УДК 539.216.2: 537.623

# ВЛИЯНИЕ ДАВЛЕНИЯ АРГОНА НА СВОЙСТВА Co/Cu/Co ПЛЕНОК, ПОЛУЧЕННЫХ МАГНЕТРОННЫМ РАСПЫЛЕНИЕМ

**Корнилов А.В., Мухин Н.П., Миндолин С.Ф.**

*ФГБОУ ВПО «Белгородский государственный технологический университет им. В.Г. Шухова», Белгород, e-mail: Kornilov_USPI@mail.ru*

В статье исследуется влияние технологических условий и внешних воздействий на магнитные и магниторезистивные свойства поликристаллических трехслойных Co/Cu/Co пленок. Показано влияние давления рабочего газа (Ar) на величину гигантского магнетосопротивления и определены технологические параметры, при которых гигантское магнетосопротивление имеет максимальное значение. Пленки Co/Cu/Co получали магнетронным распылением на постоянном токе в атмосфере рабочего газа Ar, давление которого изменялось от 3,75 до 22,50 мТорр. Образцы, полученные при изменении давления аргона, отжигались при температуре $T_{отж}$ = 240 °C в течение 30 мин. Обнаружено, что после отжига магнитные и магниторезистивные параметры образцов изменились, но поведение их с изменением давления аргона осталось прежним. Наблюдается корреляция между магнетосопротивлением, полем насыщения, коэрцитивной силой, долей антиферромагнитно связанных областей и чувствительностью для исследуемых образцов.

**Ключевые слова: магнетронное распыление, гигантское магнитосопротивление, антиферромагнитная связь, трехслойные пленки, температурный отжиг**

# THE EFFECT OF PRESSURE ON THE PROPERTIES OF ARGON Co/Cu/Co FILMS PREPARED BY MAGNETRON SPUTTERING

**Kornilov A.V., Mukhin N.P., Mindolin S.F.**

*Belgorod State Technological University n.a. V.G. Shoukhov, Belgorod, e-mail: Kornilov_USPI@mail.ru*

The article investigate the influence of processing conditions and external influences on the magnetic and magnetoresistive properties of polycrystalline trilayer Co/Cu/Co films. Influence of pressure of the working gas (Ar) on the value of the giant magnetoresistance and technological parameters under which giant magnetoresistance has a maximum value. Film Co/Cu/Co prepared by magnetron sputtering on a direct current in the atmosphere of the working gas Ar, the pressure of which varied from 3,75 to 22,50 mTorr. Samples obtained at the pressure of argon, annealed at $T_{ann}$ = 240 °C for 30 min. It was found that after annealing the magnetic and magnetoresistive parameters of the samples have changed, but their behavior with the change of the argon pressure remained the same. There is a correlation between the magnetoresistance, saturation field, coercive force, the proportion of antiferromagnetically coupled areas and sensitivity for the samples.

**Keywords: magnetron sputtering, giant magnetoresistance, antiferromagnetic coupling, three-layer films, temperature annealing**

Несмотря на большое число теоретических и экспериментальных работ, опубликованных ранее и выясняющих причины возникновения гигантского магнетосопротивления в магнитных мультислоях, некоторые проблемы остаются нерешенными. Среди них, например, влияние межфазной структуры на гигантский магниторезистивный эффект. Существуют противоречивые данные, например, большой ГМР – эффект связывается или с большими (Fe/Cr/Fe) [7], или с малыми межфазными шероховатостями (Co/Cu/Co) [10].

## Методика получения образцов и методы исследования свойств

Пленки Co/Cu/Co получали магнетронным распылением на постоянном токе в атмосфере рабочего газа Ar при $P_{Ar} = 5 \cdot 10^{-3}$ Торр. Толщина слоев определялась на спектрофотометре СФ-56 по методике [5].

Эффективная намагниченность $M_{эф}$ измерялась индукционным методом на автоматизированном вибрационном магнитометре в поле H = 80 кА/м, а коэрцитивная сила $H_c$ измерялась индукционным и магнитооптическим методами. Петли магнитного гистерезиса строились по данным, полученным на вибромагнитометре. Магнитосопротивление измеряли компенсационным методом по двухточечной схеме.

