01,08,10

Моделирование структуры интерфейсов в сверхрешетках Co/Cu с буферным слоем Fe

© С.А. Чупраков

Институт физики металлов УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: chuprakov@imp.uran.ru

Поступила в Редакцию 10 октября 2024 г.
В окончательной редакции 25 октября 2024 г.
Принята к публикации 5 ноября 2024 г.

Предложен способ интерпретации экспериментальных спектров ядерного магнитного резонанса для описания структуры межслойных границ в сверхрешетках Co/Cu с буферным слоем Fe приготовленных методом магнетронного распыления. Сверхрешетки имеют структурную формулу стекло//Fe(5nm)/[Co(1.5nm)/Cu(1nm)]$_n$/Cr(5nm), $n = 10, 20, 30, 40$. Выполненное трехмерное моделирование структуры межслойных границ позволяет построить расчетные спектры ядерного магнитного резонанса, позволяющие интерпретировать экспериментальные спектры. В работе продемонстрировано, что в сверхрешетках Co/Cu при использовании буферного слоя Fe происходит проникновение меди кобальт на границе раздела Co/Cu. Показано, что в интерфейсной области формируются „островные“ внедрения меди в кобальт глубиной в один атомный слой.

Ключевые слова: сверхрешетки, межслойные границы, ЯМР, моделирование.

DOI: 10.61011/FTT.2024.12.59600.259

1. Введение

На сегодня, для разработки устройств спинтроники и радиоэлектроники, сенсоров магнитного поля, применяется такой тип систем пониженной размерности, как двумерные многослойные наноструктуры — сверхрешетки [1–4]. Интерес к сверхрешеткам обусловлен эффектом гигантского магнитосопротивления [5,6], который наблюдается в них. Востребованной характеристикой сверхрешеток является величина магнитосопротивления, которая, в свою очередь, зависит от ряда параметров: материал подложки и буферного слоя [7–11], число пар слоев [12,13], толщина магнитных и немагнитных слоев [7,14,15], режим термообработки [16,17], методика и режим приготовления [18–20]. Перечисленные параметры определяют состояние интерфейсов — границ раздела магнитных и немагнитных слоев. Состояние (структура) интерфейсов является фактором, влияющим на особенности спинового транспорта в сверхрешетках [21–23]. Для определения структуры межслойных границ применяют следующие методы исследования: просвечивающая электронная микроскопия [24], рентгеновская дифракция [25], рентгеновская рефлектометрия [26], EXAFS [27], мессбауэровская спектроскопия [28], ядерный магнитный резонанс (ЯМР) [29]. Ранее, автором применялись методы рентгеновской дифракции, рентгеновской рефлектометрии и ядерного магнитного резонанса для определения состояния интерфейсов в сверхрешетках Co/Cu и установления характера влияния состояния этих интерфейсов на величину магнитосопротивления [30]. Проведенные исследования позволили определить характер влияния состояния интерфейсов на величину магнитосопротивления посредством обработки экспериментальных спектров ЯМР. Однако, в указанной выше работе, оценивалось количество высокосовершенных границ и показано, что интерфейсы имеют шероховатость, однако не приводится численная оценка шероховатости.

На сегодня, опубликован целый ряд работ, посвященных определению структуры интерфейсов по данным ядерного магнитного резонанса [12,31]. Также существуют публикации, в которых предложены различные модели структуры интерфейсов, на основе которых получены расчетные спектры ЯМР [7,14]. Так, в работе [14] показано, что в сверхрешетках [Co(1.23nm)/Cu(4.2nm)], приготовленных на подложке SiO_2 и с буферным слоем из Cu, на границе раздела магнитных и немагнитных слоев формируется большое количество внедрений глубиной в один атомный слой, а распределение атомов кобальта и меди в интерфейсной области не является случайным. В статье [7] дополнена и развита двумерная модель интерфейсов из работы выше. Эта модель допускала большую толщину интерфейсов, а также учитывала концентрацию атомов в зависимости от толщины интерфейсов. Авторы статьи [7] делают вывод, что в исследуемых ими сверхрешетках сформированы локально более плоские интерфейсы, а переход к модели островов позволит добиться лучшего описания экспериментальных данных с помощью расчетных спектров ядерного магнитного резонанса. В работе [10] также используется модифицированная модель из статьи [14]. С помощью моделирования структуры интерфейсов автор провел

оценку влияния толщины буферного слоя Fe на толщину интерфейсов.

