

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 539.216.2:537.624

МАГНИТНАЯ АНИЗОТРОПИЯ ПЛЕНОК ПЕРМАЛЛОЯ, ПОЛУЧЕННЫХ МАГНЕТРОННЫМ РАСПЫЛЕНИЕМ ПРИ НАКЛОННОМ ОСАЖДЕНИИ

© 2022 г. А. В. Свалов^{а, *}, И. А. Макаровичкин^а, А. А. Пасынкова^{а, b}, А. А. Фещенко^а,
Е. В. Кудюков^а, В. Н. Лепаловский^а, Г. В. Курляндская^а

^аУральский федеральный университет, ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002 Россия

^bИнститут физики металлов УрО РАН, ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108 Россия

*e-mail: andrey.svalov@urfu.ru

Поступила в редакцию 15.07.2022 г.

После доработки 03.09.2022 г.

Принята к публикации 05.09.2022 г.

Исследованы особенности наведенной магнитной анизотропии и процессов перемагничивания одно- и многослойных пленок $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ толщиной от 10 до 200 нм, полученных наклонным осаждением. Для всех однослойных пленок обнаружена наведенная в плоскости образцов одноосная магнитная анизотропия. При напылении многослойных пленок перед осаждением каждого последующего слоя подложкодержатель поворачивали на 90° . Ось результирующей магнитной анизотропии оказалась ориентирована под углом 45° к осям анизотропии индивидуальных слоев. Процессы перемагничивания исследованных образцов рассмотрены с учетом как когерентного вращения магнитных моментов, так и зарождения доменов обратной ориентации намагниченности и движения доменных стенок.

Ключевые слова: пленки пермаллоя, магнетронное распыление, наклонное осаждение, наведенная магнитная анизотропия, доменная структура, процесс перемагничивания

DOI: 10.31857/S0015323022600897

ВВЕДЕНИЕ

Магнитная анизотропия является важнейшим параметром материалов, используемых в устройствах спинтроники и магнитных сенсорах [1, 2]. Поэтому проблема магнитной анизотропии в тонких магнитных пленках, являющаяся предметом пристального внимания исследователей на протяжении нескольких десятилетий, не потеряла своей актуальности и в настоящее время. Как было установлено еще в 60-е годы прошлого столетия, причиной возникновения магнитной анизотропии в пленочных структурах является намагниченность и ее ориентация в процессе осаждения пленок [3, 4]. Позднее было показано, что такая анизотропия может быть наведена в пленке в результате последующих термомагнитных и термомеханических обработок посредством релаксации магнитострикционных напряжений, направленного упорядочения пар атомов в сплаве и перераспределения дефектов в межзеренных границах [5]. При этом каков бы ни был конкретный механизм возникновения наведенной магнитной анизотропии, он связан с намагниченностью пленки, поэтому за данным типом анизотропии закрепился термин *M*-наведенная анизотропия [6–8].

Ориентация намагниченности осаждаемой пленки, а следовательно, и оси наведенной магнитной анизотропии осуществляется, в основном, двумя способами: приложением постоянного магнитного поля в плоскости образца в процессе роста пленочных структур [3] или наклонным напылением, когда направление потока осаждаемых на подложку частиц отклонено от нормали к плоскости подложки [9–11]. В последнем случае ориентация намагниченности задается анизотропией формы компонентов микроструктуры, а именно, возникающей за счет эффекта самозатенения столбчатой микроструктуры [12, 13].

Большинство исследований свойств наклонно осажденных пленочных структур по-прежнему проводится на пленках, полученных термическим напылением [9–11, 14]. В нашей работе были исследованы пленки пермаллоя, полученные с помощью магнетронного распыления, прослежены изменения их магнитных свойств при изменении толщины, а также особенности наведенной магнитной анизотропии в многослойных пленочных структурах без дополнительных прослоек, в которых индивидуальные оси магнитной анизотропии соседних слоев были ортогональны друг другу.

ОБРАЗЦЫ
И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Пленки пермаллоя Fe₂₀Ni₈₀ были осаждены на стеклянные подложки методом магнетронного распыления соответствующей мишени. Предварительное остаточное давление в рабочей камере составляло 5×10^{-7} мм рт. ст., распыление мишени вели при рабочем давлении аргона 2×10^{-3} мм рт. ст. Скорость осаждения пленок составляла 0.13 нм/с. Толщину слоев FeNi варьировали в диапазоне 10–200 нм. Направление потока осаждаемых на подложку частиц отклонено от нормали к плоскости подложкодержателя на угол $\gamma = 35^\circ$ (рис. 1). Угол γ был выбран на основе анализа литературных данных, который показал, что при таком угле наклона одноосная магнитная анизотропия в плоскости пленки формируется при осаждении пленок как методом термического испарения, так и магнетронного распыления мишени [15]. При напылении многослойных образцов перед осаждением каждого последующего слоя подложкодержатель поворачивали на 90° без разгерметизации рабочей камеры. Определим плоскость напыления как плоскость, параллельную проекции падающего луча распыляемого материала мишени на плоскость пленки и ортогональную плоскости пленки. Перед размещением подложек на подложкодержателе на них наносили метки, которые позволяли в последующем определять ориентацию проекции плоскости напыления в плоскости исследуемого образца. В работе использованы шесть типов образцов, их обозначения и основные характеристики собраны в табл. 1.

