пленке, снижению ее полной энергии и стабилизации кристаллической фазы Ni(200).

Различие микроструктурного строения текстурированных пленок Ni(111) ( $U_s \approx -100$  V) и Ni(200) ( $U_s \approx 100$  V) проявляется в зависимости среднеквадратичной шероховатости поверхности  $\sigma$  от толщины пленки  $d$  (рис. 5). Из рис. 5 видно, что для пленок Ni(111) в диапазоне толщин  $d \approx 25\text{--}350$  nm шероховатость поверхности изменяется в пределах  $\sigma \approx 0.25\text{--}0.9$  nm, тогда как для пленок Ni(200) шероховатость увеличивается с 0.25 до 3.5 nm. Большие значения  $\sigma$  пленок Ni(200) могут быть связаны с различием в величине энергии активации поверхностной диффузии адатомов по кристаллографическим плоскостям (111) и (200) [41]. Так, для плоскости (200) энергия активации поверхностной диффузии составляет  $E_d \approx 0.59$  eV, что почти в





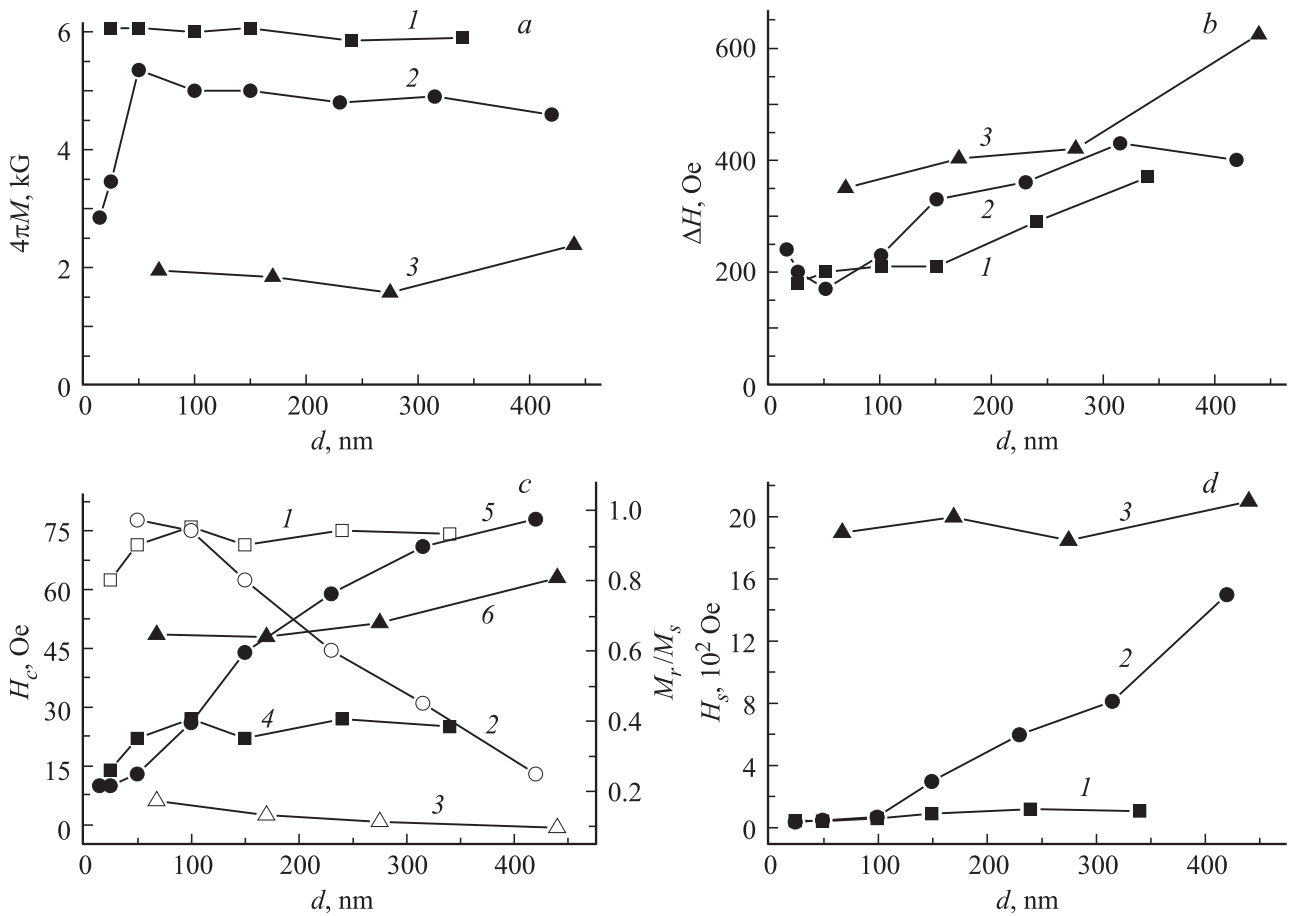
**Рис. 4.** Типичные СЭМ-изображения поперечного сечения (a), поверхности (b) и МСМ-изображения (c) пленок Ni толщиной 300 nm, выращенных при  $T_s \approx 300$  K при различном  $P$  и  $U_s$ : (1)  $P \approx 1.33-0.3$  Pa,  $U_s \approx 0$  (текстура Ni(111)); (2)  $P \approx 0.25-0.2$  Pa,  $U_s \approx 0$ , текстура Ni(111)/Ni(200); (3)  $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx +100$  V (текстура Ni(200)); (4)  $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx -100$  V (текстура Ni(111)). Масштаб для колонок (a) и (b) — 300 nm. Размер МСМ-изображений —  $5 \times 5 \mu\text{m}$ . Пояснение — на рис. 3 (c) приведены МСМ-изображения пленок Ni(200) ( $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx 100$  V) различных толщин: (I)  $d \approx 40$  nm, (II)  $d^* \approx 150$  nm, (III)  $d \approx 250$  nm, (IV)  $d \approx 300$  nm. На вставках МСМ-изображений приведены петли гистерезиса, полученные для пленок соответствующей толщины.



