

PACS numbers: 68.37.Lp, 68.55.Nq, 68.65.Ac, 73.50.Lw, 73.61.At, 75.47.-m, 81.40.Rs

Кристалічна структура і магнеторезистивні властивості плівкових систем на основі Fe і Cu

Д. М. Кондрахова, О. В. Синашенко, І. Ю. Проценко

*Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2,
40007 Суми, Україна*

Наведено результати досліджень структурно-фазового стану, електрофізичних та магнеторезистивних властивостей плівкових систем на основі Fe і Cu. Вивчено вплив температури відпалювання на термічний коефіцієнт опору і магнетоопір мультишарів. Експериментальні результати узгоджуються з висновками про збереження до великої міри індивідуальності окремих шарів у мультишарах $[\text{Fe}/\text{Cu}]_n/\text{П}$.

Results of investigations of the structure-phase state, electrophysical and magnetoresistive properties of film systems based on Fe and Cu are presented. The annealing temperature influence on thermal coefficient of resistance and magnetoresistance is studied. Experimental results conform to conclusions about conservation of individuality of separate layers in $[\text{Fe}/\text{Cu}]_n/\text{S}$ multilayers.

Приведены результаты исследований структурно-фазового состояния, электрофизических и магнеторезистивных свойств плёночных систем на основе Fe и Cu. Изучено влияние температуры отжига на термический коэффициент сопротивления и магнитосопротивление мультислоёв. Экспериментальные результаты согласуются с выводами о сохранении в большой степени индивидуальности отдельных слоёв в мультислоях $[\text{Fe}/\text{Cu}]_n/\text{П}$.

Ключові слова: структурно-фазовий стан, ТКО, магнетоопір, термооброблення, мультишари.

(Отримано 1 липня 2011 р.)

1. ВСТУП

Багатошарові плівкові системи Fe/Cu з перпендикулярною магнетною анізотропією набули широкого застосування при створенні елементної бази сучасної мікроелектроніки, а саме, пристроїв пам'яті з

великою щільністю запису інформації [1, 2]. Це обумовлено суттєвим значенням гігантського магнетного опору (ГМО), що спостерігається в цих структурах. Не дивлячись на досить великий інтерес до мультишарів на основі немагнетних або магнетних шарів металів, залишається відкритою низка питань як фундаментального, так і прикладного характеру стосовно впливу на величину магнетоопору (МО) температури відпалювання, типу геометрії міряння, товщини магнетних шарів і немагнетних прошарків та кількість фрагментів мультишару [3, 4]. Метою нашої роботи було дослідження анізотропного магнеторезистивного ефекту в плівках Fe та мультишарах на основі Fe і Cu, вивчення впливу термооброблення зразків, яке стимулює взаємну дифузію, на його величину та використання в майбутньому даних структур як чутливих елементів давачів магнетного поля. Було виконано експериментальні дослідження структурно-фазового стану, терморезистивних та магнеторезистивних властивостей плівкових систем на основі Fe і Cu з різною товщиною шарів.

2. МЕТОДИКА ТА ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Одержання плівкових зразків здійснювалось методом термічного випаровування з вольфрамового дроту (Fe) та випарника типу «човник» (Cu) у вакуумі $p = 10^{-3} - 10^{-4}$ Па (устава ВУП-5М). Товщина окремих шарів контролювалась методом кварцового резонатора або методом інтерференції з використанням свідків.

Плівки наносились на підігріту до 400 К підкладку з аморфного ситалу з мідними контактними площадками, за відсутності зовнішнього орієнтувального магнетного поля. Швидкість конденсації становила від 1 до 3 нм/с. Одержання багатшарових систем здійснювалось з пошаровою конденсацією без витримки окремих шарів методом, описаною в роботі [5], що при великій швидкості конденсації, забезпечує можливість повторюваності товщин фрагментів. Відпалювання зразків виконувалось в інтервалі температур від 300 до 700 К. Дослідження структурно-фазового складу зразків виконувалось за допомогою просвітнього електронного мікроскопа ПЕМ-125К. Вивчення МО виконувалось при кімнатній температурі з використанням двоточкової методи в зовнішньому магнетному полі (0–0,1 Тл) при поперечній або перпендикулярній геометріях вимірювання. Величина магнетоопору визначалася за співвідношенням $\Delta R/R(0) = (R(B) - R(0))/R(0)$, де $R(B)$ — поточне значення опору плівкової системи в магнетному полі та $R(0)$ — опір за відсутності зовнішнього поля. Вимірювання виконувалися в автоматичному режимі за допомогою розробленого в роботі [6] автоматичного комплексу, що складається з 8-канального 16-бітного АЦП ADAM-4118, перетворювача інтерфейсів ADAM-4520, схеми керування джерелом високого струму та персонального комп'ютера.

