

Коэрцитивная сила и наведенная анизотропия многослойных пленок

© Л.А. Чеботкевич^{*,**}, Ю.П. Иванов^{*}, А.В. Огнев^{*,**}

^{*} Институт физики и информационных технологий Дальневосточного государственного университета, 690950 Владивосток, Россия

^{**} Институт автоматизации и процессов управления Дальневосточного отделения Российской академии наук, 690950 Владивосток, Россия

E-mail: lach@phys.dvgu.ru

(Поступила в Редакцию 20 февраля 2007 г.
В окончательной редакции 27 апреля 2007 г.)

Влияние отжига на кристаллическую и магнитную структуру, магнитные свойства пленок Co/Cu/Co с антиферромагнитной и ферромагнитной связью между слоями Co исследовалось методами просвечивающей электронной микроскопии, лоренцевой микроскопии, атомной силовой микроскопии, ферромагнитного резонанса и индукционным методом. Проведены теоретические оценки компонент коэрцитивной силы и наведенной анизотропии многослойных пленок. Показано, что в многослойных пленках при термической обработке поведение коэрцитивной силы и наведенной анизотропии обусловлено изменениями структурных дефектов и косвенной обменной связи.

Работа поддержана программой „Квантовые наноструктуры“ (грант ДВО РАН П1-005), Интеграционными проектами ДВО РАН с научными учреждениями Сибирского и Уральского отделений РАН (грант ДВО РАН 05-02-100-014).

PACS: 75.30.Gw, 75.60.-d, 75.70.-i

1. Введение

Коэрцитивная сила поликристаллических пленок определяется закреплением доменных стенок (ДС) потенциальным рельефом, создаваемым объемными (границами между зернами, разориентацией кристаллографических осей) и поверхностными (шероховатостями) неоднородностями. Эти неоднородности удовлетворяют условию $l \ll \delta$ (l — расстояние между неоднородностями, δ — ширина ДС) и образуют коротковолновый рельеф. Расчеты коэрцитивной силы, обусловленной структурными дефектами типа разориентации кристаллографических осей, были проведены в [1,2]. Авторы [3] также рассматривали движение гибкой ДС в поле структурных дефектов. При оценке коэрцитивной силы в [3] учитывались энергия взаимодействия ДС с дефектами, энергия, обусловленная изменением формы и площади ДС, энергия взаимодействия намагниченности с внешним полем и взаимодействия намагниченности с полями рассеяния. Учет изгиба ДС и подстраивания ее к рельефу пленки приводит к тому, что отдельные участки ДС перемещаются и закрепляются практически независимо. Последовательная статистическая теория закрепления гибкой ДС с помощью распределения структурных дефектов была разработана в [4]

$$H_0 = 0.74 \frac{\vartheta^{2/3}}{M_S D^{4/3} \gamma^{1/3} \delta^{1/3}}, \quad (1)$$

где M_S — намагниченность насыщения, D — толщина пленки, γ и δ — поверхностная плотность энергии и ширина ДС соответственно, ϑ — дисперсия силы взаимодействия, рассчитанная на единицу длины ДС.

В реальной пленке, где присутствуют различные независимые механизмы закрепления ДС, результирующая дисперсия имеет вид

$$\vartheta = \sum_i \vartheta_i.$$

Суммирование ведется по типу механизмов закрепления. Согласно закону сложения компонент H_0 , имеем

$$H_0^{3/2} = \sum_i H_{0i}^{3/2} = H_b^{3/2} + H_K^{3/2} + H_S^{3/2}, \quad (2)$$

где H_b , H_K и H_S — компоненты, обусловленные взаимодействием ДС с границами зерен, хаотически разориентированными кристаллитами и шероховатостями поверхности пленки соответственно.

