

Структура та магніторезистивні властивості тришарових плівкових систем на основі пермалою та міді

Ю.О. Шкурдода^{1,*}, А.М. Чорноус¹, В.Б. Лобода¹, Ю.М. Шабельник¹, В.О. Кравченко²,
Л.В. Дехтярук³

¹ Сумський державний університет, вул. Римського-Корсакова, 2, 40007 Суми, Україна

² Сумський державний педагогічний університет імені А.С.Макаренка, вул. Роменська, 87, 40002 Суми, Україна

³ Харківський національний університет будівництва та архітектури, вул. Сумська, 40, 61002 Харків, Україна

(Одержано 21.02.2016, у відредагованій формі – 14.05.2016, опубліковано online 21.06.2016)

Досліджені структурно-фазовий склад і магніторезистивні властивості тришарових плівкових систем на основі пермалою та міді, отриманих методом пошарової конденсації металів з наступною термообробкою в інтервалі температур 300-700 К. Показано, що в інтервалі товщин шарів $d_{Cu} = 6-15$ нм та $d_{Ru} = 25-40$ нм для свіжосконденсованих та відпалених за температури 400 К реалізується спін-залежне розсіювання електронів. Встановлено, що максимальне значення ізотропного магнітоопору спостерігається після відпалювання зразків за температури 400 К, а відпалювання за 550 К призводить до появи анізотропного магнітоопору.

Ключові слова: Багатошарова плівкова система, Кристалічна структура, Фазовий склад, Анізотропний магнітоопір, Спін-залежне розсіювання електронів.

DOI: [10.21272/jnep.8\(2\).02056](https://doi.org/10.21272/jnep.8(2).02056)

PACS numbers: 61.05.J – , 61.72. – y, 81.40.Gh

1. ВСТУП

Вивчення властивостей нових магнітних матеріалів (багатошарових структур, гранульованих наноматеріалів, манганітів і т. д.) дало можливість відкрити ряд важливих магніторезистивних ефектів: гігантський магнітоопір (ГМО), тунельний магнітоопір, колосальний магнітоопір, які представляють інтерес із точки зору фундаментальних досліджень та прикладних застосувань таких матеріалів [1-2].

Багатошарові плівкові системи на основі пермалою та міді, в яких реалізується спін-залежне розсіювання електронів, широко використовуються як чутливі елементи датчиків магнітного поля, цифрових пристроїв магніторезистивної пам'яті, автомобільної електроніки, біомедичних технологіях та ін. [3]. Проте виникає потреба в подальшому пошуку та експериментальному дослідженні плівкових структур на основі пермалою [4], які б відповідали додатковим вимогам (зменшення розмірів датчиків, збільшення їх чутливості, забезпечення відтвореності параметрів тощо). Важливим є також завдання прогнозування поведінки електрофізичних та магніторезистивних властивостей багатошарових систем із зміною товщини шарів металу, структури, температури та величини зовнішнього магнітного поля. Вирішення таких завдань можливе лише за умови використання комплексного підходу до вивчення фізичних властивостей плівкових систем.

Мета даної роботи полягала у дослідженні структурно-фазового стану, розмірної і температурної залежності поздовжнього та поперечного магнітоопору (МО) й електроопору магнітних тришарових плівок на основі пермалою (Ru) та Cu.

2. МЕТОДИКА І ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Багатошарові плівкові системи з товщиною шарів (1÷50) нм отримували у вакуумній камері при тиску газів залишкової атмосфери 10^{-4} Па. Почергова конденсація плівок здійснювалася в результаті випарування металів із незалежних джерел (Cu – з вольфрамової стрічки, Ru – електронно-променевою гарматою). Вихідним матеріалом для одержання шарів Ru був масивний сплав пермалою Fe_{0,2}Ni_{0,8}.

Конденсація плівок проводилася за кімнатної температури підкладки зі швидкістю $\omega = (0,5 \pm 1)$ нм/с залежно від режимів роботи випарників. Для дослідження магніторезистивних властивостей як підкладки використовували скляні пластини з попередньо нанесеними контактними площадками. Конструкція виготовленого підкладкотримача дозволяла отримувати за один технологічний цикл два плівкові зразки з різною товщиною немагнітного прошарку та з близькими товщинами феромагнітних шарів. Геометричні розміри плівок для вимірювання їх електричного опору задавалися вікнами, виготовленими з високою точністю у механічних масках з ніхромової фольги.

