



اثر Co در مغناطومقاومت نانوساختارهای Ni-Cu/Cu

مرحانه جعفری فشارکی* | محمدرضا جلالی

گروه فیزیک، دانشگاه پیام نور استان اصفهان

چکیده: در این پژوهش، چندلایه‌های Ni-Cu/Cu از الکترولیت تک حمام سولفات/سولفامیت با استفاده از روش الکتروانباشت از دو محلول خالص (بدون Co) و ناخالص (با ۰/۲ درصد Co) در مد گالوانواستات-پتانسیواستات در پتانسیل انباشت بهینه شده Cu تهیه شد. اندازه‌گیری‌های مغناطومقاومت در دمای اتاق برای چندلایه‌های Ni-Cu/Cu به‌عنوان تابعی از ضخامت لایه‌ی غیرمغناطیس (Cu) برای هر دو الکترولیت خالص و ناخالص انجام شد. منحنی‌های مغناطومقاومت حاکی از مغناطومقاومت ناهمسانگرد برای چندلایه‌های در الکترولیت خالص و مغناطومقاومت بزرگ برای چندلایه‌های در الکترولیت ناخالص بود، طوری که بیشینه‌ی مقدار مغناطومقاومت برای چندلایه‌ی Ni-Cu/Cu با ضخامت ۳nm/۴/۲nm به دست آمد. بررسی ساختاری چندلایه‌ها توسط الگوی پراش پرتو ایکس انجام شد. الگوی پراش پرتو ایکس حضور قله‌های ماهواره‌ای که دلالت بر وجود ساختار ابرشبکه‌ای بود را، تأیید کرد. ضخامت اسمی چندلایه‌ها (Λ_{nominal}) با ضخامت حاصل از الگوی پراش پرتو ایکس (Λ_{XRD}) مقایسه شد که همخوانی قابل توجهی داشت. ریخت‌شناسی نمونه‌ها با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی انجام شد که دلالت بر یکنواختی انباشت در حین فرایند لایه‌نشانی داشت. در نهایت مغناطش نمونه‌ها نیز با استفاده از مغناطوسنج نمونه مرتعش بررسی شد. نتایج نشان داد با کاهش ضخامت لایه‌ی غیرمغناطیس (Cu) وادارندگی کاهش و مغناطش اشباع افزایش می‌یابد.

واژگان کلیدی: چندلایه‌ی Ni-Cu/Cu، مغناطومقاومت ناهمسانگرد، مغناطومقاومت بزرگ، قله‌های ماهواره‌ای.

M.Jafari.Fesharaki@pnu.ac.ir

۱- مقدمه

GMR مبتنی بر دانش جدیدی موسوم به اسپین‌ترونیک است. اسپین‌ترونیک بر خلاف الکترونیک سنتی تنها متکی بر بار الکترون‌ها و حفره‌ها نیست، بلکه از اسپین الکترون که یک خاصیت کوانتومی است، نشأت می‌گیرد. مقاومت الکتریکی یک ماده‌ی مغناطیده به جهت اسپین الکترون‌های عبوری از آن بستگی دارد. اگر جهت اسپین الکترون با جهت مغناطش ماده یکی باشد، الکترون به راحتی از آن عبور می‌کند، اما در صورتی که این دو در خلاف جهت یکدیگر باشند، الکترون با مقاومت بیشتری مواجه خواهد شد. نسبت مغناطومقاومت (MR) به صورت [۴]:

ساختارهای متشکل از لایه‌های متناوب فلزات فرومغناطیس و غیرمغناطیس به دلیل ویژگی‌های قابل توجه و کاربردهای عملی زیاد به شدت در دهه‌های اخیر مورد بررسی و مطالعه قرار گرفته است. دلیل اصلی مطالعه‌ی چنین ساختارهایی اساساً مشاهده‌ی اثر مغناطومقاومت بزرگ (GMR) در آن‌ها است [۱]. کاربرد گسترده‌ی چندلایه‌های GMR در صنعت ذخیره‌ی اطلاعات، حسگرهای مغناطیسی GMR [۲] برای مصارف صنعتی، کارگاهی، خانگی در ابزارهای نوین ثبت اطلاعات مانند لپ‌تاپ‌ها، سخت‌افزار کامپیوتر، میکروالکترونیک، ضبط موسیقی MP3، قطعات ویدیویی، پخش کننده‌های قابل حمل [۳] است. در این راستا اطمینان از پایداری چندلایه‌ها و عملکرد دستگاه امری ضروریست.