На мультислоях Co(12 нм)/Cu(2,2 нм)/Co(12 нм), осажденных магнетронным распылением при комнатной температуре на химически очищенные стеклянные подложки, исследовалось влияние давления аргона на магнетосопротивление, поле насыщения, коэрцитивную силу, и долю антиферромагнитно связанных областей.

Образцы, полученные при изменении давления аргона, отжигались при температуре $T_{отж}$ = 240 °C в течение 30 мин [3, 4]. Обнаружено, что после отжига магнитные и магниторезистивные параметры образцов изменились, но поведение их с изменением давления аргона осталось прежним. Наблюдается корреляция между магнетосопротивлением, полем насыщения, коэрцитивной силой, долей антиферромагнитно связанных областей и чувствительностью для исследуемых образцов.

## Результаты исследования и их обсуждение

На рис. 1 и 2 приведены некоторые магнитные и магниторезистивные петли гистерезиса для осажденных и отожженных образцов соответственно при вариации давления аргона Ar в интервале от $3{,}75 \cdot 10^{-3}$ до $22{,}50 \cdot 10^{-3}$ Торр.

С ростом давления аргона изменяется вид магнитных и магниторезистивных

петель. Видно, что с изменением давления аргона изменяется коэрцитивная сила и доля антиферромагнитно связанных областей, что сказывается на прямоугольности петель магнитного гистерезиса (рис. 1,а и 2,а). Магниторезистивные петли (рис. 1,б и 2,б) показывают неоднозначную зависимость максимальной величины гигантского магнетосопротивления от давления распыляющего газа аргона. Анализ магниторезистивных петель показал, что максимальное значение магнетосопротивления (1,2 и 2,04 %) приходится на давление аргона, равное $6{,}75 \cdot 10^{-3}$ Торр. Дальнейшее увеличение давления рабочего газа приводит к постепенному снижению величины магниторезистивного эффекта.

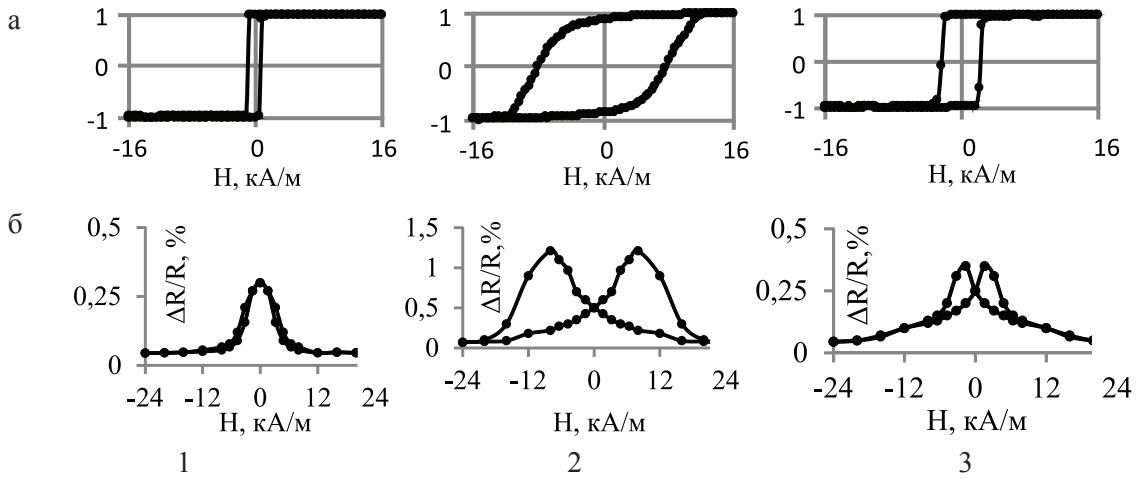



*Рис. 1. Магнитные (а) и магниторезистивные (б) петли гистерезиса мультислоев, осажденных при различном давлении аргона:*
*1 – $P_{Ar}$ = 3,75 мТорр; 2 – $P_{Ar}$ = 6,75 мТорр; 3 – $P_{Ar}$ = 10,5 мТорр*

