

УДК 537.622.4:539.216.2

© 1992

ЧИСЛЕННЫЙ АНАЛИЗ САТЕЛЛИТНЫХ ОТРАЖЕНИЙ МНОГОСЛОЙНЫХ ПОКРЫТИЙ Co/Cu

О. И. Касютин, В. М. Федосюк, Л. Н. Макутина, Г. В. Макутин

Рассчитываются рентгеновские спектры мультислойных Co/Cu пленок. Анализируя изменение сателлитных отражений у основных структурных рефлексов кобальта и меди в зависимости от толщины слоев и характера изменения в них межплоскостного расстояния.

В последние несколько лет большое внимание исследователей привлекали многослойные покрытия с ультратонкими чередующимися магнитными и немагнитными слоями. Эти структуры являются весьма интересными объектами как для изучения ряда фундаментальных вопросов теории магнетизма, так и для практического использования, в частности, в качестве магнито жестких покрытий для устройств хранения информации [1, 2].

В работе [3] мы показали, что полной ясности физической картины одного из проявлений слоистости пленочных покрытий — сателлитных отражений на рентгенограммах пленок пока нет. В частности, нет адекватного соответствия периодов мультислойной структуры, рассчитанных из известных скоростей осаждения слоев, и относительного расположения сателлитных отражений у основных структурных рефлексов; не ясен также вопрос о взаимной интенсивности сателлитов со стороны меньших и больших углов. Между тем на данный момент времени в литературе не имеется никаких данных по комплексному численному анализу рентгенограмм мультислойных структур даже в простейшем случае — в предположении абсолютно резкой границы слоев в многослойном покрытии. Поэтому в настоящей работе мы проанализируем изменение рентгенограмм многослойных пленок Co/Cu в зависимости от толщины слоев и характера изменения в них межплоскостного расстояния.

Для расчета рентгеновского профиля многослойной пленки Co/Cu использовалась модель идеальной сверхрешетки. В основе модели лежит представление об искусственной сверхструктуре как совокупности единичных ячеек, состоящих из n атомных плоскостей одного элемента (в данном случае Co) и m атомных плоскостей другого элемента (Cu). Согласно кинематической теории рассеяния рентгеновских лучей, интенсивность отраженных от объекта лучей задается формулой [4, 5]

$$J = \frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin \theta \sin 2\theta} \left\{ \sum_{j=1}^n \exp \left[-W_{\text{Co}} \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 \right] f_{\text{Co}}(\theta) \sigma_{\text{Co}} \exp \left(i \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} x_j \right) + \sum_{j=1}^m \exp \left[-W_{\text{Cu}} \left(\frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 \right] f_{\text{Cu}}(\theta) \sigma_{\text{Cu}} \exp \left(i \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} x_j \right) \right\}^2, \quad (1)$$

где $1 + \cos^2 2\theta$ — поляризационный фактор; $\sin 2\theta$ — фактор Лорентца; $\sin \theta$ — геометрический фактор; $f_{\text{Co}}(\theta)$ и $f_{\text{Cu}}(\theta)$ — функции рассеяния атомов Co и Cu; σ_{Co} и σ_{Cu} — плотности атомов соответственно Co и Cu в их плоскостях (111) ГЦК-решеток; x_j — положение атомной плоскости; n — число атомных плоскостей Co в единичной ячейке сверхструктуры; m — число атомных плоскостей Cu в единичной ячейке сверхструктуры; W_{Co} , W_{Cu} — коэффициенты Дебая-Валлера, учитывающие вклад тепловых колебаний атомов в рассеяние рентгеновских лучей.

Таким образом, используемая формула представляет собой зависимость интенсивности рентгеновского R -излучения от угла θ (угол между падающим R -лучом и поверхностью образца) и координаты положения атомной плоскости Co и Cu в единичной ячейке. Опишем более подробно используемые константы и переменные.

1) λ — длина волны используемого рентгеновского излучения (CoK_α) $\lambda = 1.789 \text{ \AA}$.

