

13,05

Влияние напряжения смещения и скорости осаждения на структуру и коэрцитивность пленок NiFe

© А.С. Джумалиев^{1,2}, С.Л. Высоцкий^{1,2}, В.К. Сахаров¹¹ Саратовский филиал Института радиотехники и электроники В.А. Котельникова РАН, Саратов, Россия² Саратовский государственный университет им. Н.Г. Чернышевского, Саратов, Россия

E-mail: dzhas@yandex.ru

Поступила в Редакцию 30 июля 2020 г.

В окончательной редакции 30 июля 2020 г.

Принята к публикации 30 июля 2020 г.

Исследовано влияние напряжения смещения U_b и скорости осаждения v на структуру, размер зерна D и коэрцитивность H_c пленок NiFe толщиной d от 30 до 980 nm, выращенных на подложках Si/SiO₂ магнетронным распылением на постоянном токе. В случае $U_b = 0$, снижение v от значений $v \approx 27$ nm/min до $v \approx 7$ nm/min сопровождается ростом значений критической толщины пленок d_{cr} от $d_{cr} \approx 220$ nm до $d_{cr} \approx 270$ nm. При этом H_c в пленках с $d < d_{cr}$ характеризуется зависимостью $H_c \sim D^6$ и меняется от ~ 1 до ~ 20 Oe. В случае $U_b = -100$ V влияние скорости осаждения на коэрцитивность гораздо заметнее. При $v = 7$ и 14 nm/min пленки демонстрируют магнитомягкие свойства ($H_c \approx 0.15-1.4$ Oe) и отсутствие d_{cr} для всего диапазона исследованных толщин. Пленки, полученные при $v = 21$ и 27 nm/min, переходят в „критическое“ состояние при $d \geq d_{cr} \approx 520$ nm, а в области $d < d_{cr}$ характеризуются зависимостью $H_c \sim D^3$ и ростом коэрцитивности от ~ 0.35 до ~ 10 Oe.

Ключевые слова: пленки NiFe, коэрцитивность, „критическая“ толщина.

DOI: 10.21883/FTT.2020.12.50221.163

1. Введение

Магнитомягкие пленки NiFe, обладая низкой величиной коэрцитивности, высокой магнитной восприимчивостью, малой магнитострикцией и высоким магнитосопротивлением, широко используются в качестве магниточувствительного материала в сенсорных устройствах, в устройствах хранения и записи информации [1–3]. Однако с ростом толщины пленки NiFe утрачивают свои магнитомягкие свойства, что проявляется в росте величины коэрцитивности H_c до максимального значения при толщине пленки d равной некоторой „критической“ d_{cr} . Наличие „критической“ толщины приводит не только к росту коэрцитивности, но и к появлению полосовой доменной структуры [4], вращающейся [5] и перпендикулярной [6] магнитной анизотропии. Существование „критической“ толщины и перпендикулярной магнитной анизотропии представляет интерес как способ увеличения плотности записи информации, но ограничивает применение пленок NiFe в качестве магниточувствительного слоя. Зависимость величины H_c от толщины пленки может быть использована при конструировании различных устройств спинтроники в которых применение ферромагнитных слоев с различной коэрцитивностью является необходимым условием. Перечисленные свойства пленок NiFe стимулируют поиск путей управления величиной d_{cr} .

К причинам, приводящим к появлению d_{cr} , относят магнитную кристаллографическую анизотропию, магнитострикцию, анизотропию формы микроструктуры плен-

