

# Влияние кристаллической структуры и межслоевой обменной связи на коэрцитивную силу Co/Cu/Co-пленок

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

Дальневосточный государственный университет,  
690950 Владивосток, Россия

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 20 сентября 2002 г.)

Исследовались трехслойные пленки Co/Cu/Co/Si(111) с разной толщиной прослойки Cu, полученные магнетронным распылением. Показано, что величина коэрцитивной силы осциллирует с изменением толщины немагнитной прослойки. Отмечена хорошая корреляция между полем насыщения и коэрцитивной силой. Экспериментально установлено, что при изменении структуры пленок отжигом в широком диапазоне температур изменяется косвенная обменная связь между слоями Co. Проведен качественный анализ поведения коэрцитивной силы при изменении силы и типа связи между ферромагнитными слоями.

Работа поддержана федеральным бюджетом Российской Федерации, подпрограмма „Актуальные направления в физике конденсированных сред“ федеральной научно-технической программы „Исследование и разработки по приоритетным направлениям развития науки и техники гражданского назначения“ Минпром России (договор № 3-02/ДВГУ в рамках государственного контракта № 40.012.1.1.1151).

Повышенный интерес к металлическим мультислойным наноструктурам связан с открытием в них гигантского магнорезистивного эффекта, благодаря которому многослойные магнитные структуры нашли применение [1,2]. Одна из особенностей магнитных наноструктур — это осцилляция обменной связи между ферромагнитными слоями от ферромагнитной к антиферромагнитной в зависимости от толщины немагнитной прослойки. Для случая металлических прослоек в настоящее время предложено большое число различных моделей, объясняющих осциллирующий характер связи: РККУ-модель [3,4], модель свободных электронов [5,6], модель квантовых ям [7] и *sd*-смешанная модель [8]. Осцилляции косвенной обменной связи приводят к осцилляциям магнитных и магнорезистивных свойств многослойных структур.

В данной работе исследуется влияние кристаллической структуры и косвенной обменной связи между ферромагнитными слоями Co на величину коэрцитивной силы Co/Cu/Co-пленок.

## 1. Приготовление образцов

Образцы Co/Cu/Co получали магнетронным распылением на постоянном токе в атмосфере рабочего газа Ar при  $P_{Ar} = 5 \cdot 10^{-3}$  Торр. Пленки осаждали на монокристаллы (111)Si при комнатной температуре. Толщина слоев контролировалась по времени напыления. Скорость осаждения Co и Cu составляла 0.1 и 0.08 nm/s соответственно. В работе исследовались пленки Co/Cu/Co с толщиной слоев Co  $d_{Co} = 6$  nm, а толщина медной прослойки  $d_{Cu}$  варьировалась от 0 до 2.6 nm. Структура пленок исследовалась методами электронной микроскопии и дифракции электронов. Намагниченность и коэрцитивную силу  $H_C$  измеряли индукционным методом на автоматизированном вибромагнетроне, поле насыщения определяли из магнорезистивных петель.

## 2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Все исследуемые пленки получены в одном технологическом цикле (при одинаковой температуре подложки, при одинаковом давлении рабочего газа) и осаждались на одинаковые подложки. Можно предположить, что и кристаллическая структура этих пленок будет одинакова. Действительно, картины электронной микродифракции и электронно-микроскопические изображения структуры показали, что все исследуемые пленки поликристаллические с размером зерна порядка 5–6 nm.

