

## Влияние давления рабочего газа на магнитные свойства и текстуру поликристаллических пленок Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100), полученных магнетронным распылением

© Ю.В. Никулин,<sup>1,2</sup> А.С. Джумалиев,<sup>1,2</sup> Ю.А. Филимонов<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> Саратовский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Саратов, Россия

<sup>2</sup> Саратовский национальный исследовательский университет им. Н.Г. Чернышевского, Саратов, Россия

<sup>3</sup> Саратовский государственный технический университет им. Ю.А. Гагарина, Саратов, Россия  
e-mail: yvnikulin@gmail.com

(Поступило в Редакцию 24 сентября 2015 г.)

Исследованы магнитные свойства и текстура поликристаллических пленок Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) толщиной 90 нм, полученных магнетронным распылением при различном давлении рабочего газа. Показано, что снижение давления может приводить к росту намагниченности пленок на 50% и уменьшению ширины линии ферромагнитного резонанса и поля коэрцитивности более чем на порядок. Указанные изменения магнитных свойств отражают смену текстуры пленок с Fe(110) на Fe(200) и переход от столбчатой микроструктуры к квазиоднородной.

### Введение

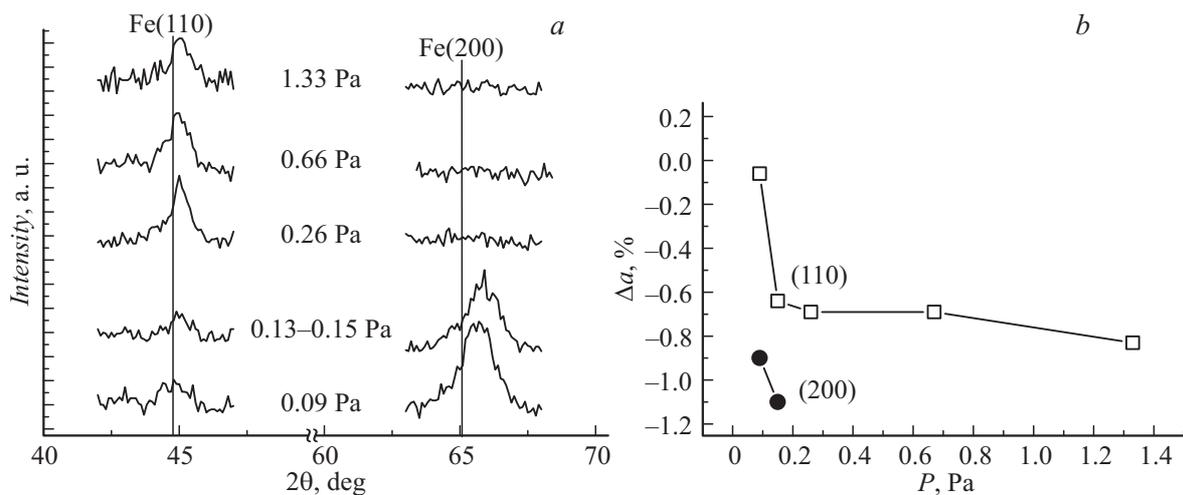
Разработке методов получения текстурированных поликристаллических пленок железа (Fe) на полупроводниковых подложках и исследованиям связи текстуры с магнитными параметрами и микроструктурным строением пленок уделяется большое внимание в связи с перспективами создания устройств спинтроники и магноники на их основе и возможностью их совмещения с интегральными полупроводниковыми технологиями [1–3]. В частности, текстурированные поликристаллические пленки Fe(100) представляют интерес с точки зрения создания сред для перпендикулярной магнитной записи [4], индукционных записывающих головок [5], магниторезистивных структур [6,7] и СВЧ устройств [8,9]. К этому следует добавить, что текстура пленок определяет их упругие свойства, что может оказаться важным для применения поликристаллических пленок железа в микроэлектромеханических системах [10]. Для роста пленок Fe на полупроводниковых подложках широко используют технологии электрохимического осаждения [11], молекулярно-лучевой эпитаксии [12], термического [13], ионного [14] и магнетронного [4–10,15–20] распылений. Последний метод характеризуется большим набором управляющих параметров [21] и позволяет управлять микроструктурой, кристаллографической текстурой и свойствами пленок за счет изменения температуры  $T_s$  и потенциала смещения  $U_s$  подложки, давления  $P$  и состава рабочего газа, бомбардировкой растущей пленки дополнительным пучком ионов, потенциалом (мощностью) магнетрона и расстоянием между магнетроном и подложкой [22–25]. Цель настоящей работы показать, что за счет снижения давления аргона  $P$  можно добиться существенного улучшения магнитных параметров пленок Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100), которое происходит на фоне смены

кристаллографической текстуры пленки с Fe(110) на Fe(100) и характера микроструктурного строения по толщине от столбчатого на квазиоднородный.