При определении коэрцитивной силы многослойных пленок наряду с компонентой H_0 , обусловленной структурными дефектами, необходимо учитывать компоненту коэрцитивной силы, обусловленную косвенной обменной связью между ферромагнитными (ФМ) слоями. В работе [5] вычислена компонента коэрцитивной силы, обусловленная связью между ФМ- и антиферромагнитным (АФМ) слоями,

$$H_{ex} \sim \frac{J_S}{M_S d_0^2 d_f} \sqrt{\frac{d_0}{L}}, \quad (3)$$

где J_S — средняя энергия связи ближайших соседних ФМ- и АФМ-спинов в интерфейсах, d_0 и d_f — толщина разделяющего слоя и толщина ФМ-слоя соответственно, L — размер домена.

В многослойных пленках коэрцитивная сила должна определяться закреплением ДС структурными дефектами и связью между ФМ-слоями.

В поликристаллических пленках наряду с локальной кристаллографической анизотропией присутствует одноосная анизотропия, общая для всей пленки, которая наводится в процессе осаждения пленки на подложку. Согласно модели [6], в поликристаллических пленках происходит перераспределение точечных дефектов (вакансий, атомов остаточных газов) по границам зерен. В результате этого намагниченность в зерне больше намагниченности в межзеренной границе (МГ). В энергию наведенной анизотропии вносят вклад только межзеренные границы, расположенные перпендикулярно (или под углом) к направлению намагниченности [6]:

$$K_u^m = \frac{6\pi M^2(T)\gamma_i^2 c_0^2 a_b}{2R_c} \cdot \frac{\frac{8}{3}\pi M^2(T')\gamma_i^2 c_0 - \frac{3}{2}E\lambda_s(T')\Delta}{MkT'} \quad (4)$$

где $M(T)$ и $M(T')$ — намагниченность при температуре измерения и конденсации, c_0 — равновесная концентрация вакансий, λ_s — константа магнитострикции, R_c — размер зерна, a_b — ширина МГ, Δ — линейная дилатация решетки, k — постоянная Больцмана, N — число узлов решетки в 1 см^3 , γ_i — постоянная, характеризующая эффективность влияния дефектов на намагниченность, E — модуль Юнга.

Из-за сцепления пленки с подложкой после осаждения в ней возникает добавочная одноосная анизотропия магнитоупругого происхождения [6]:

$$K_u^s = \frac{3}{2}E\bar{\lambda}_s(T)\bar{\lambda}_s(T') \left[1 + \frac{2\pi M^2(T')a_b c_0^2 \gamma_i^2 \Delta}{NkT'\bar{\lambda}_s(T')R_c} \right],$$

$$K_u = K_u^m + K_u^s. \quad (5)$$

В многослойных пленках условия роста нижнего и верхних слоев различны. Одноосная анизотропия нижнего слоя наводится полем магнетрона, в то время как при осаждении верхних слоев в результате косвенной обменной связи между ФМ-слоями через немагнитную прослойку в них также наводится анизотропия. В этом случае тип связи (АФМ или ФМ) между ФМ-слоями будет определять формирование двухосной или одноосной анизотропии в пленках соответственно.

В настоящей работе исследуется корреляция магнитных параметров (коэрцитивной силы и наведенной анизотропии) с косвенной обменной связью и структурой многослойных пленок Co/Cu/Co с АФМ- и ФМ-связями при отжиге.

2. Методика эксперимента

Пленки Co/Cu/Co получали магнетронным распылением на постоянном токе в атмосфере рабочего газа Ar ($P_{\text{Ar}} = 5 \cdot 10^{-3}$ Торр). Пленки осаждали в одном технологическом цикле на монокристаллы (100) NaCl и на естественно окисленные монокристаллы (111) Si при комнатной температуре. Составная мишень диаметром 11 см состояла из двух секторов Co и Cu.