Представленные модели позволяют интерпретировать экспериментальные данные ЯМР для описания структуры интерфейсов. Стоит отметить, что эти модели, в основном, ограничиваются двумерным представлением интерфейсов. В связи с этим, переход к трехмерным моделям является актуальным и позволит получить новую информацию о структуре интерфейсов. В настоящей работе выполнено трехмерное моделирование структуры интерфейсов в сверхрешетках Co/Cu с буферным слоем Fe. На основе трехмерных моделей получены расчетные спектры ЯМР, позволяющие интерпретировать экспериментальные данные ядерного магнитного резонанса для получения новой информации об особенностях структуры межслойных границ в кобальтсодержащих сверхрешетках Co/Cu.

2. Образцы и методика эксперимента

Исследуемые сверхрешетки были приготовлены методом магнетронного распыления. Структурная формула сверхрешеток: стекло/Fe(5nm)/$[$Co(1.5nm)/Cu(1nm)$]_n$/Cr(5nm), $n = 10, 20, 30, 40$.

Запись рентгеновских дифрактограмм выполнена на программно-аппаратном комплексе PANalytical Empyrean Series 2 в излучении CoK_α.

Запись спектров ядерного магнитного резонанса на ядрах ^{59}Co выполнена в условиях отсутствия внешнего магнитного поля при температуре жидкого гелия (4.2 K). Для записи был использован модернизированный фазокогерентный спектрометр, произведенный компанией „Bruker“. Спектры записаны методом развертки по частоте в диапазоне частот 235–110 MHz. Сигнал спинового эха формировался последовательностью двух когерентных РЧ-импульсов (радиочастотных), импульсная последовательность — солид-эхо. Длительность импульсов $\tau_{\text{pulse}} = 0.5\,\mu$s, временной интервал между импульсами $\tau_{\text{delay}} = 11\,\mu$s. Расстояние между экспериментальными точками 1 MHz. Для устранения искажения спектров за счет переходных процессов и интерференционных эффектов в резонансном контуре применялась последовательность с альтернированием фазы РЧ-импульсов. Для увеличения сигнал соотношения сигнал/шум осуществлялось многократное накопление сигнала. Во всем рабочем диапазоне частот осуществлялся контроль постоянства мощности усилителя.

Так как магнитные моменты кобальтовых слоев направлены вдоль геометрической плоскости пленки, то стандартный соленоид нельзя использовать как измерительную катушку (ИК), т. к. вектор магнитной индукции сонаправлен с вектором намагниченности сверхрешетки. В работе [32] было показано, что оптимальная форма ИК — плоская спиральная катушка. Для наблюдения сигнала ЯМР была изготовлена ИК (рис. 1).

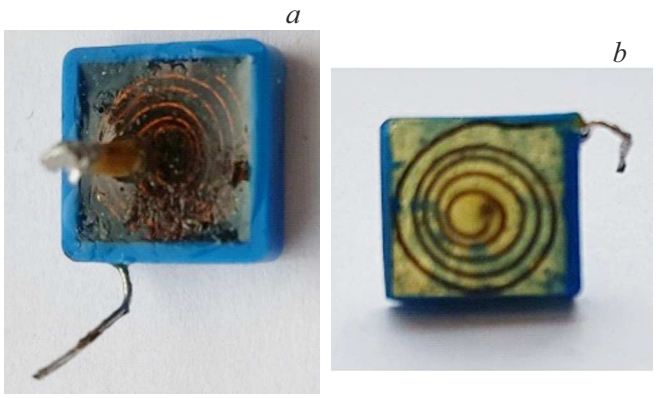


Рис. 1. Измерительная катушка для сверхрешеток Co/Cu: *a* — вид сверху; *b* — вид снизу.