ки, а также рост размера D зерен [4,7–10]. При этом, микроструктурное строение пленок во многом определяется технологическими параметрами осаждения пленок и свойствами подложки. По этой причине исследованию механизмов формирования микроструктурного строения пленок пермаллоя обеспечивающих рост значений d_{cr} уделяется определенное внимание. Так в работах [11,12] показано, что улучшение текстуры пленок за счет напыления дополнительного слоя немагнитного материала приводит к снижению H_c . В работе [13] описано как улучшение текстуры пленок FeNi за счет снижения давления рабочего газа с $1.8 \cdot 10^{-2}$ до $2.8 \cdot 10^{-3}$ mbar приводит к уменьшению H_c и росту d_{cr} с 50 до 220 nm. Повышение температуры подложки от комнатной до 100°C приводит к увеличению критической толщины с ~ 83 до ~ 166 nm [4], что объясняется уменьшением константы анизотропии. Вопросам совместного влияния потенциала смещения подложки U_b и скорости осаждения пленки v уделялось существенно меньше внимания. Возможность получения магнитомягких пленок FeNi толщиной 1 μ m применением ВЧ напряжения смещения U_b от -120 до -160 V при высокоскоростном напылении (> 150 nm/min) в установке с двумя магнетронами показана в работе [14]. Полученные результаты связываются с уменьшением внутренних напряжений и улучшением однородности пленок. В работе [15] исследовалось влияние скорости осаждения на свойства пленок пермаллоя толщиной $d = 100$ nm, выращенных при отсутствии потенциала смещения ($U_b = 0$). При $v = 10, 18$ и 28 nm/min величина H_c равнялась 1.3,

1.1 и 1.4 Ое, соответственно. Представляет интерес исследовать механизм формирования магнитомягких пленок в условиях одновременного изменения параметров U_b и v .

Следует также отметить, что исследование характера зависимости H_c пленок докритических толщин ($d < d_{cr}$) от размера зерна D позволяет связать механизм формирования коэрцитивности [6,16,17] либо с доминированием магнитокристаллической анизотропии кристаллитов ($H_c \propto D^6$), либо с преобладанием когерентной одноосной анизотропии над случайной магнитокристаллической ($H_c \propto D^3$). Применительно к пленкам пермаллоя ранее наблюдалась лишь зависимость $H_c \propto D^6$ [10]. Представляет интерес поиск условий осаждения при которых в пленках пермаллоя зависимость $H_c(D)$ может изменяться по закону D^3 .

С учетом сказанного, целью настоящей работы было исследование влияния параметров U_b и v на микроструктурное строение, коэрцитивность и характер зависимости H_c от размера зерна для пленок пермаллоя толщиной от 30 до 980 nm, выращенных магнетронным распылением на постоянном токе на подложках Si/SiO₂.

2. Эксперимент

Осаждение пленок NiFe проводилось в вакуумной установке ВУП-5М с базовым давлением $6 \cdot 10^{-4}$ Па с помощью планарной магнетронной распылительной системы на постоянном токе при температуре окружающей среды. Для напыления использовались мишени Ni₈₁Fe₁₉ чистотой 99.95% (К. Lesker) и аргон марки ОЧ (99.998%). Давление рабочего газа аргона во время напыления составляло ~ 0.2 Па. Подложка размещалась над центром мишени на расстоянии ~ 75 мм. В качестве подложек использовались кремниевые пластины Si(100) марки 100КДБ12(100) с термически окисленным слоем SiO₂ толщиной 300 nm и среднеквадратичной шероховатостью поверхности $\sigma \approx 0.3$ nm. Подложки подвергались предварительной ультразвуковой очистке в ацетоне при температуре $T \approx 315$ К и термическому отжигу в вакууме при $T \approx 650$ К в течение 30 min. Толщина пленок определялась по времени и предварительно определенной скорости осаждения.

Кристаллическая структура пленок изучалась методом рентгеновской дифракции на дифрактометре ДРОН-4 с фокусировкой по плоскому образцу в геометрии Брэгга-Брентано (схема $\theta-2\theta$ Cu-K α -излучение, $\lambda = 0.15418$ nm). Микроструктура пленок изучалась методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) (Auriga, Carl Zeiss). Толщина пленок определялась методом профилометрии (Dectak 150, Veeco). Величина коэрцитивности определялась по петлям гистерезиса, полученным методом вибромагнитометрии в касательной к поверхности пленки геометрии намагничивания при комнатной температуре.