На рис. 1 приведена зависимость  $H_C = f(d_{Cu})$  для поликристаллических трехслойных пленок Co/Cu/Co. Коэрцитивная сила определялась по магнитной петле гистерезиса. Видно, что с изменением толщины про-

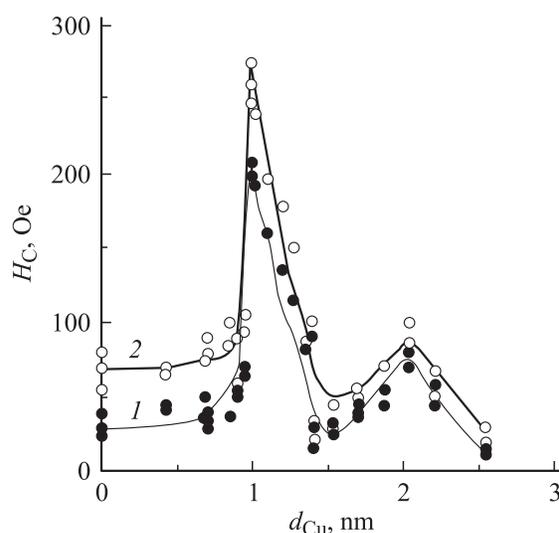
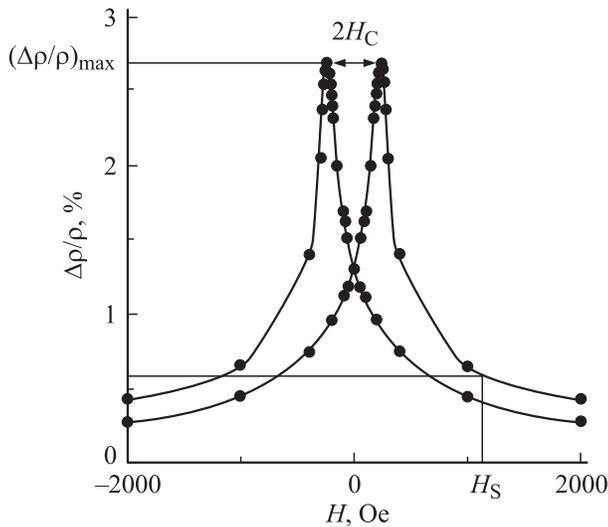
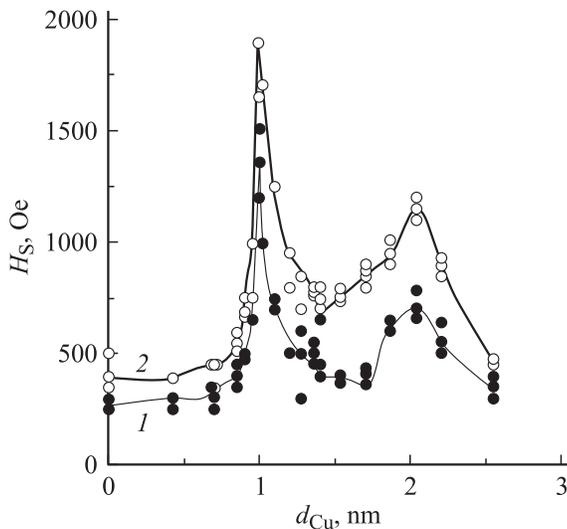


Рис. 1. Зависимость коэрцитивной силы от толщины медной прослойки осажденных (1) и отожженных при 250°C (2) пленок Co/Cu/Co.



**Рис. 2.** Типичная кривая магниторезистивного гистерезиса. Поле насыщения берется на высоте  $0.2(\Delta\rho/\rho)_{\max}$ .



**Рис. 3.** Зависимость поля насыщения от толщины прослойки меди осажденных (1) и отожженных при  $250^\circ\text{C}$  (2) пленок Co/Cu/Co.

слойки Cu величина  $H_C$  осциллирует, что обусловлено осцилляцией косвенной обменной связи  $J_{ie}$  между слоями Co. О силе косвенной обменной связи между ферромагнитными слоями Co можно судить по полю насыщения  $H_S$  (поле, в котором магнитные моменты в нижнем и верхнем слоях Co выстраиваются параллельно):  $|J_{ie}| = \frac{H_S M_S d}{2}$  [9], где  $M_S$  — намагниченность насыщения,  $d$  — толщина ферромагнитного слоя. Чем больше косвенная обменная связь между слоями Co, тем большее поле надо приложить к образцу, чтобы ориентировать намагниченность в слоях Co параллельно. Можно считать, что величина  $H_S$  является индикатором АФМ связи между магнитными слоями. Поле насыщения измерялось по магниторезистивной петле  $\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\rho(H) - \rho(H_{\max})}{\rho(H_{\max})} = f(H)$  ( $\rho$  — удельное сопротивление).