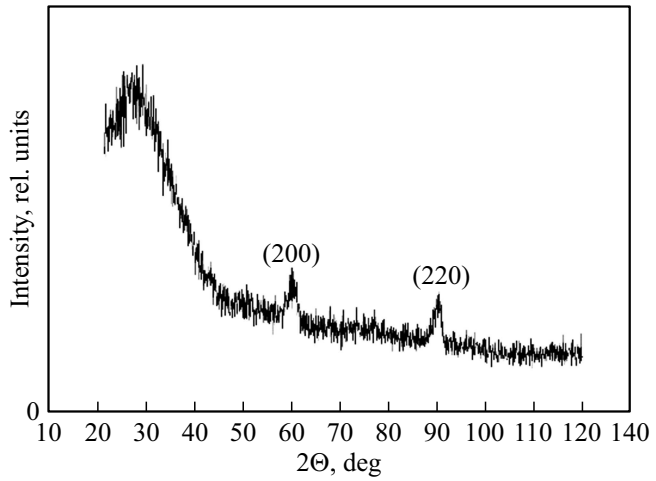


Рис. 2. Рентгеновская дифрактограмма сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/$[$Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)$]_{30}$/Cr(3nm), излучение CoK_α, $\lambda = 1.7889$ Å.

Измерительная катушка — это плоская спираль из проволоки длиной 113 mm и диаметром 0.43 mm (по лаку) с напаянным контактом центрального отвода. Конструкция помещена в пластиковый корпус, который был заполнен эпоксидной смолой. Для достижения максимальной добротности резонансного контура использовались тонкие пластины из слюды между образцом и ИК.

3. Результаты и обсуждение

Тип кристаллической структуры и текстуры, сформированной в сверхрешетках, определяет структуру высокосовершенных интерфейсов. На рис. 2 показана рентгеновская дифрактограмма сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/$[$Co(1.5nm)/Cu(1nm)$]_{30}$/Cr(5nm).

В диапазоне углов $20° \le \Theta \le 120°$ обнаружено два брегговских пика, которые относятся к общим для Co и Cu рефлексам (200), (220), что свидетельствует о двухкомпонентной текстуре в исследуемых

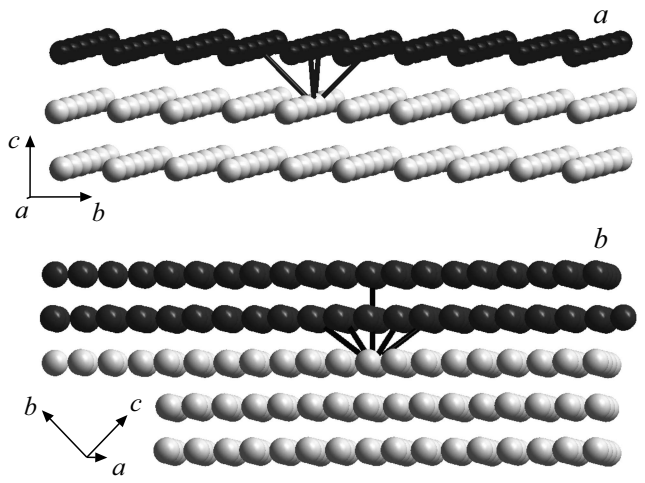


Рис. 3. Трехмерная модель высокосовершенного интерфейса в сверхрешетках стекло//Fe(5nm)/$[$Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)$]_{30}$/Cr(3nm) в случае текстуры (100) (*a*) и (110) (*b*).