Магнитные свойства образцов исследовали с помощью меридионального эффекта Керра на базе МОКЕ-микроскопа (Evico Magnetism microscope) и вибрационного магнитометра (Lake Shore Cryotronics).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ петель гистерезиса, измеренных в разных направлениях в плоскости пленок, показал, что для всех типов однослойных образцов характерна наведенная магнитная анизотропия, ось легкого намагничивания (ОЛН) которой перпендикулярна плоскости напыления. На рис. 2 показаны магнитооптические (МО) петли гистерезиса, измеренные как вдоль проекции плоскости напыления, так и перпендикулярно к ней.

Наличие одноосной магнитной анизотропии подтверждается и угловой зависимостью приведенной остаточной намагниченности $M_r/M_s(\theta)$, где θ – угол между проекцией плоскости напыления и полем измерения. В качестве примера на рис. 3 представлены данные зависимости для трех типов образцов: S1, S3 и S4. Данный результат находится в согласии с литературными данными [16, 17].

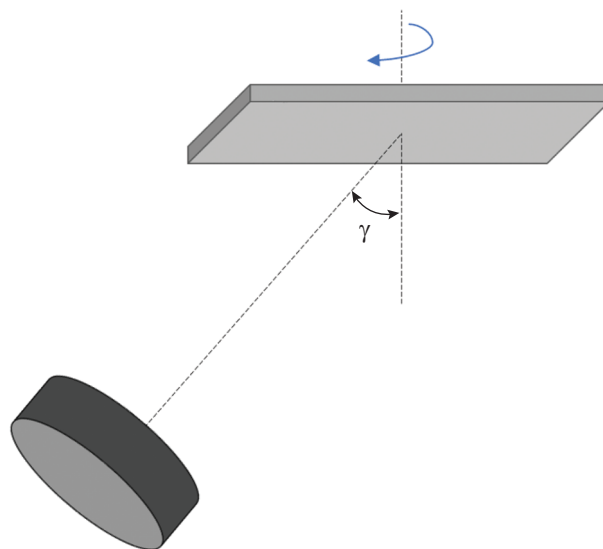


Рис. 1. Схема напыления пленок.

Количественным параметром, описывающим магнитную анизотропию, является, в частности, поле магнитной анизотропии H_a . Один из способов его определения – это нахождение точки пересечения высокополевых участков петель гистерезиса, измеренных вдоль ОЛН и ОТН – оси трудного намагничивания. Однако этот метод считается наиболее оправданным для монокристаллических образцов [18].

Для поликристаллических образцов предложен метод обнаружения особых точек, который в применении к магнитным материалам сводится к поиску второй производной намагниченности d^2M/dH^2 [19, 20]. Соответствующие кривые для образцов S1, S2 и S5 приведены в качестве примера на рис. 4. Усредненные величины H_a , полученные двумя методиками, суммированы на рис. 5.

Данные значения H_a были использованы для описания угловой зависимости коэрцитивной силы $H_c(\varphi)$ в рамках модели Стонера–Вольфарта выражением $H_c(\varphi) = H_a \cos \varphi$, где φ – угол между направлением поля измерения и ОЛН [21, 22]. На

Таблица 1. Основные характеристики исследуемых типов образцов

Наименование образца	Тип	Толщина слоев L , нм
S1	Пленка	FeNi(10)
S2	Пленка	FeNi(20)
S3	Пленка	FeNi(40)
S4	Пленка	FeNi(100)
S5	Пленка	FeNi(200)
M1	Многослойная пленка	[FeNi(40)] ₄