2) W_{Co} , W_{Cu} — коэффициенты Дебая—Валлера. Для их расчета использовалась формула

$$W = \frac{6\hbar^2}{m_{\text{Co}}k \Theta^D} \left(\frac{\Phi(\theta^D/T)}{\Theta^D} + \frac{1}{4} \right), \quad (2)$$

где $\hbar = 6.63 \cdot 10^{-34} \text{ Дж} \cdot \text{с}$ (постоянная Планка); $k = 1.38 \cdot 10^{-23} \text{ Дж/К}$ (постоянная Больцмана); $m_{\text{Co}} = 58.93$ — атомная масса Co; $m_{\text{Cu}} = 63.54$ — атомная масса Cu; $\Theta_{\text{Co}}^D = 445 \text{ К}$ — характеристическая температура Co; $\Theta_{\text{Cu}}^D = 210 \text{ К}$ — характеристическая температура Cu; $\Phi_{\text{Co}}(\Phi^D/T) = 0.704$ — функция Дебая для Co; $\Phi_{\text{Cu}}(\Theta^D/T) = 0.82$ — функция Дебая для Cu; $T = 293 \text{ К}$. Произведенный расчет показал, что для кобальта и меди

$$W_{\text{Co}} \approx W_{\text{Cu}} \approx 1.$$

3) $\sigma_{\text{Co}} = 0.37 \text{ 1/\AA}^2$ — плотность атомов кобальта в плоскости (111) ГЦК-решетки; $\sigma_{\text{Cu}} = 0.35 \text{ 1/\AA}^2$ — плотность атомов меди в плоскости (111) ее ГЦК-решетки.

4) $d_{\text{Co}}^{(111)} = 2.047 \text{ \AA}$ — межплоскостное расстояние (111) ГЦК—Co, $d_{\text{Cu}}^{(111)} = 2.088 \text{ \AA}$ — межплоскостное расстояние (111) ГЦК—Cu.

Координата атомных плоскостей x_j определялась двумя способами: а) по известным скоростям осаждения слоев (V_{Co} и V_{Cu}) и длительности импульсов их осаждения (T_{Co} и T_{Cu}), б) непосредственно из расчета по заданному закону изменений межплоскостного расстояния $d_{\text{Co, Cu}} = f(d_{\text{Co}}, d_{\text{Cu}})$ и количества атомных плоскостей в слоях. Первый вариант более удобен для сравнения расчетных рентгеновских спектров с экспериментально измеренными, второй — для аналитического анализа R -спектров в зависимости от толщины слоев и характера изменения в них межплоскостного расстояния.

Период многослойной структуры равен

$$\Lambda = V_{\text{Co}}T_{\text{Co}} + V_{\text{Cu}}T_{\text{Cu}}. \quad (3)$$

Учитывая, что

$$n = \frac{V_{\text{Co}}T_{\text{Co}}}{d_{\text{Co}}}, \quad m = \frac{V_{\text{Cu}}T_{\text{Cu}}}{d_{\text{Cu}}},$$