сверхрешетках. Методом рентгеновской рефлектометрии подтверждено существование периодичной структуры, период сверхрешетки равен номинальному (2.4 nm), медленное уменьшение амплитуды осцилляций Киссига свидетельствует о высоком качестве интерфейсов. Обработка рефлектограмм показала, что шероховатость не превышает 0.4 nm (для сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/[Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)]10/Cr(3nm)). В сверхрешетках сформирована кристаллическая структура типа гранецентрированная кубическая (ГЦК). На рис. 3, *a* показана высокосовершенная межслойная граница при текстуре (100), на рис. 3, *b* — высокосовершенная межслойная граница в случае текстуры (110).

На рис. 3 атомы меди обозначены темно-серым цветом, атомы кобальта обозначены черным цветом. Черные линии соединяют выбранный атом кобальта с атомами меди его ближайшего окружения. Из рис. 3, *a* показано, что в случае текстуры (100), выбранный атом кобальта, участвующий в формировании высокосовершенной межслойной границы, имеет 4 атома меди в ближайшем окружении, а в случае текстуры (110) — выбранный атом кобальта имеет 5 атомов меди в ближайшем окружении.

Рассмотрим, как метод ядерного магнитного резонанса позволяет получить информацию о структуре интерфейсов. Из-за сверхтонкого взаимодействия магнитные моменты атомов кобальта создают в месте расположения ядер ^{59}Co локальные магнитные поля, величина и направление которых зависят от магнитных и структурных особенностей ближайшего окружения ядра-зонда. В работе [33] экспериментально установлена величина сверхтонкого поля: — 21.6 T. Замещение одного атома кобальта на один атом меди в ближайшем окружении ядра-зонда приводит к уменьшению величины сверхтонкого поля на 1.6–1.8 T [34,35]. Также в работе [33] приведено выражение (1), позволяющее оценить величину сверхтонкого поля в зависимости от числа замещенных атомов кобальта в ближайшем окружении ядра-зонда:

$$H_{hf} \approx H^b_{hf} - \Delta H^1_{hf}(n^b - n^1), \qquad (1)$$

где H^b_{hf} — сверхтонкое поле в объемном материале, n^b — координационное число в объемном материале, величина сдвига ΔH^1_{hf} составляет примерно -1.8 – -1.6 T [14], n^1 — число атомов кобальта в первой координационной сфере для рассматриваемого ядра-зонда Co. Это выражение означает: если в первой координационной сфере атома кобальта 12 атомов кобальта (так как в исследуемых сверхрешетках сформирована ГЦК структура), то резонансная частота (с учетом гиромагнитного отношения) ядра-зонда составит 216 MHz. Замещение одного атома кобальта на один атом меди в ближайшем окружении ядра-зонда приведет к уменьшению частоты резонансной частоты до 200 MHz. Замещение двух атомов кобальта на два атома меди приведет к формированию резонансной линии на частоте 184 MHz и т. д. Согласно рис. 3, в случае текстуры (100) резонансная линия, соответствующая атомам кобальта, формирующим высокосовершенные межслойные границы, наблюдается на частоте 150 MHz, а в случае текстуры (110), резонансная линия от атомов кобальта формирующих высокосовершенные границы, наблюдается на частоте 132 MHz. В случае текстуры (111) и ситуации, когда в сверхрешетке присутствуют только высокосовершенные межслойные границы, на экспериментальном спектре ЯМР присутствуют только две линии: на частоте 216 MHz — атомы кобальта внутри кобальтового слоя и на частоте 168 MHz — резонансная линия, характеризующая атомы кобальта, участвующие в формировании межслойных границ. Такой экспериментальный спектр приводится в работе [36], где сверхрешетки Co/Cu были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии. На рис. 4 показан

