УДК 539.216.2:543.429.3

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ТЕРМООБРАБОТКИ НА СОСТОЯНИЕ МЕЖСЛОЙНЫХ ГРАНИЦ В СВЕРХРЕШЕТКАХ НА ОСНОВЕ CO/CU МЕТОДАМИ ЯДЕРНОГО МАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА И РЕНТГЕНОВСКОЙ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ

Чупраков С.А., Банникова Н.С., Блинов И.В., Криницина Т.П., Миляев М.А., Попов В.В., Устинов В.В.

Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, e-mail: chuprakov@imp.uran.ru

Методом магнетронного напыления на постоянном токе приготовлены сверхрешётки стекло/Fe(5нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]10/Cr(2 нм). Методами ядерного магнитного резонанса (ЯМР) и рентгеновской рефлектометрии исследована структура и состояние межслойных границ. Исследовано влияние различных режимов термообработки на состояние интерфейсов. Структурные особенности межслойных границ, в основном, проявляются в уменьшении амплитуды кессинговских осцилляций. Согласно результатам рентгеновской рефлектометрии, уменьшение амплитуды кессинговских осцилляций при увеличении температуры отжига свидетельствует о менее «остром» характере интерфейсов. Проведенные исследования ЯМР показали увеличение доли атомов Co, участвующих в формировании интерфейсов, при повышении температуры отжига. Таким образом, оба метода дают близкие зависимости параметров, характеризующих состояние межслойных границ.

Ключевые слова: гигантское магнитосопротивление, сверхрешетки, интерфейсы, ядерный магнитный резонанс

THE STUDY OF AN EFFECT OF HEAT TREATMENT ON THE STATE OF INTERLAYER BOUNDARIES IN CO/CU SUPERLATTICES BY NUCLEAR MAGNETIC RESONANCE AND X-RAY REFLECTOMETRY

Chuprakov S.A., Bannikova N.S., Blinov I.V., Krinitsina T.P., Milyaev M.A., Popov V.V., Ustinov V.V.

M.N. Miheev Institute of Metal Physics Ural Branch of RAS, Ekaterinburg, e-mail: chuprakov@imp.uran.ru

Superlattices glass/Fe(5 nm)/[Co(1.5 nm)/Cu(0.9 nm)]10/Cr(2 nm) were fabricated by the method of direct current magnetron sputtering. The structure and state of interlayer boundaries were studied by nuclear magnetic resonance (NMR) and X-ray reflectometry. Effect of various regimes of heat treatment on the state of interfaces has been studied. Structural features of interlayer boundaries manifest themselves mainly in the decrease of Kessing's oscillations amplitude. According to the results of X-ray reflectometry, the decrease of Kessing's oscillations amplitude with increasing annealing temperature testifies the lesser «sharp» character of interfaces. The NMR studies have demonstrated the increase of the Co atoms fraction participating in the interfaces formation with increasing annealing temperature. Thus, both methods applied give similar dependences of the parameters characterizing the state of interlayer boundaries.

Keywords: giant magnetoresistance, superlattices, interfaces, nuclear magnetic resonance

В последние годы было проведено множество исследований в области спинтроники [1]. Особый интерес представляют исследования, связанные с объектами типа сверхрешетка, обладающих эффектом гигантского магнитосопротивления. Такие сверхрешётки представляют собой ультратонкие слои магнитных и немагнитных металлов с заданными параметрами толщин и структурой [2–5]. Благодаря проявлению эффекта гигантского магнитосопротивления, такого рода сверхрешётки находят широчайшее применение в различных технических приложениях.

Известно, что сверхрешетки на основе Co/Cu, по сравнению с другими типами металлических наноструктур, обладают наибольшим магниторезистивным эффектом. Состояние и структурные особенности межслойных границ, формируемых в процессе напыления, оказывает значительное влияние на магнитные и магнитотранспортные свойства исследуемых наноструктур [6, 7].