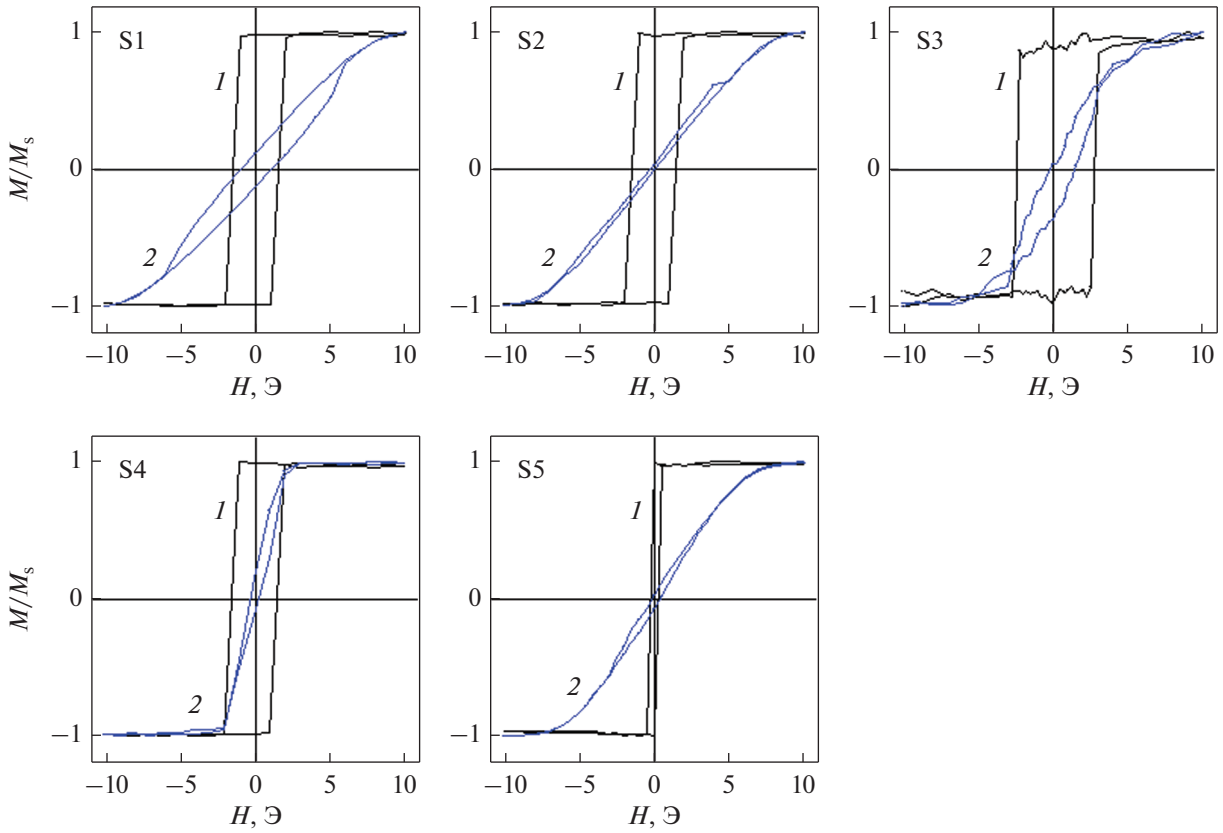


Рис. 2. МО петли гистерезиса образцов S1–S5, измеренные вдоль (1) и перпендикулярно (2) ОЛН.

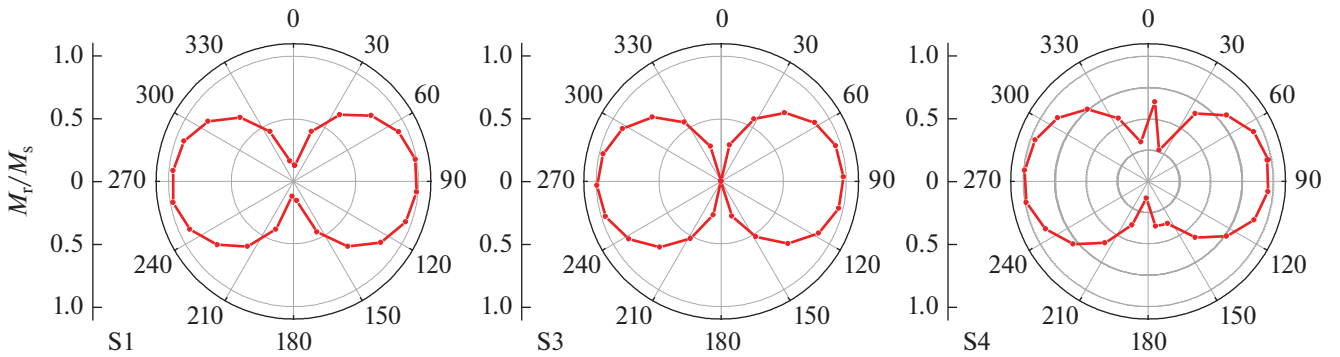


Рис. 3. Угловая зависимость приведенной остаточной намагниченности $M_r/M_s(\theta)$, где θ – угол между проекцией плоскости напыления и полем измерения для образцов: S1, S3 и S4.

рис. 6 в качестве примера приведены зависимости $H_c(\varphi)$ для образцов S2, S3 и S4. Видно, что наилучшее совпадение наблюдается для образца S2 в диапазоне углов $\pm 15^\circ$ отклонения от ОТН, где перемагничивание пленки происходит когерентным вращением магнитных моментов.

При прочих углах различие экспериментальной и модельной зависимостей $H_c(\varphi)$ обусловлено тем, что перемагничивание пленки происходит как когерентным вращением магнитных моментов, так и зарождением доменов обратной

ориентации намагниченности и движением доменных стенок. Отметим также, что с увеличением толщины пленки увеличивается расхождение между экспериментальной и расчетной кривыми даже в интервале углов $\varphi = \pm 15^\circ$. Скорее всего, это связано с тем, что в относительно толстых пленках перемагничивание даже вдоль ОТН осуществляется не чистым когерентным вращением магнитных моментов, а в том числе и через эволюцию системы заблокированных доменов, возникающих на базе ряби намагниченности [23].