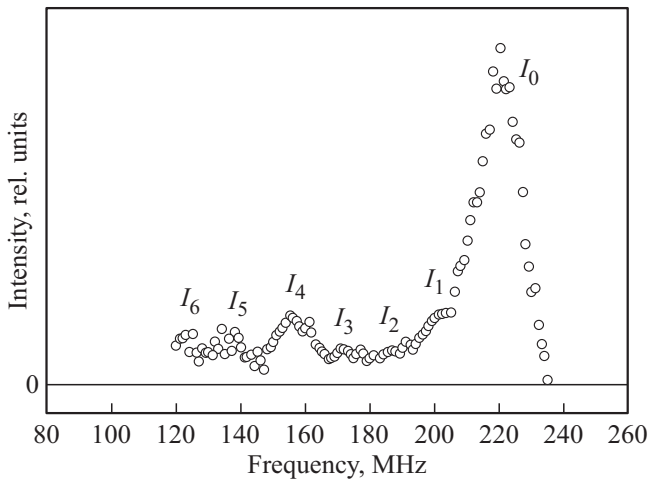


Рис. 4. Экспериментальный спектр ЯМР сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/$[$Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)$]_{10}$/Cr(3nm).

спектр ядерного магнитного резонанса сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/[Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)]$_{10}$/Cr(3nm):

На рис. 4 показано положение резонансных линий I_j, где j — количество атомов кобальта, замещенных

