

05

## О влиянии микрокристаллической структуры на магнитные свойства ферромагнитных пленок и структур на их основе

© С.А. Гусев, Д.А. Татарский, А.Ю. Климов, В.В. Рогов, Е.В. Скороходов, М.В. Сапожников, Б.А. Грибков, И.М. Нефёдов, А.А. Фраерман

Институт физики микроструктур РАН,  
Нижний Новгород, Россия  
E-mail: tatarsky@ipmras.ru

(Поступила в Редакцию 19 июля 2012 г.)

Приведены результаты исследования влияния кристаллической структуры тонких пленок состава  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$ , полученных методом магнетронного напыления, на их магнитные свойства и свойства ферромагнитных наноструктур, сформированных из этих пленок с помощью оптической и электронной литографии. Экспериментально обнаружено, что магнитные свойства структур зависят от размеров кристаллических зерен, величиной которых можно управлять, нанося на подложку под ферромагнитную пленку дополнительные буферные слои различных материалов толщиной  $\sim 1\text{ nm}$ . Показано, что размер кристаллитов может оказаться главным фактором, ограничивающим минимальные латеральные размеры структур с заданными магнитными свойствами, формируемых из тонких ферромагнитных пленок.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ № 11-02-00294а, 11-02-00434, 11-02-00589а и 12-02-00988а, гранта молодых ученых фирмы „ОПТЭК“, Центра коллективного пользования „Физика и технология микро- и наноструктур“ (контракт № 16.552.11.7007) и Министерства образования и науки Российской Федерации, соглашение 8750 „Комплексная диагностика свойств функциональных металлических наноструктур“.

### 1. Введение

Известно, что в поликристаллических ферромагнетиках из-за наличия полей случайной анизотропии разрушается дальний порядок намагниченности и возникает новый характерный масштаб длины — ферромагнитная длина корреляции [1]. В отсутствие внешнего поля в энергии ферромагнетика со случайной анизотропией будет два основных слагаемых: обменная энергия и энергия кристаллографической анизотропии [2,3]. Пусть ось кристаллографической анизотропии является случайной функцией координат (т.е. ферромагнетик является поликристаллом), а характерный масштаб изменения оси анизотропии — размер одного кристаллического блока  $R_A$ . Тогда при минимизации энергии ферромагнетика возникает связь между ферромагнитной длиной корреляции (масштабом Имри–Ма)  $R_F$ , толщиной доменной стенки  $\delta$  и размером кристаллита

$$R_F \propto R_A \left( \frac{\delta^2}{R_A^2} \right)^{\frac{2}{4-d}}, \quad (1)$$

где  $d = 1, 2, 3$  — размерность ферромагнетика. Если толщина пленки меньше размеров кристаллитов, то ее размерность  $d = 2$  и длина корреляции  $R_F \propto \delta^2/R_A$ .

Для полного намагничивания пленки до насыщения необходимо преодолеть потенциальный барьер, связанный с наличием анизотропии в пленке. Разделив среднее значение энергии анизотропии на намагниченность насыщения, можно оценить коэрцитивную силу  $H_C$  и поле насыщения  $H_S$  и показать [2], что

$$H_S, H_C \propto R_A^{\frac{2d}{4-d}}. \quad (2)$$

Экспериментальное исследование зависимости (2) проводилось в ряде работ по ферромагнитным матери-

алам. В работе [4] исследовались нанокристаллические магнитные сплавы на основе Fe и Co, изучалось влияние других элементов сплава на размер зерен ферромагнитного материала и были получены зависимости коэрцитивной силы от величины кристаллитов. В работе [5] изучались пленки Fe и Ni толщиной 100–300  $\mu\text{m}$ , полученные методом конденсации в инертном газе с последующим отжигом. Авторы [5] определяли связь коэрцитивности с размерами ферромагнитных зерен. Поскольку толщина пленок значительно превосходила размер кристаллитов, такую пленку в модели случайной анизотропии можно считать объемной, полученная зависимость  $H_C \propto R_A^6$  хорошо согласовалась с теоретическими предсказаниями (1). Влияние подложки на структуру и свойства ферромагнетиков исследовалось и в работе [6], где авторы осаждали пленку Fe толщиной 150 nm на поверхность монокристалла KCl. В зависимости от условий последующего отжига они получали образцы с различным размером зерен и изучали связь коэрцитивной силы с величиной кристаллитов железа. В результате экспериментов было установлено, что  $H_C \propto R_A^{2.5}$ . Авторы всех этих работ отмечают, что модель случайной анизотропии неприменима в случаях, когда размер кристаллита превосходит характерную ширину доменной стенки в образце. В таких материалах коэрцитивная сила зависит от размеров зерен как  $1/R_A$ .