چندلایه‌ای‌ها به کار می‌رود که در آن G و P به ترتیب اشاره به مدهای گالوانواستات و پتانسیواستات دارند. فعالیت‌های تحقیقی گسترش یافته روی فیلم‌های الکتروانباشت با ویژگی GMR از ۲۰ سال پیش در بیش از ۱۶۰ مقاله گردآوری شده است. با وجود این تلاش‌ها، جنبه‌های زیادی از ویژگی‌های GMR در فیلم‌های چندلایه‌ای با روش الکتروانباشت، به خصوص حساسیت میدان مربوطه با توجه به پارامترهای متناظر در فیلم‌های چندلایه‌ای با روش فیزیکی هنوز چندان خوب نیستند. این مطلب دائم انگیزه برای ادامه‌ی تلاش‌های تحقیقاتی در این زمینه را فراهم کرده است. تفاوت در ویژگی‌هایی مانند اندازه‌ی کوچکتر GMR و میدان اشباع بزرگ‌تر مغناطومقاومت در فیلم‌های چندلایه‌ای الکتروانباشت در کاهش حساسیت میدان سهیم هستند [۷]. علاوه بر این، از آنجایی که نوسانات مشخصی در اندازه‌ی GMR در بسیاری از فیلم‌های چندلایه‌ای با روش فیزیکی (نه همه‌ی آن‌ها) دیده شده است، حضور یا غیاب چنین نوساناتی در فیلم‌های الکتروانباشت تاکنون یک موضوع قابل بحث است. همچنین باید توجه شود که تکثیرپذیری در روش الکتروانباشت هنوز یک مسأله مهم است. زیرا هنگامی که نتایج محققین مختلف را برای یک سیستم خاص مقایسه می‌کنیم، خواهیم دید که ویژگی‌های اصلی GMR تقریبی یکسان است ولی بعضی از نتایج برجسته گزارش شده قطعاً توسط سایر محققین نمی‌توانند تکرار شوند. زیرا در یک کار تجربی به دلیل تعدادی مسائل ناشناخته جزئی اندازه‌ی GMR همیشه نمی‌تواند تحت شرایط یکسان تکرار شود. تحقیقات زیادی در الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu با تکیه بر ویژگی GMR صورت گرفته است، اما در هیچ یک از آن‌ها پتانسیل بهینه‌ی انباشت Cu گزارش نشده است. اهمیت این موضوع از آنجا است که آهنگ انحلال پذیری Ni بسیار کوچکتر از Co است و بهینه نشدن پتانسیل انباشت می‌تواند موجب هم انباشت Ni درون لایه‌ی غیرمغناطیسی Cu شود که البته نکته‌ی قابل توجهی در ویژگی GMR است. از طرف دیگر، بیشتر مقالات گزارش شده در الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu اساس در مدهای G/G یا P/P و برای الکتروولیت سولفات/سیترات انجام شده است [۸]. در نتیجه به کارگیری پتانسیل انباشت گزارش شده در این مقالات یا بسیار مثبت است (که باعث انحلال پذیری زیاد Ni درون لایه‌ی غیرمغناطیسی شده است) و یا بسیار منفی است (که

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{(R_H - R_0)}{R_0} \quad (1)$$

تعریف می‌شود که به‌طور معمول با درصد بیان می‌شود. $R_H = R(H)$ مقاومت در غیاب میدان مغناطیسی و $R_0 = R(H=0)$ مقاومت در حضور میدان مغناطیسی است. مغناطو مقاومت طولی (LMR) و مغناطو مقاومت عرضی (TMR) به ترتیب با به کارگیری میدان مغناطیسی در راستای موازی و عمود بر جریان اندازه‌گیری می‌شوند و مقاومت ناهمسانگرد (AMR) به صورت [۴]: $AMR = |LMR - TMR|$ (۲)

تعریف می‌شود. از طرفی کشف GMR یکی از دستاوردهای مهم در نانو فیزیک است. زیرا این اثر در چندلایه‌ای‌هایی ظاهر می‌شود که ضخامت هر کدام از این لایه‌ها تنها چند اتم از یک فلز مغناطیسی (مانند آهن، نیکل یا کبالت) و یک فلز غیرمغناطیسی (مانند مس، پلاتین یا کروم) است. هنگامی که ضخامت اتم‌ها تا این اندازه کوچک باشد، قوانین مکانیک کوانتومی حاکم و خواص شگفت‌انگیز اتم‌ها بارز می‌شود. در سال‌های اخیر، ساخت وسایل جدید بر مبنای نانو ساختارها تجاری شده است و از آنجا که عملکرد این ساختارها بر اساس دو حالت اسپینی الکترون‌ها (اسپین بالا و اسپین پایین) است، بنابراین، چنین وسایل نانومقیاس اساس اسپین‌ترونیک را تشکیل می‌دهند که در آینده چشم‌انداز صنعتی وسیعی برای آن دیده می‌شود. این پیشرفت، توسعه‌ی سریع تکنولوژی فیلم‌های نازک برای تهیه ساختارهای نانومقیاس فلزی چندلایه‌ای را ممکن ساخته است. در سال‌های اخیر، تلاش برای تهیه‌ی چندلایه‌ای‌های فلزی توسط روش‌های فیزیکی و شیمیایی افزایش یافته است. در بیشتر موارد، چندلایه‌ای‌های فلزی توسط روش‌های انباشت فیزیکی مانند: کندوپاش، برآرایی باریکه‌ی مولکولی و تبخیر [۵ و ۶] تهیه شده‌اند. با وجود این که این روش‌ها امکان تهیه‌ی ساختارهایی با کیفیت بالا را فراهم می‌کند، ولی پیچیده و گران قیمت هستند. بنابراین الکتروانباشت به عنوان یک روش ارزشمند، آسان، ارزان و انعطاف پذیر برای سال‌های طولانی برای تهیه ساختارهای چندلایه‌ای مورد استفاده قرار گرفته است. الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های فلزی/غیرفلزی با اثر GMR به آسانی با کمک روش two-pulse plating در مدهای مختلف از یک الکتروولیت تک حمام که در آن پتانسیل انباشت یا چگالی جریان می‌تواند به سرعت تغییر کند، به دست می‌آید. مدهای ترکیبی متفاوت مانند: G/G، P/P و G/P برای الکتروانباشت