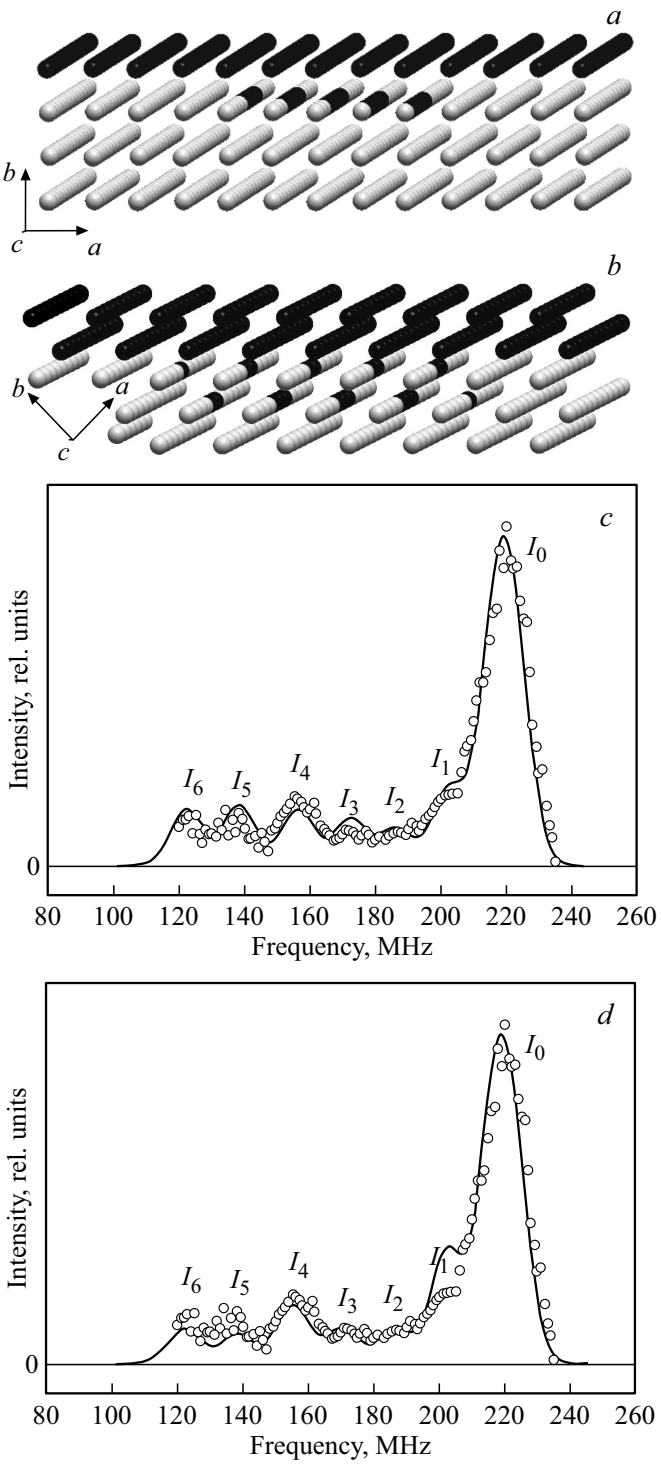


Рис. 5. Структура интерфейсов в случае текстуры (100) (a), (110) (b) и соответствующие им расчетные спектры ЯМР (c, d). На (c, d) приведен экспериментальный спектр ЯМР сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/[Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)]$_{10}$/Cr(3nm).

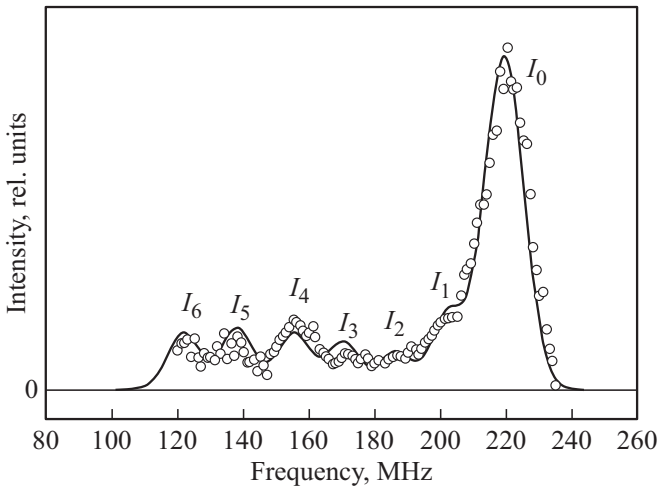


Рис. 6. Расчетный и экспериментальный спектры ЯМР сверхрешетки стекло//Fe(5nm)/[Co(1.5nm)/Cu(0.9nm)]$_{10}$/Cr(3nm).

атомами меди в ближайшем окружении ядра-зонда. Для описания формы линии использована Гауссова функция, а ширина линии одинакова для всех резонансных линий. Значение ширины линии определялось при обработке спектров ЯМР. Наличие в спектре ЯМР резонансных линий I_0 (атомы кобальта в объеме слоя кобальта), I_4 (атомы кобальта формирующие высокосовершенные межслойные границы при текстуре (100)) и I_5 (атомы кобальта формирующие высокосовершенные межслойные границы при текстуре (110)) означает ненулевую шероховатость межслойных границ кобальт-медь.

Трехмерное моделирование структуры межслойных границ и оценка величины шероховатости межслойных границ выполнялись с учетом тенденции проникновения меди в кобальт на границе раздела кобальт-медь [26]. При моделировании учитывается предположение из [7], что в сверхрешетках могут реализоваться локально более плоские интерфейсы, чем предусмотрены в их модели, а сами внедрения меди в кобальт могут иметь форму „острова“. При моделировании проводилось построение различных типов внедрения меди в кобальт: цепочка атомов меди, проникающая в кобальт на глубину в один атомный слой, внедрения в форме иглы и конуса разной глубины. Однако перечисленные формы внедрения меди в кобальт в интерфейсной области не позволили добиться удовлетворительного совпадения расчетного и экспериментального спектров. На рис. 5 приведены трехмерные модели структуры интерфейсов Co/Cu в случае текстуры (100) (рис. 5, a) и (110) (рис. 5, b), а также расчетные и экспериментальные спектры ядерного магнитного резонанса в случае текстуры (100) (рис. 5, c) и (110) (рис. 5, d) в сверхрешетках Co/Cu.