Как отмечено в [7], одним из способов управления микрокристаллической структурой пленок CoFe является использование буферных слоев из различных материалов. С другой стороны, необходимость дополнительных слоев под ферромагнитной пленкой диктуется технологическими особенностями, связанными с тем, какие

структуры будут формироваться из нее. Поэтому наличие случайной анизотропии может особенно существенно влиять и на магнитные свойства наноструктур, создаваемых на основе таких пленок. Следовательно, при выборе латеральных размеров формируемых магнитных структур необходимо учитывать не только толщину доменной стенки и размер кристаллита, но и ферромагнитную длину корреляции, величину которой следует знать для каждой конкретной экспериментальной ситуации.

## 2. Методы

В настоящей работе исследовались пленки из сплава  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  (толщина слоев варьировалась от 10 до 50 nm), а также различные структуры, сформированные из подобных пленок литографическими способами. Пленки изготавливались методом магнетронного напыления (рабочий газ — аргон, давление  $P \approx 4 \cdot 10^{-3}$  mm Hg, ток магнетрона  $I \approx 300$  mA, напряжение магнетрона  $U \approx 500$  V) при скорости роста  $v \approx 0.5$  nm/s. В качестве буферных слоев мы использовали слои оксида алюминия  $\text{AlO}_x$  или пермаллоя  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  толщиной  $\sim 1$  nm. Однотонные пленки использовались для создания магнитных наночастиц разной формы и изучения распределений намагниченности в них методом магнитно-силовой микроскопии (МСМ). Ферромагнитная длина корреляции влияет на распределение остаточной намагниченности в частицах. Для демонстрации этого влияния методом электронной литографии из пленок толщиной 30 nm на кремниевой подложке с разными буферными слоями были сформированы прямоугольные частицы размером  $3 \times 5 \mu\text{m}$ . Нами показано, что наблюдаемая методом МСМ доменная структура в частицах существенно зависит от размеров кристаллитов.

Другим способом диагностики магнитных свойств структур были магнитооптические исследования. Кривая намагничивания пленок получалась путем измерения угла вращения плоскости поляризации для излучения He-Ne-лазера с рабочей длиной волны 633 nm в меридиональной геометрии эксперимента.

Микрокристаллическая структура ферромагнитных пленок исследовалась методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) на приборе LIBRA 200МС. При этом были использованы два способа подготовки образцов. В первом варианте пленки ферромагнитных структур толщиной 30 nm наносились непосредственно на кремниевые диски диаметром 3 mm с прозрачными для электронов окнами — мембранами  $\text{Si}_3\text{N}_4$  толщиной 30 nm. Во втором случае пленки с ферромагнитными слоями толщиной 30 nm осаждались на пленку полиметилметакрилата (ПММА) толщиной 300 nm, нанесенного на Si-подложку. Для исследования в электронном микроскопе эти структуры отделялись от подложки в ацетоне. Способ подготовки образцов для этих исследований не оказал заметного влияния на средние размеры кристаллических зерен в пленках.

При формировании ферромагнитных наноструктур для практического применения мы чаще всего используем стандартные кремниевые подложки без дополнитель-

ного слоя ПММА, поэтому, естественно, сравнивались свойства пленок, осажденных на разных подложках. Магнитооптические измерения не показали заметной разницы в коэрцитивной силе у пленок, осажденных на чистый Si и на подложку с дополнительным слоем ПММА. Это позволяет нам предположить, что кристаллические зерна в этих пленках близки по размерам. Для подтверждения этого предположения мы планируем провести дополнительные ПЭМ-измерения.

Различный размер кристаллитов в разных слоях многослойных структур также может влиять на их магнитные свойства. Для проверки этой гипотезы были изготовлены и исследованы двухслойные структуры, обладающие туннельным магнитным сопротивлением, которые можно использовать в элементах магнитно-резистивной памяти [8]. На подложку кремния наносилось несколько слоев в последовательности: буферный слой пермаллоя  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  толщиной 1 nm, слой  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  (10 nm), буферный слой  $\text{AlO}_x$  (1 nm) и опять слой  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  (10 nm). Далее методами оптической и электронной литографии из пленок получались упорядоченные массивы квадратных частиц с латеральными размерами 2, 10 и 50  $\mu\text{m}$ . Из-за разной коэрцитивности верхнего и нижнего слоев  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  в двухслойных частицах существуют два устойчивых состояния намагниченности: параллельное и антипараллельное. В соответствии с теоретическими соображениями Имри и Ма [1] ступенчатые петли перемагничивания таких структур качественно должны быть связаны с их латеральными размерами, что и было продемонстрировано нами экспериментально.