Товщина плівок визначалася за допомогою мікроінтерферометра МП-4 з лазерним джерелом світла та комп'ютерною системою реєстрації інтерференційної картини, що дозволяло підвищити точність вимірювань, особливо в області товщин $d < 50$ нм (до 20 %).

Результати дослідження хімічного складу вихідного сплаву та отриманих плівок методом рентгено-спектрального мікроаналізу показують, що вони співпадають у межах похибки вимірювань (не перевищувала 1,5 %).

Вивчення кристалічної структури та фазового скла-

* kabmet@ukr.net

ду плівок здійснювалися електронно-мікроскопічними та електронографічними методами (просвічуючий електронний мікроскоп ПЕМ-125К).

Вимірювання поздовжнього і поперечного магнітоопору (магнітне поле в площині плівки) та термомагнітна обробка плівок проводились у спеціальній установці, яка описана у [5], в умовах надвисокого безмасляного вакууму (10^{-6} – 10^{-7} Па у магнітному полі індукцією до $B = 200$ мТл. Плівки відпалювалися за схемою «нагрівання – витримка за температури 400, 550 та 700 К протягом 15 хв – охолодження».

Величина поздовжнього та поперечного магнітоопору плівкових зразків розраховувалася за формулою $(R(B) - R(B_C)) / R(B_C)$, де $R(B)$ – опір зразка в магнітному полі з індукцією B ; $R(B_C)$ – опір зразка в полі коерцитивної сили B_C . У випадку відсутності гістерезису

магніторезистивного ефекту магнітоопір розраховувався за формулою $(R(B) - R(0)) / R(0)$, де $R(0)$ – опір зразка за відсутності магнітного поля.

3. СТРУКТУРА ТА ФАЗОВИЙ СКЛАД ЗРАЗКІВ

Електронно-мікроскопічні дослідження показали, що всі невідпалені одношарові плівки пермалою полікристалічні із середнім розміром зерна близько 5 нм (рис. 1 а). Відпалювання за температури 700 К призводить до збільшення розмірів кристалітів у 5–6 разів (рис. 1 б). Фазовий склад свіжосконденсованих та відпалених одношарових плівок пермалою (рис. 1 а, б) відповідає фазі ГЦК-FeNi₃ з параметром решітки $a = 0,354$ – $0,356$ нм. Ці дані добре узгоджуються з результатами наведеними в роботах [6, 7].