Были изучены несколько серий образцов, полученных при $U_b = 0$ и -100 V и скоростях осаждения $v = 7, 14,$

21 и 27 nm/min. Увеличение скорости осаждения проводилось путем увеличения тока разряда от 85 до 200 mA, при соответствующем изменении напряжения разряда от 345 до 380 V.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 показана зависимость поля коэрцитивности H_c от толщины d для пленок, выращенных при различных скоростях осаждения и $U_b = 0$ и -100 V. Видно, что для пленок, выращенных при $U_b = 0$, изменение скорости напыления от 7 до 14 nm/min приводит к уменьшению „критической“ толщины с ~ 270 до ~ 220 nm, при соответствующем изменении максимального значения H_c от 20.2 до 21.6 Ое. В обоих случаях минимальное значение $H_c \approx 1$ Ое. Полученные результаты совпадают с результатами работы [4], где уменьшение d_{cr} свя-

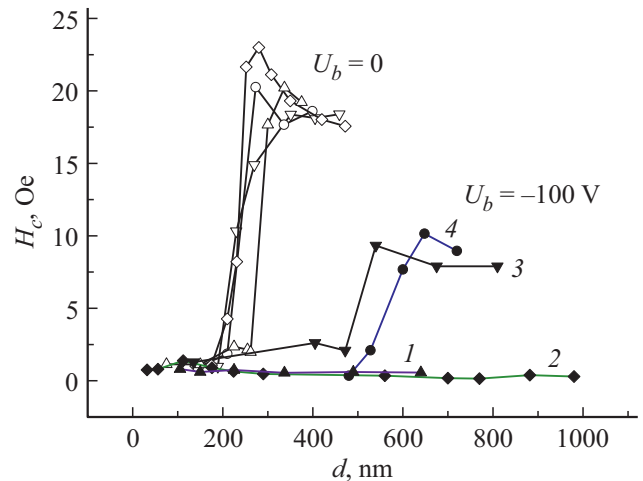


Рис. 1. Зависимость коэрцитивности H_c от толщины пленок d , выращенных при различных U_b и скоростях роста v . 1 — $v = 7$ nm/min, 2 — $v = 14$ nm/min, 3 — $v = 21$ nm/min, 4 — $v = 27$ nm/min.

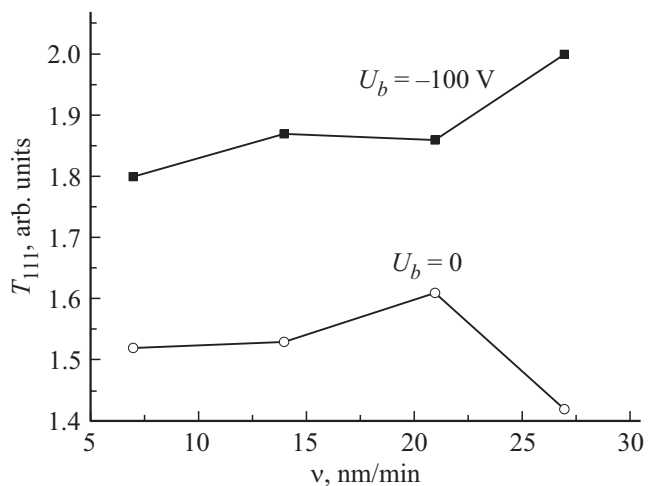


Рис. 2. Зависимость коэффициента текстуры T_{111} от скорости осаждения v и напряжения смещения U_b .