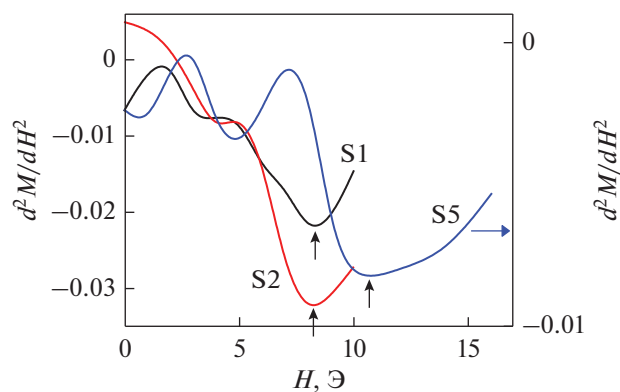


Рис. 4. Кривые d^2M/dH^2 для образцов S1, S2 и S5. Стрелками указаны поля магнитной анизотропии H_a .

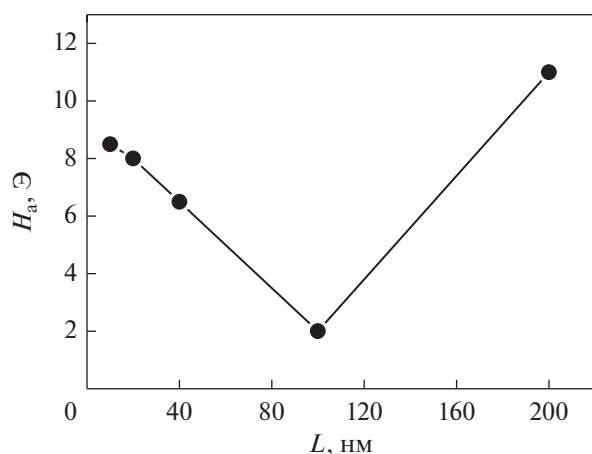


Рис. 5. Зависимость поля магнитной анизотропии H_a от толщины пленок FeNi.

Данный факт проиллюстрирован на рис. 7, где для образца S5 приведена МО петля гистерезиса, измеренная вдоль ОН, и представлены изображения магнитной структуры, соответствующие отдельным участкам петли.

Этот результат противоречит данным, полученным в работе [16], где наблюдали рост поля наведенной магнитной анизотропии при возрастании толщины пленки пермаллоя в интервале толщин от 24 до 66 нм. Возможно, причиной такого расхождения является состав исследованных пленок. В нашей работе использовали сплав $Fe_{20}Ni_{80}$, константа магнитострикции которого близка к нулю, в то время как в работе [16] был исследован сплав $Fe_{25}Ni_{75}$ с довольно большой константой магнитострикции $\lambda \approx 1.5 \times 10^{-5}$ [24]. Изменение толщины пленки может сопровождаться изменением интенсивности внутренних напряжений в ней, что в совокупности с ненулевой магнитострикцией может влиять на количественные параметры наведенной магнитной анизотропии [5].

В настоящем исследовании немонотонное изменение H_a с толщиной может быть обусловлено

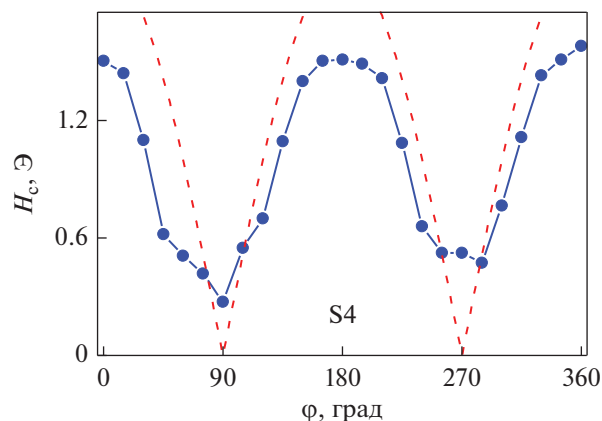
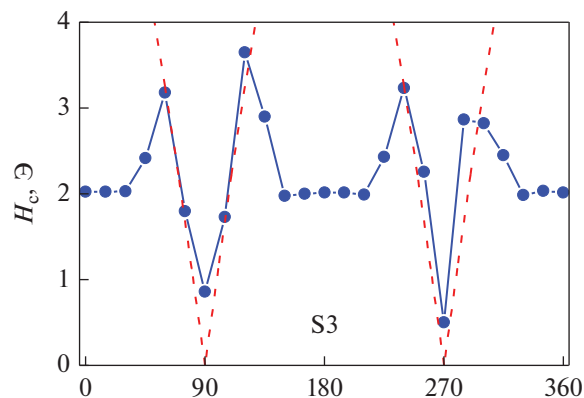
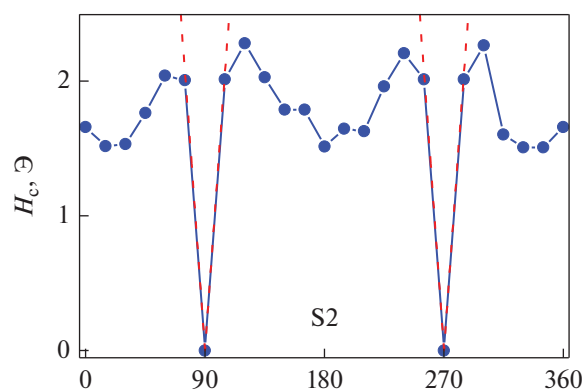


Рис. 6. Угловая зависимость коэрцитивной силы для образцов S2, S3 и S4. Точки – экспериментальные данные, штриховые линии – расчет согласно выражению $H_c(\varphi) = H_a \cos \varphi$.