**Рис. 5.** Зависимость среднеквадратичной шероховатости поверхности  $\sigma$  от толщины  $d$  для пленок Ni(200) ( $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx +100$  V) — (кривая 1) и Ni(111) ( $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx -100$  V) — (кривая 2).

3 раза больше, чем  $E_d \approx 0.22$  eV для плоскости Ni(111). Поэтому, атомы Ni, попадающие на кристаллит с ориентацией (200), имеют меньшую способность к миграции по его поверхности, в результате чего скорость роста кристаллита Ni(200) в направлении, перпендикулярном плоскости пленки, превышает скорость роста в плоскости пленки. В итоге такое трехмерное разрастание кристаллитов в совокупности с эффектом самозатенения приводит к росту шероховатости поверхности пленки при увеличении толщины пленки  $d$ .

Различие энергии активации поверхностной диффузии адатомов по кристаллографическим плоскостям (111) и (200) позволяет объяснить поведение зависимости  $\sigma(d)$  для пленок Ni(200) и Ni(111). В области толщин  $d < 25$  nm шероховатость поверхности  $\sigma$  пленок, выращенных при напряжении смещения  $U_s \approx -100$  V (Ni(111)) и  $U_s \approx 100$  V (Ni(200)) на подложке, имеет близкие значения  $\sigma \approx 0.3-0.6$  nm. Близкие значения  $\sigma$  при этих толщинах обусловлены значительным содержанием аморфной фазы в таких пленках [14]. Поэтому



**Рис. 6.** Зависимости: *a* — эффективной намагниченности насыщения  $4\pi M_s$ , *b* — ширины линии ФМР  $\Delta H$ , *c* — коэффициента прямоугольности петли гистерезиса  $M_r/M_s$  (кривые 1, 2, 3) и коэрцитивной силы  $H_c$  (кривые 4, 5, 6), *d* — поля насыщения  $H_s$  от толщины пленок  $d$ . Для рисунков (*a-d*): (кривые 1, 4) — пленки Ni(111) ( $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx -100$  V); (кривые 2, 5) — пленки Ni(200) ( $P \approx 0.2$  Pa,  $U_s \approx +100$  V); (кривые 3, 6) — пленки Ni(111) ( $P \approx 1.33$  Pa,  $U_s \approx 0$  V).

при  $d < 25$  nm атомы никеля, попадающие на подложку и растущую на ней пленку, „не чувствуют“ различия в кристаллографической ориентации кристаллитов пленки. Из-за этого различие в значениях энергий активации поверхностной диффузии для таких пленок проявляется незначительно. Увеличение толщины пленки до  $d \approx 50$  nm приводит к заметному улучшению ее текстуры (рис. 3, *a, b*). Поэтому с толщины  $d \approx 50$  nm адатомы „чувствуют“ различие в кристаллографической ориентации кристаллитов и миграционная способность адатомов начинает определяться текстурой пленки.