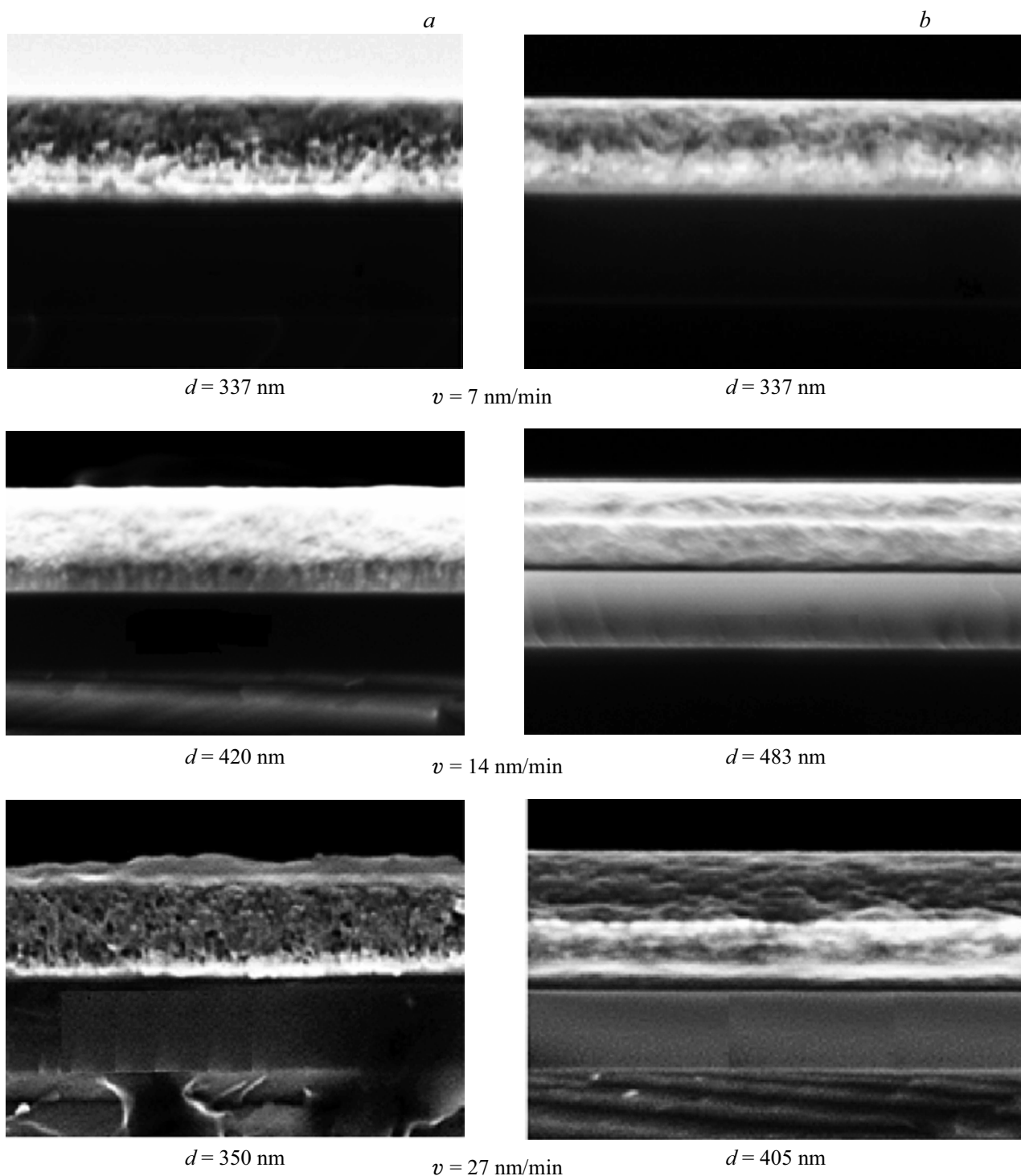


Рис. 3. Поперечные сечения пленок „закритической“ (a) и „докритической“ (b) толщины d , выращенных при напряжениях смещения $U_b = 0$ (a) и -100 V (b) и различных скоростях осаждения v .

зывают с вызванной магнитострикцией деформацией и столбчатой микроструктурой пленок. Дальнейшее увеличение скорости напыления до 27 nm/min не приводит к заметному изменению величины „критической“ толщины пленок. Подача отрицательного напряжения смещения $U_b = -100$ V на подложку во время осаждения приводит к исчезновению „критической“ толщины

в пленках, выращенных при $v = 7$ и 14 nm/min с толщинами до 980 nm. При этом величина H_c изменяется в диапазоне $0.55-0.80$ Oe для $v = 7$ nm/min и $0.15-1.4$ Oe для $v = 14$ nm/min. Дальнейшее увеличение скорости напыления до 21 nm/min приводит к появлению „критической“ толщины $d_{cr} \approx 520$ nm, которая возрастает до ~ 540 Oe при увеличении v до 27 nm/min. При