получим

$$\Lambda = nd_{\text{Co}} + md_{\text{Cu}}. \quad (4)$$

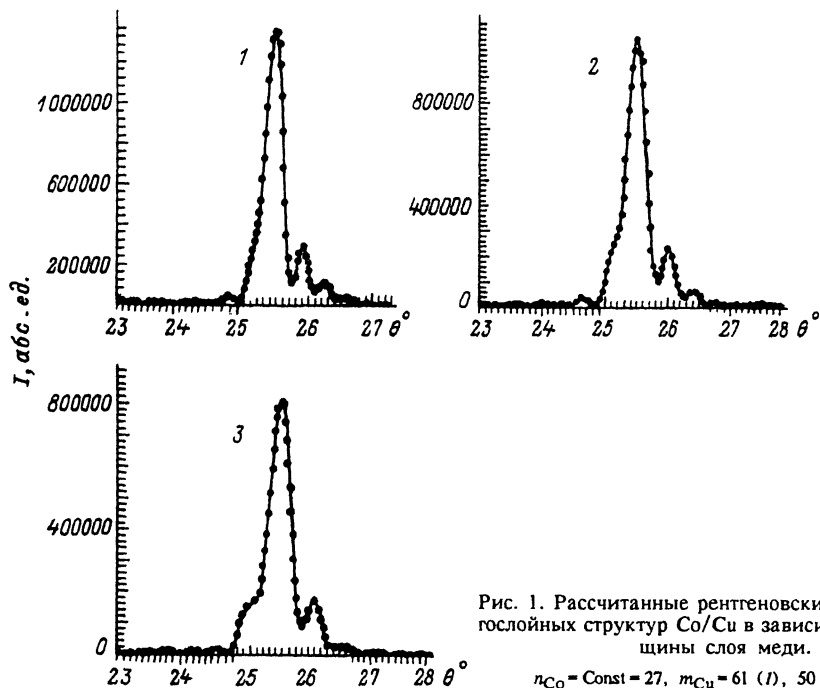


Рис. 1. Рассчитанные рентгеновские спектры многослойных структур Co/Cu в зависимости от толщины слоя меди.

$n_{\text{Co}} = \text{Const} = 27$, $m_{\text{Cu}} = 61$ (1), 50 (2), 40 (3).

Такой ввод данных для расчета x_j использовался для анализа многослойных структур с абсолютно резкой границей раздела слоев. При анализе влияния характера изменения межплоскостного расстояния в составляющих многослойную структуру слоях данные x_j вносились в виде набора табличных данных.

5) Функции атомного расстояния $f_{\text{Co}}(\theta)$ и $f_{\text{Cu}}(\theta)$ являются функциями аргумента $\sin \theta / \lambda$. Для определенного значения аргумента существует табличное значение функции [7] в зависимости от вида химического элемента.

Поскольку, кроме указанных в таблице значений $\sin \theta / \lambda$, аргумент может принимать и промежуточные, потребовалось осуществить интерполяцию. Для этого был построен интерполяционный полином Лагранжа для заданных таблицей функций $f_{\text{Co}}(\theta)$ и $f_{\text{Cu}}(\theta)$.

Вначале был проведен анализ рентгеновских спектров многослойных структур Co/Cu в предположении абсолютно резкой границы раздела слоев, т. е. в слое кобальта во всех его точках межплоскостное расстояние было построено и $d_{\text{Co}}^{(111)} = 2.047 \text{ \AA}$, а в слое меди $d_{\text{Cu}}^{(111)} = 2.088 \text{ \AA}$.

Расчет был проведен для двух групп данных: 1) $n = 69 = \text{const}$, m изменяется от 67 до 0; 2) $m = 67 = \text{const}$, n изменяется от 55 до 0.

При $n = 69$ и $m = 67$ в единичной ячейке рефлексы Co (111) и Cu (111) хорошо различаются и имеют приблизительно равную интенсивность (рис. 1). Справа и слева от основных рефлексов, которые различаются по своему угловому положению на $2\theta \sim 1^\circ$, имеются изменяющиеся по амплитуде рефлексы малой интенсивности. Картина симметрична; разница в угловом положении основных и первых спутных рефлексов как справа, так и слева составляет $\Delta\theta \sim 0.5^\circ$. Поэтому, если бы основные структурные рефлексы были разнесены на большее количество градусов, наблюдалась бы картина, где каждый рефлекс имел с обеих сторон убывающие по интенсивности спутники, как например, для системы Co/Pd. С уменьшением количества атомных плоскостей меди в единичной ячейке интенсивность рефлекса меди уменьшается, и при $m = 43$ рефлекс меди становится несимметричным (рис. 1), а при $m = 28$ разбивается на два: один по угловому

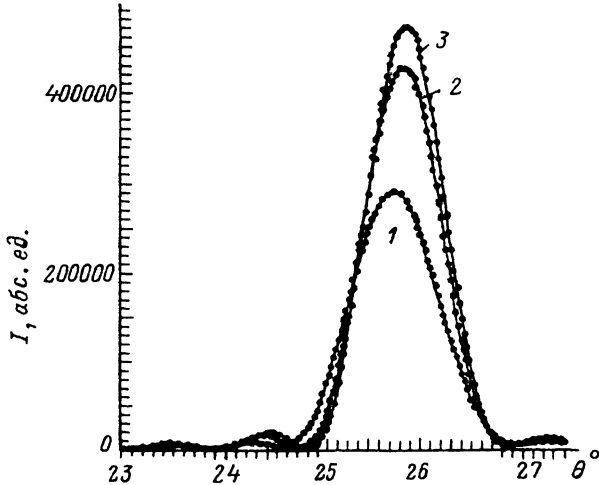


Рис. 2. Рассчитанные рентгеновские спектры Co/Cu пленок в зависимости от степени линейного изменения межплоскостного расстояния на границе раздела в слое кобальта.

