Магнитная анизотропия Co/Cu/Co пленок с косвенной обменной связью

© А.В. Огнев, А.С. Самардак, Ю.Д. Воробьёв, Л.А. Чеботкевич

Институт физики и информационных технологий Дальневосточного государственного университета, 690600 Владивосток, Россия

E-mail: lchebot@lemoi.phys.dvgu.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 4 ноября 2003 г.)

Исследовано поведение магнитной анизотропии, энергии билинейной и биквадратичной обменной связи и доменной структуры при изотермическом отжиге трехслойных пленок Co/Cu/Co c $d_{Co} = 6$ nm и $d_{Cu} = 1.0$ и 2.1 nm, полученных магнетронным распылением. Показано, что энергия биквадратичной связи в пленках с $d_{Cu} = 1.0$ nm при изотермическом отжиге уменьшается больше чем на порядок, а в пленках с $d_{Cu} = 2.1$ nm растет. Установлена связь магнитной анизотропии четвертого порядка с наличием биквадратичной обменной энергии.

Работа поддержана федеральной научно-технической программой "Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития науки и техники гражданского назначения" Минпрома России (грант № 3-02/ДВГУ в рамках государственного контракта № 40.012.1.1.1151) и Министерством образования (РД 02-1.2-50).

1. Введение

Межслоевая обменная связь между ферромагнитными слоями, разделенными немагнитными прослойками, играет ключевую роль в понимании многих свойств, наблюдаемых в многослойных пленках. Так, изменение характера полевой зависимости магнитосопротивления (или кривых намагниченности) при вращении пленки вокруг нормали к плоскости пленки совместно с энергией косвенной обменной связи между ферромагнитными слоями позволяет судить о порядке магнитной анизотропии многослойных пленок [1]. Любая многослойная структура, в которой оси легкого намагничивания неколлинеарны и направление намагниченности изменяется от слоя к слою, обладает анизотропией высокого порядка. В двух обменно-связанных пленках с одинаковой толщиной, намагниченностью и анизотропией оси легкого намагничивания которых взаимно перпендикулярны, в слабых магнитных полях выявляется двухосная анизотропия, равная $K_u/2E_b$, E_b — энергия связи [2]. В сильных магнитных полях анизотропия уменьшается пропорционально 1/H, и система постепенно становится изотропной. В полях $H \rightarrow 0$ проявляется двухосная и четырехосная анизотропия, которая мала при большой энергии связи между ферромагнитными слоями и в больших полях она убывает как $1/H^3$ [3,4].

В настоящей работе исследуется поведение биквадратичной обменной связи, магнитной анизотропии и доменной структуры при изотермическом отжиге и влияние энергии биквадратичной связи на магнитную анизотропию.

2. Методика эксперимента

Образцы Со/Си/Со получали магнетронным распылением на постоянном токе в атмосфере рабочего газа Ar $(P_{\rm Ar} = 5 \times 10^{-3} \, {\rm Torr})$. Пленки осаждали на монокристаллы (111)Si при комнатной температуре. Толщина слоев контролировалась по времени напыления. Скорость осаждения Со и Си составляла 0.1 и 0.08 nm/s соответственно. Исследовались пленки Со/Си/Со с толщиной слоев Со, $d_{\rm Co} = 6$ nm, а толщина медной прослойки составляла $d_{\rm Cu} = 1.0$ и 2.1 nm. Структура пленок исследовалась методами электронной микроскопии и дифракции электронов. Магнитосопротивление измерялось четырехточечным компенсационным методом в диапазоне магнитных полей от 0 до 10 kOe, петли магнитного гистерезиса снимались на автоматизированном вибромагнитометре. Изотермический отжиг пленок проводился при $T_{\rm ann} = 250^{\circ}$ C в вакууме 10⁻⁵ Torr.

3. Результаты и их обсуждение

Электронно-микроскопические изображения показали, что все исследуемые пленки являются поликристаллическими с размером зерен ~ 5 nm. Магнитная анизотропия трехслойных пленок исследовалась по кривым намагничивания, полученным в едином цикле при вращении пленки вокруг нормали к плоскости пленки с шагом 10°. На рис. 1 представлены полярные диаграммы $M/M_s = f(H, \varphi)$ трехслойной пленки с $d_{Cu} = 1.0 \,\mathrm{nm}$ (1-й антиферромагнитный (АФМ) максимум) для некоторых фиксированных значений магнитного поля. Видно, что в магнитных полях H = 100 и 250 Ое в осажденной пленке намагниченность достигает максимального значения во всех направлениях. В полях H = 20 и 60 Ое на кривых $M(H, \phi)$ присутствуют четыре максимума, что свидетельствует о наличии в пленке двухосной анизотропии. Вид полярных диаграмм в полях H = 100и 250 Ое не изменяется при изотермическом отжиге $(T_{ann} = 250^{\circ} \text{C})$. Однако диаграммы, полученные в полях H = 20 и 60 Ое, существенно изменяются с отжигом. После 30-минутного отжига два максимума на диаграм-