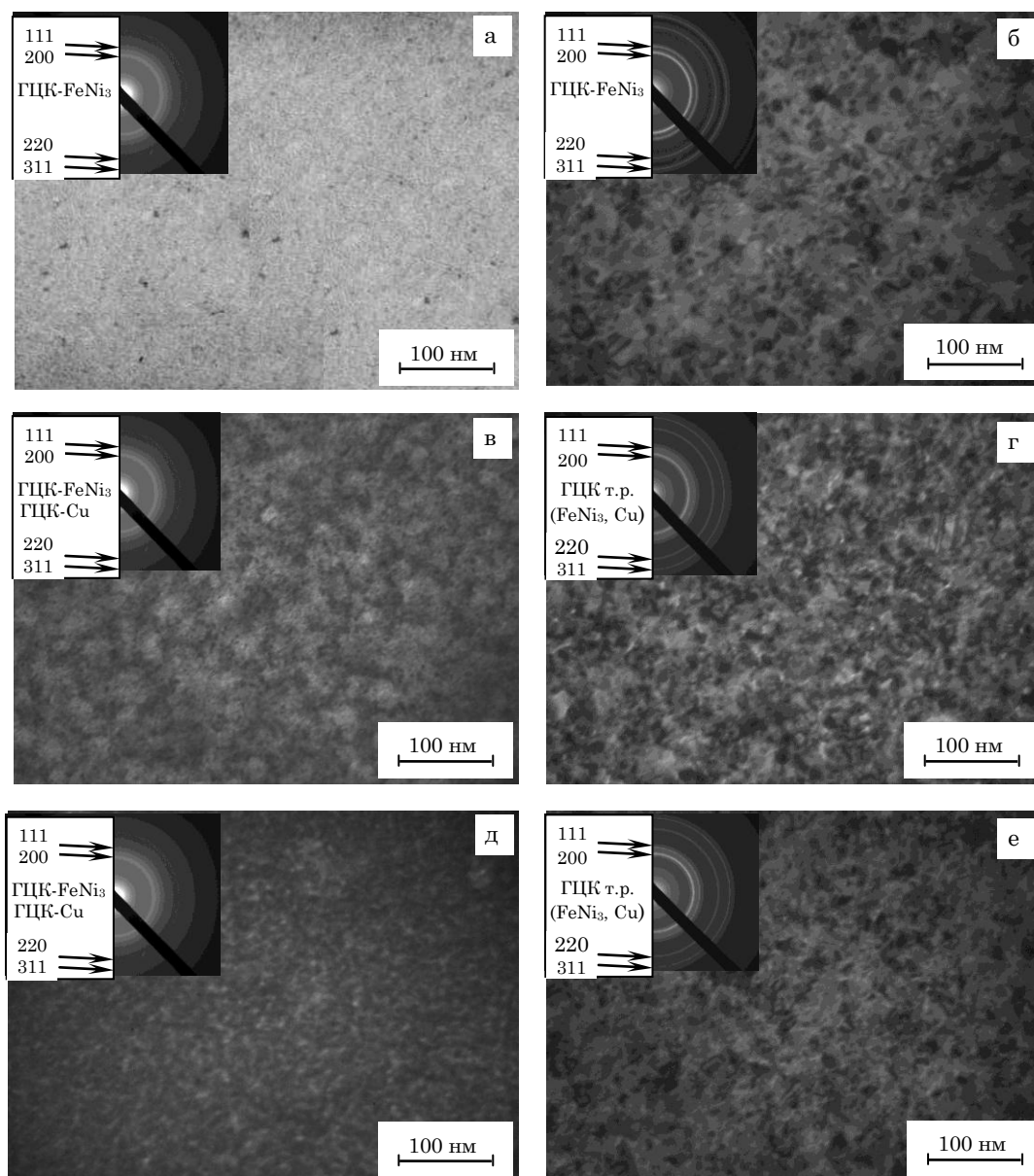


Рис. 1 – Мікроструктура одношарових плівок пермалою (а, б) та тришарових плівкових структур Py/Cu/Py (в-е) у свіжосконденсованому (а, в, д) та відпаленому за температури 700 К (б, г, е) стані (а, б – $d_{Py} = 40$ нм; в, г – $2d_{Py} = 60$ нм, $d_{Cu} = 7$ нм; д, е – $2d_{Py} = 80$ нм, $d_{Cu} = 5$ нм). На вставках наведені відповідні електронограми

У результаті електронно-мікроскопічних та електроннографічних досліджень тришарових плівок Ru/Cu/Ru було встановлено, що всі свіжосконденсовані плівки є полікристалічні з розмірами зерен менше 5 нм. Електронно-мікроскопічні зображення структури плівкових систем (рис. 1 в-е) подібні до структури одношарових плівок пермалою.

Для плівок Ru/Cu/Ru із товщиною прошарку Cu $5 \div 20$ нм у свіжосконденсованому стані спостерігається ГЦК-фаза з параметром решітки $a = 0,353-0,357$ нм (рис. 1 в, д). Лінії, що належать ГЦК-фазі пермалою та ГЦК-Cu, електроннографічно не розділяються внаслідок близьких міжплощинних відстаней. Підтвердженням збереження індивідуальності шарів Ru та Cu є реалізація спін-залежного розсіювання електронів у тришарових структурах.

Після відпалювання плівок Ru/Cu/Ru за температури 700 К і внаслідок збільшення розміру кристалітів до 30 нм ширина дифракційних кілець зменшується (рис. 1 г, е). При цьому чітко фіксується однофазний стан, а зміни параметра решітки електроннографічно не фіксуються. Ймовірно, що в даній системі утворюються твердий розчин на основі пермалою. Підтвердженням цьому є і дані роботи [8, 9].

4. МАГНІТОРЕЗИСТИВНІ ВЛАСТИВОСТІ ОДНО- ТА ТРИШАРОВИХ ПЛІВОК

Характер польових залежностей та величина магнітоопору тришарових плівок Ru/Cu/Ru/Π (Π – підкладка) суттєво залежить від товщин як прошарку Cu, так і шарів Ru. Експериментально були встановлені інтервали товщин шарів, у яких спостерігався позитивний поздовжній (опір збільшується при прикладенні зовнішнього магнітного поля до розмагніченого зразка) та негативний (відповідно опір зменшується) магніторезистивний ефект. Розглянемо детальніше особливості магнітоопору тришарових плівок.