Значение  $\rho(H_{\max})$  измерялось в поле  $H_{\max} = 1.13\text{ T}$ . Поскольку „хвосты“ кривой магниторезистивного гистерезиса простираются в большие поля,  $H_S$  принимали равным полю, измеренному на высоте  $0.2(\Delta\rho/\rho)_{\max}$  на кривой  $\Delta\rho/\rho = f(H)$  [10] (рис. 2).

Максимумы коэрцитивной силы на кривой  $H_C = f(d_{\text{Cu}})$  приходятся на толщины  $d_{\text{Cu}} \approx 1$  и  $2\text{ nm}$ , при которых наблюдаются максимумы поля насыщения, т.е. когда ферромагнитные слои Co связаны антиферромагнитно (рис. 3). Минимальное значение  $H_C$  ( $d_{\text{Cu}} \approx 1.4\text{ nm}$ ) соответствует минимальным полям насыщения (слои Co связаны ферромагнитно). Наблюдается хорошая корреляция между значениями коэрцитивной силы и поля насыщения в трехслойных пленках Co/Cu/Co. Коэффициент корреляции составляет 0.94. Таким образом, из экспериментальных данных видно, что коэрцитивная сила, обусловленная обменной связью между ферромагнитными слоями,  $H_C^* \sim H_S$ . Природа такой связи пока не ясна.

В трехслойных пленках коэрцитивная сила определяется не только компонентой, обусловленной обменной связью ферромагнитных слоев  $H_C^*$ , но также компонентой, обусловленной закреплением доменной границы (ДГ) структурными дефектами  $H_C^0$

$$H_C = H_C^0 + H_C^*. \quad (1)$$

Структурными дефектами поликристаллических пленок являются границы между зернами, дисперсия осей кристаллографической анизотропии, шероховатости поверхности. Это дефекты, размеры которых и расстояния между которыми меньше ширины доменной стенки. Границу между зернами можно представить в виде плоской прослойки ширины  $a$ . Вещество в межзеренной границе имеет другую структуру, чем в зерне. Намагниченность в границе между зернами  $M_{gb}$  меньше намагниченности насыщения зерна  $M_S$  на  $\Delta M_S$ . Внутри такой границы имеется размагничивающее поле. Смещающаяся ДГ взаимодействует с межзеренной границей, и это взаимодействие носит магнитостатический характер.

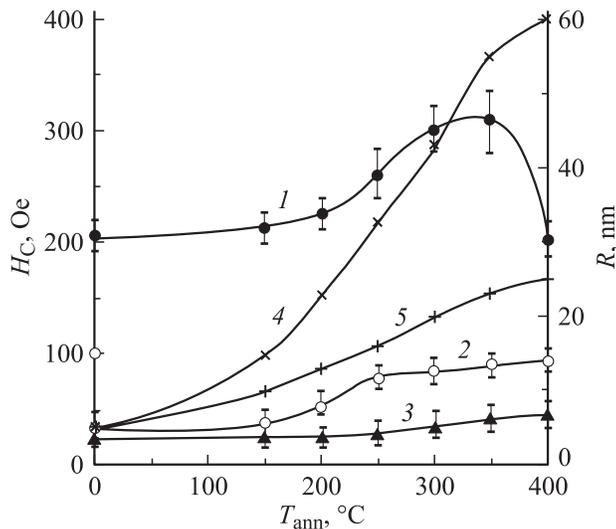
Полагаем, что кристаллографические оси легкого намагничивания (ОЛН) лежат в плоскости пленки и хаотически разориентированы по направлениям. При движении ДГ меняется угол между намагниченностью и направлением ОЛН кристаллита, т.е. меняется энергия анизотропии, что и определяет силу взаимодействия ДГ с кристаллитом.