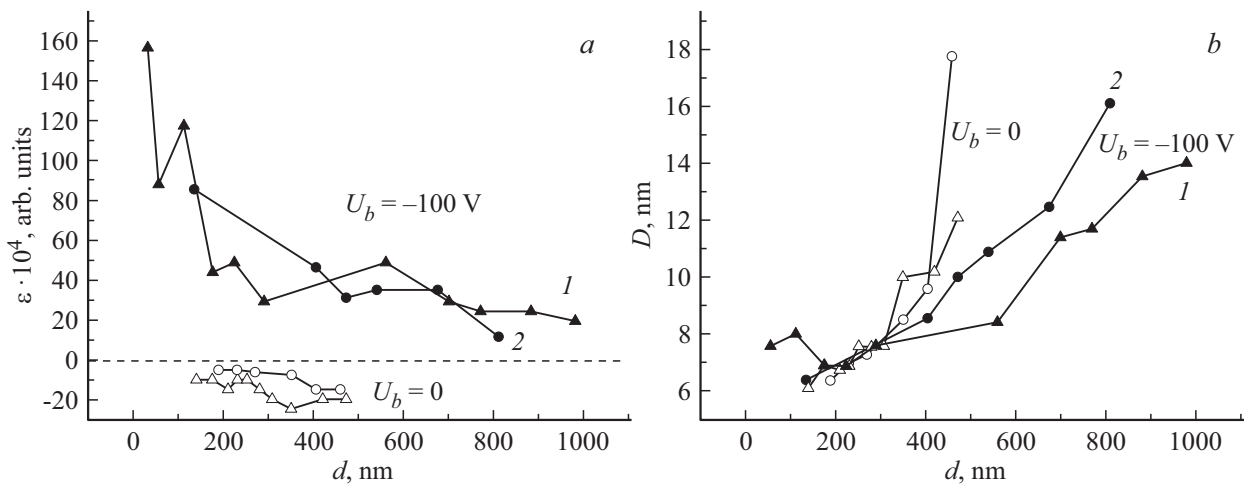


Рис. 4. Зависимости деформации ε (a) и размера зерна D (b) от толщины пленок d , выращенных при $U_b = 0$ и -100 V и скоростях: 1 — $\nu = 14$, 2 — $\nu = 27$ nm/min.

$\nu = 21$ nm/min максимальное значение $H_c = 10.2$ Oe и уменьшается до 0.35 Oe. Для $\nu = 27$ nm/min H_c изменяется от 9.3 до 1.3 Oe.

Прежде, чем переходить к обсуждению результатов, необходимо отметить, что пленки NiFe, осажденные при $U_b = 0$, имеют поликристаллическую структуру со слабо выраженной текстурой NiFe(111). Чтобы охарактеризовать зависимость текстуры пленок от параметров осаждения обратимся к рисунку 2, где приведены зависимости коэффициента текстуры T_{hkl} от параметров ν и U , определяемого по формуле [18]:

$$T_{hkl} = \frac{I_{hkl}/I_{hkl}^0}{1/hn \sum I_{hkl}/I_{hkl}^0},$$

где I_{hkl} — измеренная интенсивность дифракционной линии hkl , I_{hkl}^0 — интенсивность линии для порошкового NiFe из картотеки JCPDS, и n — число использованных рефлексов. При этом рост значений T_{hkl} отражает усиление текстуры (hkl).

Из рис. 2 можно видеть, что при напряжении смещения $U_b = -100$ V наблюдается усиление текстуры NiFe(111) по сравнению со случаем пленок, выращенных на „заземленной“ подложке ($U_b = 0$). Увеличение скорости осаждения ведет к росту текстуры пленок, выращенных при $U = -100$ V, и немонотонному уменьшению в случае $U_b = 0$ [19,20].

Выбор $U_b = -100$ V в проведенных исследованиях объясняется тем, что дальнейшее увеличение U_b при незначительном улучшении текстуры пленок приводит к заметному снижению скорости роста пленки за счет ее распыления положительными ионами аргона. Наблюдаемое при этом повышение температуры подложки не приводит к заметному изменению структуры пленок [20].

На рис. 3. показаны изображения поперечного сечения пленок, осажденных при различных ν и U_b .