$$m_{\text{Cu}} = 30, n_{\text{Co}} = 12 (1), 24 (2), 30 (3).$$

положению соответствует меди, а появившийся ближе к $\Theta_{\text{Cu}}^{\text{max}}$, чем до этого первый спутник меди.

Если зафиксировано m , а n уменьшается от 69 до 0, то подобным образом происходит уменьшение интенсивности рефлекса Co. При $n = 41$ появляется несимметричность, и далее при $n = 20$ вместо одного рефлекса Co появляются два отдельных рефлекса, уменьшающихся по интенсивности с увеличением θ .

В случае, если количество атомных плоскостей обоих элементов мало ($n \sim m \sim 30$), рентгеновский спектр такой структуры представляет собой плавное изменение интенсивности с максимумом, смещенным либо в сторону Cu, если $m > n$, либо в сторону Co, если $m < n$ (рис. 1).

Из анализа рассчитанных (по идеальной модели) рентгеновских спектров структур Co/Cu можно сделать вывод в целом о качественном соответствии расчетных и опытных данных. Но остается по крайней мере один совершенно не понятный момент. Угловые положения рефлексов (111) ГЦК—Co и ГЦК—Cu не соответствуют своим табличным данным. Причем это несоответствие не всегда логично можно объяснить: $2\theta_{\text{Co}} = 51.8 \div 51.88$ ($2\Theta_{\text{Co}}^{\text{табл.}} = 51.83^\circ$) и $2\theta_{\text{Cu}} = 50.72 \div 50.78^\circ$ ($2\Theta_{\text{Cu}}^{\text{табл.}} = 50.73^\circ$). Т. е. межплоскостные расстояния (111) кобальта и меди могут быть и больше табличных значений, хотя по логике всегда следовало бы ожидать их сближения навстречу друг другу. Подобный результат был получен в работе [6] для системы Ni/Cu, причем несоответствие зависело от периода многослойной структуры и изменялось в пределах $0.25 - 0.3 \text{ \AA}$ при $\Lambda = 24 \div 194 \text{ \AA}$. Авторы пытались это объяснить тем, что «предположение о параметрах Co и Cu не «корректно». На наш взгляд, это объяснение нельзя считать убедительным, поэтому данный вопрос остается открытым.

Помимо исследования влияния на спутнитные отражения многослойных пленок Co/Cu толщин составляющих их слоев анализировался и эффект сглаженности границы раздела слоев. В частности, оценивались три варианта. 1) Изменяется только d_{Co} с шагом $(d_{\text{Cu}} - d_{\text{Co}}) / x$, где x — число захватываемых линейным изменением атомных плоскостей кобальта от границы раздела с медью, n изменяясь от 0 до n , т. е. вплоть до линейного изменения межплоскостного расстояния кобальта по всей их толщине. Остальные атомные плоскости кобальта ($n - x$), а также межплоскостные расстояния в слоях меди оставались неизмен-

ными. 2) То же самое только для слоя меди при неизменном межплоскостном расстоянии кобальта и остающихся слоев меди. 3) Линейное изменение межплоскостного расстояния захватывает одновременно часть толщины слоев и кобальта, и меди.

На рис. 2 представлены рассчитанные рентгеновские спектры мультислойных структур Co/Cu в случае вариации межплоскостного расстояния в кобальте. Видно существенное влияние вариаций межплоскостного расстояния на интенсивность, форму и угловое положение сателлитных отражений. Так, если задается только линейное изменение d_{Co} , то рентгеновский спектр смещается в сторону меньших углов (т. е. и меди), и наоборот. Кроме этого, существенно отличается интенсивность рефлексов. В случае распространения возмущения межплоскостного расстояния слоев симметрично по обе стороны границы раздела слоев пики остаются не смещенными, изменяются только их ширина и интенсивность.