۲-۲- بهینه‌سازی پتانسیل انباشت با استفاده از ولتامتر چرخه‌ای (Cyclic Voltammetry)

ولتامتر چرخه‌ای (CV) برای دو الکترولیت خالص و ناخالص با نرخ اسکن 5mV/s به منظور نشان دادن گستره‌ی پتانسیل انباشت انجام شد. به منظور انباشت فیلم‌های نازک از یک سل لوله‌ای از جنس پلاستیک فشرده استفاده شد. هندسه‌ی سل به گونه‌ای طراحی شده است که در بخش تحتانی سل فضایی با مساحت $1/38\text{cm}^2$ برای قرار گرفتن الکتروود کار (کاتد) در نظر گرفته شده است. ورقه‌ی مسی به عنوان الکتروود شمارنده، کالومل اشباع (SCE) به عنوان الکتروود مرجع و ورقه‌ی تیتانیوم به عنوان الکتروود کار در نظر گرفته شده است.

جدول ۱: مواد لازم و غلظت مورد نیاز برای تهیه الکترولیت خالص و ناخالص

ماده	فرمول شیمیایی	جرم مولکولی	غلظت mol dm^{-3}
سولفات نیکل	الکترولیت خالص $\text{NiSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (بدون کبالت)	۲۸۰/۷۵	۰/۸
سولفات مس	الکترولیت ناخالص $\text{NiSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (با ۰/۲ درصد کبالت)	۲۸۵/۶۰	۰/۰۱۵
سولفامیک اسید	$\text{H}_2\text{NSO}_2\text{OH}$	۹۷/۰۶	۱/۰
اسید بوریک	H_3BO_3	۶۱/۸۳	۰/۴

۲-۳- تهیه نمونه‌ها

در این بخش به تهیه‌ی چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu در مد ترکیبی گالوانواستات/پتانسیواستات (G/P) بر زیر لایه‌ی سیلیکون می‌پردازیم. زیرلایه‌های به کار گرفته شده و یفره‌هایی از سیلیکون با جهت (۱۰۰) هستند که به روش تبخیر با لایه‌هایی از کروم و مس $[\text{Cu/Cr}(5\text{nm})/\text{Cu}(20\text{nm})]$ پوشش داده شده است، Cr برای چسبندگی و Cu به عنوان فلز غیرمغناطیسی در نظر گرفته شده است. یک دستگاه پتانسیواستات/گالوانواستات نوع EF453 به عنوان منبع جریان به کار گرفته شد. همچنین ورقه‌ی مسی به عنوان الکتروود شمارنده و کالومل اشباع (SCE) به عنوان الکتروود مرجع در نظر گرفته شده است.

موجب هم انباشت Ni در لایه‌ی غیرمغناطیس شده است) که هر دو شدیداً ویژگی GMR را تحت تأثیر قرار می‌دهند [۹]. با توجه به آنچه گفته شد، هدف ما در این کار پژوهشی در قدم اول بهینه‌سازی پتانسیل انباشت Cu در الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu و در قدم بعد مطالعه‌ی سیستماتیک ویژگی مغناطی مقاومت به منظور نشان دادن تأثیر Co هنگامی که به عنوان ناخالصی در محلول الکترولیت وجود دارد، به منظور ارزیابی واقعی ویژگی‌های GMR با لایه‌ی مغناطیسی و غیرمغناطیسی مجزا شده و عاری از هرگونه انحلال پذیری است. در این کار تحقیقاتی، نتایج مطالعات مغناطی مقاومت (MR) چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu تهیه شده با روش الکتروانباشت از یک محلول سولفات/سولفامیت در مد G/P ارائه شده است. یک مطالعه‌ی سیستماتیک از مشخصه‌های MR برای چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu با تغییر ضخامت لایه‌ی غیرمغناطیسی Cu برای دو الکترولیت خالص و ناخالص ارائه شده است. برای تعدادی از چندلایه‌ای‌ها نیز بررسی ساختاری، ریخت شناسی و منحنی پسماند مغناطیسی نیز بررسی شده است.

۲- بخش تجربی

۲-۱- تهیه الکترولیت

به منظور الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu از دو الکترولیت-خالص (بدون کبالت) و الکترولیت-ناخالص (با ۰/۲ درصد Co) با غلظت کاملاً مشابه استفاده شد. مواد لازم و غلظت مورد نیاز برای هر دو الکترولیت خالص و ناخالص در جدول ۱ نشان داده شده است. کلیه‌ی ترکیبات شیمیایی جهت تهیه‌ی الکترولیت خالص و ناخالص از شرکت مرک آلمان تهیه شدند. پس از توزین مواد با ترازوی رقمی، جهت محلول سازی از آب مقطر یون زدایی شده با مقاومت ویژه‌ی $(\rho \geq 18\text{M}\Omega\text{cm})$ استفاده شد. از آن جا که pH لازم برای الکتروانباشت محلول Ni-Cu بین ۲-۴ گزارش شده است [۱۰] بنابراین، با افزودن NaOH به محلول، pH در 1 ± 0.5 تنظیم شد. الکترولیت در حین انباشت بدون چرخش بوده و دمای آن در $20 \pm 1^\circ\text{C}$ تنظیم شده است.