Для всіх досліджуваних як свіжосконденсованих, так і відпалених за температур 400, 550 і 700 К тришарових зразків з товщиною немагнітного прошарку 1-5 нм, незалежно від товщини магнітних шарів, спостерігається позитивний поздовжній магніторезистивний ефект, що є ознакою анізотропного магнітоопору (АМО) [10-12]. Наявність АМО за малих ефективних товщин міді ($d_{Cu} = 1-5$ нм) пов'язана з відсутністю структурно суцільного немагнітного прошарку. Внаслідок цього існує досить сильний прямий зв'язок магнітних шарів. Така взаємодія перешкоджає роздільному перемігнюванню шарів, а отже, не призводить і до виникнення спін-залежного розсіювання електронів. Таку плівку наближено можна розглядати як одношарову плівку пермалою з ефективною товщиною $2d_F$ із включенням острівців Cu. Величина АМО для невідпалених тришарових плівок, як і у випадку одношарових плівок пермалою ($d_{Ru} = 50-100$ нм), при кімнатній температурі не перевищує 0,1 %. Після відпалювання за температури 700 К АМО зростає до 0,5 % для тришарових плівок і до 2 % для одношарових плівок Ru. Слід відмітити, що АМО спостерігається і для тришарових плівок з товщиною магнітних шарів $10 \div 20$ нм та $d_{Cu} = 3-10$ нм.

Деякі інші результати дослідження магнітоопору спостерігаються для тришарових плівок в інтервалі

товщин $d_{Cu} = 6-15$ нм та $d_{Ru} = 25-40$ нм. Для невідпалених та відпалених за температури 400 К плівок має місце ізотропність польових залежностей, що є ознакою ефекту гігантського магнітоопору (рис. 2 а, 2 б). На рис. 2-4 від'ємне значення магнітоопору показує, що електроопір розмагніченого зразка падає при внесенні його у магнітне поле. Причиною ізотропності польових залежностей магнітоопору є реалізація механізму спін-залежного розсіювання електронів провідності в об'ємі феромагнітних шарів та на межах поділу шарів. Слід зазначити, що величина поперечного магнітоопору для всіх зразків дещо більша, ніж поздовжнього. Це зумовлено наявністю анізотропного магнітоопору феромагнітних шарів. Величина магнітоопору для свіжосконденсованих зразків зі спін-залежним розсіюванням електронів становить 0,1-0,4 %. Малі значення магнітоопору можна пояснити відносно великою товщиною мідного прошарку, в результаті чого відбувається шунтування ефекту та утворення на межі поділу твердого розчину на основі пермалою, що призводить до «втрати інформації» електронами про свій спін при їх розсіюванні. Теоретичний аналіз, проведений у роботах [13, 14], показує, що максимальне значення ефекту ГМО визначається лише величиною об'ємного асиметричного спін-залежного розсіювання електронів α ($\alpha = \rho^+ / \rho^-$, де ρ^+ та ρ^- – питомий опір різних спінових каналів) і не важливо, в якому спіновому каналі зазначена асиметрія буде більшою. Проведені розрахунки на основі експериментальних даних показують, що значення параметра α для шарів Ru складає малу величину ($\alpha_{FeNi} = 1,046$). Малі значення параметра α обумовлені, на нашу думку, утворенням твердого розчину, що й призводить до низьких значень ефекту ГМО в тришарових плівкових системах на основі пермалою та міді. Зменшення параметра α для системи Fe/Cr спостерігали автори роботи [15]. Вони пов'язують таку зміну α з великою дефектністю інтерфейсів та посиленням процесів дифузійного розсіювання електронів.

Після низькотемпературного відпалювання ($T_{відп} = 400$ К) характер поведінки польових залежностей не зазнає змін, величина поздовжнього МО майже не змінюється, тоді як значення поперечного МО збільшується приблизно у 1,3-1,5 рази. Останнє, ймовірно пов'язане зі збільшенням впливу позитивного поздовжнього магнітоопору феромагнітних шарів після відпалювання.