3. РЕЗУЛЬТАТИ ЕКСПЕРИМЕНТУ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

3.1. Структура та фазовий склад плівок

Було виконано дослідження серії зразків одношарових плівок Fe та мультишарів на його основі. Аналіза дифракційних картин від електроннограм невідпалених та відпалених структур вказує на те, що в структурах на основі Fe та Cu фіксуються окремі кільця, які відповідають фазам ОЦК-Fe та ГЦК-Cu, що вказує на збереження індиві-

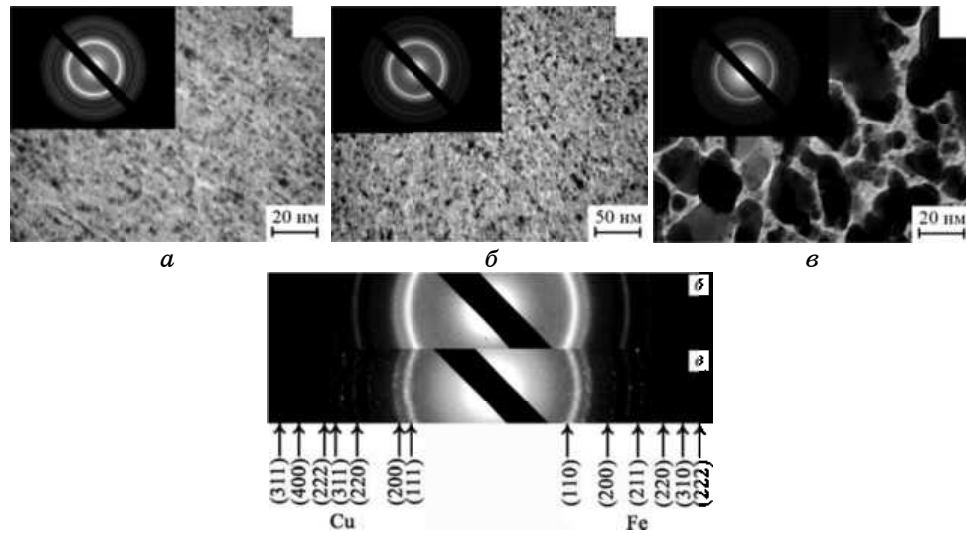


Рис. 1. Кристалічна структура і дифракційні картини (на вставках) від багатошарових плівкових систем $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{Pi}$ (а) і $[\text{Fe}(1,9)/\text{Cu}(3,4)]_{15}/\text{Pi}$ (б, в), невідпалених (а, б) та відпалених до $T_{\text{в}} = 600 \text{ K}$ і охолоджених до 300 K (в). В дужках указана товщина в нм.

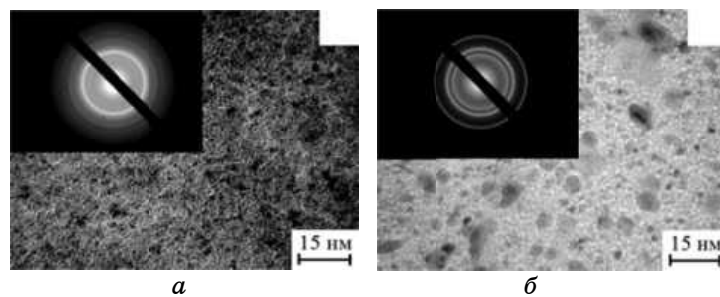


Рис. 2. Кристалічна структура і дифракційні картини (на вставках) від плівкової системи $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{Pi}$ невідпаленої (а) та відпаленої до $T_{\text{в}} = 700 \text{ K}$ і охолодженої до 300 K (б).