Рис. 1. Полярные диаграммы относительной намагниченности (M/M_s) пленки Co/Cu(1 nm)/Co: 1 - H = 20, 2 - 60, 3 - 100, 4 - 250 Oe; $a - t_{ann} = 0, b - 30, c - 230$ min.



Рис. 2. Полярные диаграммы относительной намагниченности (M/M_s) пленки Co/Cu(2.1 nm)/Co: 1 - H = 50, 2 - 100 и 3 - 150 Oe; $a - t_{ann} = 0, b - 30, c - 230$ min.

ме уменьшаются, и полярная диаграмма начинает приобретать вид вытянутого лепестка. Увеличение времени отжига до 230 min приводит к более четко выраженной форме лепестка, что свидетельствует о реализации в плоскости пленки одноосной магнитной анизотропии.

Полярные диаграммы относительной намагниченности пленки Co/(2.1 nm)Cu/Co (2-й АФМ максимум) после осаждения и после отжига приведены на рис. 2. В поле 150 Ое полярная диаграмма осажденной пленки изотропна. Однако диаграмма, снятая в поле 100 Ое (кривая 2), показывает неярко выраженную анизотропию высокого порядка. На кривых $M/M_s = f(H, \varphi)$, полученных в полях H = 100 и 150 Ое, после 30 min изотермического отжига четко выявляются четыре максимума, что свидетельствует о формировании в плоскости пленки магнитной анизотропии четвертого порядка, которая усиливается после отжига продолжительностью $t_{ann} = 80$ min.

Параметры билинейной J_1 и биквадратичной J_2 обменной связи определялись методом подгонки теоретических кривых намагничивания к экспериментальным кривым. Оказалось, что в исследуемых пленках после осаждения между слоями Со существует и билинейная, и биквадратичная связь (см. таблицу). В пленке с $d_{\rm Cu} = 1.0$ nm при увеличении времени отжига энергия билинейной связи возрастает и при $t_{\rm ann} = 80$ min выходит на насыщение. Энергия биквадратичной связи с увеличением времени отжига постепенно уменьшается и после 230 min отжига, когда пленка становится одноосной, $J_2 = -0.003 \text{ erg/cm}^2$.

Энергии билинейной и биквадратичной обменной связи в пленке с $d_{\rm Cu}=2.1\,{\rm nm}$ после изотермического

Магниторезистивное отношение и энергии билинейной и биквадратичной связи изотермически отожженных пленок Co/Cu/Co

d _{Cu} , nm	t _{ann} , min	$-J_1,$ erg/cm ²	$-J_2$, erg/cm ²	H_s , Oe	$K_u^{(2)}, 10^3$ erg/cm ³	$K_u^{(1)}, 10^3$ erg/cm ³	$\frac{\Delta \rho / \rho}{\%}$
1.0	0	0.05	0.017	550	60	10	1.4
	30	0.14	0.005	750	30	60	3.3
	80	0.14	0.04	790	25	110	3.4
	230	0.135	0.03	760	20	105	3.3
2.1	0	0.04	0.018	450	60	30	1.2
	30	0.075	0.043	570	70	25	2.2
	80	0.082	0.042	620	80	24	2.4
	230	0.085	0.04	630	85	22	2.4

Примечание. $K_u^{(1)}$ и $K_u^{(2)}$ — константы магнитной анизотропии второго и четвертого порядков соответственно, определенные методом подгонки теоретических кривых относительной намагниченности $\frac{M}{M_s} = f(H)$ и магниторезистивного отношения $\frac{\Delta \rho}{\rho} = f(H)$ к экспериментальным.

отжига увеличились в 2.1 и 2.2 раза соответственно (см. таблицу). Рост энергии биквадратичной связи привел к явно выраженной анизотропии четвертого порядка.