как изменением микроструктуры образцов, так и влиянием поверхности пленок. Снижение H_a в интервале толщин от 10 до 100 нм может быть связано с изменением микроструктуры образцов. Известно, что в указанном интервале толщин средний размер кристаллитов в пленках FeNi не превышает 15 нм и не превосходит толщину пленок. Однако с ростом толщины пленок увеличивается относительная доля кристаллической фазы и растет степень текстурованности [25, 26]. Все это уменьшает плотность разного типа дефектов в образце, препятствующих перемагничиванию

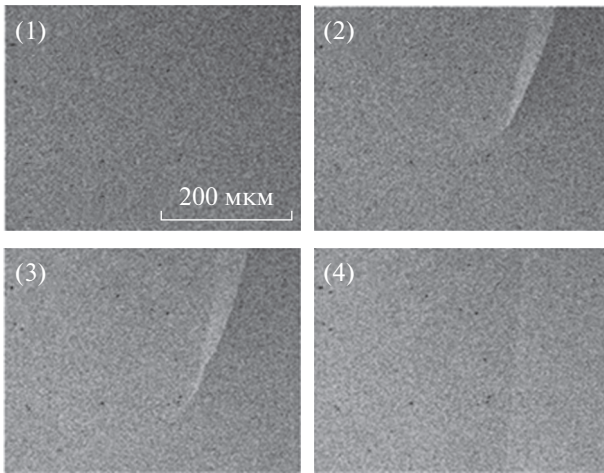
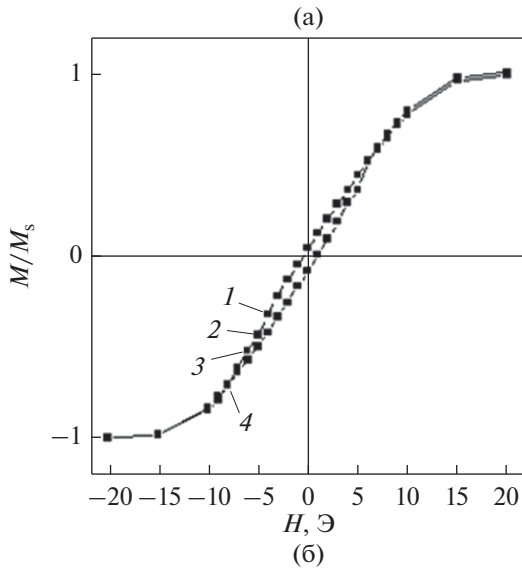


Рис. 7. МО петля гистерезиса для образца S5 (а), измеренная вдоль ОН, и изображения магнитной структуры, соответствующие отдельным участкам МО петли (б).

пленки. Аналогичный эффект имеет уменьшение относительной роли поверхностных дефектов при увеличении толщины образца. Кроме того, учитывая, что перемагничивание пленок вдоль

ОН происходит не только вращением вектора спонтанной намагниченности, но и движением доменных границ, локальный минимум на зависимости $H_a(L)$ вблизи $L = 100$ нм может быть связан со сменой типа доменных границ. Известно, что с ростом толщины пленки стенки неелевского типа сменяются стенками Блоха (через стенки с перевязками) [27]. Как ранее было показано, для пленок пермаллоя, полученных магнетронным распылением, эта смена происходит при толщине около 100 нм [28]. В качестве примера на рис. 8 показана магнитная доменная структура, наблюдавшаяся с помощью магнитооптического микроскопа для пленок разной толщины.

Используя вышеприведенные результаты, были получены четырехслойные пленки пермаллоя без дополнительных прослоек, в которых перед осаждением каждого последующего слоя подложкодержатель поворачивали на 90° (образец М1). На рис. 9а представлены угловые зависимости приведенной остаточной намагниченности для этого образца, полученные из измерений петель гистерезиса.

Видно, что результирующая ОЛН ориентирована под углом 45° к плоскости напыления. На рис. 9б приведены петли гистерезиса, измеренные на вибромагнитометре вдоль (1) и перпендикулярно (2) ОЛН, определенной по результатам, представленным на рис. 9а.