дуальности шарів у процесі їх термооброблення. Розглядаючи як приклад плівкову систему $[\text{Fe}(1,9)/\text{Cu}(3,4)]_{15}/\text{П}$ (рис. 1, табл. 1), можна відмітити, що параметер ґратниці шарів Fe і Cu збільшився з ростом температури і складає $a(\text{Cu}) = 3,606 \text{ \AA}$ та $a(\text{Fe}) = 2,868 \text{ \AA}$.

Фазовий склад п'ятишарових плівкових систем ілюструється рис. 2 і табл. 2.

3.2. Електричний опір плівок

Плівкові системи досліджувались впродовж одного або двох циклів термовідпалювання до температур 700–800 К. Було побудовано залежність термічного коефіцієнта опору (ТКО) від температури по кривій охолодження (вставки на рис. 3). У процесі відпалювання зразків відбувається рекристалізація, що призводить до збільшення лінійних розмірів кристалітів, як наслідок відбувається стоншення ліній на електронограмах та зменшення опору плівки. Одержані залежності зміни опору від температури свідчать про стабілізацію електрофізичних властивостей плівок вже після першого циклу термовідпалювання. На рисунку 3 представлено температурні залежності питомого опору і ТКО на прикладі плівок $\text{Fe}(60)/\text{П}$ та $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{П}$.

3.3. Магнетоопір мультишарів

Виконані дослідження МО багатошарових плівкових систем на основі фрагментів Fe/Cu після термовідпалювання до 700 К вказують на зменшення коефіцієнта МО в порівнянні з невідпаленими зразками.

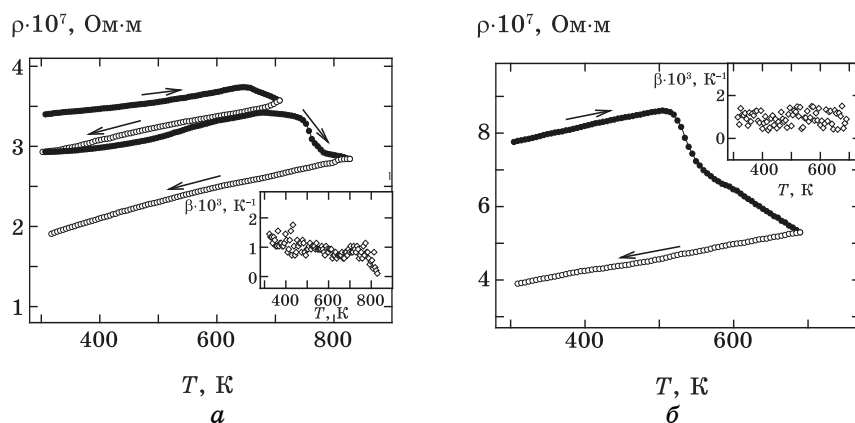


Рис. 3. Залежність питомого опору і ТКО (на вставках) від температури відпалювання для плівок $\text{Fe}(60)/\text{П}$ (а) і $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{П}$ (б).

ТАБЛИЦЯ 1. Розшифрування дифракційних картин від багатопшарових плівкових систем [Fe(1,6)/Cu(2)]_{1,0}/Π і [Fe(1,9)/Cu(3,4)]_{1,5}/Π, невідпалених та відпалених до $T_p = 600$ К і охолоджених до 300 К.