#### 4. Магнитные свойства

На рис. 6, *a, b* представлены зависимости эффективной намагниченности насыщения  $4\pi M$  и ширины линии ФМР  $\Delta H$  от толщины  $d$  для пленок Ni(111) (серия № 1) и Ni(200) (серия № 2). Здесь же для сравнения приведены результаты измерения параметров для пленок Ni(111), полученных при  $P \approx 1.33$  Pa и  $U_s \approx 0$ . Из рисунка видно, что значения  $4\pi M$  пленок Ni(111) толщиной  $d \approx 25-350$  nm с точностью 1–3% соответствуют значениям  $4\pi M \approx 6.07$  kG объемного никеля [42]. Высокие значения намагниченности пленок Ni(111) могут быть связаны как с высокой кристаллическостью [43], малым количеством дефектов и примесей, так и с высокой структурной однородностью и низкой пористостью пленок Ni(111), осаждаемых при отрицательном напряжении смещения [23]. Пленки Ni(200) в диапазоне толщин  $d \approx 50-420$  nm имеют значения  $4\pi M$  на 10–20% меньшие, чем пленки с текстурой (111). Кроме того, для пленок Ni(200) происходит резкое снижение намагниченности при  $d < 50$  nm, которое может быть обусловлено их меньшей структурной однородностью и меньшей кристаллическостью [43,14]. Как видно из дифрактограмм на рис. 1, *a, 3, b* в пленках Ni(200) присутствуют две кристаллические фазы с кристаллографическими ориентациями (200) и (111). Присутствие двух кристаллических фаз всегда связано с наличием переходных областей между ними, обладающих либо аморфной структурой, либо структурой с малыми значениями координационного числа. Меньшие значения координационного числа кристаллитов (200) и границ зерен, по сравнению с кристаллитами (111) также могут приводить к снижению намагниченности всей пленки [14,43]. Необходимо отметить, что вклад в снижение эффективной намагниченности насыщения на 10–20% для пленок Ni(200) толщиной  $d > 150$  nm с неоднородной структурой может давать одноосная перпендикулярная магнитная анизотропия, вызванная как магнитострикционным эффектом [16], так и анизотропией формы кристаллитов для толщин пленки  $d > d^* \approx 150$  nm (рис. 4, *a3, a2*).

Как видно из рис. 6, *b* минимальные значения зависимости  $\Delta H(d)$  для пленок Ni(200) и Ni(111) достигаются при различных толщинах, определяемых текстурой и микроструктурой пленок. Минимальные зна-

чения  $\Delta H \approx 170$  Oe пленок Ni(200) достигаются при  $d \approx 50$  nm, тогда как для пленок Ni(111) минимальное значение  $\Delta H$  Oe достигается при  $d \approx 25$  nm. В целом, в области толщин  $d \approx 15-100$  nm, значения  $\Delta H$  для текстурированных пленок Ni(200) и Ni(111) совпадают с точностью 5–10%. В области толщин  $d > 100$  nm наблюдается рост значений  $\Delta H$  для обеих текстур, при этом пленки Ni(200) имеют на 15–40% большие значения  $\Delta H$ , что может быть обусловлено большей структурной неоднородностью таких пленок, по сравнению с пленками Ni(111) (рис. 4). Рост значений  $\Delta H$  для пленок Ni(200) при  $d < 50$  nm может быть вызван сильной неоднородностью распределения внутренних локальных эффективных полей по объему пленки за счет высокого содержания аморфной фазы в пленке, высоким значением приведенной шероховатости поверхности пленки  $\sigma/d$ , а также разбросом формы и размеров зерен. Увеличение значений  $\Delta H$  для пленок Ni(200) и Ni(111) при  $d > 90$  nm может объясняться ростом эффективности механизма двухмагнонного рассеяния [44] за счет увеличения размера зерна пленки, а также влиянием скин-слоя, наличие которого может приводить к существенной неоднородности структуры СВЧ поля и, следовательно, к дополнительному вкладу в  $\Delta H$ .