Толщину слоев контролировали по времени напыления. Скорость осаждения Co и Cu составляла 0.1 и 0.08 nm/s соответственно. Расстояние от мишени до карусели с подложками — 6 см. Толщина слоев Co $d_{\text{Co}} = 6$ nm, а толщина медной прослойки $d_{\text{Cu}} = 1.1, 1.6$ и 2.1 nm. Кристаллическую структуру пленок исследовали методами просвечивающей электронной микроскопии и электронной микродифракции, а шероховатость поверхности — атомной силовой микроскопией. Доменную структуру изучали методом лоренцевой микроскопии. Поле наведенной магнитной анизотропии H_u измеряли методом ФМ-резонанса, коэрцитивную силу — индукционным методом на автоматизированном вибрационном магнитометре. Магнитосопротивление измерялось четырехточечным компенсационным методом, за поле насыщения H_S принимали поле, измеренное на высоте $0.1(\Delta\rho/\rho)_{\text{max}}$ на кривой $\Delta\rho/\rho = f(H)$.

3. Результаты и их обсуждение

В работе исследовались пленки Co/Cu/Co с толщиной медной прослойки, соответствующей первому ($d_{\text{Cu}} = 1.1$ nm) и второму ($d_{\text{Cu}} = 2.1$ nm) АФМ-максимумам, и пленки с $d_{\text{Cu}} = 1.6$ nm, что соответствовало ФМ-связи между слоями Co [7].

На рис. 1 приведена температурная зависимость коэрцитивной силы H_C пленок Co/Cu/Co с АФМ- и ФМ-связями между слоями Co. Видно, что в пленках с ФМ-связью H_C при $T_{\text{ан}} > 250^\circ\text{C}$ возрастает и при $T_{\text{ан}} = 400^\circ\text{C}$ в 2 раза превосходит исходное значение. В пленках с АФМ-связью значение H_C увеличивается с температурой отжига до $T_{\text{ан}} = 250^\circ\text{C}$, а затем резко падает, приближаясь к значению коэрцитивной силы, соответствующей пленкам с ФМ-связью.

Результаты измерения H_C при изотермическом отжиге ($T_{\text{ан}} = 250^\circ\text{C}$) приведены на рис. 1, b. В пленках, связанных антиферромагнитно, коэрцитивная сила в первые 30 min отжига существенно возрастает, в то время как в пленках с ФМ-связью H_C изменяется незначительно.

Для того чтобы объяснить поведение коэрцитивной силы, приведенное на рис. 1, нами была исследована кристаллическая и магнитная структура данных пленок (табл. 1 и 2). Как показали электронно-микроскопические изображения и дифракция электро-

Таблица 1. Структурные параметры поликристаллических пленок Co/Cu/Co

$T_{\text{ан}}, ^\circ\text{C}$	$\langle R_c \rangle, \text{nm}$	$\langle h \rangle, \text{nm}$	$\langle l \rangle, \text{nm}$
0	6	1.15	160
150	6	0.77	225
200	7	0.65	250
250	8	0.61	280
300	19	0.73	255
350	25	1.44	190
400	26	1.62	120

Таблица 2. Магнитные параметры поликристаллических пленок Co/Cu/Co

$T_{\text{ан}}, ^\circ\text{C}$	$\langle L \rangle, \mu\text{m}$			$\delta, 10^{-5} \text{ cm}$	H_S, Oe			$\varphi, ^\circ$	
	ФМ	1АФМ	2АФМ		ФМ	1АФМ	2АФМ	ФМ	АФМ
20	11	0.43	3	3.2	400	900	800	10	26
150	11	0.52	3	3.25	400	1000	900	10	26
200	12	0.68	2	3.34	450	1700	1600	12	30
250	12	0.83	1.8	3.48	450	1900	1800	12	33
300	15	8	8	3.48	500	1300	1500	14	31
350	16	13	13	3.48	500	1200	1300	15	30
400	18	18	18	3.48	500	500	600		

Примечание. 1АФМ и 2АФМ — первый и второй АФМ-максимумы.

