

05.2

## **Влияние химической обработки на магнитные свойства ферромагнитных тонкопленочных систем**

© *Е.Е. Шалыгина, А.В. Агапонова, О.Н. Тараканов,  
И.А. Рыжиков, А.Н. Шалыгин*

Московский государственный университет  
Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, Москва  
E-mail: shal@magn.ru

*Поступило в Редакцию 12 января 2011 г.*

Представлены результаты магнитооптических исследований влияния химической обработки на морфологию поверхности и локальные магнитные характеристики тонких пленок сплава FeN и тонкопленочных систем, состоящих из слоев оксида кремния и FeN субмикронной толщины. Обнаружено сильное влияние химического травления изучаемых образцов при наличии магнитного поля на морфологию их поверхностей и магнитные свойства. Найдено, что локальные значения поля насыщения и коэрцитивной силы химически обработанных тонкопленочных систем сильно различаются, что обусловлено появлением неоднородностей на поверхности образцов и, как следствие, усилением влияния полей рассеяния на измеряемые характеристики.

В настоящее время большое внимание уделяется разработке новых магнитомягких материалов для высокочастотных практических приложений в микроэлектронике. При этом благодаря миниатюризации электронных магнитных устройств наибольший интерес представляют тонкопленочные магнитные образцы, в том числе многослойные системы, представляющие собой чередование магнитных и немагнитных слоев субмикронной толщины. Перспективными для этой цели являются магнитные пленки FeN и многослойные структуры на их основе. Особенность пленок FeN состоит в том, что индукция насыщения этих сплавов выше, чем чистых пленок железа (порядка 2.8–3 Т, вместо 2.2 Т) [1–3]. Кроме того, экспериментально обнаружено, что наличие азота в этих сплавах сдвигает частоту ферромагнитного резонанса к более высоким частотам [4]. Следует отметить, что характер частотной зависимости магнитной проницаемости в гигагерцовом диапазоне ча-

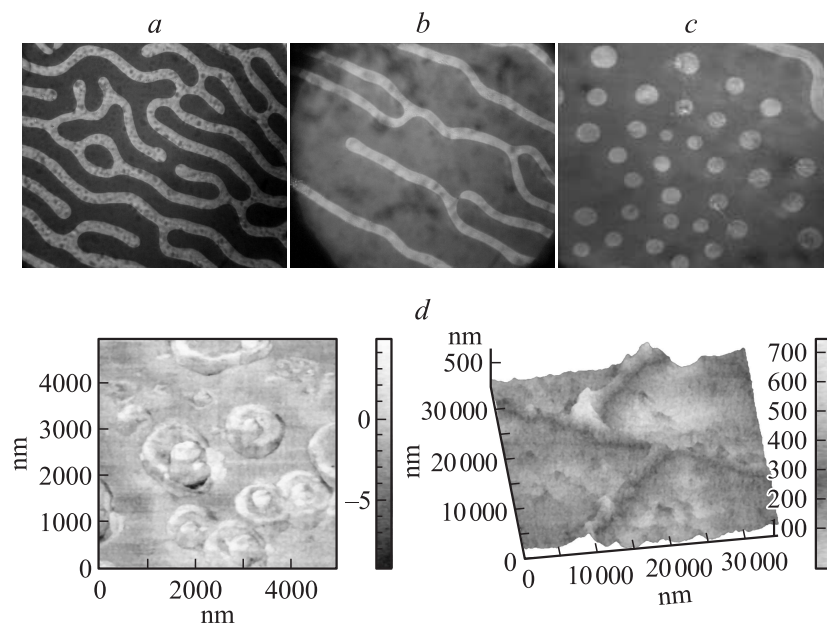
стот зависит от микромагнитной структуры (равновесного распределения намагниченности) тонкопленочных систем, которая в свою очередь в значительной степени зависит от морфологии слоев.

Известно, что расширение функциональности магнитных сплавов связано с изучением особенностей их взаимодействия с активными компонентами внешней среды. Повышающая насыщенность окружающей среды сильными магнитными полями требует понимания механизмов их влияния на химические процессы, протекающие на поверхности магнитных материалов, а именно процессы магнитной коррозии. В связи с этим заслуживающими особого внимания являются исследования магнитохимических явлений в тонкопленочных системах, обусловленные процессами окисления/растворения при наличии магнитного поля. Анализ этих процессов возможен путем химического травления FeN тонкопленочных систем в магнитном поле с последующим изучением их физических свойств. Целью данной работы является исследование влияния морфологии поверхности на магнитные свойства исходных и химически обработанных FeN пленок и тонкопленочных систем на их основе.