Отметим, что магнитные параметры ( $M_r/M_s$ ,  $H_c$ ,  $H_s$ ,  $\Delta H$ ,  $4\pi M$ ) пленок Ni(111), полученных при  $P \approx 1.33$  Pa,  $T_s \approx 300$  K и  $U_s \approx 0$  заметно хуже (рис. 6 — кривые 3, 6), чем для пленок той же текстуры (111), но полученных при  $P \approx 0.2$  Pa,  $T_s \approx 300$  K и  $U_s \approx -100$  V (рис. 6 — кривые 1, 4). Очевидно, что причина заключается в существенном различии структурного строения пленок, как это можно видеть из сравнения рис. 4, *a1* и 4, *a4*.

На рис. 6, *c* и 6, *d* представлены зависимости коэрцитивной силы  $H_c$ , коэффициента прямоугольности петли гистерезиса  $M_r/M_s$  и поля насыщения  $H_s$  от толщины пленки  $d$ . Для пленок Ni(200) характер петли гистерезиса меняется с ростом толщины пленки. При толщинах пленки больше критической толщины  $d > d^* \approx 150$  nm форма петли гистерезиса изменяется с прямоугольной на закритическую (рис. 4, *c3*), при этом величина коэффициента прямоугольности  $M_r/M_s$  уменьшается с 0.85–0.97 до 0.25 (рис. 6, *c*, кривая 2). Изменение формы петли гистерезиса для пленок Ni(200) с увеличением толщины пленки до 200–420 nm сопровождается ростом коэрцитивной силы  $H_c$  с 10 до 80 Oe и поля насыщения  $H_s$  с 40 до 1500 Oe. Рост значений  $H_c$  и  $H_s$  в области критической толщины  $d^*$  может быть обусловлен изменением микроструктуры пленки с квазиоднородной на квазистолбчатую (рис. 4), а также увеличением размеров кристаллитов и шероховатости поверхности пленки. Рост значений поля насыщения до  $H_s \approx 1500$  Oe с ростом толщины пленок Ni(200) выше критической отражает увеличение поля нормальной одноосной анизотропии  $H_u$ , которое можно связать с полем насыщения  $H_s$  соотношением [45]

$$H_s = 2H_u.$$



Появление закритической петли гистерезиса пленок Ni(200) сопровождается формированием в пленке полосовой доменной структуры (рис. 4, *c*), присутствие которой является показателем наличия в пленке перпендикулярной магнитной анизотропии (ПМА) [45,46]. Как уже отмечалось ранее, вклад в формирование ПМА для таких пленок может быть связан как с изменением микроструктурного строения пленки с квазиоднородной на квазистолбчатую при  $d \approx d^*$ , так и может быть обусловлен магнитоэлектрическим эффектом [16,45] за счет роста упругих деформаций кристаллической структуры пленок ( $\Delta a \approx -0.45\%$ ) (рис. 3, *b*).

Пленки Ni(111), выращенные при  $U_s \approx -100$  В толщиной  $d \approx 25-350$  нм, имеют петли гистерезиса с высоким значением коэффициента прямоугловности ( $M_r/M_s \approx 0.85-0.97$ ) аналогичные представленным на рис. 4, *c*. С ростом толщины для пленок Ni(111) наблюдается небольшой рост коэрцитивной силы  $H_c$  с 10 до 25 Ое и поля насыщения с 45 до 110 Ое (рис. 6, *c, d*), при этом петля гистерезиса остается прямоугольной, а величина отношения  $M_r/M_s$  составляет  $\approx 0.85-0.97$ . Отсутствие закритических петель гистерезиса в диапазоне толщин  $d \approx 25-350$  нм для таких пленок обусловлено неизменностью микроструктурного строения пленки, а также малыми значениями упругих деформаций кристаллической структуры ( $\Delta a < -0.15\%$ ) (рис. 3, *a*).

## 5. Заключение

Для пленок Ni толщиной  $d \approx 15-420$  нм, полученных магнетронным распылением на подложках SiO<sub>2</sub>/Si в области низких давлений рабочего газа ( $P \approx 0.25-0.09$  Па) установлено, что при отрицательном напряжении смещения на подложке  $U_s \approx -100$  В формируются текстурированные пленки Ni(111) с квазиоднородной микроструктурой, тогда как при положительном напряжении смещения  $U_s \approx 100$  В формируются текстурированные пленки Ni(200) с переходным типом микроструктурного строения, для которого характерно изменение микроструктуры от квазиоднородной к столбчатой при достижении критической толщины  $d^* \approx 150$  нм. Показано, что пленки Ni(200) толщиной  $d > 50$  нм обладают в несколько раз большей шероховатостью поверхности  $\sigma$  и большей деформацией кристаллической структуры  $\Delta a$ , чем пленки Ni(111).