Одним из зарекомендовавших себя методов исследования состояния интерфейсов в сверхрешетках является метод рентгеновской рефлектометрии [8, 9]. Однако, при подгонке модельного спектра к экспериментальному варьируется значительное число параметров, что усложняет обработку и однозначную интерпретацию экспериментальных результатов. В следствие чего при оценке состояния интерфейсов (межслойных границ) желательно задействовать альтернативный метод.

Ранее [10–15] метод ядерного магнитного резонанса (ЯМР) уже применялся для исследования магнитных свойств и структурных особенностей сверхрешёток на основе Co/Cu. Главная идея использования методики ЯМР заключается в оценке результирующего магнитного поля, которое возникает в результате сверхтонкого взаимодействия магнитных атомов кобальта, на ядре-зонде ^{59}Co. В свою очередь, локальные магнитные поля существенно зависят от магнитных и структурных особенностей ближайшего окружения ядра-зонда. Метод ЯМР позволяет оценить эти локальные магнитные поля в образце, что делает его мощным методом изучения структурных характеристик многослойных наноструктур.

Для оптимизации магниторезистивных характеристик сверхрешёток на стадии их изготовления дополнительно может производиться отжиг приготовленной наноструктуры. Улучшение структурного состояния слоёв и интерфейсов позволяет повысить магнитосопротивление в сверхрешётках [16,17]. В настоящей работе ставилась задача исследовать влияние режима термической обработки на состояние межслойных границ.

материалы и методы исследования

Для приготовления образцов была использована напылительная система Ulvac MPS-4000–C6. Приготовление осуществлялось методом магнетронного напыления на постоянном токе. Материал, использованный для подложки – стекло. Предварительно, перед напылением, поверхность подложки очищалась в напылительной системе ионным травлением в атмосфере аргона. Для защиты поверхностного слоя меди от воздействия кислорода на образец был нанесён защитный слой Cr толщиной 2 нм. Материал буферного слоя – Fe, толщина 5 нм.

Приготовление сверхрешётки осуществлялось при комнатной температуре подложки, при фиксированном давлении аргона 0.1 Па и мощности магнетронов 100 Вт. Технологический режим напыления обеспечил следующие скорости напыления различных типов материалов: Fe – 2.7, Co – 3.0, Cu – 6.9, Cr – 3.0 нм/мин. Отжиг проводился при давлении P=10^{-5} Па при температурах 150, 200 и 300 °C в течение 1 ч Структурная формула приготовленных сверхрешёток имеет следующий вид: стекло/Fe(5 нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]$_{10}$/Cr(2 нм).

Методом ядерного магнитного резонанса на ядрах ^{59}Co были получены спектры ЯМР исследуемых сверхрешёток в диапазоне частот 125–240 МГц. Съёмка спектров выполнялась на импульсном спектрометре ЯМР при температуре жидкого гелия (4.2 К) в локальном магнитом поле в отсутствии внешнего магнитного поля. Сигнал спинового эха формируется последовательностью двух когерентных радиочастотных импульсов $(\tau_p)_x - t_{del} - (\tau_p)_y - t_{del} - echo$, создающих в измерительной катушке с образцом переменное магнитное поле с амплитудой круговой компоненты $H_1 \approx 10$ Э. Длительность импульсов τ_p составляет 0.5 мкс, длительность временного интервала между импульсами – 20 мкс. Мощность импульса поддерживалась постоянной. Съёмка спектра осуществлялась с шагом в 1 МГц. При оценке сверху погрешность измерения сигнала спинового эха не превышала 10%.

Исследуемые образцы имеют форму пластины с геометрическими размерами 10 × 10 мм^2. Плоскости измерительной катушки и образца компланарны, магнитный момент лежит в плоскости сверхрешётки.

Рентгеновские исследования были проведены на оборудовании Philips Empyrean в излучении Cr$K\alpha$.