## 3. Результаты и их обсуждение

На рис. 1 изображены петли перемагничивания двух пленок  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  с буферными слоями  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  и  $\text{AlO}_x$ .

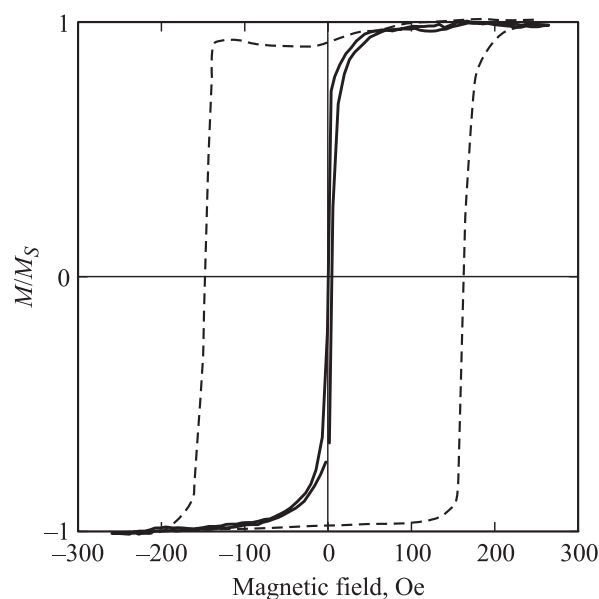
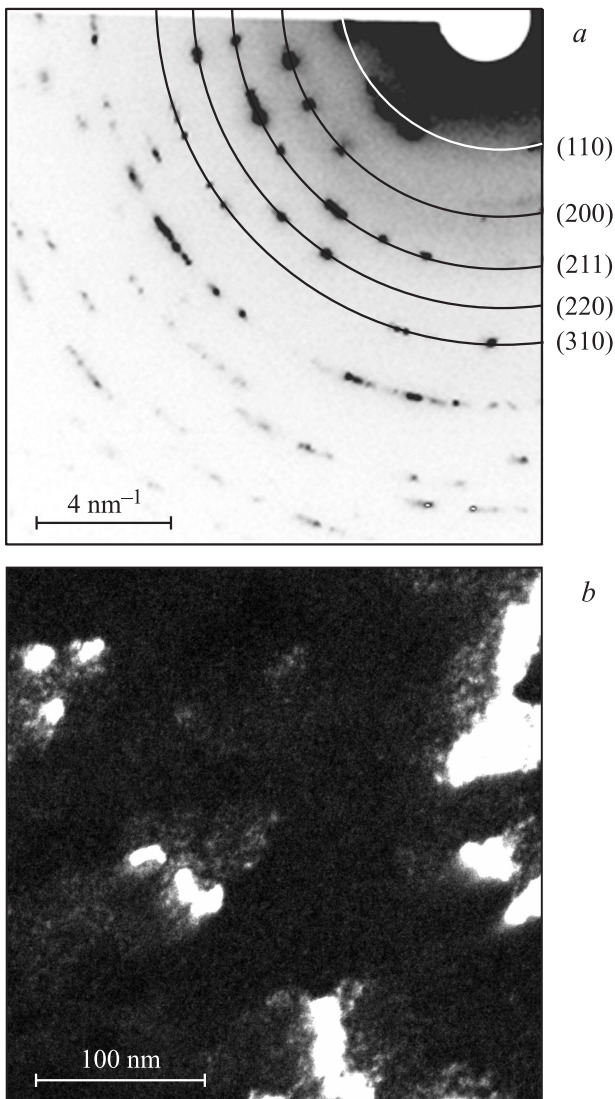