Увеличение скорости осаждения приводит к увеличению количества атомов распыляемой мишени и их энергии. При используемом давлении рабочем газа ~ 0.2 Pa

длина свободного пробега распыляемых частиц мишени превышала расстояние между мишенью и подложкой и, следовательно, энергия частиц, попадающих на подложку, не изменялась при прохождении от мишени до подложки. Таким образом, увеличение скорости осаждения сопровождалось увеличением миграционной способности адатомов и формированию более однородной микроструктуры пленок. В то же время, бомбардировка растущей пленки положительными ионами Ag препятствовала формированию столбчатой микроструктуры (рис. 3, b).

Результаты рентгеноструктурного анализа пленок, полученных при $\nu = 14$ и 27 nm/min, приведены на рис. 4. Величина межплоскостного расстояния $a_{[hkl]}$ вдоль кристаллографической оси $[hkl]$ определялась по формуле Брэгга-Вульфа $2a_{[hkl]} \sin \theta = n\lambda$, где θ — дифракционный угол, $\lambda = 0.15418$ nm и $n = 1$. Размер зерна определялся по формуле Шеррера $L = \lambda/\beta \cos \theta$, где β — уширение дифракционной линии. Зависимость внутренних деформаций $\varepsilon = \Delta a/a$ исследуемых образцов от толщины показана на рис. 4, a.

Прежде всего, необходимо отметить различие в деформациях пленок, выращенных при $U_b = 0$ и -100 V. Видно, что для пленок, выращенных при $U_b = 0$, характерна деформация сжатия ($\varepsilon < 0$), в то время, как пленки, выращенные при $U_b = -100$ V испытывают деформацию растяжения ($\varepsilon > 0$). Магнитомягкие пленки, выращенные при $U_b = 0$ и $\nu = 14$ nm/min, в „докритическом“ состоянии ($d_{cr} \leq 220$ nm) имеют $\varepsilon \approx -5 \cdot 10^{-4}$, величина которой при переходе в „закритическое“ состояние возрастает до $\varepsilon \approx -10 \cdot 10^{-4}$. Для магнитомягких пленок, выращенных при $U_b = -100$ V и $\nu = 27$ nm/min, наблюдается уменьшение ε от $86 \cdot 10^{-4}$ до $35 \cdot 10^{-4}$ ед. при увеличении толщины пленки до „критической“ $d_{cr} \approx 520$ nm. Дальнейшее увеличение толщины пленки до 810 nm ведет к уменьшению ε до $12 \cdot 10^{-4}$ ед. Для пленок, выращенных при $\nu = 14$ nm/min и $U_b = -100$ V, величина ε уменьшается от $156 \cdot 10^{-4}$ до $20 \cdot 10^{-4}$ с ростом толщины пленки от 30 до 980 nm. При этом переход в „закритическое“ состояние не наблюдается.