Результаты исследования и их обсуждение

На рис. 1 приведены рентгеновские рефлектограммы для сверхрешёток стекло/Fe(5 нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]$_{10}$/Cr(2 нм) до и после термообработки. Наличие максимума интенсивности – брэгговского пика – при 2θ = 5.75° подтверждает наличие периодичности слоистой структуры. Положение брэгговского пика существенно не меняется при указанных режимах термической обработки образцов. Также структурные особенности межслойных границ, в основном, проявляются в уменьшении амплитуды кессинговских осцилляций. Уменьшение амплитуды кессинговских осцилляций при увеличении температуры отжига свидетельствует о менее «остром» характере интерфейсов.

Полученный экспериментальный спектр ЯМР сверхрешетки приведен на Рисунке 2. Символами отмечены точки экспериментального спектра, сплошная линия – модельный спектр, пунктирные цветные линии – резонансные пики, соответствующие одному из типов локального окружения ядра-зонда. Спектр ЯМР состоит из набора пиков, каждый из который соответствует особому типу конфигурации ближайшего окружения. Объёмный пик I_0 характеризует долю атомов, ближайшее окружение которых состоит только из атомов Co. Поскольку ^{59}Co обладает ненулевым спином, то на ядре-зонде возникает наведённое магнитное поле. В результате ядро-зонд оказы-

вается в эффективном локальном магнитном поле (совокупность магнитных полей, наведённых ближайшим окружением), которое и определяет резонансную частоту ядра-зонда. Объёмный пик I_0 имеет центр при 216 МГц, что близко соответствует значению, полученному для объёмного кобальта. Замещение атома Co атомом Cu в ближайшем окружении ядра зонда приводит к снижению величины эффективного локального магнитного поля и, следовательно, к снижению резонансной частоты. Расчеты показывают, что такое замещение приводит к снижению резонансной частоты примерно на 18 МГц. Из разложения спектра на компоненты можно видеть, что расстояние между резонансными пиками примерно одинаково и составляет ~ 18 МГц.

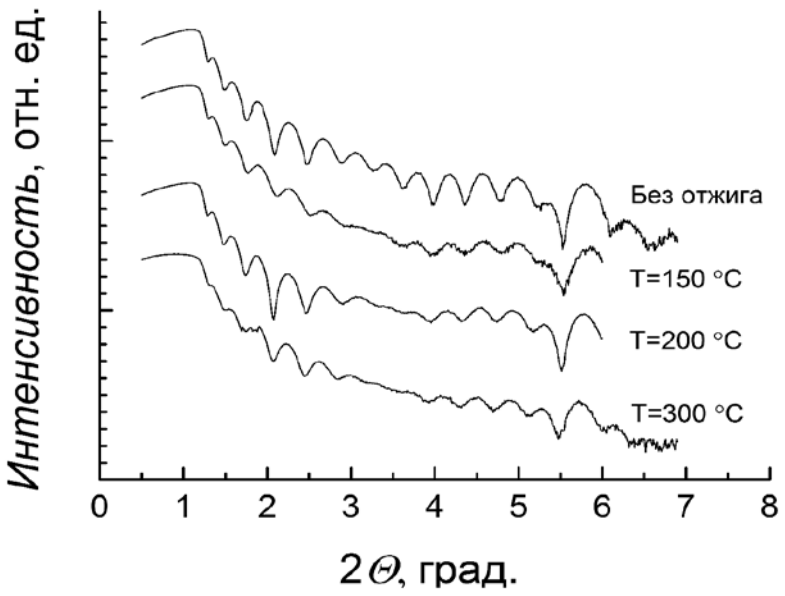

Рис. 1. Рентгеновские рефлектограммы образцов: стекло/Fe(5 нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]$_{10}$/Cr(2 нм) до и после отжига при 150, 200, 300°C – 1 ч