۲-۴- بررسی ویژگی مغناطیسی و مطالعه ساختاری

اندازه‌گیری مشخصات مغناطیسی مقاومت (MR) چندلایه‌ای‌های انباشت یافته از هر دو الکترولیت خالص و ناخالص در دمای اتاق انجام شد. اندازه‌گیری‌های MR با پروب چهارنقطه‌ای در میدان مغناطیسی خارجی $H = \lambda kOe$ با پیکربندی میدان در صفحه، جریان در صفحه انجام شد. اندازه‌گیری‌های MR هم برای مغناطیسی مقاومت طولی (LMR) و هم برای مغناطیسی مقاومت عرضی (TMR) انجام شد. خواص مغناطیسی نمونه‌ها نظیر منحنی پسماند و میدان وادارندگی با دستگاه مغناطوسنج نمونه مرتعش (VSM) بررسی شد. ساختار چندلایه‌ای‌ها توسط الگوی پراش پرتوی ایکس (XRD) با پرتو $Cu-K\alpha$ ساخت شرکت فیلیپس انجام شد. ریخت شناسی نمونه‌ها نیز توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) صورت گرفت.

۳- نتایج و بحث

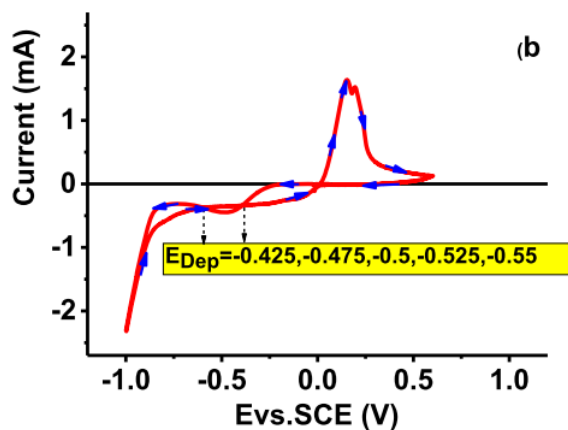
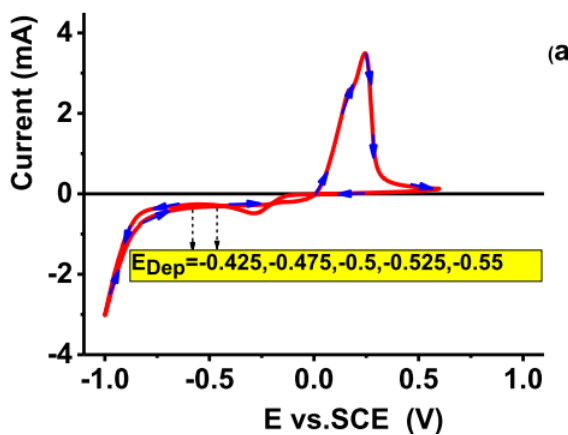
۳-۱- نتایج مربوط به ولتامتر چرخه‌ای

نمودارهای CV برای دو الکترولیت ناخالص و خالص به ترتیب در قسمت‌های (a) و (b) شکل ۱ نشان داده شده است. پتانسیل انباشت برای دو الکترولیت یکسان و در گستره‌ی پتانسیل منفی (-0.55 V تا -0.425 V) جهت تخمین دقیق پتانسیل بهینه انباشت لایه‌ی غیرمغناطیسی Cu از نمودار Current transients (Ct) استفاده شد. همان طور که از شکل ۲ مشخص است نمودار (Ct) برای پتانسیل‌های مختلف یکسان است و گستره‌ی جریان اشباع نیز یکسان است و تفاوتی ندارد کدام پتانسیل به‌عنوان پتانسیل انباشت در نظر گرفته شود، بنابراین پتانسیل ($E = -0.50 \text{ mV}$) حد وسط محدوده انتخابی است که به عنوان پتانسیل بهینه‌ی انباشت برای لایه‌ی Cu در نظر گرفته می‌شود. به کارگیری این پتانسیل انباشت بهینه برای Cu تضمین می‌کند که نه تنها انحلال پذیری اتم‌های مغناطیسی کبالت از قبل انباشت یافته رخ نمی‌دهد، بلکه هم انباشت اتم‌های مغناطیسی درون لایه‌ی غیرمغناطیسی Cu نیز صورت نمی‌گیرد [۱۱]. همچنین، پیامد این نکته است که ضخامت واقعی لایه با ضخامت اسمی موجود بر اساس قانون فارادی یکسان خواهد بود

[۸]. جریان لازم برای انباشت Ni با استفاده از نمودار CV و در نظر گرفتن این نکته که کارایی جریان برای Ni تقریبی (۹۹٪) و برای Cu (۱٪) است، -69 mA در نظر گرفته می‌شود.