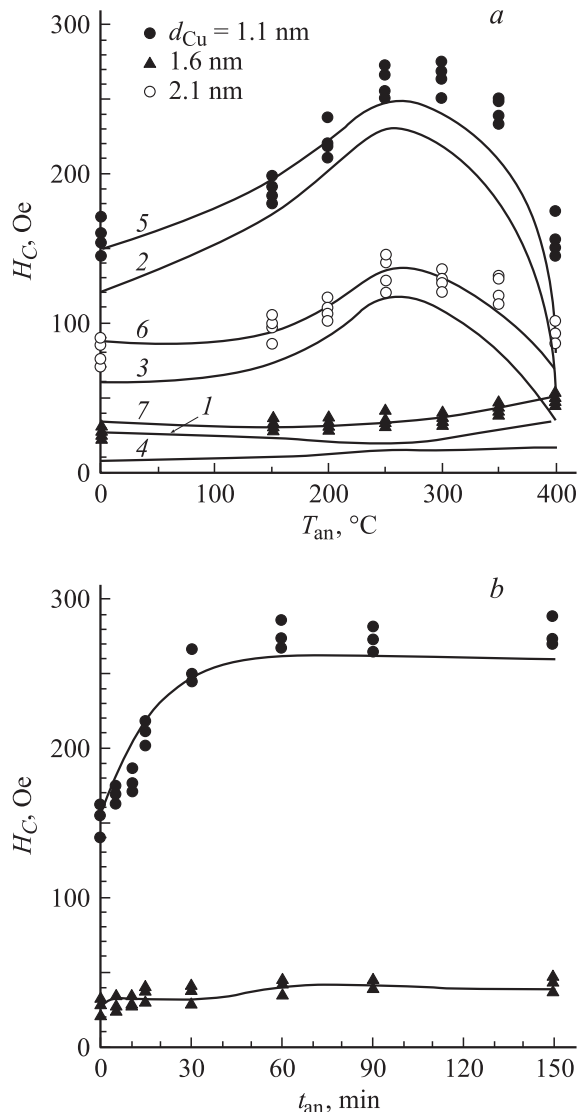


Рис. 1. Зависимость коэрцитивной силы от температуры отжига (а) и времени отжига при $T_{\text{ан}} = 250^\circ$ (b) пленок Co/Cu/Co. Точки — экспериментальные данные, сплошные линии — теоретически рассчитанные кривые: 1 — H_0 ; 2–4 — H_{ex} для пленок с $d_{\text{Cu}} = 1.1, 2.1$ и 1.6 nm соответственно; 5–7 — H_c для пленок с $d_{\text{Cu}} = 1, 2.1$ и 1.6 nm соответственно.

нов, все исследованные пленки имеют ультрадисперсную, поликристаллическую ГЦК-структуру. Структурные параметры (размер зерна $\langle R_c \rangle$, амплитуда $\langle h \rangle$ и период $\langle l \rangle$ шероховатостей) в пленках с АФМ- и ФМ-связями изменяются при отжиге одинаково. На рис. 2 приведено изображение доменной структуры пленок с АФМ- и ФМ-связями. Размер доменов в пленках с ФМ-связью существенно больше, чем в пленках с АФМ-связью, в то время как поле насыщения H_S пленок с АФМ-связью больше поля насыщения пленок с ФМ-связью. В пленках с $d_{\text{Cu}} = 1.1$ и 2.1 nm присутствуют области с АФМ- (между ДС одного контраста) и с ФМ- (между ДС разного контраста) связями. Несущественный рост зерна и сглаживание шероховатостей при $T_{\text{ан}} \leq 250^\circ\text{C}$ сопровождаются увеличением косвенной обменной связи между ФМ-слоями, что проявляется в увеличении поля насыщения H_S (табл. 2). При температуре $T_{\text{ан}} = 350^\circ\text{C}$ зерно увеличивается почти в 5 раз, возрастает амплитуда шероховатостей, в промежуточном слое образуются точечные отверстия (pinhole), что приводит к ФМ-связи между ФМ-слоями. Поэтому при $T_{\text{ан}} > 350^\circ\text{C}$ размер доменов и поле насыщения в пленках с различной толщиной Si-прослойки становятся одинаковыми.