Проанализируем полученный результат, используя данные для трехслойных пленочных структур (два магнитных слоя, разделенных немагнитной прослойкой). Для них было показано, что при несовпадении ориентаций ОЛН в слоях, намагниченность в каждом магнитном слое отклоняется от ОЛН вследствие межслойной связи через немагнитную прослойку [29]. В случае одинаковых параметров магнитных слоев (намагниченность насыщения, константа наведенной магнитной анизотропии, толщина) и ориентации ОЛН под прямым углом друг к другу угол α — отклонение вектора намагниченности от ОЛН в нулевом внешнем поле — одинаков для каждого слоя и может быть определен из выражения

$$\operatorname{tg}2\alpha = K_c - K_u/L. \quad (1)$$

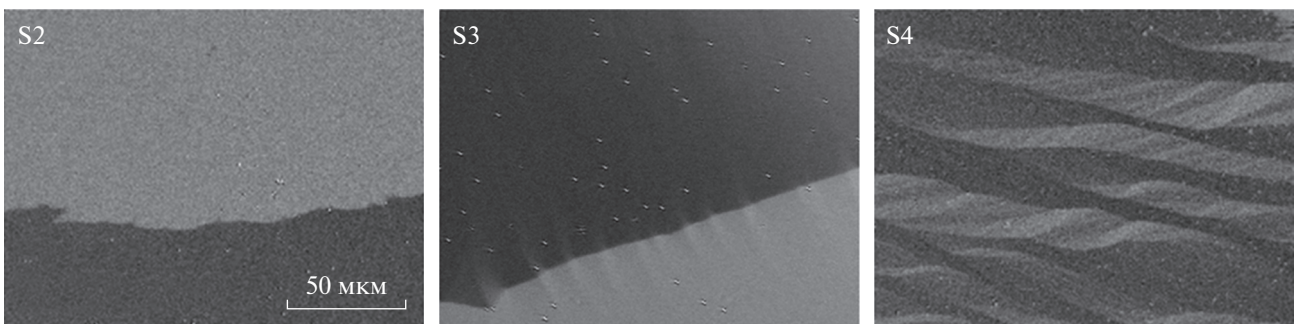


Рис. 8. Магнитная доменная структура, наблюдавшаяся с помощью магнитооптического микроскопа для пленок FeNi разной толщины.

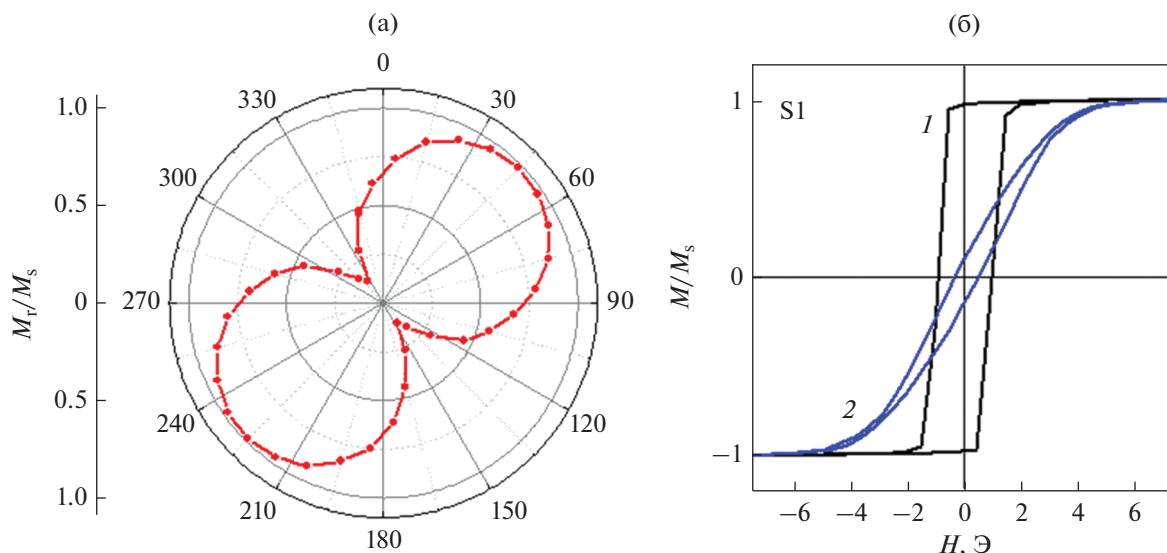


Рис. 9. Угловая зависимость приведенной остаточной намагниченности M_r/M_s (а) и петли магнитного гистерезиса (б), измеренные на вибромагнитометре вдоль (1) и перпендикулярно (2) ОЛН, для образца М1.

Здесь K_c – константа межслойной связи, K_u – константа наведенной магнитной анизотропии, L – толщина магнитного слоя. Как следует из уравнения (1), α пропорционально интенсивности межслойной связи, которая, в свою очередь, возрастает с уменьшением толщины немагнитной прослойки. В работе [30] для двухслойных пленок FeCoNi, в которых ОЛН слоев были ориентированы под прямым углом друг к другу, приведена величина $K_c = 1.6 \times 10^3$ эрг/см². Как отмечают авторы этой работы, для получения конечной величины K_c был использован технологический прием, понижающий интенсивность межслойной связи – пауза между напылением слоев. Используем величину K_c для приблизительной оценки

возможной величины α для образца М1. Полагая, что $K_u = (H_a M_s)/2$, и используя данные рис. 5, получим $K_u = 2.6 \times 10^3$ эрг/см³ для слоев FeNi с $L = 40$ нм. Подстановка известных величин в выражение (1) дает $\alpha \approx 30^\circ$. Учитывая, что отсутствие технологической паузы при напылении слоев образца М1 должно заметно повысить величину K_c , определенная в эксперименте ориентация результирующей ОЛН под углом 45° к ориентации плоскостей напыления для образца М1 представляется вполне логичной.