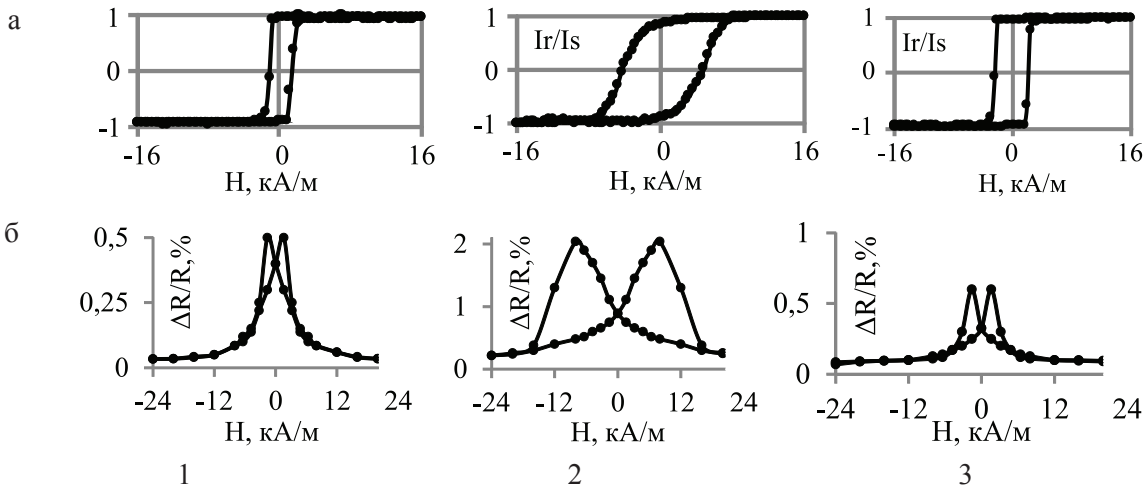



*Рис. 2. Магнитные (а) и магниторезистивные (б) петли гистерезиса отожженных мультислоев, осажденных при различном давлении аргона. ($T_{отж}$ = 240 °C):*
*1 – $P_{Ar}$ = 3,75 мТорр; 2 – $P_{Ar}$ = 6,75 мТорр; 3 – $P_{Ar}$ = 10,5 мТорр*

По магнитным и магниторезистивным петлям гистерезиса были рассчитаны магнитные и магниторезистивные параметры, которые представлены в табл. 1 и 2.

При давлении аргона $P_{Ar}$ = 6,75 мТорр магниторезистивный эффект и доля антиферромагнитно упорядоченных областей достигают максимального значения и равны $\Delta R/R$ = 1,21 % и $F_{аф}$ = 12,3 % соответственно. Магниторезистивный эффект увеличивается с ростом доли антиферромагнитно упорядоченных областей.

Одним из магниторезистивных параметров, определяющим практическое применение пленок, является чувствительность, которую можно определить по формуле S(H) = (1/*R*)(*dR*/*dH*) [8].

**Таблица 1**

Магнитные и магниторезистивные параметры Co/Cu/Co пленок, осажденных при различном давлении аргона