Для теоретической оценки компонент коэрцитивной силы, обусловленных структурными дефектами, использовали формулы (1), (2).

$$\vartheta_b^{mc} = 2\pi^4(\Delta M)^4 a_b^2 D^2 n \langle b^2 \rangle / \delta$$

— дисперсия силы, обусловленная магнитостатическим взаимодействием ДС с границами между зернами,

$$\vartheta_b^{\sigma} = 9\pi^2 \lambda^2 (\Delta \sigma)^2 a^* b^2 D^2 n / 8\delta$$

— дисперсия силы, обусловленная упругим взаимодействием ДС с границами между зернами,

$$\vartheta_k^v = 1.8 K^2 R^2 D / \delta$$

— дисперсия силы, обусловленная разориентацией кристаллитов,

$$\vartheta_S = 48 M_S^3 D^{5/2} \gamma^{1/2} \delta^{1/2} h^{3/2} / l^2$$

— дисперсия силы, обусловленная шероховатостями поверхности пленки. Здесь дисперсия силы взаимодействия

рассчитана на единицу длины ДС

$$\vartheta = \frac{l}{L} \left(\sum_{i=1}^n F_i^2 - n \left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n F_i \right)^2 \right) / (n-1),$$

$\Delta M = M_S - M_b$ — скачок намагниченности на границе зерно-МГ, a_b , b и n — ширина, длина и плотность МГ, $\Delta\sigma$ — дисперсия напряжений МГ, a^* — область локализации упругих напряжений МГ, определяемая на $1/2\sigma_{\max}$ ($a^* = 1 \text{ nm}$ для большеугловых границ), K — константа кристаллографической анизотропии. Энергия и ширина ДС рассчитывались по формулам $\gamma = 4K_u\delta$ и $\delta = \pi\sqrt{2A/K_u}$, где K_u — наведенная магнитная анизотропия, A — константа обменного взаимодействия. Используя структурные и магнитные параметры, приведенные в табл. 1 и 2, величину H_0 оценивали по формуле (2) (кривая 1 на рис. 1). Эта компонента одинакова для пленок с АФМ- и ФМ-связями.

В многослойных пленках должна также присутствовать компонента коэрцитивной силы, обусловленная косвенной обменной связью между ФМ-слоями H_{ex} . По аналогии с работой [5] $H_{\text{ex}} = J_{\text{eff}}/M_S d_{\text{Co}} \sqrt{d_{\text{Cu}}/L}$, где J_{eff} — эффективная энергия косвенной обменной связи между слоями Co, L — средний размер домена, d_{Cu} — толщина разделяющего слоя. О силе косвенной обменной связи между ФМ-слоями можно судить по полю насыщения [8]: $J_{\text{eff}} = 1/2H_S M_S d_{\text{Co}}$. При оценке J_{eff} учитывали долю АФМ-связанных областей в пленках с толщиной Cu, соответствующей первому и второму АФМ-максимумам. Доля АФМ-связи (F) определялась из петель магнитного гистерезиса: $F = 1 - M_r/M_S$ [9], где M_r — остаточная намагниченность. Рассчитанные значения компоненты H_{ex} для пленок с АФМ- (кривые 2