Неровности поверхности пленки можно представить в виде ямок на поверхности. При движении ДГ через такую ямку изменяется ее магнитостатическая энергия.

Компоненту коэрцитивной силы, обусловленную структурными дефектами, можно представить в виде [11]

$$H_C^0 = C \frac{\sum_i \langle F_i^2 \rangle^{2/3}}{M_S D^{4/3} \gamma^{1/3} \delta}, \quad (2)$$

где  $D$  — толщина пленки,  $\gamma$  и  $\delta$  — плотность поверхностной энергии и ширина ДГ,  $C$  — коэффициент



**Рис. 4.** Зависимость коэрцитивной силы (1–3) и размеров зерен  $R$  (4, 5) от температуры отжига: 2 и 4 — Co, 1 и 5 — Co/(1.0 nm)Cu/Co, 3 — Co/(1.4 nm)Cu/Co.

пропорциональности,  $F_i$  — сила взаимодействия ДГ со структурными дефектами типа  $i$ . Компонента коэрцитивной силы, определяемая структурными дефектами, равна  $H_C^0 \approx 30$  Oe, что согласуется с величиной  $H_C$  пленок Co, где коэрцитивная сила вызвана закреплением ДГ структурными дефектами.

В трехслойных пленках осцилляции обменной связи между слоями кобальта от ферромагнитной к антиферромагнитной при изменении толщины медной прослойки сопровождаются изменением компоненты коэрцитивной силы  $H_C^*$ . Оценки компоненты  $H_C^*$  при  $H_S \approx 200$  и 1200 Oe для слоев Co, связанных соответственно ферромагнитно и антиферромагнитно, показали, что для пленок, в которых наблюдается АФМ,  $H_C^*$  в 6 раз больше, чем в пленках, где между слоями Co существует ФМ связь.

Для выявления влияния кристаллической структуры и силы косвенной обменной связи на величину коэрцитивной силы  $H_C$  от температуры отжига  $T_{\text{ann}}$  исследовалась зависимость  $H_C = f(T_{\text{ann}})$  в интервале температур 150–550°C. На рис. 4 приведена зависимость  $H_C = f(T_{\text{ann}})$  для трех пленок: чистого Co, Co/(1 nm)Cu/Co и Co/(1.4 nm)Cu/Co. Толщина пленки Co равнялась  $2d_{\text{Cu}}$ . С увеличением температуры отжига во всех пленках увеличивается размер зерна. Однако следует отметить, что в пленках чистого кобальта, отожженных при  $T_{\text{ann}} = 350^\circ\text{C}$ , зерно увеличивается почти в 10 раз и становится равным  $\sim 60$  nm, в то время как в пленках Co/Cu/Co при той же температуре отжига зерно увеличивается всего в 4–5 раз и составляет 25 nm (рис. 4).

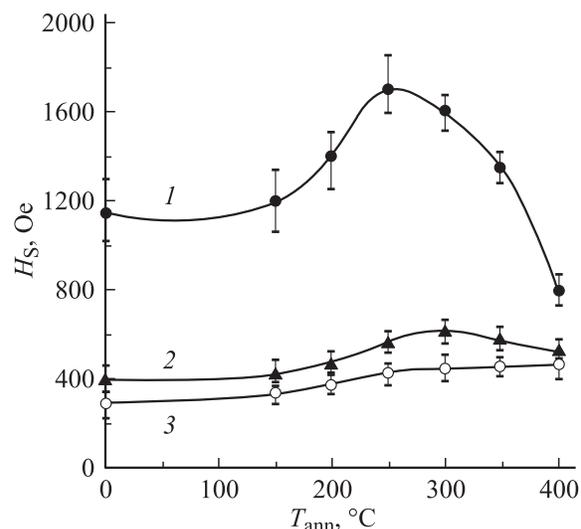
Коэрцитивная сила однослойных пленок Co, отожженных при  $T_{\text{ann}} = 250^\circ\text{C}$ , увеличивается в 2.5 раза, а отожженных при  $T_{\text{ann}} = 350^\circ\text{C}$  — в 3.5–4 раза. Увели-