Поле магнитной анизотропии H_a для этого типа образцов было определено как традиционным методом из петли гистерезиса, измеренной вдоль ОЛН, так и из второй производной намагниченности d^2M/dH^2 . В результате была получена усредненная величина $H_a = 3.1$ Э. Используя это значение, удастся удовлетворительно описать угловую зависимость коэрцитивной силы $H_c(\varphi)$ вблизи ОЛН образца в диапазоне углов $\varphi = \pm 20^\circ$ (рис. 10). Отметим, что для этого образца величина $H_a = 3.1$ Э оказалась меньше, чем для однослойной пленки толщиной 40 нм (рис. 5).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Пленки пермаллоя Fe₂₀Ni₈₀ и многослойные структуры того же состава, полученные магнетронным распылением при наклонном осаждении, обладали наведенной одноосной магнитной анизотропией. Для однослойных пленок толщиной от 10 до 200 нм ось легкого намагничивания перпендикулярна плоскости напыления.

Величины поля анизотропии, определенные из кривых намагничивания и петель гистерезиса, позволили с хорошей точностью описать угловую

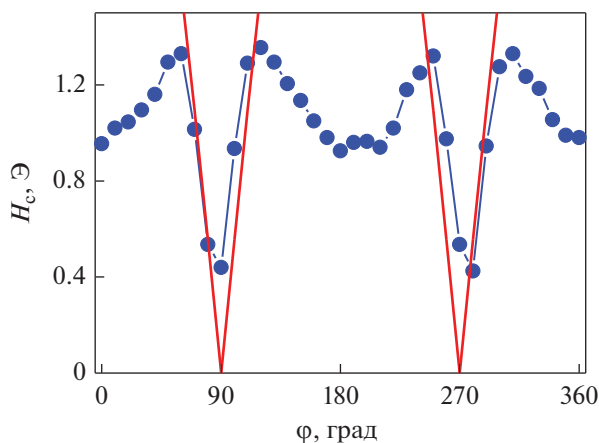


Рис. 10. Угловая зависимость коэрцитивной силы для образца М1. Точки – экспериментальные данные, штриховые линии – расчет согласно выражению $H_c(\varphi) = H_a \cos \varphi$, где φ – угол между направлением поля измерения и ОЛН.

зависимость коэрцитивной силы вблизи оси трудного намагничивания в рамках модели когерентного вращения магнитных моментов.