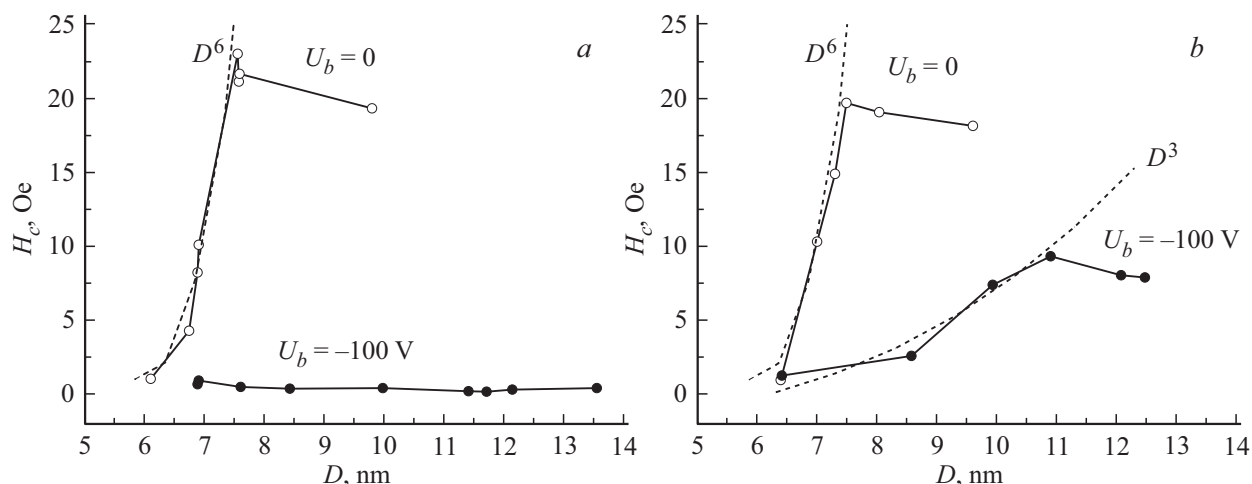


Рис. 5. Зависимости коэрцитивности H_c от размера зерна D для пленок, полученных при $U_b = 0$ и -100 В и скоростях $v = 14$ (а) и (б) 27 nm/min.

Таким образом, можно утверждать, что для пленок выращенных при $U_b = -100$ В и v от 7 до 27 nm/min, внутренние деформации не оказывают заметного влияния на переход пленки в „закритическое“ состояние. Полученные результаты согласуются с данными работы [14], в которой для пленок толщиной $1 \mu\text{m}$, осажденных при $U_b = -100$ В, исчезновение „закритического“ состояния связывается с отсутствием деформаций и переходом от столбчатой микроструктуры к однородной.

Поскольку размер зерна оказывает существенное влияние на величину коэрцитивности [6], рассмотрим, как изменяется размер зерна с ростом толщины пленок (рис. 4, б). Независимо от U_b и v , с ростом толщины пленки размер зерна увеличивается, однако размер зерна пленок, выращенных при $U_b = -100$ В, растет медленнее и, в соответствии с моделью хаотической анизотропии [7], ведет к смещению d_{cr} в область больших толщин. Видно, что пленки, выращенные при $U_b = 0$, переходят в „закритическое“ состояние при толщине пленок $220\text{--}270$ nm и размере зерна $D_{cr} \approx 7$ nm. Для пленок, осажденных при $U_b = -100$ В и $v = 21$ и 27 nm/min, „критическая“ толщина ~ 520 nm и $D_{cr} \approx 11$ nm.

На рис. 5 представлены зависимости коэрцитивности H_c от размера зерна D для пленок, полученных при скоростях напыления 14 и 27 nm/min при $U_b = 0$ и -100 В. Там же приведены рассчитанные зависимости $H_c \propto D^6$ и $H_c \propto D^3$ (пунктир).

Видно, что при $v = 14$ nm/min и $U_b = 0$ (рис. 6, а), зависимость коэрцитивности от размера зерна $H_c \propto D^6$ при $D \leq 7.5$ nm, и $H_c \propto 1/D$ при $D \geq 7.5$ nm, что соответствует нанокристаллическим материалам [8]. Подача отрицательного напряжения смещения $U_b = -100$ В приводит к усилению текстуры пленки (рис. 2) и изменению зависимости H_c от D . При $U_b = -100$ В H_c изменяется от 0.15 до 1.4 Oe во всем диапазоне размера зерна.

Увеличение скорости роста пленок до 27 nm/min при $U_b = 0$ не изменяет нанокристаллическую структуру

пленки и зависимость $H_c \propto D^6$ сохраняется (рис. 5, б). При $U_b = -100$ В степенная зависимость $H_c(D)$ изменяется с $H_c \propto D^6$ на $H_c \propto D^3$, что не противоречит известным данным [16,17] и связано с незначительным улучшением текстуры нанокристаллической пленки, приводящим к появлению однородной магнитной анизотропии.