۳-۲- بررسی مغناطیسی مقاومت برای الکترولیت ناخالص

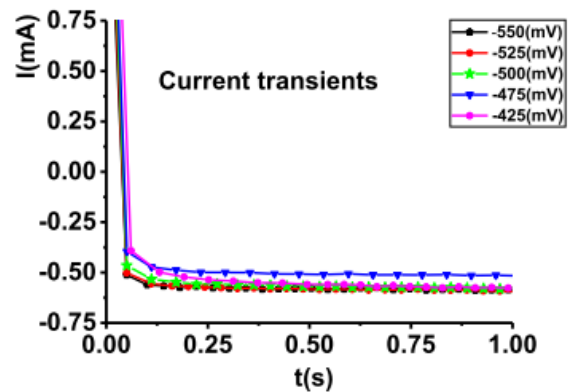
در این بخش به تهیه چندلایه‌ی‌های Ni-Cu/Cu در مد (G/P) بر زیر لایه‌ی سیلیکون برای الکترولیت ناخالص می‌پردازیم. انباشت Cu در مد (P) و انباشت Ni در مد (G) انجام می‌شود.



شکل ۱: نمودار CV (a) الکترولیت ناخالص، (b) الکترولیت خالص

جدول ۲: مشخصات چندلایه‌های Ni-Cu/Cu تهیه شده از الکترولیت ناخالص

Sample	Cu in Potentiostat			Ni in Galvanostat			Cycle (N)	d _{nominal} (nm)
	E ₁ (mV)	Q ₁ (mc)	d _{Cu} (nm)	I ₂ (mA)	t ₂ (ms)	d _{Ni} (nm)		
A1	-۵۰۰	-۴/۵۱	۱/۲	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۹۰	۴۸۰
A2	-۵۰۰	-۶/۰۱	۱/۶	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۷۴	۴۸۰
A3	-۵۰۰	-۷/۵۱	۲	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۶۰	۴۸۰
A4	-۵۰۰	-۹/۳۹	۲/۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۴۵	۴۸۰
A5	-۵۰۰	-۱۱/۲	۳	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۳۳	۴۸۰
A6	-۵۰۰	-۱۳/۱	۳/۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۲۳	۴۸۰
A7	-۵۰۰	-۱۵/۷	۴/۲	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۱۱	۴۸۰
A8	-۵۰۰	-۱۸/۷	۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۰۰	۴۸۰
A9	-۵۰۰	-۲۱/۴	۵/۷	-۶۹	۱۷۵	۳	۹۲	۴۸۰
A10	-۵۰۰	-۲۴/۴	۶/۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۸۴	۴۸۰



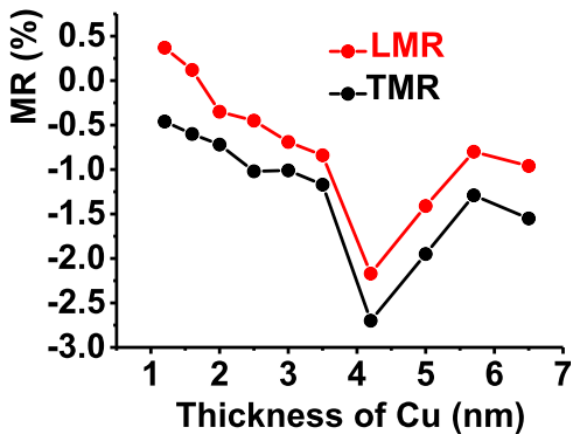
شکل ۲: نمودار Ct برای الکترولیت خالص و ناخالص در پتانسیل‌های متفاوت

همان طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود، برای ضخامت‌های (d_{Cu}=۱/۲nm و d_{Cu}=۱/۶nm) ویژگی AMR و برای (۲nm ≤ d_{Cu} ≤ ۶/۵nm) ویژگی GMR مشاهده می‌شود. تغییر AMR به GMR با تغییر ضخامت لایه Cu بر این واقعیت استوار است که جفت‌شدگی تبادل میان لایه‌های مغناطیسی بر حسب ضخامت لایه جدا کننده نوسان می‌کند و نوسانات جفت‌شدگی آنتی فرومغناطیس تابعی از ضخامت لایه جدا کننده است. با انتخاب یک ضخامت مناسب از لایه جدا کننده می‌توان یک پیکربندی پاد موازی از لایه‌های فرومغناطیسی تهیه کرد و سپس با به کارگیری میدان مغناطیسی مناسب، مغناطش لایه‌های فرومغناطیس را موازی کرد [۱۳]. با توجه به منحنی‌های شکل ۳ بیشینه اندازه GMR در (d_{Cu}=۴/۲nm) است. وابستگی MR به ضخامت لایه غیرمغناطیس Cu در شکل ۴ مشابه رفتاری است که لاشمر در بررسی MR در چندلایه‌های Ni/Cu مشاهده کرد [۱۴].

پارامترهای مجهول در مد (G) برای نیکل جریان الکتریکی و زمان انباشت هستند. I جریان لازم برای انباشت نیکل است که با استفاده از نمودار (CV) گزارش شده در بخش قبل مقدار آن (-۶۹mA) در نظر گرفته می‌شود. t زمان انباشت است که با استفاده از رابطه فارادی [۱۲] و جایگذاری در رابطه Q=I.t قابل اندازه‌گیری است.