Відпалювання за температури 550 К призводить до появи АМО з амплітудою 0,1-0,2 % (рис. 2в). Основною причиною появи АМО є взаємодія атомів і утворення твердого розчину на основі Ru, які призводять до порушення неперервності мідного прошарку, що підтверджується електроннографічно. При подальшому відпалюванні зразків за температури 700 К зберігається АМО, петлі магніторезистивного гістерезису стають більш чіткими, а величина магнітоопору зростає до 0,5-0,7 % (рис. 2г).

Розглянемо більш детально причини зміни магнітоопору після відпалювання. Явище зміни величини $(\Delta R/R(B_c))_{max}$ у процесі відпалювання може бути зумовлене як зміною величини $\Delta R_{max} = R(B_c) - R(B_s)$ ($R(B_s)$ – електричний опір зразка, який вимірюється у

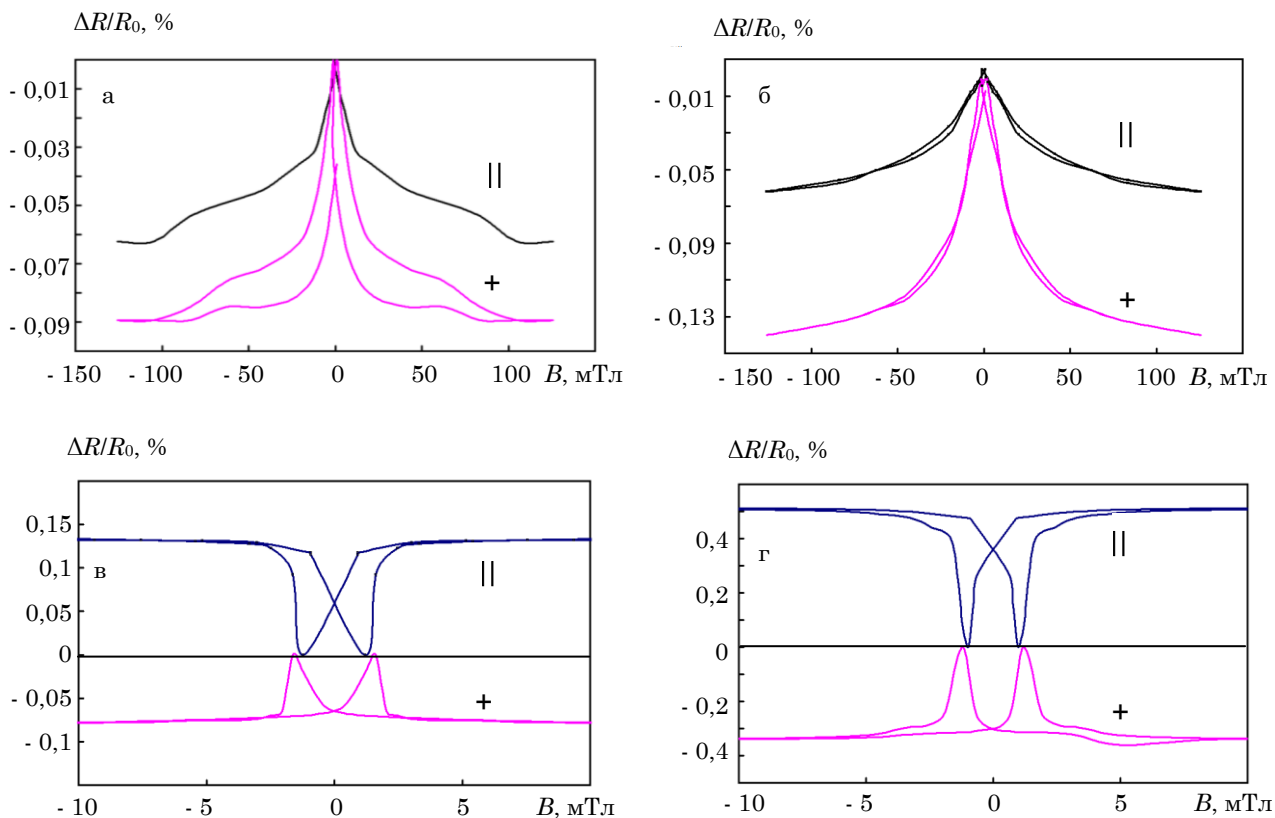


Рис. 2 – Залежність поздовжнього (||) та поперечного (+) магнітоопору від індукції магнітного поля для свіжосконденсованої та відпаленої при різних температурах тришарової структури $\text{Ru}/\text{Cu}/\text{Ru}$ з $2d_{\text{Ru}} = 70$ нм, $d_{\text{Cu}} = 7$ нм (а – свіжосконденсована плівка; б - $T_{\text{відп.}} = 400$ К; в - $T_{\text{відп.}} = 550$ К; г - $T_{\text{відп.}} = 700$ К). Температура вимірювання 300 К