Изучаемые образцы были получены методом магнетронного распыления железа в атмосфере Ar при давлении  $10^{-4}$  mm Hg. Парциальное давление азота было порядка 5%. Тонкопленочные системы представляли собой слои оксида кремния и сплава FeN. Толщина однослойных магнитных образцов FeN  $t_M$  была равна  $0.25 \mu\text{m}$ . В трехслойных тонкопленочных системах значение  $t_M$  было равно  $0.07 \mu\text{m}$ , а полная толщина образцов, включая разделительный оксидный слой, была  $0.25 \mu\text{m}$ . Образцы были химически обработаны уксусной и фосфорной кислотой при наличии магнитного поля  $H$ , приложенного либо параллельно, либо перпендикулярно их поверхности. Значение  $H$  варьировалось от 50 до 300 Oe.

Исследование морфологии поверхности, а также локальных магнитных свойств описанных выше тонкопленочных систем было соответственно выполнено с помощью высокоразрешающего микроскопа, сопряженного через цифровую камеру с компьютером, и метода сканирующей Керр микроскопии.

Известно, что химическое травление пленок сопровождается изменением морфологии их поверхностей, в частности, появлением рельефных образований, обуславливающих усиление полей рассеяния. Изучение влияния химического травления на морфологию поверхностей тонкопленочных систем было выполнено с помощью хорошо



**Рис. 1.** Типичные картины доменной структуры висмутсодержащей ФГ пленки, находящейся в оптическом контакте с изучаемой однослойной ферромагнитной FeN пленкой: *a* — без химической обработки; *b*, *c* — соответственно после обработки 35%-ной уксусной кислотой при наличии параллельного перпендикулярного плоскости образца магнитного поля  $H = 50$  Oe; *d* — изображение, полученное методом атомно-силовой микроскопии: левая и правая панели соответствуют случаям *b* и *c*.

известного метода, основанного на использовании низкоэрцитивной феррит-гранатовой (ФГ) пленки в качестве индикатора полей рассеяния [5]. Исходная висмутсодержащая ФГ пленка в нулевом магнитном поле имела характерную для этих материалов лабиринтную доменную структуру, которая наблюдалась с помощью двойного эффекта Фарадея. Затем доменная структура ФГ-пленки наблюдалась при оптическом контакте с поверхностью изучаемых тонкопленочных систем. Было обнаружено, что доменная структура ФГ-пленки в случаях исходных и прошедших химическую обработку без магнитного поля FeN образцов