Установлено, что величина намагниченности насыщения пленок Ni(111) толщиной  $d \approx 15-350$  нм с точностью 1–3% соответствует значениям  $4\pi M$  объемного никеля ( $4\pi M \approx 6.07$  кГ). Значения  $4\pi M$  пленок Ni(200) всегда оказываются на 10–20% меньше, чем у пленок Ni(111), а в области толщин  $d < 50$  нм для пленок Ni(200) происходит резкое снижение намагниченности почти в 2 раза. Показано, что минимальные значения зависимости ширины линии ФМР  $\Delta H(d)$  для пленок Ni(200) и Ni(111) достигаются при различных толщинах  $d$ , определяемых текстурой и микрострукту-

рой пленки. При этом в области толщин  $d < 50$  нм пленки Ni(200) и Ni(111) имеют близкие значения  $\Delta H \approx 170$  Ое, тогда как при толщинах  $100 < d < 400$  нм пленки Ni(200) обладают на 20–30% большими значениями  $\Delta H$ , чем пленки Ni(111).

Показано, что в пленках Ni(200) толщиной большей критической  $d > d^* \approx 150$  нм происходит формирование полосовой доменной структуры и переход от прямоугольных петель гистерезиса с отношением  $M_r/M_s \approx 0.9$  к закритическим петлям гистерезиса с  $M_r/M_s \approx 0.2-0.5$ , который сопровождается ростом коэрцитивной силы  $H_c$  в 2–3 раза и формированием поля одноосной перпендикулярной магнитной анизотропии, достигающего значений  $H_u \approx 0.7-0.8$  кОе в пленках толщиной  $d > 300$  нм.

## Список литературы

- [1] R.S. Liu, H. Pettersson, L. Michalak, C.M. Canali, D. Suyatin, L. Samuelson. Appl. Phys. Lett. **90**, 123 111 (2007).
- [2] J.-I. Shirakashia, Y. Takemura. J. Magn. Magn. Mater. **272-276**, 1581 (2004).
- [3] P.A. Deymier, J.O. Vasseur, K. Runge, A. Manchon, O. Bou-Matar. Phys. Rev. B **90**, 224 421 (2014).
- [4] T. Moriyama, T.J. Gudmundsen, P.Y. Huang, L. Liu, D.A. Muller, D.C. Ralph, R.A. Buhrman. Appl. Phys. Lett. **97**, 072 513 (2010).
- [5] V.L. Zhang, F.S. Ma, H.H. Pan, C.S. Lin, H.S. Lim, S.C. Ng, M.H. Kuok, S. Jain, A.O. Adeyeye. Appl. Phys. Lett. **100**, 163 118 (2012).
- [6] P. Graczyk, B. Mroz. Am. Insitute Phys. Adv. **4**, 077 138 (2014).
- [7] L. Dreher, M. Weiler, M. Pernpeintner, H. Huebl, R. Gross, M.S. Brandt, S.T.B. Goennenwein. Phys. Rev. B **86**, 134 415 (2012).
- [8] R.F. Wiegert, M. Levy. J Appl. Phys. **64**, 5411 (1988).
- [9] F. Kreitmeier, D.V. Chashin, Y.K. Fetisov, L.Y. Fetisov, I. Schulz, G.J. Monkman, M. Shamonin. Sensors **12**, 14 821 (2012).
- [10] M. Weiler, A. Brandlmaier, S. Geprägs, M. Althammer, M. Opel, C. Bihler, H. Huebl, M.S. Brandt, R. Gross, S.T.B. Goennenwein. New J. Phys. **11**, 013 021 (2009).
- [11] M.R.J. Gibbs. J. Magn. Magn. Mater. **290-291**, 1298 (2005).
- [12] T.H. Kim, J.S. Moodera. Phys. Rev. B **69**, 020 403 (2004).
- [13] S.-M. Cherif, A. Layadi, J. Ben Youssef, C. Nacereddine, Y. Roussigne. Physica B **387**, 281 (2007).
- [14] J.B. Yi, Y.Z. Zhou, Z.J. Ding. J. Magn. Magn. Mater. **284**, 303 (2004).
- [15] O. Kohmoto, N. Mineji, Y. Isagawa. J. Magn. Magn. Mater. **239**, 36 (2002).
- [16] А.С. Джумалиев, Ю.В. Никулин, Ю.А. Филимонов. Радиотехника и Электроника **57**, 550 (2012).
- [17] C.Y. Shih, C.L. Bauer, J. Artman. O. Artman. J. Appl. Phys. **64**, 5428 (1988).
- [18] Е.Е. Шальгина, Л.В. Козловский, Н.М. Абросимова. ФТТ **47**, 660 (2005).
- [19] S. Hameed, P. Talagala, R. Naik. J. Magn. Magn. Mater. **242-245**, 1264 (2002).
- [20] L.G. Pratibha, R. Mitra, J.R. Weertman. Pure Appl. Chem. **74**, 1519 (2002).