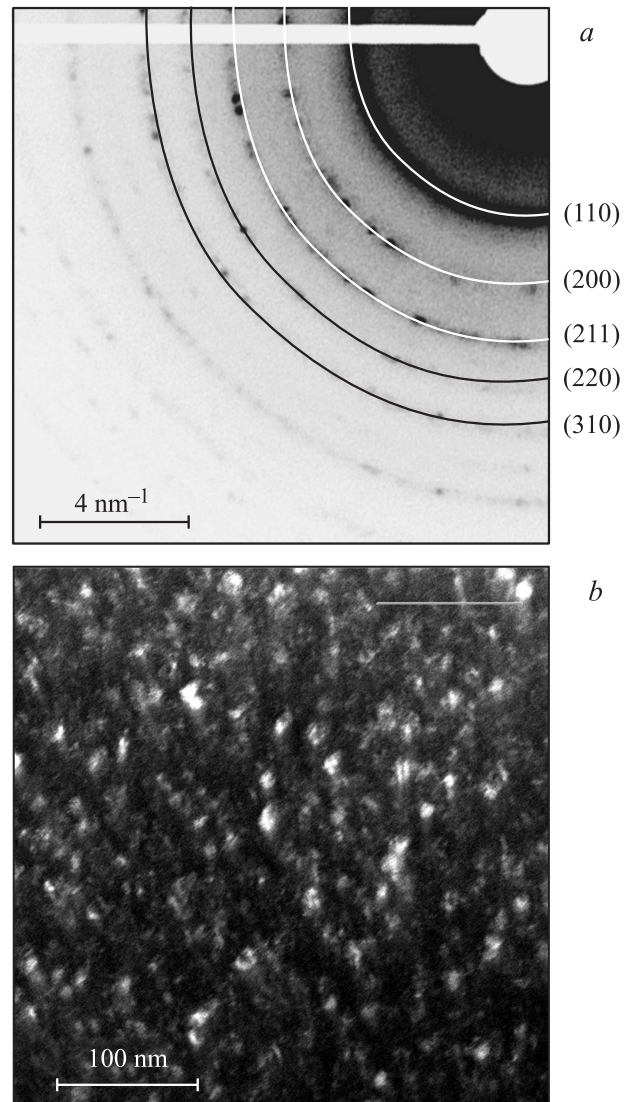
Рис. 1. Кривые перемагничивания пленок  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  толщиной 30 nm с буферным слоем  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  (сплошная линия) и с буферным слоем  $\text{AlO}_x$  (штриховая линия).

Хорошо видно, что коэрцитивная сила пленки на окиси алюминия на порядок превосходит коэрцитивность пленки с буферным слоем пермаллоя. В соответствии с базой данных порошковой дифракции PDF-2 твердые растворы  $\text{Co}_x\text{Fe}_{1-x}$  могут кристаллизоваться в двух пространственных группах кубической сингонии:  $Im\bar{3}m$  и  $Pm\bar{3}m$ . Расшифровка структуры колец микродифракции (рис. 2, *a* и 3, *a*) показала, что обе пленки независимо от буферного слоя принадлежат к пространственной группе  $Im\bar{3}m$ .

На микродифракционной картине присутствуют все разрешенные рефлексы, и их интенсивности (которые оценивались визуально) качественно совпадают с табличными значениями (расшифровка колец дифракции производилась с помощью программного обеспечения [9]). Это позволяет предположить, что пленки являются поликристаллическими. В дальнейших исследова-

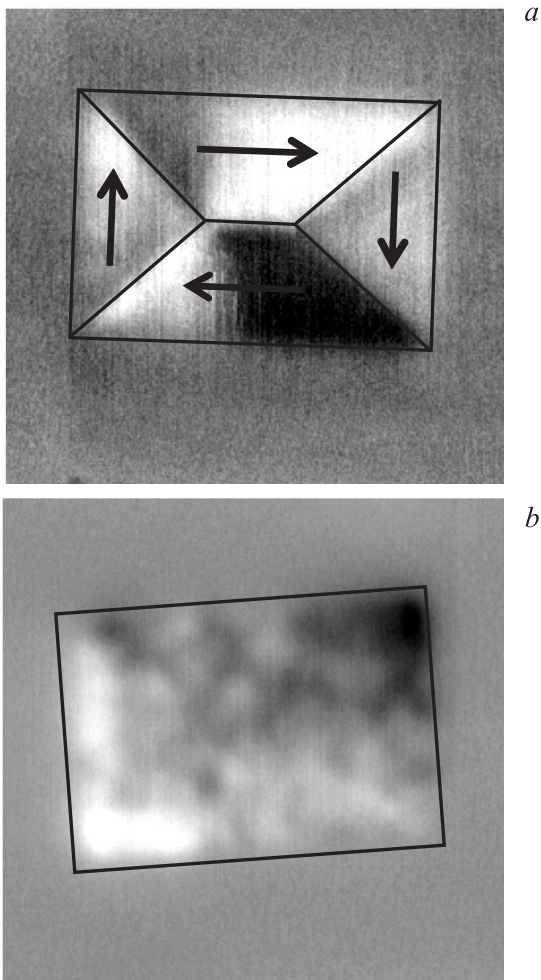


**Рис. 2.** Исследование пленки  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  (30 nm) с буферным слоем  $\text{AlO}_x$  методами просвечивающей электронной микроскопии. *a* — микродифракция, *b* — темнопольное изображение.