Следует отметить, что влияние давления аргона на кристаллографическую текстуру и магнитные свойства пленок Fe на неориентирующих подложках ранее уже обсуждалось [4,5,15–20]. Во всех перечисленных работах, за исключением работы [20], изменение лишь одного параметра  $P$  сопровождалось улучшением кристаллическости и магнитных параметров, но оказывалось недостаточным для смены текстуры пленки с Fe(110) на Fe(100). Поэтому для получения пленок Fe(100) использовалось добавление в рабочий газ кислорода [19], отжиг пленок при  $T_s \approx 873$  К, полученных при низких скоростях роста [4], осаждение на нагретую подложку ( $T_s \approx 773$  К) [17,15] или за счет отжига пленок Fe(110) при  $T_s \approx 873$  К [15]. То обстоятельство, что на неориентирующих подложках легче всего растут пленки железа с текстурой (110), связано с тем, что кристаллографическая плоскость Fe(110) характеризуется наименьшим значением поверхностной энергии [26]. В работе [20] было показано, что за счет только лишь снижения давления  $P$  для пленок Fe, осажденных магнетронным распылением на постоянном токе на подложки SiO<sub>2</sub>/Si(100), можно получить смену текстуры с (110) на (100). Однако влияние давления рабочего газа на магнитные параметры пленок Fe/SiO<sub>2</sub>/Si(100) в работе [20] не обсуждалось.

### Результаты и обсуждение

Магнетронное распыление проводилось в вакуумной установке ВУП-5 с базовым давлением 0.2 мПа. Для распыления использовалась мишень Fe (99.95%, Williams), а в качестве рабочего газа аргон марки ОЧ



**Рис. 1.** *a* — дифрактограммы пленок Fe толщиной  $d \approx 90$  nm, выращенных на подложках Si/SiO<sub>2</sub> при различном давлении рабочего газа  $P \approx 1.33$ –0.09 Pa при комнатной температуре подложки  $T_s \approx 293$  K. Вертикальными линиями показаны положения дифракционных линий Fe(110) и Fe(200) из базы данных Международного центра по дифракционным данным (JCPDS, карточка № 060696); *b* — зависимости изменения межплоскостного расстояния  $\Delta a$  для кристаллографических плоскостей (200) и (110) пленок Fe толщиной  $d \approx 90$  nm от давления рабочего газа  $P$ . В качестве эталонных значений межплоскостного расстояния  $d^{(110)} \approx 0.2028$  nm и  $d^{(200)} \approx 0.1434$  nm брались значения для порошкового поликристаллического железа (база данных Международного центра по дифракционным данным, карточка № 060696).

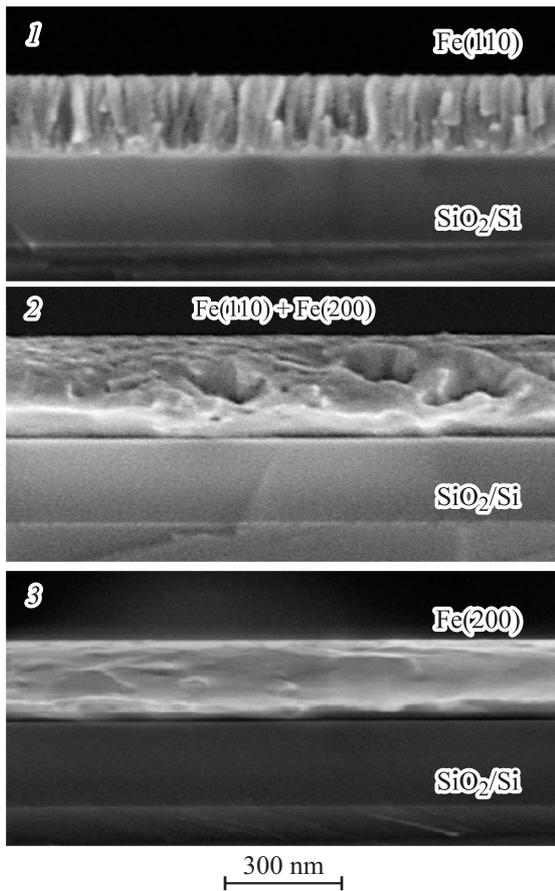
(99.998%). Давление рабочего газа менялось в диапазоне  $P \approx 0.09$ –1.33 Pa. При этом мощность разряда изменялась от 57 до 100 W, а скорость роста увеличивалась от  $v \approx 18$  до 30 nm/min. Расстояние от подложки до мишени составляло 75 mm. Пленки железа осаждались на подложки монокристаллического кремния Si(100) с термически окисленным слоем SiO<sub>2</sub> толщиной 0.3 μm. Среднеквадратичная шероховатость поверхности подложек составляла  $\sigma \approx 0.2$  nm. Перед напылением подложки очищались в ультразвуковой ванне с ацетоном и подвергались отжигу в вакууме при температуре 620–670 K в течение 30 min. Напыление проводилось на подложку при комнатной температуре  $T_s \approx 293$  K.