Таким образом, принимая во внимание весь комплекс проделанных по идеальной модели расчетов рентгеновских спектров многослойных структур и полученные ранее нами экспериментальные данные [2], можно говорить лишь об их качественном соответствии. Неясными остаются следующие особенности.

1) Основные структурные рефлексы как кобальта, так и меди могут быть смещены в сторону меньших углов $2\theta_{Co} \sim -0.03 \div 0.05^\circ$, $2\theta_{Cu} \sim -0.01 \div 0.05^\circ$ от равновесных табличных значений, которые мы фактически задаем параметрами $d_{Co}^{(111)} = 2.047 \text{ \AA}$ и $d_{Cu}^{(111)} = 2.088$. Для полученных нами экспериментальных R -спектров пленок достоверно можно говорить лишь об увеличении межплоскостного расстояния Co, которое составляет $\Delta d_{Co}^{(111)} \sim 0.009 \text{ \AA}$. Хотя логично было бы ожидать смещения рефлексов навстречу друг другу, т. е. $d_{Co}^{(111)}$ должно чуть увеличиться, а $d_{Cu}^{(111)}$ уменьшиться, тем более, что далее, по мере уменьшения числа атомных плоскостей слоев, рефлексы Co и Cu сливаются, образуя один общий относительно широкий максимум с промежуточным межплоскостным расстоянием.

2) Численные расчеты показывают, что один общий рефлекс с сателлитными отражениями должен иметь место при числе атомных плоскостей слоев кобальта и меди менее $\sim 40 \div 30$. Между тем в большинстве экспериментальных работ такой переход наблюдается при числе атомных плоскостей слоев менее 15 — 10.

3) Нет адекватного соответствия периода многослойной структуры, рассчитываемого из сателлитных отражений у рефлексов Co и Cu, с тем, который мы фактически задаем как

$$\Lambda = n_{Co} d_{Co}^{(111)} + m d_{Cu}^{(111)}.$$

Либо это так и должно быть, но тогда возникает вопрос: почему? либо в имеющихся на сегодняшний день экспериментальных работах по оценке Λ из сателлитных отражений желаемое выдается за действительное. Кстати, в ряде работ, как например [6], приведенные экспериментальные данные не соответствуют тем выводам, к которым склоняются авторы данной работы. Полученные нами экспериментальные данные также дают совпадение расчетных и измеренных значений периода мультислойных структур лишь в некотором диапазоне толщин составляющих слоев [2, 3].

4) Очевидно существенное влияние на R -спектры многослойных структур границы раздела слоев.

Расчетные данные, более полно соответствующие экспериментальным, по-видимому, можно получить при учете сложной картины строения многослойных пленок и в первую очередь сплошного отсутствия характера слоев и, вероятно, некоторой их перемешиваемости.

Список литературы

- [1] Федосюк В. М., Шелег М. У., Касютич О. И., Козич Н. Н. // Изв. вузов. Сер. хим. и хим. техн. 1990. Т. 33. № 12. С. 73—75.
- [2] Точицкий Т. А., Касютич О. И., Федосюк В. М. // ФТТ. 1992. Т. № 5. С. 0000—0000.
- [3] Шелег М. У., Федосюк В. М., Касютич О. И., Козич Н. Н. // Поверхность. 1991. № 6. С. 115—119.
- [4] Mayer K. E., Felecher G. P., Sinno S. K. et al. // J. Appl. Phys. 1981. V. 52. № 11. P. 6608—6610.
- [5] Schuller J. K. // Phys. Rev. 1980. V. 44. № 24. P. 1597—1600.
- [6] Kim C. Qadru S. B., Lubitz P. et al. // Mater. Scien. Engineer. 1990. V. A126. P. 25—28.
- [7] International tables for X-ray Crystallography. Birmingham, Hynoch, 1976. V. 4.

Институт физики твердого тела
и полупроводников АН Белоруссии
Минск

Поступило в Редакцию
25 сентября 1991 г.
В окончательной редакции
15 апреля 1992 г.