максимальному полі), так і значенням $R(B_C)$. Дійсно, у процесі поетапного відпалювання величини $R(B_C)$ і $R(B_S)$ змінюються. Але їх зміна відбувається таким чином, що відношення $(\Delta R/R(B_C))_{\text{max}}$ може як збільшуватись, так і зменшуватись. Тому для кращого розуміння впливу $T_{\text{відп.}}$ на величину магнітоопору було проведено дослідження залежності питомого опору та величини ΔR_{max} від температури відпалювання. Як видно з даних, наведених на рис. 3 а, при відпалюванні відбувається необоротне зменшення електричного опору в результаті заліковування дефектів кристалічної будови та збільшення розміру кристалітів. При цьому низькотемпературне відпалювання не призводить до суттєвої зміни величини ΔR_{max} як при поздовжній, так і поперечній геометрії вимірювання (рис. 3 б). Отже, у плівках не відбувається процесів, які б змінювали умови спінозалежного розсіювання електронів, зокрема зміни амплітуди шорскостей меж поділу, збільшення розмірів зерен та ін.

Тому збільшення величини $(\Delta R/R(B_C))_{\text{max}}$ (рис. 4 а) відбувається лише за рахунок зменшення значення $R(B_C)$. Зменшення МО при переході до АМО зумовлено зменшенням ΔR_{max} . Для всіх зразків з АМО залежності магнітоопору від температури відпалювання носять монотонний характер і магнітоопір зростає зі збільшення температури відпалювання. Слід зазначити, що для таких зразків процесі поетапного відпалювання відбувається збільшення ΔR_{max} і зменшення R_0 , що й (B_C) , що й призводить до значного зростання магнітоопору (у 5-10 разів (рис. 4 б)).

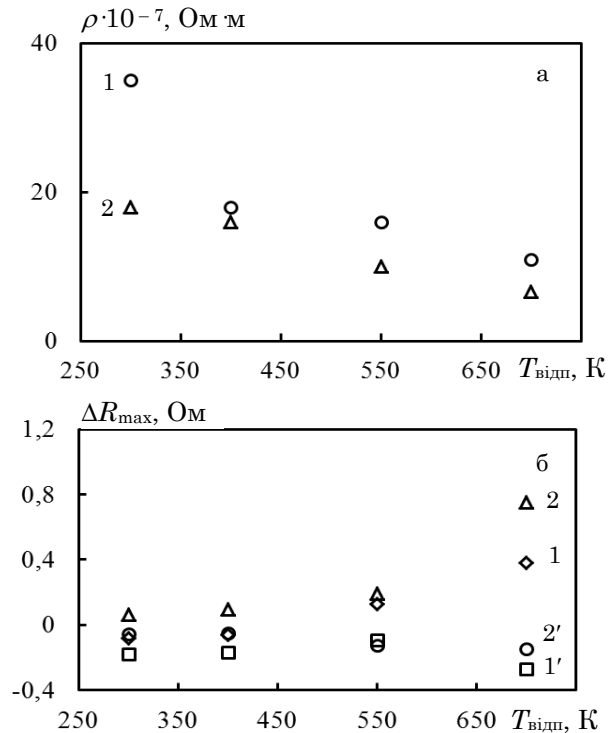


Рис. 3 – Залежність питомого опору ρ (а) та величини ΔR_{max} (б) від температури відпалювання для тришарових плівок $\text{Ru}/\text{Cu}/\text{Ru}$ з товщинами шарів 1 - $d_{\text{Ru}} = 30$ нм, $d_{\text{Cu}} = 7$ нм; 2 - $d_{\text{Ru}} = 50$ нм, $d_{\text{Cu}} = 5$ нм