| № | hkl | [Fe(1,6)/Cu(2)] _{1,0} /Π | | | [Fe(1,9)/Cu(3,4)] _{1,5} /Π | | | T = 300 К | | | T = 600 К | | |
|---|-------|---|---------------------|---------------|---|---------------------|---------------|---|---------------------|---------------|---|---------------------|---------------|
| | | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад |
| 1 | 111 | 2,085 | 3,611 | Cu, | 2,072 | 3,589 | Cu | 2,08 | 3,603 | Cu | 2,08 | 3,603 | Cu |
| | 110 | 2,040 | 2,885 | α-Fe | 2,017 | 2,852 | α-Fe | 2,048 | 2,896 | α-Fe | 2,048 | 2,896 | α-Fe |
| 2 | 200 | 1,813 | 3,628 | Cu | 1,828 | 3,656 | Cu | 1,814 | 3,628 | Cu | 1,814 | 3,628 | Cu |
| 3 | 200 | 1,433 | 2,866 | α-Fe | 1,436 | 2,872 | α-Fe | 1,429 | 2,858 | α-Fe | 1,429 | 2,858 | α-Fe |
| 4 | 220 | 1,285 | 3,634 | Cu | 1,276 | 3,609 | Cu | 1,269 | 3,589 | Cu | 1,269 | 3,589 | Cu |
| 5 | 211 | 1,188 | 2,909 | α-Fe | 1,162 | 2,846 | α-Fe | 1,163 | 2,849 | α-Fe | 1,163 | 2,849 | α-Fe |
| 6 | 311 | 1,104 | 3,661 | Cu | 1,091 | 3,618 | Cu | 1,087 | 3,605 | Cu | 1,087 | 3,605 | Cu |
| | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,887 \text{ Å}$ | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,857 \text{ Å}$ | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,868 \text{ Å}$ | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,868 \text{ Å}$ | | |
| | | $\bar{a}(\text{Cu}) = 3,634 \text{ Å}$ | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 3,618 \text{ Å}$ | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 3,618 \text{ Å}$ | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 3,606 \text{ Å}$ | | |

ТАБЛИЦЯ 2. Розшифрування дифракційних картин від п'ятишарових плівкових систем $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{П}$ і $[\text{Fe}(3)/\text{Cu}(1,5)]_2/\text{Fe}(3)/\text{П}$ до та після термовідпалу до 700 К.

| № | hkl | $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{П}$ | | | | | | $[\text{Fe}(3)/\text{Cu}(1,5)]_2/\text{Fe}(3)/\text{П}$ | | | | | |
|---|-------|---|---------------------|-------------------------|---|---------------------|---|---|---------------------|---|---------------------|---------------------|-------------------------|
| | | $T = 300 \text{ К}$ | | | $T = 700 \text{ К}$ | | | $T = 300 \text{ К}$ | | | $T = 700 \text{ К}$ | | |
| | | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад | $d_{hkl}, \text{Å}$ | $a_{hkl}, \text{Å}$ | фазовий склад |
| 1 | — | 2,543 | — | Fe_2O_3 | 2,501 | — | Fe_2O_3 | 2,519 | — | Fe_2O_3 | 2,510 | — | Fe_2O_3 |
| 2 | 111 | 2,087 | 3,615 | Cu, | 2,081 | 3,604 | Cu, | 2,085 | 3,611 | Cu, | 2,087 | 3,615 | Cu, |
| 3 | 200 | 1,801 | 3,602 | $\alpha\text{-Fe}$ | 2,030 | 2,871 | $\alpha\text{-Fe}$ | 2,025 | 2,864 | $\alpha\text{-Fe}$ | 2,030 | 2,870 | $\alpha\text{-Fe}$ |
| 4 | 200 | 1,429 | 2,858 | Cu | 1,791 | 3,582 | Cu | 1,799 | 3,598 | Cu | 1,823 | 3,646 | Cu |
| 5 | 220 | 1,278 | 3,615 | $\alpha\text{-Fe}$ | 1,482 | — | Fe_2O_3 | 1,491 | — | Fe_2O_3 | 1,494 | — | Fe_2O_3 |
| 6 | 211 | 1,165 | 2,853 | Cu | 1,265 | 3,578 | Cu | 1,287 | 3,640 | Cu | 1,273 | 3,600 | Cu |
| 7 | 311 | 1,105 | 3,665 | $\alpha\text{-Fe}$ | 1,159 | 2,840 | $\alpha\text{-Fe}$ | 1,170 | 2,866 | $\alpha\text{-Fe}$ | 1,165 | 2,854 | $\alpha\text{-Fe}$ |
| | | | | Cu | 1,072 | 3,555 | Cu | 1,100 | 3,648 | Cu | 1,079 | 3,580 | Cu |
| | | | | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,858 \text{ Å}$, | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,855 \text{ Å}$, | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,865 \text{ Å}$, | | $\bar{a}(\alpha\text{-Fe}) = 2,862 \text{ Å}$, | | | |
| | | | | | $\bar{a}(\text{Cu}) = 3,624 \text{ Å}$; | | $\bar{a}(\text{Cu}) = 3,582 \text{ Å}$; | $\bar{a}(\text{Cu}) = 3,624 \text{ Å}$; | | $\bar{a}(\text{Cu}) = 3,610 \text{ Å}$. | | | |