$$Q = \frac{dAzF\rho}{M} \quad (3)$$

d ضخامت لایه، A مساحت انباشت، z عدد اتمی، F ثابت فارادی، ρ چگالی، M جرم مولکولی و Q بار الکتریکی انباشت است. بنابراین برای انباشت لایه‌ای از Ni با ضخامت ۳nm (که متشکل از ده لایه‌ی اتمی است) زمان ۱۷۵ms مورد نیاز است. از بخش قبل همچنین دریافتیم که پتانسیل بهینه‌ی انباشت مس، (E=-۵۰۰mV) است. تهیه چندلایه‌های با این اساس است که همواره ضخامت اسمی کل چندلایه‌ای ثابت و برابر با: d_{nominal}(Ni/Cu)=N×(d_{Ni}+d_{Cu})=۸۰۰nm است. از آنجا که در تهیه چندلایه‌های ضخامت لایه‌ی Ni (d_{Ni}=۳nm) ثابت است، بنابراین با توجه به ثابت بودن ضخامت اسمی چندلایه‌ای، ضخامت لایه‌ی مس و تعداد لایه‌ها (N) متغیر است. بنابراین با جایگذاری در رابطه‌ی فارادی، بار الکتریکی انباشت (Q) نیز قابل محاسبه است. مشخصات چندلایه‌ای‌های تهیه شده از الکترولیت ناخالص در جدول ۲ نشان داده شده است. بررسی منحنی MR برای نمونه‌های A1 تا A10 نشان داد برای (d_{Cu}=۱/۲nm و ۱/۶nm) LMR > ۰ و TMR < ۰ است که نشان دهنده‌ی اثر AMR است. در حالی که برای (۲nm ≤ d_{Cu} ≤ ۶/۵nm)، LMR و TMR هر دو منفی است که نشان دهنده‌ی اثر GMR است.



شکل ۴: تغییرات MR با تغییر ضخامت لایه Cu برای الکترولیت ناخالص

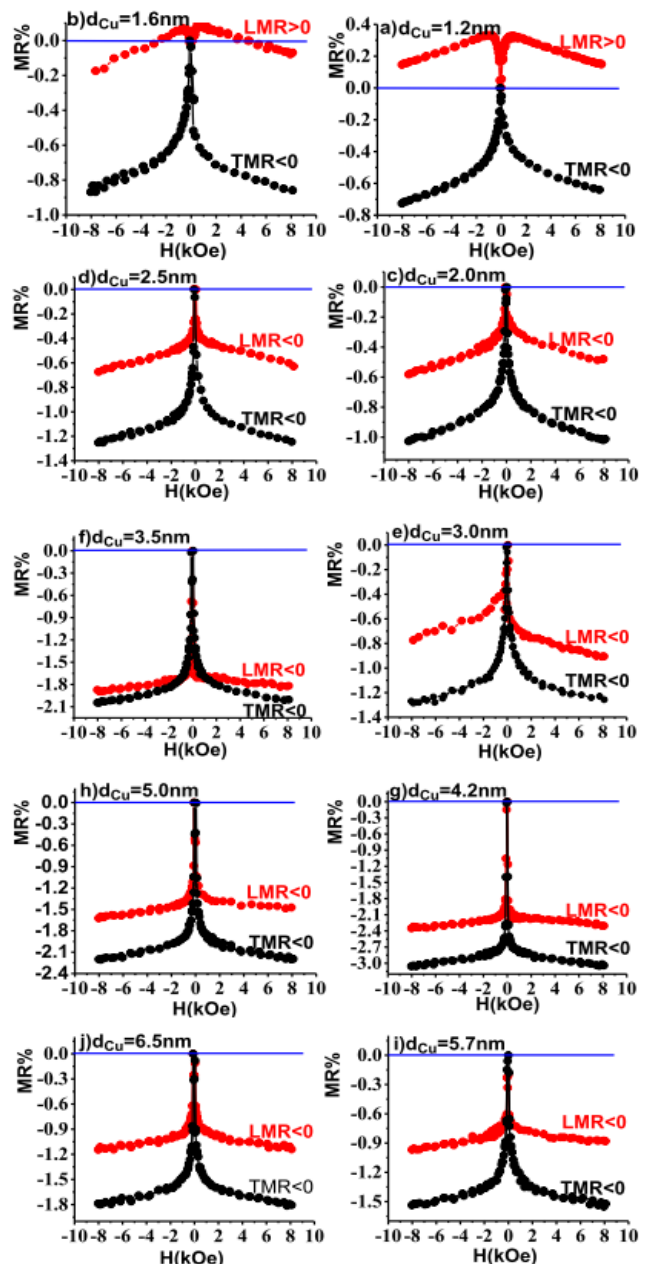
۳-۳- بررسی مغناطو مقاومت برای الکترولیت خالص

در این بخش چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu در مد (G/P) روی زیر لایه سیلیکون انباشت داده شدند. مشخصات نمونه‌ها و شرایط انباشت کاملاً مشابه نمونه‌های سری A است با این تفاوت که از الکترولیت خالص برای انباشت استفاده شده است. مشخصات نمونه‌های B1 تا B8 در جدول ۳ نشان داده شده است.