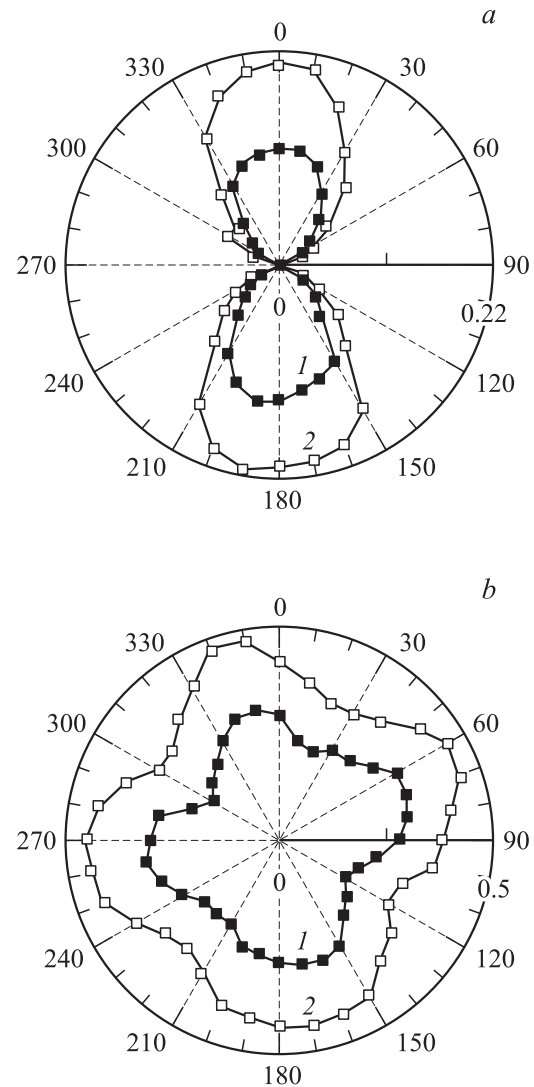


Рис. 3. Полярные диаграммы пленок Co/Cu/Co. *a* — с ФМ-связью между слоями Co. H_0, Oe : 1 — 20, 2 — 30. *b* — с АФМ-связью между слоями Co. H_0, Oe : 1 — 40, 2 — 60.

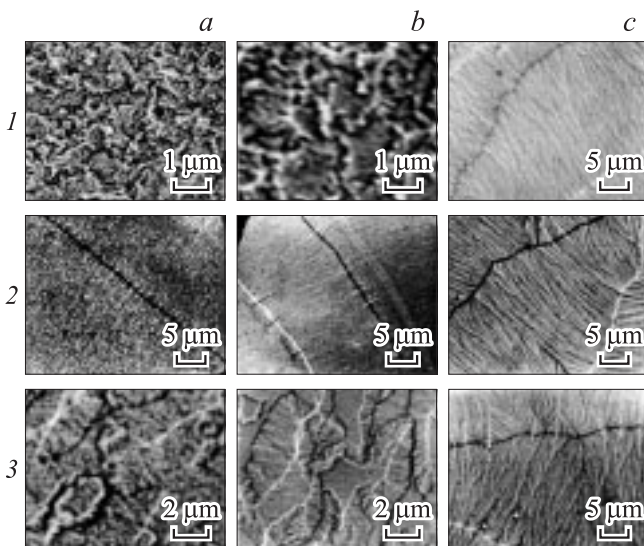


Рис. 2. Изображение доменной структуры пленок Co/Cu/Co. Горизонтальные ряды 1 и 3 — пленки с АФМ-связью с $d_{\text{Cu}} = 1.1$ и 2.1 nm соответственно, 2 — пленка с ФМ-связью ($d_{\text{Cu}} = 1.6 \text{ nm}$). Столбцы *a-c* — осажденные и отожженные при $T_{\text{ан}} = 250$ и 400°C пленки соответственно.

и 3) и ФМ-связями (кривая 4) приведены на рис. 1. Коэрцитивная сила исследуемых пленок $H_C = H_0 + H_{\text{ex}}$. На рис. 1 также приведены теоретически оцененные значения H_C для пленок с АФМ- (кривые 5 и 6) и ФМ-связями (кривая 7). Хорошее согласие теоретических оценок и экспериментально измеренных значений коэрцитивной силы подтверждает, что коэрцитивная сила многослойных пленок обусловлена структурными дефектами и косвенной обменной связью между ФМ-слоями.