Кристаллическая структура пленок изучалась методом рентгеновской дифракции с помощью дифрактометра ДРОН-4 с фокусировкой по плоскому образцу в геометрии Брэгга–Брентано (схема  $\Theta$ – $2\Theta$  Cu– $K\alpha$ -излучение,  $\lambda \approx 0.15418$  nm). Микроструктура пленок изучалась с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) (Auriga, Carl Zeiss). Эффективная намагниченность насыщения  $4\pi M_s$  и ширина линии ферромагнитного резонанса  $\Delta H$  определялись методом ферромагнитного резонанса (ФМР) на частоте 9.9 GHz при комнатной температуре в касательной геометрии намагничивания аналогично [27]. Петли перемагничивания получались методом вибромагнитометрии (ВМ) при комнатной температуре в касательной к поверхности пленки геометрии намагничивания. Толщина пленок  $d$  определялась методом профилометрии (Dectak 150, Veeco) с точностью 5%. Выращенные пленки не покрывались защитным слоем перед извлечением на атмосферу.

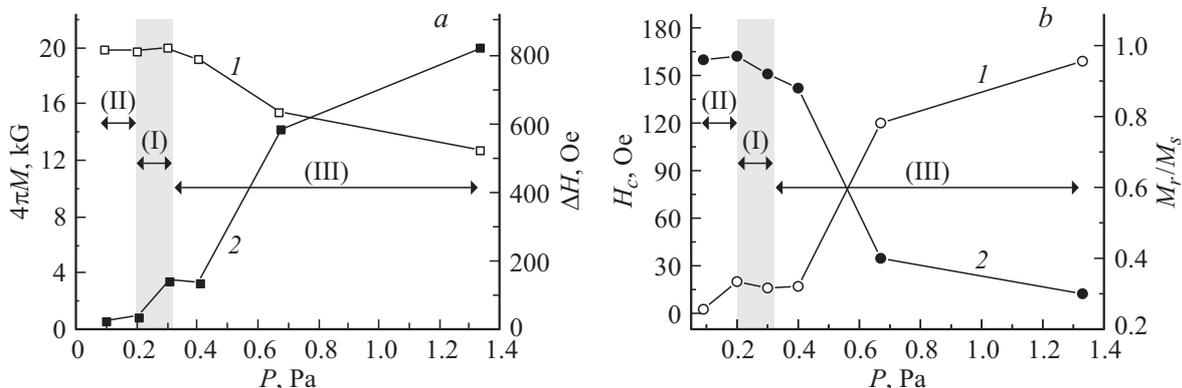
На рис. 1, *a* и 2 приведены дифрактограммы и изображения поперечного сечения пленок Fe, полу-

ченных при различных давлениях рабочего газа  $P$ . Из рисунков видно, что пленки Fe, осаждаемые при  $1.33 \leq P \leq 0.26$  Pa, формируются с текстурой (110) и столбчатой микроструктурой по толщине, тогда как в пленках, осаждаемых при  $P < 0.15$  Pa, формируется текстура (200) и квазиоднородная микроструктура. Пленки Fe(200), получаемые при  $P < 0.15$  Pa обладают лучшей текстурированностью и кристаллическостью по сравнению с пленками Fe(110), осаждаемыми при давлениях аргона  $1.33 \leq P \leq 0.26$  Pa. Это подтверждается большими значениями интенсивности дифракционной линии Fe(200) относительно интенсивности шумового сигнала.