На рис. 5, c, d показана высокая степень совпадения экспериментальных и расчетных спектров. Так как в этих сверхрешетках сформирована двухкомпонентная текстура, то получившиеся расчетные спектры необходимо просуммировать (рис. 6).

На рис. 6 показано, что расчетный спектр ЯМР, полученный на основе предложенной „островной“ модели внедрения меди в кобальт в интерфейсной области, позволяет описать экспериментальный спектр ЯМР.

4. Заключение

На основе экспериментальных данных ядерного магнитного резонанса определено распределение локальных полей в сверхрешетках стекло//Fe(5nm)/[Co(1.5nm)/Cu(1nm)]$_n$/Cr(5nm), $n = 10$, 20, 30, 40 приготовленных методом магнетронного распыления. Методом рентгеновской дифракции установлено, что в этих сверхрешетках сформирована двухкомпонентная текстура (100), (110). Выполнено трехмерное моделирование структуры интерфейсов, предложена „островная“ модель внедрения меди в кобальт. На основе данных трехмерного моделирования получен расчетный спектр ЯМР позволяющий описать экспериментальные спектры ЯМР. Таким образом показано, что в интерфейсной области формируются „островные“ внедрения меди в кобальт глубиной в один атомный слой.

Благодарности

Автор выражает благодарность М.А. Миляеву за предоставленные сверхрешетки. Рентгенографические исследования выполнены на оборудовании центра коллективного пользования отдела наноспинтроники ИФМ УрО РАН.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания по теме „Функция“ № 122021000035-6.