чение  $H_C$  при отжиге пленок Co обусловлено ростом размера зерна и перераспределением точечных дефектов (вакансий, атомов остаточных газов) по межзеренным границам [12].

В пленках Co/Cu/Co с  $d_{\text{Cu}} = 1.4$  nm при низкотемпературном отжиге (200–250°C) происходит небольшое увеличение размера зерна до  $\sim 10$  nm и частичное снятие внутренних напряжений. Первая причина должна несколько увеличить  $H_C$ , а вторая — уменьшить  $H_C$ . Эти влияния могут компенсировать друг друга, и действительно, в пленках с  $d_{\text{Cu}} = 1.4$  nm (рис. 4) после отжига при температуре 200–250°C  $H_C$  практически не изменяется. Дальнейшее повышение температуры отжига ( $T_{\text{ann}} \geq 350^\circ\text{C}$ ) приводит к возрастанию  $H_C$ . Увеличение коэрцитивной силы в этих пленках, так же как и в пленках Co, обусловлено увеличением размера зерна и увеличением дефектности межзеренных границ.

Иная ситуация наблюдается в пленках с  $d_{\text{Cu}} = 1$  nm, отожженных при  $T_{\text{ann}} = 250^\circ\text{C}$ . Снятие внутренних напряжений и выравнивание промежуточного слоя по толщине сопровождаются усилением АФМ связи между слоями Co (рис. 5), что и является причиной возрастания компоненты коэрцитивной силы  $H_C^*$  примерно в 1.2–1.3 раза.

Рост размера зерна пленок с  $d_{\text{Cu}} = 1$  nm, отожженных при  $T_{\text{ann}} = 350^\circ\text{C}$ , также способствует возрастанию компоненты коэрцитивной силы, обусловленной взаимодействием ДС со структурными дефектами. В то же время увеличение размера зерна — это увеличение шероховатости границ раздела, что ослабляет АФМ связь между слоями Co (рис. 5). В пленках, отожженных при  $T_{\text{ann}} = 350^\circ\text{C}$ , значение  $H_S$  уменьшается, но остается еще достаточно большим, поэтому  $H_C$  изменяется незначительно. Корреляция между  $H_C$  и  $H_S$  пленок, отожженных при 350°C, составляет 0.83.



**Рис. 5.** Зависимость поля насыщения от температуры отжига: 1 — Co/(1.0 nm)Cu/Co, 2 — Co/(1.4 nm)Cu/Co, 3 — Co.

Коэрцитивная сила пленок  $\text{Co}/(1 \text{ nm})\text{Cu}/\text{Co}$ , отожженных при  $T_{\text{анн}} \geq 400^\circ\text{C}$ , уменьшается примерно на 40%, в то время как в пленках  $\text{Co}$  и  $\text{Co}/(1.4 \text{ nm})\text{Cu}/\text{Co}$   $H_C$  продолжает расти. Это связано с тем, что увеличение размера зерен (более чем в 6–7 раз) и деградация межфазных границ в результате взаимной диффузии атомов  $\text{Co}$  и  $\text{Cu}$  в пленках  $\text{Co}/(1 \text{ nm})\text{Cu}/\text{Co}$  приводят к резкому уменьшению силы АФМ связи между слоями  $\text{Co}$  (рис. 5), что сопровождается уменьшением компоненты коэрцитивной силы  $H_C^*$ .