Указанные изменения текстуры и микроструктуры осажденных пленок Fe при снижении давления рабочего газа  $P$  связаны с увеличением миграционной способности адсорбированных на подложке атомов (адатомов) железа и обсуждались в работах [20,28]. Нужно отметить, что стабилизация кристаллической фазы Fe(200) также достигается за счет минимизации энергии внутренних напряжений в пленке [29]. Поскольку для железа модуль Юнга в  $\langle 100 \rangle$  направлении  $Y^{[100]} \approx 130$  GPa почти вдвое меньше, чем в  $\langle 110 \rangle$  направлении  $Y^{[110]} \approx 219.2$  GPa [30], кристаллиты Fe(200) легче поддаются линейной деформации, чем кристаллиты Fe(110), и соответственно растягиваясь или сжимаясь, могут эффективно минимизировать упругие напряжения, возникающие в процессе роста пленки [29]. Данное предположение подтверждается зависимостью изменения межплоскостного расстояния  $\Delta a$  для кристаллографических плоскостей (200) и (110) от давления рабочего газа  $P$ , представленной на рис. 1, *b*. Из рисунка видно, что наиболее сильные изменения межплоскостного расстояния ( $\Delta a \approx 0.9$ –1.1%) проявляются в области



**Рис. 2.** СЭМ изображения поперечного сечения пленок Fe толщиной  $d \approx 300$  nm, выращенных при различном давлении рабочего газа  $P$ : 1 —  $P \approx 1.33$ – $0.5$  Pa, текстура (110), 2 —  $P \approx 0.2$  Pa, присутствуют две кристаллические фазы Fe(110) и Fe(200) без выраженного текстурирования, 3 —  $P \approx 0.13$ – $0.9$  Pa, текстура (200). Масштаб для рисунка  $b$  — 300 nm.



**Рис. 3.**  $a$  — зависимость эффективной намагниченности насыщения  $4\pi M_s$  (1) и ширины линии ФМР  $\Delta H$  (2) от давления рабочего газа  $P$ ;  $b$  — зависимость коэрцитивной силы  $H_c$  (1) и коэффициента прямоугольности петли гистерезиса  $M_r/M_s$  (2) от давления рабочего газа  $P$ . Толщина пленок  $d \approx 90$  nm. В интервале давлений  $0.2 < P < 0.26$  Pa (область I) в пленках присутствуют две кристаллические фазы Fe(110) и Fe(200) без выраженного текстурирования. Области давлений II и III отвечают текстурам Fe(200) и Fe(110) соответственно.

низкого давления рабочего газа ( $P < 0.2$  Pa), когда в пленке доминирует текстура (200).

Изменение кристаллического строения и микроструктуры пленок при снижении давления рабочего газа также сопровождается значительным улучшением их магнитных характеристик. На рис. 3 представлены зависимости  $4\pi M_s$ ,  $\Delta H$ ,  $H_c$  и  $M_r/M_s$  от давления рабочего газа  $P$  для пленок толщиной 90 nm. Из рис. 3,  $a$  видно, что с понижением  $P$  от  $P \approx 1.33$  до 0.09 Pa намагниченность насыщения  $4\pi M_s$  увеличивается почти в 1.5 раза и достигает значений  $4\pi M_s \approx 20$ – $20.5$  kG, что всего на 5–7% меньше значений  $4\pi M_s \approx 21.5$  kG для объемного железа [31]. При этом значения структурно-чувствительных параметров  $\Delta H$  и  $H_c$  уменьшаются в десятки раз с  $\Delta H \approx 820$  Oe и  $H_c \approx 160$  Oe при  $P \approx 1.33$  Pa, достигая значений  $\Delta H \approx 30$  Oe и  $H_c \approx 2.5$  Oe при  $P \approx 0.09$  Pa. Увеличение значений  $4\pi M_s$  и уменьшение  $\Delta H$  и  $H_c$  при снижении давления рабочего газа  $P$  может быть связано с тем, что в диапазоне давлений  $P \approx 0.13$ – $0.09$  Pa пленки Fe(200) имеют более высокую структурную однородность, являются менее пористыми и обладают более высокой кристаллическостью. Известно, что увеличение кристаллическости пленки приводит к увеличению координационного числа кристаллической структуры, рост значений которого может оказывать влияние на величину намагниченности  $4\pi M_s$  пленки [32]. Нужно отметить, что столбчатая структура пленок, осаждаемых при высоких давлениях рабочего газа  $P \approx 0.5$ – $1.33$  Pa, подразумевает наличие большого количества дефектов в виде межзеренных границ и аморфизированных областей, которые, являясь структурными дефектами, также способствуют увеличению  $H_c$  и  $\Delta H$ . При этом большую ширину линии ФМР в пленках Fe(110) следует связать с доминирующим вкладом процессов двухмагнного рассеяния [33,34] в пленках со столбчатой структурой.