З ростом температури до 700 К він поступово зменшується, що є наслідком збільшення розміру зерен при термовідпалюванні. Також слід вказати на те, що в поперечній геометрії для багатошарової плівкової системи $[\text{Fe}(1,9)/\text{Cu}(3,4)]_{15}/\text{П}$ (рис. 4), характерне додатне значення МО, що є наслідком збільшення опору при збільшенні зовнішнього магнетного поля, а не зменшення, як це було до термовідпалювання. Тобто, можемо говорити, що в системі $[\text{Fe}(1,9)/\text{Cu}(3,4)]_{15}/\text{П}$ виявляється анізотропний МО, що полягає в зміні знака МО.

В плівковій системі $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{П}$ величина МО складає 0,02% (поперечна геометрія) та 0,04% (перпендикулярна геометрія). Для перпендикулярної геометрії майже відсутня залежність зміни опору при зміні зовнішнього магнетного поля. Хоча, для поперечної геометрії ця залежність істотна. Це є наслідком анізотропного магнеторезистивного ефекту в плівковій системі $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{П}$.

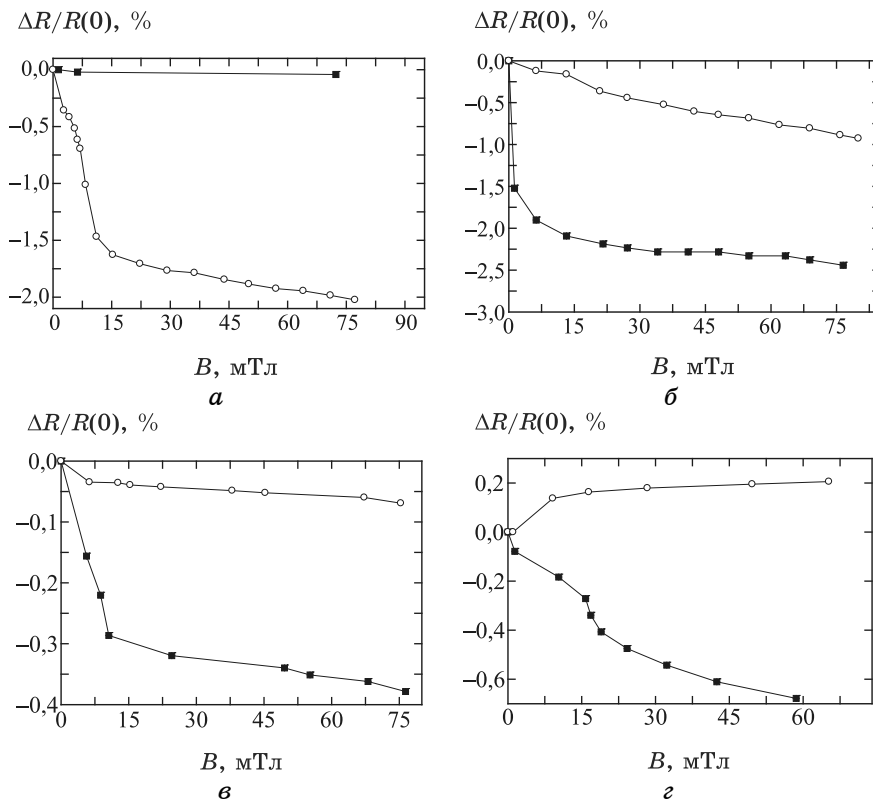


Рис. 4. Залежність МО від індукції зовнішнього магнетного поля для плівкових систем $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{П}$ (а, в) та $[\text{Fe}(1,9)/\text{Cu}(3,4)]_{15}/\text{П}$ (б, г), невідпалених (а, б) та відпалених до 700 К (в, г): ■ — перпендикулярна геометрія; ○ — поперечна геометрія.