**Рис. 3.** Исследование пленки  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  (30 nm) с буферным слоем  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  методами просвечивающей электронной микроскопии. *a* — микродифракция, *b* — темнопольное изображение.

ованиях мы предполагаем провести количественные измерения для получения более точной информации о наличии или отсутствии преимущественной текстуры пленок. Из темнопольного изображения пленки  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{AlO}_x$  толщиной 30 nm видно, что характерный размер кристаллитов составляет 100–150 nm, тогда как для пленки  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{Ni}_3\text{Fe}$  той же толщины размер кристаллитов оценивается в пределах 20–30 nm. Таким образом, различие магнитных свойств пленок, возможно, связано с разным размером зерен поликристаллической структуры. Зная размер зерен и толщину доменной стенки  $\delta = \sqrt{J/K} \approx 70$  nm, где  $J$  — обменная константа,  $K$  — константа анизотропии [10], по формуле (1) можно оценить ферромагнитные длины корреляций  $R_F(\text{Ni}_3\text{Fe}) \approx 200$  nm и  $R_F(\text{AlO}_x) \approx 40$  nm. Напомним, что условие  $R_F \gg R_A$  определяет границы при-



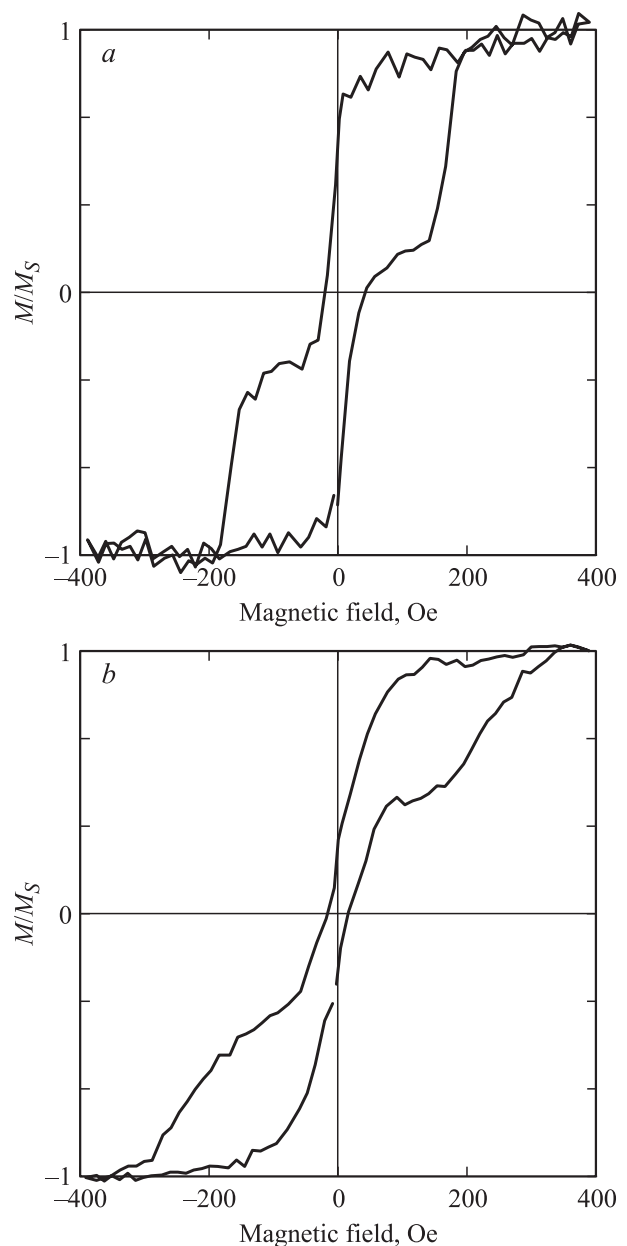
**Рис. 4.** Магнитосиловое изображение прямоугольных частиц из пленок  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$ . Размер кадра  $7 \times 7 \mu\text{m}$ . *a* — буферный слой  $\text{Ni}_3\text{Fe}$ , *b* — буферный слой  $\text{AlO}_x$ . В частице на части *a* хорошо видно состояние Ландау, в частице на части *b* состояние хаотическое.