Полярные диаграммы относительной намагниченности $M_H/M_S = f(\varphi)$ (M_H — намагниченность в поле) пленок Co/Cu/Co, полученные вращением магнитного поля в плоскости пленки на 360° с шагом 10° , приведены на рис. 3. Видно, что в малых полях пленки с ФМ-связью имеют одну ось легкого намагничивания (одноосная анизотропия) (рис. 3, *a*), а пленки с АФМ-

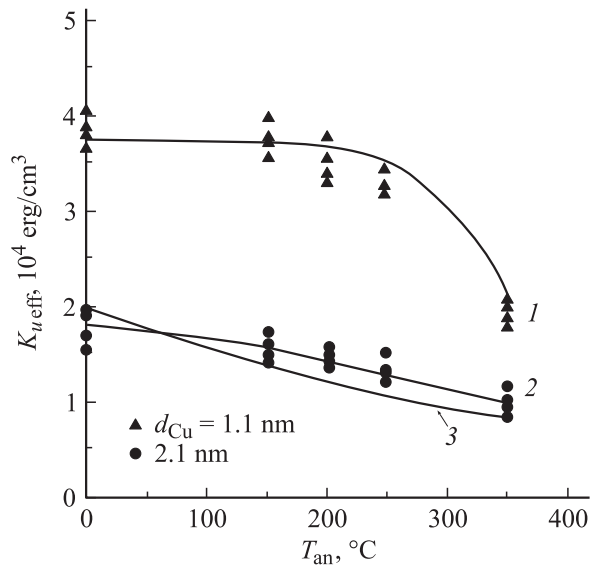


Рис. 4. Зависимость эффективной наведенной анизотропии пленок Co/Cu/Co от температуры отжига. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — теоретически оцененные значения для пленок с ФМ- (1) и АФМ-связью (2, 3).

связью имеют две равноценные оси легкого намагничивания (анизотропия высокого порядка) (рис. 3, б).

Реальная поликристаллическая пленка состоит из участков, в которых поле наведенной магнитной анизотропии H_u по направлению отличается от среднего поля по всей пленке $H_{u\text{eff}}$. Экспериментальные значения эффективной наведенной магнитной анизотропии $K_{u\text{eff}} = H_{u\text{eff}} M_S / 2$ для пленок с АФМ- и ФМ-связями приведены на рис. 4. Видно, что $K_{u\text{eff}}$ для пленок с ФМ-связью между Со-слоями в 2–2.5 раза больше, чем для пленок с АФМ-связью.

Для пленок с ФМ-связью наведенная анизотропия рассчитывалась по формуле $K_u = K_v + 2K_S/d_{\text{Co}}$ [10]. В этой формуле $K_v = K_u^m$, где K_u^m рассчитывалась по формуле (5). Так как пленки осаждались при комнатной температуре, компоненту K_u^s наведенной анизотропии не учитывали. Энергию поверхностной анизотропии определяли по формуле из работы [11] $K_S = K_0 + \Delta K_p + \Delta K_r + \Delta K_d$, где $K_0 = 3aNW$ — анизотропия идеальной границы раздела, a — постоянная решетки, $W = W_{\text{Co-Co}} + W_{\text{Cu-Cu}} + W_{\text{Co-Cu}}$ — энергия псевдодипольного взаимодействия атомов, $\Delta K_p = -0.6K_0$, $\Delta K_r = -2K_0(h/l)^2$, $\Delta K_d = -K_0(1 - a/l_d)$ — анизотропия, обусловленная поликристаллической структурой слоев, шероховатостью слоев и диффузионным размытием межфазной границы (l_d) соответственно. Значения рассчитанной эффективной наведенной анизотропии для пленок с ФМ- и АФМ-связями

$$K_{u\text{eff}} = K_u \cos 2\varphi \quad (6)$$

(φ — угол дисперсии намагниченности (табл. 2)), приведены на рис. 4 (кривые 1 и 2 соответственно).

При температуре отжига $T_{\text{an}} \geq 350^\circ\text{C}$, когда в пленках медная прослойка становится структурно-неплотной и между слоями Со устанавливается ФМ-связь, значения $K_{u\text{eff}}$ для всех пленок становится одинаковыми.