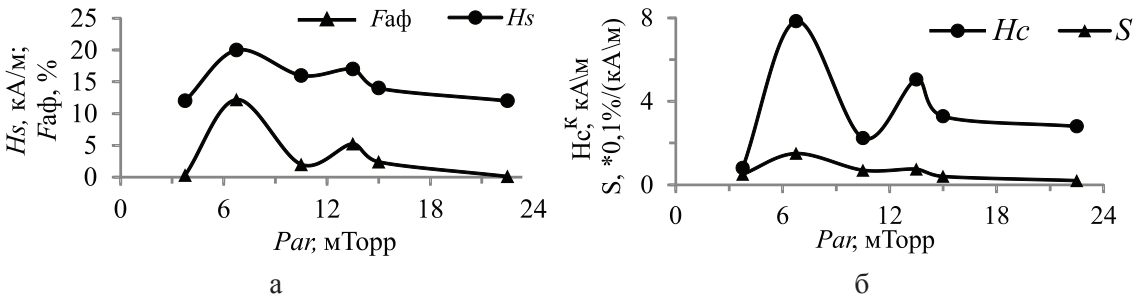
| $P_{Ar}$, (mTorr) | $\Delta R/R$, (%) | $H_c$, (кА/м) | $F_{аф}$, (%) | $H_S$, (кА/м) | $S$, (%/кА/м) |
|---|---|---|---|---|---|
| 3,75 | 0,3 | 0,8 | 0,3 | 12 | 0,05 |
| 6,75 | 1,2 | 7,84 | 12,3 | 20 | 0,15 |
| 10,50 | 0,35 | 2,24 | 2 | 16 | 0,1 |
| 13,50 | 0,44 | 5,04 | 5,25 | 17 | 0,075 |
| 15,00 | 0,33 | 3,28 | 2,4 | 14 | 0,04 |
| 22,50 | 0,15 | 2,8 | 0,1 | 12 | 0,02 |

**Таблица 2**

Магнитные и магниторезистивные параметры отожженных Co/Cu/Co пленок, осажденных при различном давлении аргона

| $P_{Ar}$, (mTorr) | $\Delta R/R$, (%) | $H_c$, (кА/м) | $F_{аф}$, (%) | $H_S$, (кА/м) | $S$, (%/кА/м) |
|---|---|---|---|---|---|
| 3,75 | 0,5 | 1,28 | 1,8 | 20 | 0,13 |
| 6,75 | 2,04 | 9,04 | 13,3 | 28 | 0,4 |
| 10,50 | 0,6 | 2,4 | 3,8 | 22 | 0,1 |
| 13,50 | 0,76 | 4,16 | 5,9 | 24 | 0,12 |
| 15,00 | 0,68 | 2,4 | 3,4 | 21 | 0,08 |
| 22,50 | 0,25 | 2,16 | 1,5 | 18 | 0,05 |

На рис. 3 приведены зависимости $H_s = f(P_{Ar})$, $F_{аф} = f(P_{Ar})$, $H_c = f(P_{Ar})$, $S = f(P_{Ar})$ для образцов Co(12 нм)/Cu(2,2 нм)/Co(12 нм), осажденных при различном давлении аргона. Максимальное значение поля насыщения (рис. 3а), которое пропорционально косвенной обменной связи между двумя слоями Co и параметром прямоугольности петли гистерезиса ($I_r/I_s$), соответствует максимальному значению доли антиферромагнитно упорядоченных областей $F_{аф}$.




а б

*Рис. 3. а – зависимость поля насыщения ($H_s$) и доли антиферромагнитно упорядоченных областей ($F_{аф}$); б – зависимость коэрцитивной силы ($H_c$) и чувствительности (S) от давления рабочего газа для Co(12 нм)/Cu(2,2 нм)/Co(12 нм) мультислоев*

Из рис. 3а и 3б видно, что основные магнитные и магниторезистивные параметры ($H_c$, $\Delta R/R$, $H_s$, $F_{аф}$ и $S$) зависят от давления рабочего газа аргона и коррелируют между собой.

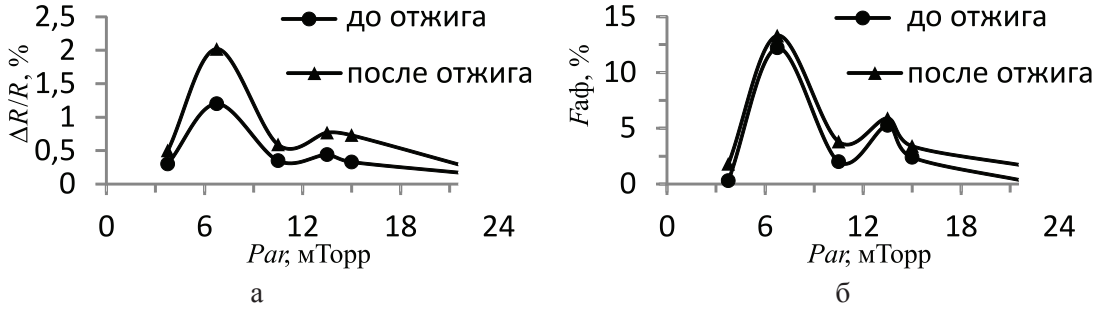
Такое поведение магнитных и магниторезистивных параметров можно объяснить с точки зрения шероховатости межфазных границ мультислоев. Согласно [6] увеличение скорости осаждения приводит к увеличению скорости зародышеобразования и к образованию более мелких зерен.