Снижение давления рабочего газа приводит также к изменению характера перемагничивания пленки. Из рис. 3, *b* видно, что пленки, осажденные при  $P \approx 0.09\text{--}0.13$  Па, имеют петли гистерезиса с коэффициентом прямоугольности  $M_r/M_s \approx 0.9\text{--}0.95$ , что свидетельствует о формировании оси легкого намагничивания в плоскости пленки. Увеличение давления рабочего газа до  $P \approx 0.5\text{--}1.33$  Па приводит к уменьшению коэффициента прямоугольности до  $M_r/M_s \approx 0.3\text{--}0.4$  и переходу к закритическим петлям гистерезиса [35]. Малые значения отношения  $M_r/M_s$ , характерные для закритических петель гистерезиса, могут быть связаны с формированием в пленке поля перпендикулярной магнитной анизотропии обусловленного анизотропией формы кристаллитов пленок со столбчатой микроструктурой.

## Заключение

Таким образом, в работе показано, что при магнетронном осаждении пленок железа на подложку Si/SiO<sub>2</sub> снижение давления рабочего газа с  $P \approx 1.33$  до 0.09 Па наряду со сменой текстуры пленок с Fe(110) на Fe(200) и изменения микроструктуры со столбчатой на квазигоризонтальную приводит к увеличению  $4\pi M_s$  в 1.5 раза, снижению  $\Delta H$  почти в 30 раз,  $H_c$  почти в 60 раз и переходу от закритических ( $M_r/M_s \approx 0.3\text{--}0.4$ ) петель гистерезиса к прямоугольным ( $M_r/M_s \approx 0.9\text{--}0.95$ ). Указанное улучшение магнитных характеристик пленки связывается с улучшением структурной однородности и кристалличности пленки при снижении давления рабочего газа с  $P \approx 1.33$  до 0.09 Па. Отметим, что подходы к управлению текстурой, микроструктурой и магнитными свойствами пленок ферромагнитных металлов могут представлять интерес при создании многослойных структур на основе пленок Fe(200) и сред с перпендикулярной магнитной анизотропией [4]. Кроме того, полученные результаты по влиянию давления на микроструктуру и текстуру пленок показывают их взаимосвязь и дополняют зонную модель формирования микроструктуры пленок [22–25], наносимых на не ориентирующие подложки методом магнетронного распыления.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 16-37-60052).