С другой стороны большая дисперсия вектора намагниченности приводит к биквадратичной компоненте J_2 косвенной обменной энергии. Энергию анизотропии для таких пленок можно представить в виде суммы энергий

$$K^{(2)} = K_u \cos^2 2(\vartheta_1 - \vartheta_2) + J_2/d_{\text{Co}} \cos^2(\vartheta_1 - \vartheta_2),$$

где первый член обусловлен структурными дефектами, ϑ_1 и ϑ_2 — углы между вектором намагниченности и осью легкого намагничивания в первом и во втором слоях Со. Величина J_2 определялась методом подгонки [12]. Разложив тригонометрические функции и введя обозначения $\vartheta_1 + \vartheta_2 = \alpha$, $\vartheta_1 - \vartheta_2 = \beta$, минимизировали энергию по углам α и β . Нашли значения углов, соответствующих минимальной энергии: $\vartheta_1 = \pi/2$, $\vartheta_2 = 0$ и $\vartheta_1 = 0$, $\vartheta_2 = \pi/2$. Константа двухосной анизотропии $K^{(2)} = -K_u \cos 2(\vartheta_1 - \vartheta_2) + J_2/2d_{\text{Co}}$. Теоретически оцененные значения $K^{(2)}$ приведены на рис. 4 (кривая 3). Видно, что теоретические кривые, рассчитанные с учетом дисперсии намагниченности и с учетом биквадратичной косвенной обменной связи, хорошо описывают экспериментальные результаты.

4. Заключение

Исследования многослойных поликристаллических пленок Co/Cu/Cu, полученных магнетронным методом, показали следующее.

1) При оценке коэрцитивной силы и наведенной магнитной анизотропии необходимо учитывать влияние структурных дефектов (границы между зернами, дисперсия кристаллографических осей, шероховатости поверхности) и косвенной обменной связи между ФМ-слоями.

2) В многослойных пленках с АФМ-связью между ФМ-слоями компонента коэрцитивной силы, обусловленная косвенной обменной связью, играет основную роль.

3) В многослойных пленках с ФМ-связью определяющей является компонента коэрцитивной силы, обусловленная структурными дефектами.

4) В одноосных многослойных пленках с ФМ-связью эффективная наведенная анизотропия обусловлена в основном распределением объемных и поверхностных неоднородностей.

5) В многослойных пленках с АФМ-связью при определении константы наведенной магнитной анизотропии необходимо учитывать влияние биквадратичной косвенной обменной связи или дисперсии вектора намагниченности.

Список литературы

- [1] H. Rother. *Z. Phys.* **168**, 283 (1962).
- [2] H. Hoffman. *IEEE Trans. Magn. Mag.* **MAG-9**, 17 (1973).
- [3] H.H. Hilzinger, H. Kronmiller. *J. Magn. Magn. Mater.* **2**, 11 (1975).
- [4] А.А. Иванов, И.В. Лобов, Ю.Д. Воробьев. *ФММ* **58**, 11 (1984).
- [5] S. Zang, D.V. Dimitrov, G.C. Hadjipanayis, J.W. Cai, C.L. Chien. *J. Magn. Magn. Mater.* **198**, 467 (1999).
- [6] А.Г. Лесник. *Наведенная магнитная анизотропия*. Наук. думка, Киев (1976). 160 с.
- [7] P. Bruno, C. Chappert. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1602 (1991).
- [8] S.O. Demokritov. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **31**, 925 (1998).
- [9] M.J. Hall, E.D. Whitton, D.B. Jardine, R.E. Somekh, J.E. Evetts, J.A. Leake. *J. Magn. Magn. Mater.* **156**, 119 (1996).
- [10] M. Kowalewski, C.M. Schneider, V. Heinrich. *Phys. Rev. B* **47**, 8748 (1993).
- [11] Д.Б. Розенштейн, М.Г. Тетельман, А.А. Фраерман. *Поверхность. Физика, химия, механика* **4**, 15 (1993).
- [12] А.С. Самардак, П.В. Харитонский, Ю.Д. Воробьев, Л.А. Чеботкевич. *ФММ* **98**, 27 (2004).