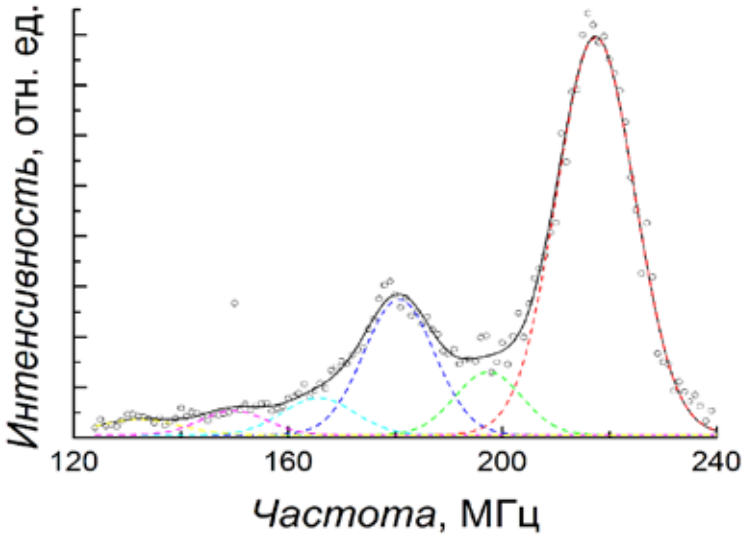

Рис. 2. Спектр ЯМР сверхрешетки стекло/Fe(5 нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]$_{10}$/Cr(2 нм) после отжига при 150°C в течение 1 ч

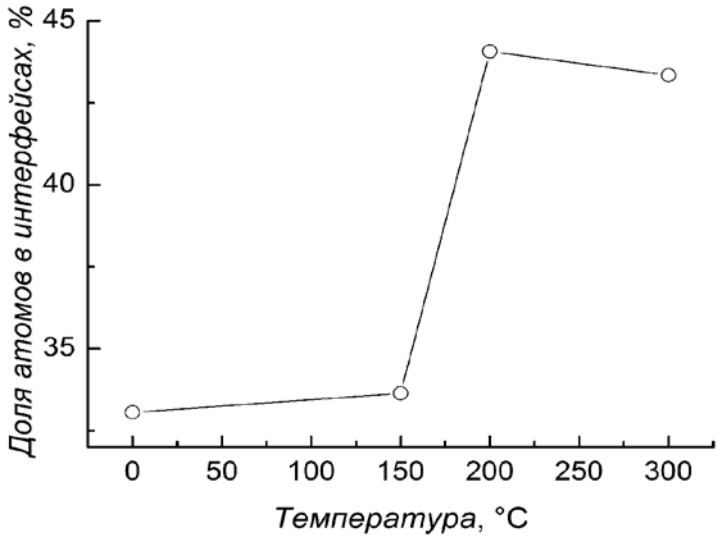

Рис. 3. Зависимость доли межслойных границ в образцах стекло/Fe(5 нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]10/Cr(2 нм) от режима термообработки

При обработке спектров варьировались ширины линий, положения резонансных пиков и их интенсивности. При анализе экспериментальных данных мы оценивали интегральную интенсивность сигналов от ядер-зондов, имеющих в ближайшем окружении хотя бы 1 атом меди. Из рис. 3 видно, что в результате термообработки увеличилось число атомов, участвующих в формировании межслойных границ.

Заключение

Изучено влияние режима термической обработки на состояние межслойных границ в образцах со структурной формулой стекло/Fe(5 нм)/[Co(1.5 нм)/Cu(0.9 нм)]$_{10}$/Cr(2 нм), приготовленных методом магнетронного напыления. Исследование состояния межслойных границ в указанных образцах выявило увеличение доли атомов Co, участвующих в формировании интерфейсов. В дальнейшем будут проведены исследования с использованием дополнительных методик, а также в более широком частотном диапазоне, что предоставит нам более полные данные о состоянии интерфейсов.

Работа выполнена в рамках государственного задания по теме «СПИН» № 01201463330 при поддержке программы фундаментальных исследований УрО РАН (проект № 15–9–2–44) и РФФИ (проект № 16–32–00128).

Список литературы

1. GMR Sensors Data Book, NVE Corporation, Minnesota, 2003, P.82. – http://www.cs.cmu.edu/~sensing-sensors/readings/GMR_ sensor_catalog.pdf.

2. Tumanski S., Thin Film Magnetoresistive Sensors / S. Tumanski. – Bristol and Philadelphia: Institute of Physics Publishing, 2001. – 441 p.