Величина поля магнитной анизотропии для четырехслойных пленок, в которых каждый последующий слой осаждали после поворота подложки на 90 градусов, оказалась меньше, чем у однослойной пленки, толщина которой равна толщине слоя многослойного образца. Этот результат дает перспективу получения квази-изотропных многослойных пленок путем увеличения количества слоев и уменьшения угла между осями магнитной анизотропии соседних слоев.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-29-00980, <https://rscf.ru/project/22-29-00980/>.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Barla P., Joshi V.K., Bhat S. Spintronic devices: a promising alternative to CMOS devices // *J. Comput. Electron.* 2021. V. 20. P. 805–837.
2. Nakai T. A uniform magnetic field generator combined with a thin-film magneto-impedance sensor capable of human body scans // *Sensors*. 2022. V. 22. P. 3120–18.
3. Andrä W., Málek Z., Schüppel W., Stemme O. “Spontaneous magnetic anisotropy” in polycrystalline thin films // *J. Appl. Phys.* 1960. V. 31. P. 442–443.
4. Smith D.O., Cohen M.S., Weiss G.P. Oblique-incidence anisotropy in evaporated permalloy films // *J. Appl. Phys.* 1960. V. 31. P. 1755–1762.
5. А.Г. Лесник, Наведенная магнитная анизотропия. Киев: Наук. дум., 1975. 163 с.
6. Srivastava R.S. Origin of magnetization-induced uniaxial anisotropy in evaporated Fe–Co and Ni–Co films // *J. Appl. Phys.* 1977. V. 48. P. 1355–1358.
7. Han-Min J. Origin of magnetization-induced anisotropy of magnetic films // *Chin. Phys.* 2007. V. 16. P. 3520–3535.
8. Васьковский В.О., Балымов К.Г., Свалов А.В., Кулеш Н.А., Степанова Е.А., Сорокин А.Н. Магнитная анизотропия аморфных пленок Tb–Co // *ФТТ*. 2011. Т. 53. № 11. С. 2161–2168.
9. Komogortsev S.V., Varnakov S.N., Satsuk S.A., Yakovlev I.A., Ovchinnikov S.G. Magnetic anisotropy in Fe films deposited on SiO₂/Si(001) and Si(001) substrates // *J. Magn. Magn. Mater.* 2014. V. 351. P. 104–108.
10. Solovev P.N., Izotov A.V., Belyaev B.A. Microstructural and magnetic properties of thin obliquely deposited films: A simulation approach // *J. Magn. Magn. Mater.* 2017. V. 429. P. 45–51.
11. Jiang X., Zhang J., Song X., Wang H., Zhang K., He Z., Wu C., Yu Z., Lan Z., Sun K. Tunable resonance frequency of NiFe thin films by oblique deposition // *J. Magn. Magn. Mater.* 2022. V. 547. P. 168946–6.
12. Cohen M.S. Anisotropy in permalloy films evaporated at grazing incidence // *J. Appl. Phys.* 1961. V. 32. P. 87S–88S.
13. Abelman L., Lodder C. Oblique evaporation and surface diffusion // *Thin Solid Films*. 1997. V. 305. P. 1–21.
14. Трушин О.С., Попов А.А., Пестова А.Н., Мазалецкий Л.А., Акулов А.А., Ломов А.А. Наноструктурирование при наклонном напылении кобальта // *Известия РАН. Серия физическая*. 2022. Т. 86. № 5. С. 650–654.
15. Hajihoseini H., Kateb M., Ingvarsson S.P., Gudmundsson J.T. Oblique angle deposition of nickel thin films by high-power impulse magnetron sputtering // *Beilstein J. Nanotechnol.* 2019. V. 10. P. 1914–1921.
16. Zhu X., Wang Z., Zhang Y., Xi L., Wang J., Liu Q. Tunable resonance frequency of FeNi films by oblique sputtering // *J. Magn. Magn. Mater.* 2012. V. 324. P. 2899–2901.
17. Ali Z., Basaula D., Eid K.F., Khan M. Anisotropic properties of oblique angle deposited permalloy thin films // *Thin Solid Films*. 2021. V. 735. P. 138899–8.
18. Wang K.-Y., Sawicki M., Edmonds K.W., Campion R.P., Maat S., Foxon C.T., Gallagher B.L., Dietl T. Spin reorientation transition in single-domain (Ga;Mn)As // *Phys. Rev. Lett.* 2005. V. 95. P. 217204–4.
19. Kurichenko V.L., Karpenkov D.Yu., Karpenkov A.Yu., Lyakhova M.B., Khovaylo V.V. Synthesis of FeNi tetraetaenite phase by means of chemical precipitation // *J. Magn. Magn. Mater.* 2019. V. 470. P. 33–37.
20. Bolzoni F., Cabassi R. Review of singular point detection techniques // *Physica B*. 2004. V. 346–347. P. 524–527.
21. Oh D.Y., Park J.K. Crystallographic texture and angular dependence of coercivity of ordered CoPt thin film // *J. Appl. Phys.* 2005. V. 97. P. 10N105–1–10N105–3.
22. Komogortsev S.V., Vazhenina I.G., Kleshnina S.A., Iskhakov R.S., Lepalovskij V.N., Pasyukova A.A., Svalov A.V. Advanced characterization of FeNi-based films for the development of magnetic field sensors with tailored functional parameters // *Sensors*. 2022. V. 23. P. 3324–12.
23. A. Hubert, R. Schäfer. Magnetic domains: the analysis of magnetic microstructures. Berlin: Springer. 1998. 696.
24. R. O’Handley. Modern magnetic materials: principles and applications. N.Y.: John Wiley & Sons, Inc., 2000. 740 p.
25. Villar Alzola N., Kurlyandskaya G.V., Larrañaga A., Svalov A.V. Structural peculiarities and magnetic properties of FeNi films and FeNi/Ti-based magnetic nanostructures // *IEEE Trans. Magn.* 2012. V. 48. P. 1605–1608.
26. López Antón R., González J.A., Andrés J.P., Svalov A.V., Kurlyandskaya G.V. Structural and magnetic properties of Ni_{0.8}Fe_{0.2}/Ti nanoscale multilayers // *Nanomaterials*. 2018. V. 8. P. 780–8.
27. П. Суху. Магнитные тонкие пленки. М.: Мир, 1967. 422 с.
28. Villar Alzola N., Svalov A.V., Mayura N.S., Kulesh N.A., Larrañaga A., Kurlyandskaya G.V. Structure and magnetic properties of FeNi/Ti sputtered multilayers // *EPJ Web of Conf.* 2013. V. 40. P. 17002–4.
29. Niedoba H., Heyderman L.J., Hubert A. Kerr domain contrast and hysteresis as a tool for determination of the coupling strength of double soft magnetic films // *J. Appl. Phys.* 1993. V. 73. P. 6362–6364.
30. Vas’kovskij V.O., Lepalovskij V.N. Magnetization reversal features of Fe₁₅Co₂₀Ni₆₅ sandwiches with various anisotropy of layers // *J. Phys. IV France*. 1998. V. 8. P. Pr2-441–Pr2-444.