Шероховатость межфазных границ, обусловленная размером зерен при больших скоростях осаждения (при низком давлении) мала, что приводит к увеличению магниторезистивного эффекта.

При уменьшении скорости осаждения (при увеличении давления) размер зерна должен расти, но при этом увеличивает-

ся число примесей атомов газа и дефектов внутри пленки, что приводит к образованию межфазной границы с большой шероховатостью и магниторезистивный эффект уменьшается. Влияние шероховатости межфазных границ было исследовано в работе [11]. Авторы показали, что магниторезистивные параметры пленок максимальны, когда шероховатости межфазных границ имеют минимальное значение. Эти выводы хорошо согласуются с нашими результатами. Поэтому можно сказать, что шероховатость межфазной границы – очень важный параметр, который оказывает большое влияние на гигантский магниторезистивный эффект.

На рис. 4 приведены зависимости $\Delta R/R = f(P_{Ar})$ (рис. 4,а) и $F_{аф} = f(P_{Ar})$ (рис. 4,б) для образцов, осажденных при различном давлении аргона: до отжига (кривая 1) и после отжига при $T_{отж} = 240\,°C$ (кривая 2). Видно, что в результате отжига происходит увеличение значений $(\Delta R/R)_{max}$ и $F_{аф}$.

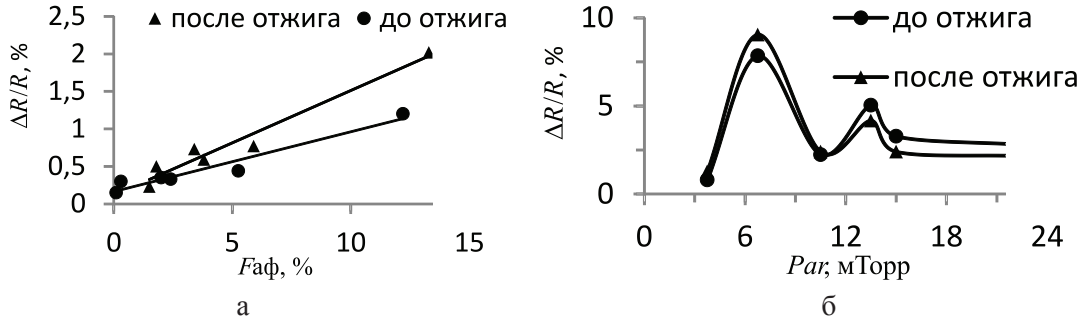



а б

*Рис. 4. Зависимость магнетосопротивления (а) и доли антиферромагнитно упорядоченных областей (б) от давления аргона для мультислоев Co(12 нм)/Cu(2,2 нм)/Co(12 нм): до отжига и после отжига при $T_{отж} = 240\,°C$*

Зависимость магниторезистивного эффекта от доли антиферромагнитно упорядоченных областей для исследуемых образцов до отжига и после отжига при $T_{отж} = 240\,°C$ приведена на рис. 5,а.