جدول ۳: مشخصات چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu تهیه شده از الکترولیت خالص

Sample	Cu in Potentiostat			Ni in Galvanostat			Cycle (N)	d _{nominal} (nm)
	E ₁ (mV)	Q ₁ (mc)	d _{Cu} (nm)	I ₂ (mA)	t ₂ (ms)	d _{Ni} (nm)		
B1	-۵۰۰	-۴/۵۱	۱/۲	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۹۰	۴۸۰
B2	-۵۰۰	-۶/۰۱	۱/۶	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۷۴	۴۸۰
B3	-۵۰۰	-۷/۵۱	۲	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۶۰	۴۸۰
B4	-۵۰۰	-۹/۳۹	۲/۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۴۵	۴۸۰
B5	-۵۰۰	-۱۱/۲	۳	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۳۳	۴۸۰
B6	-۵۰۰	-۱۳/۱	۳/۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۲۳	۴۸۰
B7	-۵۰۰	-۱۵/۷	۴/۲	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۱۱	۴۸۰
B8	-۵۰۰	-۱۸/۷	۵	-۶۹	۱۷۵	۳	۱۰۰	۴۸۰

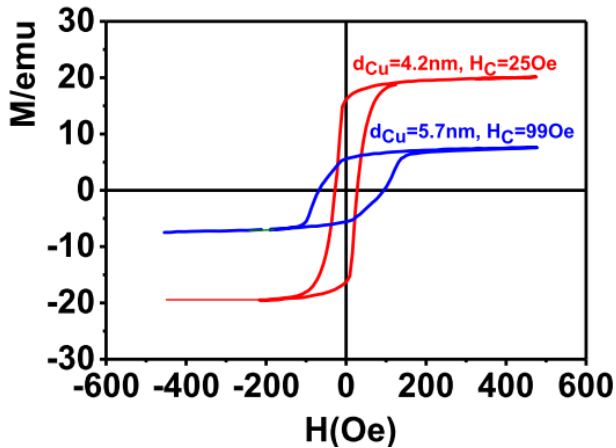
مقایسه منحنی‌های MR چندلایه‌ای‌ها برای الکترولیت-ناخالص در شکل ۳ با منحنی‌های MR چندلایه‌ای‌ها برای الکترولیت-خالص در شکل ۵ نشان می‌دهد برای نمونه‌های A3 تا A10، LMR و TMR هر دو منفی هستند که نشان دهنده اثر GMR است. در حالی که در الکترولیت-خالص، منحنی MR نمونه‌های B1 تا B8 همگی LMR مثبت و TMR منفی است که نشان دهنده اثر AMR است. در صورتی که انتظار داریم چندلایه‌ای‌هایی که از دو فلز فرومغناطیس/غیرمغناطیس تهیه



شکل ۳: منحنی LMR و TMR برای چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu از الکترولیت ناخالص

۳-۴- بررسی منحنی پسماند نمونه‌ها

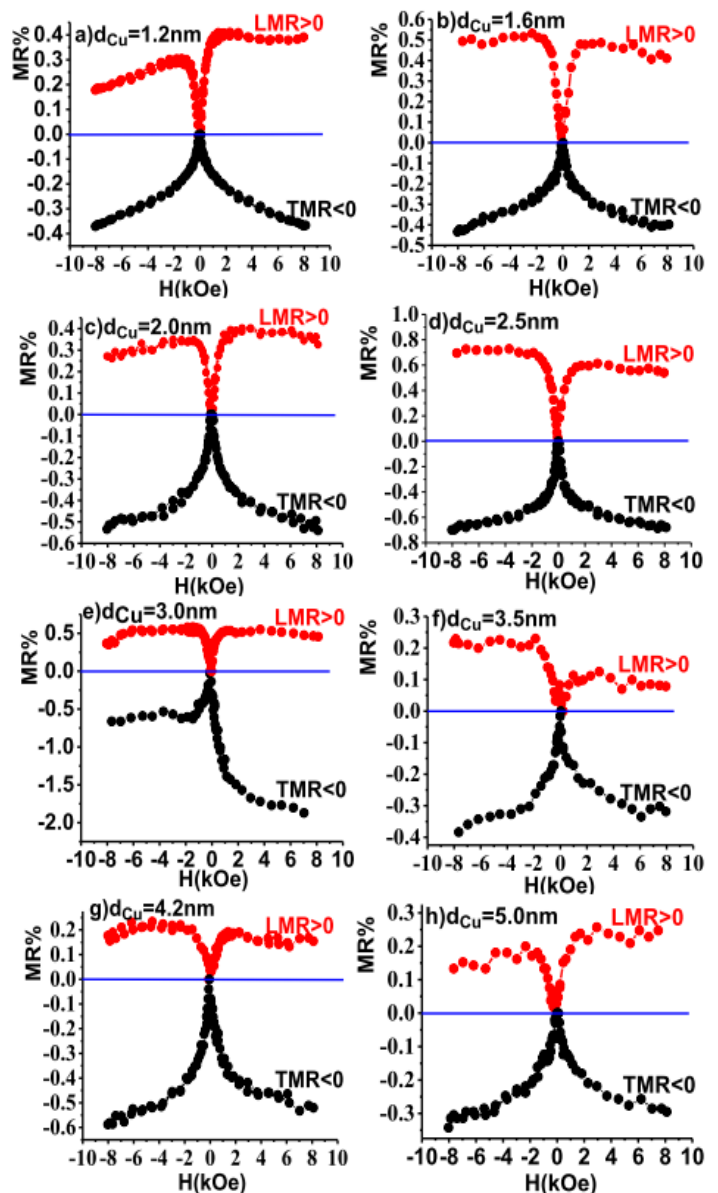
همان طور که در شکل ۶ مشاهده می‌شود، با کاهش ضخامت لایه Cu، وادارندگی H_C کاهش می‌یابد.