менимости модели слабой случайной анизотропии. Как видно, для пленок  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{AlO}_x$  это условие нарушается, т. е. введение масштаба Имри–Ма теряет физический смысл, и в таких пленках намагниченность каждого кристаллита ведет себя независимо, что подтверждается экспериментально. Исследования прямоугольных частиц на магнитосиловом микроскопе показали (рис. 4), что в структурах из пленки с буферным слоем  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  формируется хорошо известная [11] доменная структура (рис. 4, *a*). В то же время распределение намагниченности в частице из пленки с буферным слоем  $\text{AlO}_x$  имеет хаотический характер (рис. 4, *b*).

Петли перемагничивания  $50$  и  $10 \mu\text{m}$  квадратных частиц на основе многослойных пленок качественно совпадают, поэтому на рис. 5 изображен только гистерезис  $10$  и  $2 \mu\text{m}$  частиц. В больших полях намагниченности в обоих слоях направлены вдоль поля. При переключении поля на противоположное вблизи  $0$  Ое намагниченность

более магнитомягкого слоя  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  ( $10 \text{ nm}$ ) с буферным слоем  $\text{Ni}_3\text{Fe}$  меняется, в то время как намагниченность жесткого слоя  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$  ( $10 \text{ nm}$ ) с буферным слоем  $\text{AlO}_x$  остается направленной против внешнего поля. Поэтому на рис. 5, *a* вблизи  $0$  Ое имеется „ступенька“, обусловленная переключением направления намагниченности магнитомягкого слоя. Петля гистерезиса для  $2 \mu\text{m}$  частиц (рис. 5, *b*) качественно отличается от петель, соответствующих  $10$  и  $50 \mu\text{m}$  частицам.

В дальнейшем планируется проведение более детальных исследований, связанных с изучением влияния масштаба Имри–Ма на магнитные свойства частиц на основе пленок  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{Ni}_3\text{Fe}$  в зависимости от их латеральных размеров.



**Рис. 5.** Гистерезис массива двухслойных частиц квадратной формы с длиной стороны  $10$  (*a*) и  $2 \mu\text{m}$  (*b*).

## 4. Заключение

В работе проведены исследования микрокристаллической структуры магнитных пленок  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}$ . Показано, что различия магнитных свойств пленок с разными буферными слоями обусловлены разным средним размером кристаллитов. Показано, что в пленках  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{Ni}_3\text{Fe}$  существует еще один характерный масштаб — ферромагнитная длина корреляции  $R_F(\text{Ni}_3\text{Fe}) \approx 200$  nm. В пленках же  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{60}/\text{AlO}_x$  условия слабой случайной анизотропии не выполняются.

Магнитооптические исследования двухслойных частиц показали, что существует связь между латеральными размерами этих элементов и их магнитными свойствами.

Авторы благодарят М.В. Миляева за полезное обсуждение.

## Список литературы

- [1] Y. Imry, S.-K. Ma. Phys. Rev. Lett. **32**, 1399 (1975).
- [2] H. Alben, J.J. Becker, M.C. Chi. J. Appl. Phys. **49**, 1653 (1978).
- [3] E.M. Chudnovsky, W.M. Saslow, R.A. Serota. Phys. Rev. B **33**, 251 (1986).
- [4] M.E. McHenry, D.E. Laughlin. Acta Mater. **48**, 223 (2000).
- [5] J. Echigoya, R. Yue. J. Mater. Sci. **40**, 3209 (2005).
- [6] J.F. Loffler, J.P. Meier, B. Doudin, J.-P. Ansermet, W. Wagner. Phys. Rev. B **57**, 2915 (1998).
- [7] H.S. Jung, W.D. Doyle, S. Matsunuma. J. Appl. Phys. **93**, 6462 (2003).
- [8] J.-G. Zhu. Proc. of the IEEE **96**, 1786 (2008).
- [9] C. Gammer, C. Mangler, C. Rentenber, H.P. Karthaler. Scripta Mater. **63**, 312 (2010).
- [10] V. Satya Narayana Murthy, C. Krishnamoorthi, R. Mahendiran, A.O. Adeyeye. J. Appl. Phys. **105**, 023 916 (2009).
- [11] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. Физматлит, М. (2005). С. 232.