Экспериментальные точки на рис. 5а, соответствующие осажденным и отожженным пленкам, не лежат на одной прямой. После отжига увеличился наклон прямой зависимости $(\Delta R/R)_{max} = f(F_{аф})$ относительно оси абсцисс. Это, возможно, обусловлено следующим: в результате отжига с одной стороны происходит увеличение АФ доли, а с другой стороны, рост размера зерна от 5–6 до 10 нм приводит к увеличению угла дисперсии вектора намагниченности. На магнитных дефектах (ряби намагниченности) происходит рассеяние электронов проводимости, что также дает вклад в магниторезистивный эффект. Поэтому в отожженных пленках зависимость $(\Delta R/R)_{max} = f(F_{аф})$ не совпадает с аналогичной зависимостью для осажденных пленок. Таким образом, из приведенных графиков видно, что не только доля антиферромагнитно упорядоченных областей влияет на величину ΔR/R, а также и рассеяние электронов на магнитных дефектах [1, 9].




а б

*Рис. 5. Зависимость магнетосопротивления от доли антиферромагнитно упорядоченных областей (а) и коэрцитивной силы от давления аргона (б): до отжига и после отжига при $T_{отж} = 240\,°C$*

В результате отжига (рис. 5б) коэрцитивная сила образцов, полученных при давлениях аргона 3,75; 6,75 и 10,5 мТорр, незначительно возросла, а при больших давлениях аргона 13,5; 15 и 22,5 мТорр – уменьшилась. Уменьшение коэрцитивной

силы при отжиге обусловлено отжигом дефектов и частичным снятием внутренних напряжений. Избыточные дефекты (вакансии, атомов остаточных газов и т.д.) при отжиге удаляются из зерен путем диффузии их к стокам (границам зерен и поверхности пленки), а также рекомбинацией вакансий и междоузельных атомов [2].

После изотермического отжига, как следует из табл. 2, зависимость поля насыщения от давления аргона смещается в область более высоких значений полей с сохранением осцилляций. Отжиг приводит к увеличению силы обменной связи, которая определяет поле насыщения.

Чувствительность образцов после отжига во всем интервале давлений возрастает (табл. 2), причем наибольшее увеличение чувствительности относительно первоначального значения наблюдается при давлении аргона 6,75 мТорр. Увеличение чувствительности при отжиге связано с тем, что магнетосопротивление увеличивается от 1,2 до 2,04 %, т.е. в 1,7 раза, а поле насыщения только от 20 до 28 кА/м – в 1,4 раза.

## Выводы

1. Установлено, что основные магнитные и магниторезистивные параметры зависят от давления рабочего газа аргона и коррелируют между собой.

2. Показано, что в поликристаллических Co/Cu/Co пленках увеличение шероховатости границ раздела приводит к уменьшению поля насыщения и к уменьшению величины гигантского магниторезистивного эффекта.

3. Определены технологические параметры (давление рабочего газа, температура отжига), при которых структура поликристаллических трехслойных пленок и межфазных границ соответствует максимальному значению магниторезистивного отношения.

*Работа выполнена в рамках реализации Программы стратегического развития БГТУ им. В.Г. Шухова на 2012–2016 гг. № 2011-ПР-146.*

## Список литературы

1. Магнитные свойства антиферромагнетика Ca2(FexAl1-x)2O5 и их анализ в приближении молекулярного поля / В.И. Беляева, В.К. Классен, С.Ф. Миндолин, И.И. Мирошниченко // Физика твердого тела. – 1987. – Т. 29, № 1. – С. 143–150.

2. Евтушенко Е.И. Структурная динамика в твердофазных превращениях и реакциях // Известия вузов. Северо-Кавказский регион. Технические науки. – 2005. –№ 2. –С. 60–63.

3. Влияние отжига на свойства Co/Cu/Co пленок / А.В. Корнилов, Ю.Д. Воробьев, Л.А Чеботкевич и др. // Новые магнитные материалы микроэлектроники: труды XVII Международной Школы – семинара. – М., 2000. – С. 624–626.

4. Корнилов А.В., Чеботкевич Л.А., Магниторезистивный эффект многослойных пленок [Co/Cu]n. // Современные проблемы развития и методики преподавания естественных и точных наук: Всероссийская научно-практическая конференция: сборник статей. Уссурийск, 2010. – С. 110–114.

5. К вопросу определения характеристик тонких покрытий на основе диоксида титана / В.М. Нарцев, С.В. Зайцев, Е.И. Евтушенко и др. // Огнеупоры и техническая керамика. – 2011. – № 9. – С. 31–36.