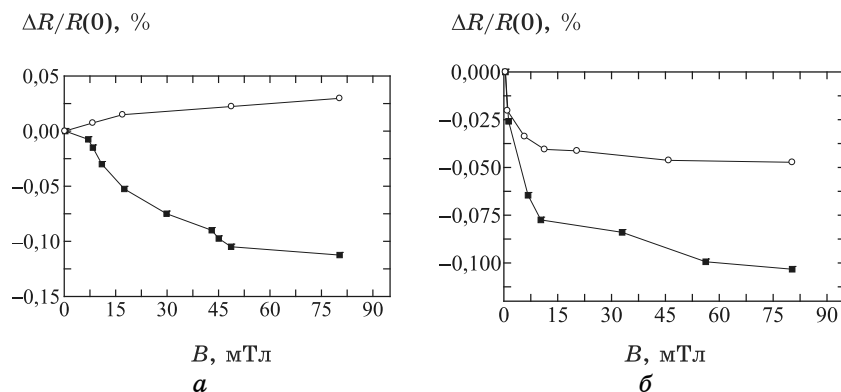


Рис. 5. Залежність МО від зовнішнього магнетного поля для п'ятишарових плівкових систем $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{П}$ (а) та $[\text{Fe}(3)/\text{Cu}(1,5)]_2/\text{Fe}(3)/\text{П}$ (б) для двох типів геометрій: ■ — перпендикулярна геометрія; о — поперечна геометрія.

ТАБЛИЦЯ 3. Значення МО в двох геометрія вимірювання для невідпалених та відпалених до $T_b = 700 \text{ К}$ мультишарів $[\text{Fe}/\text{Cu}]_n$.

| Зразок | Загальна товщина, нм | c_{Fe} , ат. % | Магнетоопір | | | |
|---|----------------------|-------------------------|---------------------------|----------------|---------------------|----------------|
| | | | перпендикулярна геометрія | | поперечна геометрія | |
| | | | невідп. | відп. до 700 К | невідп. | відп. до 700 К |
| $[\text{Fe}(1,9)/\text{Cu}(3,4)]_{15}/\text{П}$ | 80 | 36 | -2,39 | -0,68 | -0,93 | -0,21 |
| $[\text{Fe}(1,6)/\text{Cu}(2)]_{10}/\text{П}$ | 36 | 44 | -0,04 | -0,38 | -2,02 | -0,07 |
| $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{П}$ | 17 | 69 | -0,11 | — | 0,03 | — |
| $[\text{Fe}(3)/\text{Cu}(1,5)]_2/\text{Fe}(3)/\text{П}$ | 12 | 75 | -0,10 | — | -0,05 | — |

У п'ятишаровій системі $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{П}$ (рис. 5, а, табл. 3) для МО характерна анізотропія, яка виявляється в різних значеннях МО залежно від геометрії вимірювання. Тобто, в перпендикулярній геометрії МО має від'ємний знак (збільшення опору при збільшенні величини зовнішнього магнетного поля), в той час як для поперечної геометрії МО має додатний знак (зменшення опору при збільшенні величини зовнішнього магнетного поля). Для системи $[\text{Fe}(3)/\text{Cu}(1,5)]_2/\text{Fe}(3)/\text{П}$ (рис. 5, б, табл. 3) анізотропних властивостей не спостерігалось. Товщини немагнетних прошарків підбиралися таким чином, щоб вони лежали в межах антиферромагнетних максимумів.