- [21] H. Shimizu, E. Suzuki, Y. Hoshi. *Electrochimica Acta.* **44**, 3933 (1999).
- [22] Y. Pauleau, S. Kukielka, W. Gulbinski, L. Ortega, S.N. Dub. *J. Phys. D* **39**, 2803 (2006).
- [23] В.В. Наумов, В.Ф. Бочкарев, О.С. Трушин, А.А. Горячев, Э.Г. Хасанов, А.А. Лебедев, А.С. Куницын. *ЖТФ* **71**, 92 (2001).
- [24] F. Czerwinski, J.A. Szpunar. *Textures Microstructures* **34**, 197 (2000).
- [25] A.Y. Pavlova, Y.V. Nikulin, A.S. Dzhumaliev, Y.V. Khivintsev, A.A. Zaharov, V.L. Preobrazhensky, P. Pernod, Y.A. Filimonov. *Appl. Surf. Sci.* **347**, 435 (2015).
- [26] А.С. Джумалиев, Ю.В. Никулин, Ю.А. Филимонов. *ЖТФ* **84**, 7, 152 (2014).
- [27] T. Koda, H. Toyota. *J. Vacuum Sci. Technology A* **32**, 02B104 (2014).
- [28] B.G. Priyadarshini, M. Kumar Gupta, S. Ghosh, M. Chakraborty, S. Aich. *Surf. Eng.* **29**, 689 (2013).
- [29] P.L. Gai1, R. Mitra, J.R. Weertman. *Pure Appl. Chem.* **74**, 1519 (2002).
- [30] T. Kazuaki, O. Yuta, K. Keishi. *J. Vacuum Soc. J.* **49**, 156 (2006).
- [31] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli. *Mater. Sci. Eng. B* **136**, 197 (2007).
- [32] S. Thiele, A. Reina, P. Healey, J. Kedzierski, P. Wyatt, P.-L. Hsu, C. Keast, J. Schaefer1. *J. Kong Nanotechnology* **21**, 015 601 (2010).
- [33] N. Popovic, Z. Bogdanov, B. Goncic, Z. Rakocovic, S. Zec. *Thin Solid Films* **343–344**, 75 (1999).
- [34] P.B. Geetha, S. Aich, M. Chakraborty. *J. Mater. Sci.* **46**, 2860 (2011).
- [35] S.G. Wang, E.K. Tian, C.W. Lung. *J. Phys. Chem. Solids* **61**, 1295 (2000).
- [36] А.С. Джумалиев, Ю.В. Никулин, Ю.А. Филимонов. *Письма в ЖТФ* **39**, 10 (2013).
- [37] D. Walton. *J. Chem. Phys.* **37**, 2182 (1962).
- [38] T. Futschek, J. Hafner, M. Marsman. *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, 9703 (2006).
- [39] С.Л. Высоцкий, А.С. Джумалиев, С.А. Никитов, Ю.А. Филимонов. *Радиотехника и электроника* **45**, 209 (2000).
- [40] H. Masumoto, H. Saito, Y. Murakami. *Trans JIM.* **10**, 119 (1969).
- [41] T.-Y. Fu, T.T. Tsong. *Surf. Sci.* **454–456**, 571 (2000).
- [42] С. Тикадзуми. *Физика ферромагнетизма. Магнитные свойства вещества.* Мир, М. (1983). 304 с.
- [43] W.H. Zhong, C.Q. Sun, S. Li. *Solid State Commun.* **130**, 603 (2004).
- [44] R. Arias, D.L. Mills. *Phys. Rev. B* **63**, 134 439 (2001).
- [45] Г.С. Кринчик. *Физика магнитных явлений.* Изд-во МГУ М. (1985). 336 с.
- [46] *Технология тонких пленок. Справочник.* / Под ред. Л. Майссела и Р. Глэнга. Сов. радио, М. (1977). т. 2.