Таким образом, пленки, в которых между слоями Со существует биквадратичная связь, являются двухосными, а пленки, в которых $J_2 \rightarrow 0$ — одноосными. Очевидно, косвенная обменная связь наводит в верхнем слое Со двухосную анизотропию во время конденсации (или последующем изотермическом отжиге), так как условия роста нижнего и верхнего слоев различны. Одноосная анизотропия нижнего слоя Со наводится полем магнетрона. В верхнем слое Со анизотропия наводится магнитостатическим полем нижнего слоя и полем косвенного обменного взаимодействия нижнего слоя с растущим верхним слоем Со через промежуточный слой Си.

Отжиг приводит к росту эффективной косвенной обменной связи между ферромагнитными слоями $H_s = 2|J_{\rm eff}|/M_s d_{\rm Co}$, $J_{\rm eff} = J_1 + 2J_2$ [4], M_s — намагниченность насыщения (см. таблицу) и росту магнитосопротивления в обеих пленках, но соотношение между билинейной и биквадратичной компонентами связи после отжига зависит от толщины прослойки Cu. Как видно из рис. 1 и 2, изотермический отжиг пленки Co/(2.1 nm)Cu/Co приводит к увеличению энергии биквадратичной обменной связи и более ярко выраженной анизотропии четвертого порядка, в то время как в пленке Co/(1.0 nm)Cu/Co энергия биквадратичной обменной связи уменьшается на порядок ($J_2 \rightarrow 0$) и пленка становится одноосной.

В настоящее время предложено несколько источников биквадратичной связи между ферромагнитными слоями в многослойных пленках. Это модель флуктуаций билинейной связи [5], модель "свободного спина", обусловленная наличием атомов примеси в немагнитной прослойке либо ферромагнитных атомов на межфазной границе [6,7], и магнитно-дипольный механизм, обусловленный шероховатостями поверхности раздела [7]. В случае мелкозернистых поликристаллических трехслойных пленок, по всей видимости, реализуются два последних механизма. Наличие в пленках биквадратичной косвенной обменной связи между ферромагнитными слоями может приводить к неколлинеарному магнитному порядку только при услови
и $J_2 < - |J_1|/2 \ [8].$ Для наших пленок с $d_{\rm Cu} = 1$ и 2.1 nm, отожженных при $T_{\rm ann} = 250^{\circ}$ С, выполняется условие $J_1 - 2J_2 < 0; J_1 < 0.$ Это свидетельствует о том, что равновесному состоянию при H = 0 соответствует антиферромагнитное упорядочение магнитных моментов в смежных слоях Со.

Различное поведение биквадратичной связи при изотермическом отжиге пленок с $d_{\rm Cu} = 1$ и 2.1 nm, возможно, связано с "примесным" механизмом биквадратичной связи. Отжиг пленок при $T_{\rm ann} = 250^{\circ}{\rm C}$ сопровождается увеличением размеров зерен (до 10 nm) и диффузией атомов примеси к местам стоков, которыми в поликристаллических пленках являются межзеренные границы. Можно предположить, что в пленках с более тонкой



Рис. 3. Зависимость логарифма относительного электросопротивления от времени отжига в многослойной пленке Co/Cu.

прослойкой атомы примеси при данной температуре изотермического отжига быстрее уходят из прослойки, в результате чего в пленке с $d_{\rm Cu} = 1\,{\rm nm}$ наблюдается быстрое уменьшение отношения J_2/J_1 . Это подтверждают и рассчитанные значения коэффициента диффузии D. В некотором приближении для многослойных структур [9,10] коэффициент диффузии можно определить из соотношения $D = -(\Lambda^2/8\pi^2) \cdot d\ln(\rho_t/\rho_0)/dt$, где ρ_0 исходное удельное электросопротивление, ρ_t — удельное сопротивление после изотермического отжига в течение времени $t, \Lambda = d_{Co} + d_{Cu}$. Для этого была найдена зависимость логарифма относительного электросопротивления от времени отжига (рис. 3). Поведение зависимости $\ln(\rho_t/\rho_0) = f(t)$ свидетельствует о том, что в многослойных пленках Со/Си в зависимости от времени изотермического отжига наблюдаются две скорости диффузии. На участке 1 скорость диффузии равна $D_1 = 7 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$ /s, а на участке 2 $D_2 = 0.2 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$ /s. Процессы релаксации характеризуются энергией активации $Q = 0.15 \,\text{eV}$, что типично для отжига точечных дефектов и снятия внутренних напряжений.