6. Технология тонких пленок // Справочник; под ред. Майесела Л., Глэнга Р.; пер. с англ. в 2-х т.т, Т.2. – М.: Советское радио, 1977. – 768 с.

7. Fullerton E.E., Kelly D.M. Roughness and giant magnetoresistance in Fe/Cr superlattices. // Phys. Rev. Lett. – 1992. – Vol. 68. – P. 859–862.

8. Holloway H., Kubinski D.J. Giant magnetoresistance in Co/Cu multilayers with Co layers of alternating thickness: Reduction of magnetoresistance hysteresis // J. Appl. Phys. – 1996. – Vol. 79. – № 9. – P. 7090–7094.

9. Klassen V.K, Beljaeva V, Mindolin S. Structur und Eigenshaften der AL-Fe-Phase von Klinker // 15 Int. Baustofftagung, Weimar. – 2003. Band 1. – P. 333–342.

10. Veda Y., Hataya N., Zaman H. Magnetoresistance effect of Co/Cu multilayer film produced by electrodeposition method // J. of Mag. and Mag. Mater. – 1996. – Vol. 156. – P. 350–352.

11. Youssef J.Ben Correlation of GMR with texture and interfacial roughness in optimized rf sputtering deposited Co/Cu multilayers / J. Ben Youssef, K. Bouziane, O. Koshkina and oth. // J. of Mag. and Mag. Mater. – 1997. – Vol. 165. – P. 288–291.

## References

1. Belyaeva V.I., Klassen V.K., Mindolin S.F., Miroshnichenko I.I. Fizika tverdogo tela, 1987, nn.1. pp. 143–150.

2. Evtushenko E.I. Izvestija vuzov. Severo-Kavkazskij region. Tehnicheskie nauki, 2005, no.2, pp. 60–63.

3. Kornilov A.V., Vorobev YU.D., Burkova I.N., Negoda D.N., Chebotkevich L.A. Trudy 17 Mezhdunarodny shkoly – seminara «Novye materialy mikroelektroniki». (Proceedings of the XVII International School – Seminar «New Magnetic Materials of Microelectronics»). Moscow, 2000, pp. 624–626.

4. Kornilov A.V., Chebotkevich L.A. Sovremennye problemy razvitiya i metodiki prepodavaniya estestvennykh i tochnykh nauk: Vserossiyskaya nauchno-prakticheskaya konferentsiya. Sbornik statey. (Modern problems of development and teaching methods of the natural and exact sciences: International Scientific and Practical Conference. Collection of articles) Ussuriysk, 2010. pp. 110–114.

5. Nartsev V.M., Zajcev S.V., Evtushenko E.I. and oth. Ogneupory i tehnicheskaja keramika, 2011, no. 9, pp. 31–36.

6. Tekhnologiya tonkikh plenok. (Technology of thin films). Moscow, Sovetskoe radio, 1977. 768 p.

7. Fullerton E.E., Kelly D.M. Physical Review Letters, 1992, no.6, pp. 859–862.

8. Holloway H., Kubinski D.J. Journal of Applied Physics, 1996, no. 9, pp. 7090–7094.

9. Klassen V.K, Beljaeva V, Mindolin S. 15 Int. Baustofftagung, Weimar, 2003, Band 1, pp. 333–342

10. Veda Y., Hataya N., Zaman H. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1996, pp. 350–352.

11. Youssef J.Ben, Bouziane K., Koshkina O., Gall H.Le, Harfaoui M., Yamani M., Desvignes J.M., Fert A. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1997, no. 1–3. pp. 288–291.

**Рецензенты:**

Павленко В.И., д.т.н., профессор, директор ИСМиТБ, ФГБОУ БГТУ им. В.Г. Шухова, г. Белгород;

Евтушенко Е.И., д.т.н., профессор, проректор по научной работе, заведующий кафедрой технологии стекла и керамики, ФГБОУ БГТУ им. В.Г. Шухова, г. Белгород.

Работа поступила в редакцию 14.02.2013.