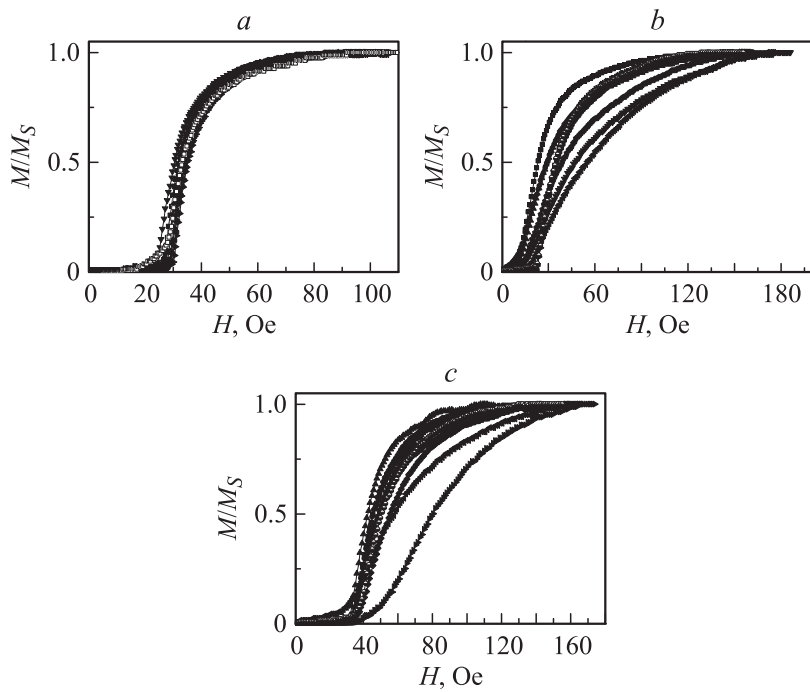
различается незначительно, а после химической обработки в магнитном поле существенно изменяется. Для иллюстрации этого факта на рис. 1 приведены типичные картины доменной структуры, наблюдаемые для висмутсодержащей ФГ-пленки, находящейся в оптическом контакте с исходной однослойной ферромагнитной пленкой FeN и обработанными 35%-ной уксусной кислотой при наличии магнитного поля. Из рис. 1 можно видеть, что в случае исходного образца FeN доменная структура ФГ-пленки остается лабиринтной, а после травления пленок раствором 35%-ной уксусной кислоты при наличии магнитного поля, параллельного или перпендикулярного поверхности образцов, наблюдаются соответственно полосовые и цилиндрические домены. Этот факт свидетельствует о видоизменении распределений полей рассеяния на поверхности изучаемых тонкопленочных систем, которое обусловлено появлением дефектов продолговатой и круглой формы после травления образцов в магнитном поле. Аналогичные данные были получены при травлении трехслойных образцов, а также при травлении изучаемых тонкопленочных систем раствором фосфорной кислоты. Объяснение данных, приведенных на рис. 1, может состоять в следующем. При обработке пленки железа уксусной кислотой железо на ее поверхности может вступать в реакцию с образованием оксидов и оксалатов железа. Известно, что нормальный электродный потенциал железа в водных растворах его солей для реакции  $\text{Fe} = \text{Fe}^{3+} + 3\text{e}$  равен 0.036 V (оксид железа I), а для реакции  $\text{Fe} = \text{Fe}^{2+} + 2\text{e}$  составляет 0.44 V (оксид железа II). Из этого следует, что образование оксида I будет на порядок меньше, чем II. В целом на поверхности пленок железа протекают следующие реакции: 1) образование оксида железа II, который имеет оранжевый окрас и растворяется в кислотах с образованием соответствующих солей; 2) образование оксида железа I; 3) образование оксалата железа, который растворим в воде. В результате происходит вытравливание поверхности пленки с образованием соответствующего рельефа из водорастворимых солей, который обуславливает поля рассеяния. Проведенные нами оценки показали, что высота наблюдаемого рельефа зависит от скорости химической реакции в присутствии магнитного поля и без него. Объяснение этого факта состоит в следующем. Магнитное поле влияет на скорость реакции образования оксида и травления поверхности железа по магнитоспиновому механизму [6]. Известно, что химическая реакция — это физический процесс перегруппировки атомов и перестройки электронных оболочек реагирующих частиц, в результате которого образуются новые частицы — продукты

реакции. Магнитный принцип управления химическими реакциями основан на селективности этих процессов к угловому моменту молекул (в молекулярных процессах) и угловому моменту электронов (спину) и ядер реагирующих в химических реакциях частиц [6]. Изменение углового момента индуцируется магнитными взаимодействиями, энергия которых в обычных условиях мала по сравнению с химической, т.е. в данном случае принцип управления химическими реакциями имеет не энергетическую, а спиновую природу. По этой причине скорости спин-селективных процессов зависят от магнитных взаимодействий, которые изменяют спин реагирующих частиц и снимают (частично или полностью) спиновые запреты. Скорости этих процессов зависят от величины и направления внешнего (постоянного и высокочастотного) магнитного поля [6].

Следует отметить, что исследования образцов после их обработки уксусной кислотой в параллельном и перпендикулярном магнитном поле с помощью метода атомно-силовой микроскопии подтвердили наличие рельефных образований на их поверхностях (рис. 1, *d*), которые имели соответственно продолговатую и круглую форму. Было найдено, что шероховатость пленок FeN до химической обработки не превышает 20 nm, а после травления в магнитном поле  $H = 50$  Oe появившиеся на поверхности образцов области круглой и продолговатой формы представляют собой рельефные выступы, высота которых порядка 250–300 nm.

Дальнейшие исследования показали, что величина внешнего магнитного поля, приложенного во время химической обработки образцов, также сильно влияет на скорость реакции образования окисла и травления поверхности. Это приводит к тому, что с увеличением значения магнитного поля, приложенного при химическом травлении образцов, появляющийся рельеф на их поверхности, предопределяющий распределение полей рассеяния, усиливается.

Далее с помощью метода сканирующей керр-микроскопии было изучено влияние описанных выше изменений морфологии поверхности тонкопленочных систем на их магнитные свойства. На магнитооптическом микромагнетометре, описанном в работе [7], для исходных и химически обработанных образцов были измерены локальные кривые намагничивания. Измерения были выполнены при регистрации магнитооптического сигнала с участка поверхности диаметром 50  $\mu\text{m}$  с шагом, равным 0.5 nm. На рис. 2 приведены локальные кривые намагничивания,



**Рис. 2.** Приповерхностные локальные кривые намагничивания, наблюдаемые для исходной FeN однослойной пленки (a) и после ее обработки 35%-ной уксусной кислотой в магнитном поле  $H = 50$  Oe, приложенном параллельно (b) и перпендикулярно (c) поверхности образца. Перемагничивающее магнитное поле было приложено параллельно легкой оси намагничивания образцов. Измерения выполнены при регистрации магнитооптического сигнала с участка поверхности диаметром  $50 \mu\text{m}$  с шагом, равным  $0.5 \text{ mm}$ .