Залежність величини магнетоопору від кількості фрагментів мультишару для системи $[\text{Fe}(2,7)/\text{Cu}(2,7)]_{100}/\text{П}$ представлено на

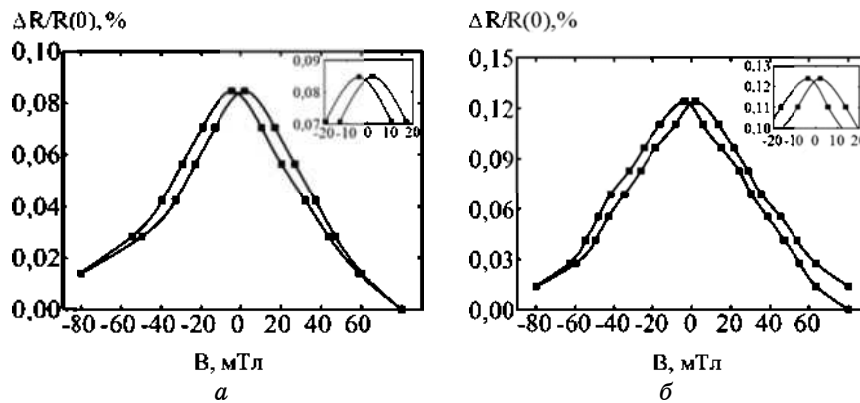


Рис. 6. Залежність МО від зовнішнього магнетного поля для багатошарової плівкової системи $[\text{Fe}(2,7)/\text{Cu}(2,7)]_{100}/\text{П}$ в перпендикулярній (а) та поперечній (б) геометріях вимірювання.

рис. 6 у двох геометріях вимірювання. Одержані залежності вказують на відсутність анізотропного магнеторезистивного ефекту, що є ознакою спін-залежного розсіяння, а отже наявності ГМО в даних структурах. Як і в роботі [7], в нашому випадку величина ГМО збільшилась при збільшенні кількості фрагментів мультишару, що, ймовірно, пояснюється впливом інтерфейсного розсіяння електронів на опір плівкової системи.

6. ВИСНОВКИ

На основі одержаних експериментальних даних можна зробити наступні висновки.

1. Багатошарові плівкові системи на основі Fe і Cu після термовідпалювання до 600 К зберігають індивідуальність шарів, про що свідчить те, що в даних структурах фіксуються окремі кільця, які відповідають фазам ОЦК-Fe та ГЦК-Cu.

2. У системі $[\text{Fe}(4)/\text{Cu}(2,7)]_2/\text{Fe}(4)/\text{П}$ спостерігається анізотропія $R(B)$, яка виявляється в негативному значенні МО при перпендикулярній геометрії, та позитивному МО — в поперечній геометрії ($\Delta R/R_s \cong 0,03\%$). Це типово для зразків з атомовою концентрацією Fe $c_{\text{Fe}} > 50$ ат.%. Зі зменшенням значення c_{Fe} анізотропія зникає, а МО збільшується ($\Delta R/R_s \cong 0,05\%$).

3. Термовідпалювання зразків призводить до загального зменшення значення МО, а також до збільшення параметра ґратниці.

Роботу виконано в рамках бюджетної тематики при фінансовій підтримці МОНМС України.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. P. Grunberg, *Acta mater.*, **48**: 239 (2000).
2. C.P.O. Treutler, *Sensors and Actuators A*, **91**: 2 (2001).
3. F. Petroff, A. Barthelemy, D. H. Mosca et al., *Phys. Rev. B*, **44**: 5355 (1991).
4. S. S. Parkin, *Annu. Rev. Sci.*, **25**: 357 (1995).
5. С. І. Воробйов, А. О. Степаненко, А. М. Черноус, Ю. М. Шабельник, *Металлофиз. новейшие технол.*, **31**, № 6: 837 (2009).
6. М. Г. Демиденко, С. И. Проценко, *Сб. трудов IX международной научно-практич. конф. «Образовательные, научные и инженерные приложения в среде LabVIEW и технологии National Instruments» (Москва: 2010)*, с. 379.
7. О. В. Сынашенко, Д. Н. Кондрахова, И. Е. Проценко, *Ж. нано- та електрон. фіз.*, **2**, № 4: 96 (2010).