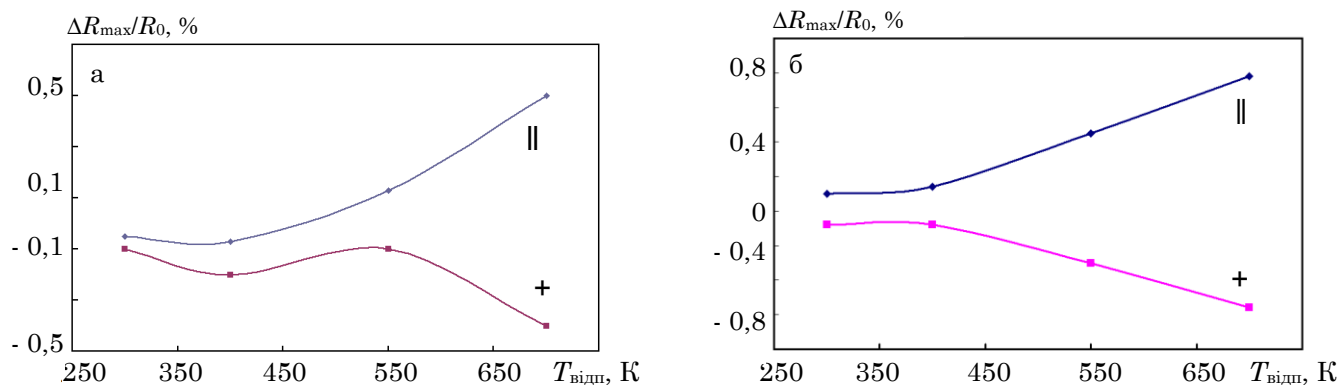


Рис. 4 – Залежність $\Delta R_{\max}/R_0$ від температури відпалювання для тришарових плівок $\text{Pu}/\text{Cu}/\text{Pu}$ з товщинами шарів а – $d_{\text{Pu}} = 30$ нм, $d_{\text{Cu}} = 7$ нм; б – $d_{\text{Pu}} = 50$ нм, $d_{\text{Cu}} = 5$ нм

5. ВИСНОВКИ

1. Дослідження фазового складу плівок $\text{Pu}/\text{Cu}/\text{Pu}$ показало, що в свіжосконденсованих плівках спостерігається ГЦК-фаза з параметром решітки $a = 0,353\text{--}0,356$ нм. Після відпалювання за температури 700 К даній системі утворюються твердий розчин (FeNi_3 , Cu).
2. Для свіжосконденсованих та відпалених за 400 К тришарових зразків з $d_{\text{Pu}} = 25\text{--}40$ нм, $d_{\text{Cu}} = 6\text{--}15$ нм реалізується спин-залежне розсіювання електронів провідності, яке проявляється в ізотропності польових залежностей. Відпалювання за температур

більше 550 К для зразків з вихідними ізотропними польовими залежностями призводить до появи анізотропії магнітоопору внаслідок руйнування немагнітного прошарку.

3. Отримані експериментальні результати свідчать про можливість термостабілізаційного відпалювання магніторезистивних елементів на основі пермалюю та Cu у вакуумі за температури 400 К безпосередньо після їх осадження.

Робота виконана в рамках держбюджетної теми № 0116U002623.

Структура и магниторезистивные свойства трехслойных пленочных систем на основе пермаллоя и меди

Ю.А. Шкурдода¹, А.Н. Черноус¹, В.Б. Лобода¹, Ю.М. Шабельник¹, В.А. Кравченко², Л.В. Дехтярук³

¹ Сумский государственный университет, ул. Римского-Корсакова, 2, 40007 Сумы, Украина

² Сумский государственный педагогический университет имени А.С.Макаренка, ул. Роменская, 87, 40002 Сумы, Украина

³ Харьковский национальный университет Харьківський національний університет строительства и архитектуры, ул. Сумская, 40, 61002 Харьков, Украина

Исследованы структурно-фазовый состав и магниторезистивные свойства трехслойных пленочных систем на основе пермаллоя и меди, полученных методом послойной конденсации металлов с последующей термообработкой в интервале температур 300–700 К. Показано, что в интервале толщин слоев $d_{\text{Cu}} = 6\text{--}15$ нм и $d_{\text{Pu}} = 25\text{--}40$ нм для свежосконденсированных и отожженных при температуре 400 К реализуется спин-зависимое рассеяние электронов. Установлено, что максимальное значение изотропного магнитосопротивления наблюдается после отжига образцов при температуре 400 К, а отжиг при 550 К приводит к появлению анизотропного магнитосопротивления.