Уменьшение коэффициента корреляции между  $H_C$  и  $H_S$  в отожженных пленках можно объяснить следующим образом. Сильное увеличение размеров зерен и деградация межфазных границ сопровождаются уменьшением силы АФМ связи между слоями  $\text{Co}$ , а следовательно, уменьшением компоненты коэрцитивной силы  $H_C^*$ . С другой стороны, увеличение размеров зерен приводит к возрастанию компоненты коэрцитивной силы  $H_C^0$ . Поэтому изменение величины  $H_C$  пленок после высокотемпературного отжига несколько отстает от уменьшения  $H_S$ . То, что коэффициент корреляции между  $H_C$  и  $H_S$  после отжига остается высоким, позволяет утверждать, что коэрцитивная сила многослойных пленок обусловлена в основном типом обменной связи между ферромагнитными слоями  $\text{Co}$ .

Проведены исследования коэрцитивной силы и косвенной обменной связи между слоями  $\text{Co}$  в пленках  $\text{Co}/\text{Cu}/\text{Co}$ . Показано, что в трехслойных пленках обменная связь между слоями  $\text{Co}$  зависит от структуры пленок; величина коэрцитивной силы многослойных пленок состоит из двух компонент:  $H_C^0$ , обусловленной взаимодействием ДГ со структурными дефектами в слоях  $\text{Co}$ , и  $H_C^*$ , обусловленной обменной связью между ферромагнитными слоями. Антиферромагнитная связь между слоями кобальта обуславливает большую величину коэрцитивной силы. При низкотемпературном отжиге в пленках с  $d_{\text{Cu}} = 1.0 \text{ nm}$  (АФМ максимум) увеличение  $H_C$  связано с возрастанием АФМ связи между слоями  $\text{Co}$ . Высокотемпературный отжиг уничтожает АФМ связь между слоями  $\text{Co}$  из-за деградации межфазных границ, что обуславливает понижение величины  $H_C$ . В трехслойных пленках с толщиной прослойки  $\text{Cu}$ , соответствующей ферромагнитной связи между соседними слоями  $\text{Co}$ , увеличение коэрцитивной силы обусловлено в основном ростом размера зерна и перераспределением точечных дефектов по межзеренным границам.

## Список литературы

- [1] F.J. Himpsel, J.E. Ortega, G.J. Mankey, R.F. Willis. *Advances in Phys.* **47**, 4, 511 (1998).
- [2] Peter M. Levy. *Solid Stat. Phys.* **47**, 367 (1994).
- [3] P. Bruno, C. Chappert. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 12, 602 (1991).
- [4] Zhu-Pei Shi, Peter M. Levy. *Phys. Rev. B* **49**, 21, 15 159 (1991).
- [5] J.C. Slonczewski. *J. Magn. Magn. Mater.* **150**, 13 (1995).
- [6] J. Barnas. *J. Magn. Magn. Mater.* **128**, 171 (1994).
- [7] J. Mathon, D.M. Edwards, R.B. Muniz, M.S. Phan. *Phys. Rev. Lett.* **67**, 493 (1991).
- [8] P. Bruno. *J. Magn. Magn. Mater.* **116**, L13 (1992).
- [9] S.S.P. Parkin. In: *Ultra Magnetic Structures II*. Springer, Berlin (1994). P. 148.
- [10] K. Ratzke, M.J. Hall, D.B. Jardine, W.G. Shih, R.E. Somekh, A.L. Greer. *J. Magn. Magn. Mater.* **204**, 61 (1999).
- [11] А.А. Иванов, И.В. Лобов, Ю.Д. Воробьев. *ФММ* **58**, 1, 11 (1984).
- [12] В.Э. Осуховский, Ю.Д. Воробьев, Л.А. Чеботкевич, И.В. Лобов, В.И. Малютин. *ФММ* **57**, 2, 254 (1984).