наблюдаемые для однослойной пленки до и после ее обработки уксусной кислотой в магнитном поле  $H = 50$  Oe, приложенном в процессе травления параллельно или перпендикулярно поверхности образцов. Предварительные исследования показали, что изучаемые тонкопленочные системы характеризуются плоскостной магнитной анизотропией, обусловленной наличием внешнего магнитного поля, приложенного параллельно плоскости подложки в процессе напыления тонкопленочных

образцов (наведенная магнитная анизотропия) [8]. Представленные на рис. 2 кривые намагничивания были измерены при перемагничивании образцов внешним магнитным полем, приложенным параллельно оси легкого намагничивания. Из рис. 2 можно видеть, что локальные кривые намагничивания исходных образцов практически совпадают, а после травления однородность локальных магнитных свойств существенно понижается. В целом анализ полученных данных показал, что различия локальных значений поля насыщения  $H_S^{loc}$  исходных тонкопленочных систем не превышают 5–6%, а после травления становятся порядка 15 и 20–30% соответственно для однослойных и трехслойных образцов. При этом значения  $H_S^{loc}$  увеличиваются примерно в 1.7 раза по сравнению с исходными образцами. При травлении изучаемых тонкопленочных систем фосфорной кислотой наблюдались аналогичные изменения значений  $H_S^{loc}$ . Более того, в этом случае химическая обработка образцов осуществлялась при наличии магнитного поля  $H = 100, 200$  и  $300$  Ое. Было обнаружено, что с ростом значений  $H_S^{loc}$  возрастает в 1.5 раза. Очевидно, что обнаруженная неоднородность локальных магнитных свойств химически обработанных тонкопленочных систем обусловлены описанными выше изменениями морфологии их поверхностей, в частности, появлением приповерхностных рельефных образований, которое сопровождается усилением влияния полей рассеяния на изучаемые характеристики.

В заключение, исследования FeN тонкопленочных систем, показали, что химическое травление образцов при наличии магнитного поля сильно влияет на морфологию их поверхностей. Установлено, что доменная структура феррит-гранатовой пленки, используемой в качестве индикатора полей рассеяния вблизи поверхности изучаемых пленок, существенно изменяется для образцов, химически обработанных в магнитном поле. Обнаружено, что исходные образцы характеризуются достаточно высокой однородностью локальных магнитных свойств. В частности, различие локальных значений поля насыщения  $H_S$  не превышает 5–6%. найдено, что после травления образцов различие локальных значений  $H_S$  существенно повышается, а их абсолютные значения  $H_S$  увеличиваются по сравнению с исходными образцами. Этот экспериментальный факт был объяснен появлением рельефных образований на поверхности указанных образцов и, как следствие, усилением влияния полей рассеяния на измеряемые характеристики.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 10-02-00485-а).

## Список литературы

- [1] *Takahashi M., Hatakeyama I., Kim T.K.* // Czech. J. Phys. 1971. V. B21. P. 574–576.
- [2] *Komuro Y., Kozomo M., Hanazono and Y. Sugita* // J. Appl. Phys. 1990. V. 67. P. 5126–5130.
- [3] *Kim T.K., Takahashi M.* // Appl. Phys. Lett. 1972. V. 20. P. 492–494.
- [4] *Getman A.M., Maklakov S.A., Osipov A.V., Rozanov K.N., Ryzhikov I.A., Sedova M.V., Starostenko S.N., Radkovskaya A.A., Belousova V.A.* // Proceedings of Moscow International Symposium on Magnetism, Moscow, 2005. С. 32.
- [5] *Рандошкин В.В., Червоненкис А.Я.* // Прикладная магнитооптика. М.: Энергоиздат, 1990. С. 256.
- [6] *Зельдович Я.Б., Бучаченко А.Л., Франкевич Е.Л.* // УФН. 1988. Т. 155. № 1. С. 3.
- [7] *Shalyguina E.E., Shin Kyung-Ho, Bekoeva L.M.* // J. Magn. Magn. Mat. 2000. V. 215–216. P. 472–475.
- [8] *Chikazumi S.* // Physics of Magnetism. New York–London–Sydney: John Willey&Sons, Inc., 2001. P. 554.