3. Reig C. Giant Magnetoresistance (GMR) Sensors From Basis to State-of-the-Art Applications. Smart Sensors, Measurement and Instrumentation. Volume 6. / C. Reig, S. Cardoso de Freitas, S.C. Mukhopadhyay. – Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2013. – 299 p.

4. Parkin S. S. P. Oscillatory magnetic exchange coupling through thin copper layers / S.S.P. Parkin, R. Bhadra, K.P. Roche // Phys. Rev. Lett. – 1991. – V. 66. – P. 2152 – 2155.

5. Wetzig, K. Metal Based Thin Films for Electronics / K. Wetzig, C.M. Schneider. – Weinheim: WILEY-VCH, 2003. – 378 p.

6. Parkin S.S.P., Li Z.G., Smith D.J. Giant magnetoresistance in antiferromagnetic Co/Cu multilayers // Appl. Phys. Lett. 1991. V. 58. № 23. P. 2710–2712.

7. Mosca D.H., Petroff F., Fert A., Schroeder P., Pratt W.P., Loloee R. Oscillatory interlayer coupling and giant magnetoresistance in Co/Cu multilayers // J. Magn. Magn. Mat. 1991.V. 94(1–2). P. L1–L5.

8. Fullerton E.E., Schuller I.K., Vanderstraeten H., Bruynseraede Y. Structural refinement of superlattices from x-ray diffraction // Physical Review B. 1992. V. 45(16). P. 9292–9309.

9. Kourtina N.V., Kravtsov E.A., Ustinov V.V. Method of the reflections function in the X-ray reflectometry study of multilayers // J. Magn. Magn. Mater. 2002. V. 240. P.494–497.

10. Meny C., Panissod P., Loloee R. Structural study of cobalt-copper multilayers by NMR // Phys. Rev. B. 1992. V. 45, N. 21, P. 12269–12277.

11. Thomson T., Riedi P.C. NMR studies of interfaces, strain and anisotropy in Co/Cu multilayers // Hyperfine interactions. 1999. V. 120/121. P. 20–30.

12. Халяпин Д.Л., Мальцев В.К., Ким П.Д., Турпанов И.А., Бетенькова А.Я. Исследование тонких пленок неоднородных сплавов Co-Cu методами ЯМР // Журнал Сибирского федерального университета. – 2010. – Т. 3. – С. 70–77.

13. Chuprakov S.A., Krinitsina T.P., Bannikova N.S., Blinov I.V., Verkhovskii S.V., M.A. Milyaev, V.V. Popov and V.V. Ustinov. Interface Structure and Magnetoresistance Studies of [Co/C]n Superlattices by Means of NMR and TEM // Solid State Phenom. 2014. V. 215. P. 358–364.

14. Чупраков С.А., Банникова Н.С., Блинов И.В., Криницина Т.П., Миляев М.А., Попов В.В., Устинов В.В. Исследование интерфейсов многослойных структур Co/Cu методом ядерного магнитного резонанса // ФММ. – 2015. – Вып. 116. – С.145–150.

15. Gronckel H.A.M., Kopinga K., Jonge W.J.M., Panissod P., Schille J.P., Broeder F.J.A. Nanostructure of Co/Cu multilayers // Phys. Rev. B. 1991. V.44. №. 16. P. 9100–9103.

16. An Y. The interfacial structure and degradation mechanism of the GMR effect in Co90Fe10/Cu and Ni70Co30/Cu magnetic multilayers / Y. An, B. Dai, H. Zhang, Z. Mai, J. Cai, and Z. Wu // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2006. – V. 39. – P. 1711–1717.

17. Hecker, M. Thermally induced modification of GMR in Co/Cu multilayers: correlation among structural, transport, and magnetic properties / M. Hecker, J. Thomas, D. Tietjen, S. Baunack, C.M. Schneider, A. Qiu, N. Cramer, R.E. Camley, Z. Celinski // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2003. – V. 36. – P. 564–572.