4. Заключение

Экспериментально показана возможность получения магнитомягких пленок NiFe толщиной до 980 nm подачей отрицательного напряжения смещения на подложку и подбором скорости осаждения. При отсутствии напряжения смещения коэрцитивность H_c изменяется $\propto D^6$, „критическая“ толщина $d_{cr} \approx 230$ nm и максимальное значение H_c изменяется от 17 до 25 Oe в зависимости от скорости осаждения. Подача отрицательного напряжения смещения приводит к бомбардировке растущей пленки ионами аргона, что улучшает текстуру пленок, уменьшает размер зерна, затрудняет формирование столбчатой микроструктуры и приводит изменению зависимости H_c от D . При $U_b = -100$ В и $v = 21$ и 27 nm/min H_c изменяется $\propto D^3$, максимальное значение H_c уменьшается до ~ 8 Oe и d_{cr} увеличивается до ~ 520 nm. Снижение v до 7 и 14 nm/min приводит к дальнейшему снижению зависимости H_c от D . С ростом толщины пленки до 980 nm размер зерна увеличивается от 7 до 14 nm, H_c изменяется от 0.15 до 1.4 Oe, „критическая“ толщина отсутствует. Следует отметить, что зависимость $H_c \propto D^3$ в пленках NiFe наблюдается впервые.

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания № 0030-2019-0013 „Спинтроника“.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов

Список литературы

- [1] Electrochemical nanotechnologies / Eds T. Osaka, M. Datta, Y. Shacham-Diamand. Springer (2009). 279 p.
- [2] Б.Г. Лившиц, В.С. Крапошин, Я.Л. Линецкий. Физические свойства металлов и сплавов. Металлургия, М. (1980). 318 с.
- [3] E. Klokhholm, J.A. Aboaf. J. Appl. Phys. **52**, 2474 (1981).
- [4] N. Amos, R. Fernandez, R. Ikkawi, B. Lee, A. Lavrenov, A. Krichevsky, D. Litvinov, S. Khizroev. J. Appl. Phys. **103**, 07E732 (2008).
- [5] W.T. Soh, N.N. Phuoc, C.Y. Tan, C.K. Ong. J. Appl. Phys. **114**, 053908 (2013).
- [6] G. Herzer. IEEE Trans. Magn. **26**, 1397 (1990).
- [7] G. Wang, C. Dong, W. Wang, Z. Wang, G. Chai, C. Jiang, D. Xue. J. Appl. Phys. **112**, 093907 (2012).
- [8] M.A. Akhter, D.J. Mapps, Y.Q. Ma Tan, Amanda Petford-Long, R. Doole. J. Appl. Phys. **81**, 4122 (1997).
- [9] Y. Sugita, H. Fujiwara, T. Sato. Appl. Phys. Lett. **10**, 229 (1967).
- [10] G. Herzer. Acta Mater. **61**, 718 (2013).
- [11] V. Svalov, G.V. Kurlyandskaya, B. González Asensio, J.M. Collantes, A. Larranaga. Mater. Lett. **52**, 159 (2015).
- [12] X. Li, X. Sun, J. Wang, Q. Liu. JMMM, **377**, 142 (2015).
- [13] A.V. Svalov, I.R. Aseguinolaza, A. Garcia-Arribas, I. Oruc, J.M. Barandiaran, J. Alonso, M.L. Fernández-Gubieda, G.V. Kurlyandskaya. IEEE Trans. Magn. **46**, 333 (2010).
- [14] Y. Hoshi, M. Kojima, M. Naoe, S. Yamanaka. IEEE Trans. Magn. **18**, 1433 (1982).
- [15] A.V. Svalov, B. Gonzalez Asensio, A.A. Chlenova, P.A. Savin, A. Larranaga, J.M. Gonzalez, G.V. Kurlyandskaya. Vacuum **119**, 245 (2015).
- [16] K. Suzuki, G. Herzer, J.M. Cadogan. JMMM **177–181**, 949 (1998).
- [17] K. Suzuki, R. Parsons, B. Zang, K. Onodera, H. Kishimoto, T. Shoji, A. Kato. AIP Adv. **9**, 035311 (2019).
- [18] H. Cheng, M. Hon. J. Appl. Phys. **79**, 8047 (1996).
- [19] A.S. Dzhumaliev, Yu. Nikulin, Yu. Filimonov. MISM 778 (2017).
- [20] A.C. Джумалиев, Ю.В. Никулин, Ю.А. Филимонов. ФГТ **58**, 1019 (2016).

Редактор К.В. Емцев