Доменная структура пленок с $d_{\rm Cu} = 1$ и 2.1 nm исследовалась методом лоренцевой микроскопии для возможности одновременно наблюдать домены, доменные стенки и рябь намагниченности. Изображения доменной структуры показали, что в пленках реализуется частично антиферромагнитная, частично ферромагнитная связь (рис. 4). Рис. 4 показывает, что в пленках присутствуют связанные неелевские границы. Стенки Нееля в верхнем и нижнем слоях Со смещены друг относительно друга. На фотографиях АФМ области показаны стрелками. Видно, что изменение магнитной анизотропии в результате отжига сопровождается перестройкой доменной структуры. В осажденной пленке с $d_{Cu} = 1 \text{ nm}$ (рис. 4, *a*), в которой полярная диаграмма выявляет двухосную анизотропию, доменная структура сложная: в расположении доменных стенок отсутствует какая-либо геометрическая регулярность, есть участки, где доменные стенки



Рис. 4. Изображение доменной структуры пленок Co/Cu/Co: $a, b - d_{Cu} = 1, c, d - 2.1 nm; a, c$ — после осаждения, b, d — после отжига. Стрелки указывают области, в которых слои Со связаны антиферромагнитно.

замкнуты, размеры доменов малы ($\sim 0.43 \,\mu$ m). Такая доменная структура характерна для пленок с сильной косвенной обменной связью между ферромагнитными слоями. На изображении доменной структуры отожженной пленки (рис. 4, *b*) сохраняется сложная доменная структура. Однако размеры доменов увеличились почти в 2 раза (средний размер домена $\sim 0.83 \,\mu$ m), доменные стенки стали более протяженными.

В пленке с $d_{\rm Cu} = 2.1$ nm (полярная диаграмма показывает анизотропию высокого порядка) доменная структура более крупная (средний размер доменов ~ 3 µm), доменные границы более протяженные (рис. 4, *c*). Вид доменной структуры указывает на то, что в пленке имеется слабое преимущественное направление намагниченности. В пленке присутствуют области с АФМ и с ФМ связью между слоями Со. После отжига в пленке наблюдается ярко выраженная двухосная анизотропия (рис. 2, *b*) и доменная структура изменяется: доменные стенки теряют геометрическую ориентацию, становятся более "закрученными", а средний размер доменов уменьшается до 1.8 µm (рис. 4, *d*).

4. Заключение

Исследования мелкозернистых, поликристаллических трехслойных Co/Cu/Co пленок показали, что магнитная анизотропия четвертого порядка обусловлена наличием биквадратичной обменной связи между ферромагнитными слоями Co; поведение энергий билинейной и биквадратичной обменной связи между слоями Co при изотермическом, низкотемпературном отжиге зависит от толщины немагнитной прослойки. В пленках с магнитной анизотропией четвертого порядка реализуется сложная доменная структура, в которой в расположении доменных стенок отсутствует какая-либо геометрическая регулярность, доменные стенки замкнуты, размеры доменов малы.

Список литературы

- V.V. Ustinov, M.A. Milyaev, L.N. Romashev, T.P. Krinitsina, E.A. Kravtsov. J. Magn. Magn. Mater. 226-230, 1811 (2001).
- [2] А. Йелон. В кн.: Физика тонких пленок / Под ред. М.Х. Франкомба, Р.У. Гофмана. Мир, М. (1973). С. 392.
- [3] A. Yelon. J. Appl. Phys. 35, 770 (1964).
- [4] C.H. Marrows, B.J. Hickey, M. Herrmann, S. McVitie, J.N. Chapman, M. Ormston, A.K. Petford-Long, N.P.A. Hase, B.K. Tanner. Phys. Rev. B 61, 4131 (2000).
- [5] J.C. Slonczewski. Phys. Rev. Lett. 67, 3172 (1991).
- [6] J.C. Slonczewski. J. Magn. Magn. Mater. 150, 13 (1995).
- [7] S.O. Demokritov, E. Tsymbal, P. Grunberg, W. Zinn, I.K. Schuller. Phys. Rev. B 49, 720 (1994).
- [8] V.V. Ustinov, N.G. Bebenin, L.N. Romashev, V.I. Minin, M.A. Milyaev, A.R. Del, A.V. Semerikov. Phys. Rev. B 54, 21, 1 (1996).
- [9] P.M. Levy. J. Appl. Phys. 67, 10, 5914 (1990).
- [10] А.В. Болтушкин, В.М. Федосюк, О.И. Касютич. ФММ 75, 6, 58 (1993).