## Список литературы

- [1] Prinz G.A. // Science. 1998. Vol. 282. P. 1660–1663.
- [2] Boeck J. De, Van Roy W., Motsnyi V., Liu Z., Dessein K., Borghs G. // Thin Sol. Film. 2002. Vol. 412. P. 3–13
- [3] Tsai C.S., Su J., Lee C.C. // IEEE Trans. Magn. 1999. Vol. 35. N 5. P. 3178–3180.
- [4] Nakagawa S., Kamiki T. // J. Magn. Magn. Mater. 2005. Vol. 287. P. 204–208.
- [5] Seiko W., Hoshia Y., Shimizu H. // J. Magn. Magn. Mater. 2001. Vol. 235. P. 196–200.
- [6] Colino J.M., Shuller I.K., Schad R., Potter C.D., Belien P., Verbanck G., Moshchalkov V.V., Bruynseraede Y. // Phys. Rev. B. 1996. Vol. 53. P. 766–769.
- [7] Duluard A., Nequlescu B., Hehn M., Lacour D., Lu Y., Lengaigne G., Moutaigne F., Robert S., Suiere S., Tiusan C. // Appl. Phys. Lett. 2012. Vol. 100. P. 072408-1-4.
- [8] Khivintsev Y.V., Kuanr B.K., Harward I., Camley R.E., Celinski Z. // J. Appl. Phys. 2006. Vol. 99. N 8. P. 08P512-1-3.
- [9] Никулин Ю.В., Хивинцев Ю.В., Филимонов Ю.А. // Гетеромагнитная микроэлектроника. 2008. № 5. С. 70–78.
- [10] Cantwell P.R., Kim H., Schneider M.M., Hsu H.-H., Peroulis D., Stach E. A., Strachan A. // J. Microelectromechanical Systems. 2012. Vol. 21. N 4. P. 840–849.
- [22] Jartych E., Chocyk D., Budzynski M., Jalochowski M. // Appl. Surf. Sci. 2001. Vol. 180. P. 246–254.
- [12] Martinez Boubeta C., Clavero C., Garcia-Martin J.M., Armelles G., Cebollada A., Balcells L., Menéndez J.L., Peiró F., Cornet A., Michael F. Toney // Phys. Rev. B. 2005. Vol. 71. P. 014407-1-10.
- [13] Wei H., Zhan Q.-F., Wang D.-Y., Chen L.-J., Sun Y., Cheng Z.-H. // Chin. Phys. 2007. Vol. 16. N 11. P. 3541–3544.
- [14] Ishiwata N., Wakabayashi C., Matsumoto T. // IEEE Trans. Magn. 1987, Vol. 23. N 5. P. 2152–2154.
- [15] He H., Zha C.L., Ma B., Zhang Z.Z., Jin Q.Y. // J. Magn. Magn. Mater. 2007. Vol. 310. P. 2656–2658.
- [16] Javed A., Morley N.A., Gibbs M.R.J // Appl. Surf. Sci. 2011. Vol. 257. P. 5586–5590.
- [17] Kim Y.K., Oliveria M. // J. Appl. Phys. 1993. Vol. 74. P. 1233–1241.
- [18] Meydan T., Kockar H. // J. Optoelectron. Advanc. Mater. 2004. Vol. 6. N 2. P. 633–636.
- [19] Takebayashi S., Shimokawa K. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 69. P. 5673.
- [20] Джумалиев А.С., Никулин Ю.В., Филимонов Ю.А. // Письма в ЖТФ. 2013. Т. 39. Вып. 21. С. 10.
- [21] Кузьмичев А.И. Магнетронные распылительные системы. Киев: Аверс, 2008. 244 с.
- [22] Мовчан Б.А., Демчишин А.В. // Физика металлов и металловедение. 1969. Т. 28. С. 83–90.
- [23] Thornton J.A. // Ann. Rev. Mater. Sci. 1977. Vol. 7. P. 239–260.
- [24] Barna P.B., Adamik N. // Thin Sol. Films. 1998. Vol. 317. P. 27–33.
- [25] Petrov I., Barna P.B., Hultmuan A., Greene J.E. // J. Vac. Sci. Technol. A. 2003. Vol. A21. N 5. P. S117–S128.
- [26] Wang S.G., Tian E.K., Lung C.W. // J. Phys. Chem. Sol. 2000. Vol. 61. P. 1295–1300.
- [27] Высоцкий С.Л., Джумалиев А.С., Филимонов Ю.А. // РЭ. 2000. Т. 45. № 2. С. 209–213.
- [28] Джумалиев А.С., Никулин Ю.В., Филимонов Ю.А. // РЭ. 2012. Т. 57. № 5. С. 1–8.
- [29] Thompson C.V. // Annu. Rev. Mater. Sci. 2000. Vol. 30. P. 159–190.
- [30] Zhang J.-M., Zhang Y., Xu K.-W., Ji V. // Physica B. 2007. Vol. 390. P. 106–111.
- [31] Такадзуми С. Физика ферромагнетизма. Магнитные свойства вещества / Пер. с японского. М.: Мир, 1983. 304 с.
- [32] Zhong W.H., Chang Q.S., Li S. // Sol. Stat. Commun. 2004. Vol. 130. P. 603–606.
- [33] Arias R., Mills D.L. // Phys. Rev. B. 1999. Vol. 63. N 10. P. 7395–7409.
- [34] Яковлев Ю.М., Генделев С.Ш. Монокристаллы ферритов в радиоэлектронике. М.: Советское радио, 1975. 360 с.
- [35] Кринчик Г.С. Физика магнитных явлений. М.: Изд-во МГУ, 1985. 174 с.