Ключевые слова: Многослойная пленочная система, Кристаллическая структура, Фазовый состав, Анизотропное магнитосопротивление, Спин-зависимое рассеяние электронов.

Structure and Magnetoresistive Properties of Three-layer Film Systems Based on Permalloy and Copper

Yu.O. Shkurdoda¹, A.M. Chornous¹, V.B. Loboda¹, Yu.M. Shabelnyk¹, V.O. Kravchenko²,
L.V. Dekhtyaruk³

¹ *Sumy State University, 2, Rymskogo-Korsakova St., 40007 Sumy, Ukraine*

² *Sumy State Pedagogical University named after A.S. Makarenka, 87, Romenska St., 40002 Sumy, Ukraine*

³ *Kharkiv National University of Construction and Architecture, 40, Sumska St., 61002 Kharkiv, Ukraine*

Structural and phase composition and magnetoresistive properties of three-layer film systems based on permalloy and copper were investigated. The samples were obtained by layer by layer condensation method with followed heat treatment to the 300-700 K temperature range. Shown that the spin-dependent scattering of electrons realizing in the range of layer thicknesses ($d_{Cu} = 6-15$ nm and $d_{Py} = 25-40$ nm) of the condensed and annealed at 400 K samples. The Maximum GMR observed after annealing the samples at 400 K and annealing to 550 K leads to anisotropic magnetoresistance occurrence.

Keywords: Multilayer film system, Crystal structure, Phase composition, Anisotropic magnetoresistance, Spin-dependent scattering of electrons.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. E.Y. Tsymbal, D.G. Pettifor, *Solid State Phys.* **56**, 113 (2001).
2. M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, *Phys. Rev. Lett.* **61** No 21, 2472 (1988).
3. A.M. Pogorily, S.M. Ryabchenko, A.I. Tovstolytkin, *Ukr. J. Phys.* **6** No 1, 37 (2010).
4. G. Scheunert, O. Heinonen, R. Hardeman, A. Lapicki, M. Gubbins, R.M. Bowman, *Appl. Phys. Rev.* **3**, 011301 (2016).
5. Yu.O. Shkurdoda, V.B. Loboda, L.V. Dekhtyaruk, *Metallofiz. Nov. Tekhnol.* **30** No 3, 295 (2008).
6. Ia.M. Lytvynenko, I.M. Pazukha, O.V. Pylypenko, V.V. Bibyk, *Metallofiz. Nov. Tekhnol.* **37** No 10, 1377 (2015).
7. J.H. Kim, L. Kim, S.K. Lim, C.K. Kim, C.S. Yoon, *J. Magn. Mater.* **310**, 2402 (2007).
8. I.V. Cheshko, I.Yu. Protsenko, *Metallofiz. Nov. Tekhnol.* **31** No 7, 921 (2009).
9. J. Neamtu, M. Volmer, A. Coraci, *Thin Solid Films* **343-344**, 218 (1999).
10. С.В. Вонсовский, *Магнетизм* (Москва: Наука: 1971) (S.V. Vonsovskiy, *Magnetizm* (Moskva: Nauka: 1971)).
11. S.I. Vorobiov, Ia.M. Lytvynenko, I.O. Shpetnyi, O.V. Shutyleva, A.M. Chornous, *Metallofiz. Nov. Tekhnol.* **37** No 8, 1049 (2015).
12. I.Yu. Protsenko, P.K. Mehta, L.V. Odnodvoretz, C.J. Panchal, K.V. Tyschenko, Yu.M. Shabelnyk, N.I. Shumakova, *J. Nano- Electron. Phys.* **6** No 1, 01031 (2014).
13. A.G. Basov, S.I. Vorobiov, Yu.O. Shkurdoda, L.V. Dekhtyaruk, *J. Nano-Electron. Phys.* **2** No 3, 78 (2010).
14. K.N. Altmann, N. Gilman, J. Hayoz, R.F. Willis, F.J. Himpsel, *Phys. Rev. Lett.* **87** No 13, 137201 (2001).
15. I.D. Lobov, M.M. Kirillova, A.A. Makhnev, L.N. Romashev, M.A. Milyaev, V.V. Ustinov, *Phys. Solid State* **56** No 3, 505 (2014).