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] C. Zheng, K. Zhu, S.C. d. Freitas, J.Y. Chang, J.E. Davies, P. Eames, P.P. Freitas, O. Kazakova, C. Kim, C.W. Leung, S.H. Liou, A. Ognev, S.N. Piramanayagam, P. Ripka, A. Samardak, K.H. Shin, S.Y. Tong, M.J. Tung, S.X. Wang, S. Xue, X. Yin, P.W.T. Pong. IEEE Trans. Magn. **55**, *4*, 1 (2019).
[2] I. Ennen, D. Kappe, T. Rempel, C. Glenske, A. Hütten. Sensors **16**, *6*, 904 (2016).
[3] C. Reig, Cardoso S., Mukhopadhyay S.C. Berlin. Giant Magnetoresistance (GMR) Sensors. Heidelberg: Springer-Verlag, (2013).
[4] O.A. Kondratev, I.A. Makhotkin, S.N. Yakunin. Appl. Sur. Sci. **574**, 151573 (2022).
[5] A. Fert, L. Piraux. J. Magn. Magn. Mat. **200**, *1–3*, 338 (1999).
[6] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky, H. Sowers. Phys. Rev. Lett. **57**, *19*, 2442 (1986).
[7] C. Me'ny, P. Panissod, R. Loloee. Phys. Rev. B **45**, *21*, 12269 (1992).
[8] Y. Suzuki, T. Katayama, H. Yasuoka. J. Magn. Magn. Mat. **104–107**, 1843 (1992).
[9] K. Le Dang, P. Veillet, E. Vélu, S.S.P. Parkin, C. Chappert. Appl. Phys. Lett. **63**, *1*, 108 (1993).
[10] M. Suzuki, Y. Taga, A. Goto, H. Yasuoka. J. Magn. Magn. Mat. **126**, *1*, 495 (1993).
[11] T. Thomson, P.C. Riedi, D. Greig. Phys. Rev. B **50**, *14*, 10319 (1994).
[12] A. Paul, T. Damm, D.E. Bergler, S. Stein, H. Kohlstedt, P. Grunberg. J. Phys. Condens. Matter. **15**, *17*, 2471 (2003).
[13] J. Mathon. Phys. Rev. B **55**, *2*, 960 (1997).
[14] H.A.M. de Gronckel, K. Kopinga, W.J.M. de Jonge, P. Panissod, J.P. Schillé, F.J.A. den Broeder. Phys. Rev. B **44**, *16*, 9100 (1991).
[15] K. Le Dang, P. Veillet, P. Beauvillain, C. Chappert, H. He, F.J. Lamelas, C.H. Lee, R. Clarke. Phys. Rev. B **43**, *16*, 13228 (1991).
[16] Y. Saito, K. Inomata, M. Nawate, H. Shigeo, A. Goto, Y. Hiroshi. Jap. J. App. Phys. **34**, *Part 1, No. 6A*, 3088 (1995).
[17] T. Thomson, P.C. Riedi, B.J. Hickey. J. Appl. Phys. **79**, *8*, 5119 (1996).
[18] A. Goto, H. Yasuoka, K. Takanashi, K. Saito, H. Fujimori. J. Magn. Magn. Mater. **126**, *1*, 358 (1993).
[19] Y. Saito, K. Inomata, A. Goto, H. Yasuoka. J. Phys. Soc. Jpn. **62**, *5*, 1450 (1993).
[20] Y. Saito, K. Inomata, A. Goto, H. Yasuoka. J. Magn. Magn. Mater. **126**, *1*, 466 (1993).
[21] A. Gupta, A. Paul, S.M. Chaudhari, D.M. Phase. J. Phys. Soc. Jpn. **69**, *7*, 2182 (2000).
[22] A. Paul, A. Gupta, S.M. Chaudhari, D.M. Phase. Vacuum **60**, *4*, 401 (2001).
[23] V.V. Ustinov, L.N. Romashev, T.P. Krinitsina, E.A. Kravtsov, M.A. Milyaev, A.V. Semerikov, V.A. Tsurin, N.V. Kourtina. J. Magn. Magn. Mater. **240**, *1*, 511 (2002).
[24] Z.J. Yang, M.R. Scheinfein. Physical Review B **52**, *6*, 4263 (1995).
[25] M. Kamiko, A. Nakamura, K. Aotani, R. Yamamoto. Appl. Surf. Sci. **256**, *4*, 1257 (2009).
[26] Y. An, B. Dai, H. Zhang, Z. Mai, J. Cai, Z. Wu. J. Phys. D: Appl. Phys. **39**, *9*, 1711 (2006).
[27] M. Krupiński, M. Kac, A. Polit, Y. Zabila, D. Zajac, M. Marszalek, C. Kapusta, A. Dobrowolska. Acta Phys. Pol. A **115**, 565 (2009).
[28] V. Uzdin, W. Keune, M. Walterfang. J. Magn. Magn. Mater. **240**, *1*, 504 (2002).
[29] T. Thomson, P.C. Riedi, C. Morawe, H. Zabel. J. Magn. Magn. Mater. **156**, *1*, 89 (1996).
[30] S. Chuprakov, N. Bannikova, I. Blinov, T. Krinitsina, M. Milyaev, V. Popov, V. Ustinov. Appl. Magn. Reson. **50**, *1*, 415 (2019).
[31] T. Thomson, P.C. Riedi. Hyperfine Interact. **120**, *1*, 23 (1999).
[32] W. Liu, L. Lu, V.F. Mitrović. Rev. Sci. Instrum. **88**, *11*, 113902 (2017).
[33] G.Y. Guo, H. Ebert. Phys. Rev. B **53**, *5*, 2492 (1996).
[34] C. Meny, E. Jedryka, P. Panissod. J. Phys. Condens. Matter. **5**, *10*, 1547 (1993).
[35] K. Le Dang, P. Veillet, H. Hui, F.J. Lamelas, C.H. Lee, R. Clarke. Phys. Rev. B **41**, *18*, 12902 (1990).
[36] T. Thomson, P.C. Riedi, K. Bröhl, P. Bödeker. J. Magn. Magn. Mater. **148**, *1*, 34 (1995).

Редактор А.Н. Смирнов