شکل ۶: منحنی پسماند مغناطیسی برای نمونه‌های A9 و A7

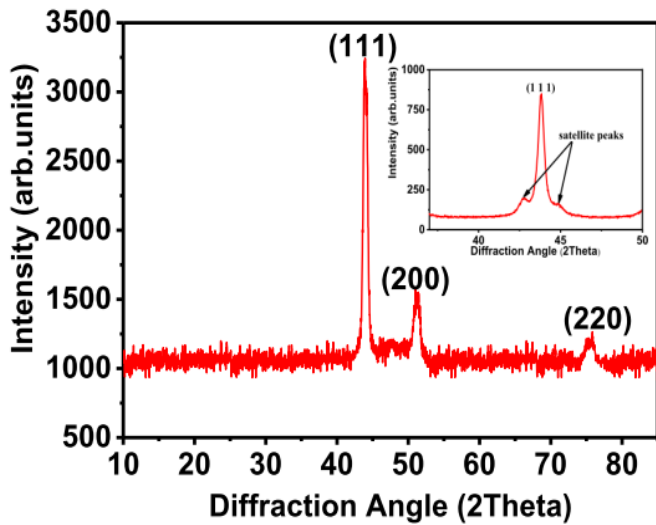
در نمونه A9: $(d_{Cu} = 5/7nm)$ جهت‌گیری مغناطش در لایه‌های مجاور بسیار کاتوره‌ای است و در نتیجه این لایه‌ها کمتر با یکدیگر جفت می‌شوند. این مطلب موجب می‌شود که در مقایسه با نمونه‌ی A7: $(d_{Cu} = 4/2nm)$ یک جفت‌گیری فرومغناطیسی باقی‌مانده بتواند موجب وادارندگی بزرگتری شود [۱۶]. همچنین با افزایش ضخامت لایه‌ی Cu مغناطش اشباع کاهش می‌یابد که به دلیل غیرمغناطیسی بودن فلز Cu نسبت به دو فلز مغناطیسی Ni و Co موجود در ساختار است [۱۷]. همان طور که در شکل ۷ مشاهده می‌شود موقعیت قله مغناطو مقاومت (HP) برآورده شده از منحنی‌های شکل ۵ با مقادیر وادارندگی (H_C) برآورد شده از منحنی پسماند برای ضخامت‌های مختلف لایه Cu به خوبی با یکدیگر متناظرند. زیرا منظور از (HP) در نمودار MR، مکانی است که در آن مقدار مغناطو مقاومت (یا به بیان دیگر مقدار GMR) بیشینه باشد و (H_C) در منحنی پسماند مکانی است که مغناطش صفر باشد. هنگامی مقدار MR بیشینه است که جهت‌گیری‌های مغناطش در لایه‌های فرومغناطیس / غیرمغناطیس مجاور هم در یک جهت لایه‌ای، دو به دو با یکدیگر پادموازی باشند. البته لازم به ذکر است که آرایش‌های دیگر مغناطش در لایه‌های فرومغناطیس / غیرمغناطیس مجاور هم (گاهاً موازی) نیز می‌تواند بیشینه‌ی مقدار MR را فراهم آورد. اما اگر آرایش مغناطش در لایه‌های فرومغناطیس / غیرمغناطیس مجاور هم دو به دو با یکدیگر کاملاً

می‌شوند، همگی اثر GMR را نشان دهند. مشاهده‌ی اثر GMR در الکترولیت-ناخالص را می‌توان به حضور ناخالصی Co نسبت داد. نکته‌ی قابل توجه اینکه اکثر مقالاتی که اثر GMR را در چندلایه‌ی Ni-Cu/Cu گزارش کرده‌اند [۱۵]، هیچ اشاره‌ای به حضور یا عدم حضور ناخالصی Co نداشته‌اند، این در حالیست که مقایسه‌ی نتایج MR برای دو الکترولیت خالص و ناخالص در این مقاله دلالت بر این دارد که حضور ناخالصی Co (حتی با مقدار بسیار کم) نقش بسزایی در مشاهده‌ی اثر GMR دارد، طوری که در الکترولیت خالص (بدون کبالت) اصلاً اثر GMR مشاهده نشده است.



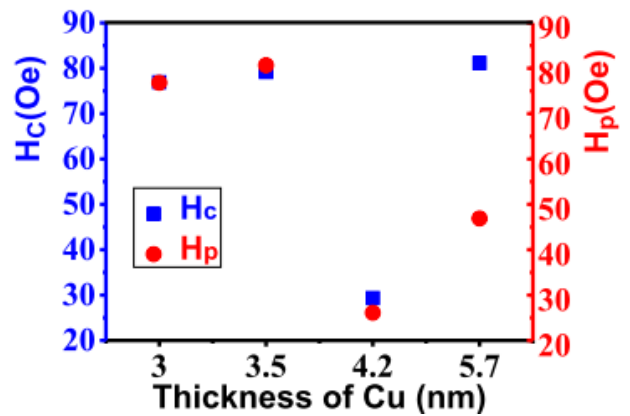
شکل ۵: منحنی LMR و TMR برای چندلایه‌ی‌های Ni-Cu/Cu از الکترولیت خالص

[۲۰ و ۲۱]. البته تفاوت میان این دو ناشی از تولید گاز هیدروژن در طول فرایند اکسایش فلز است [۲۲].



شکل ۸: الگوی XRD نمونه A7

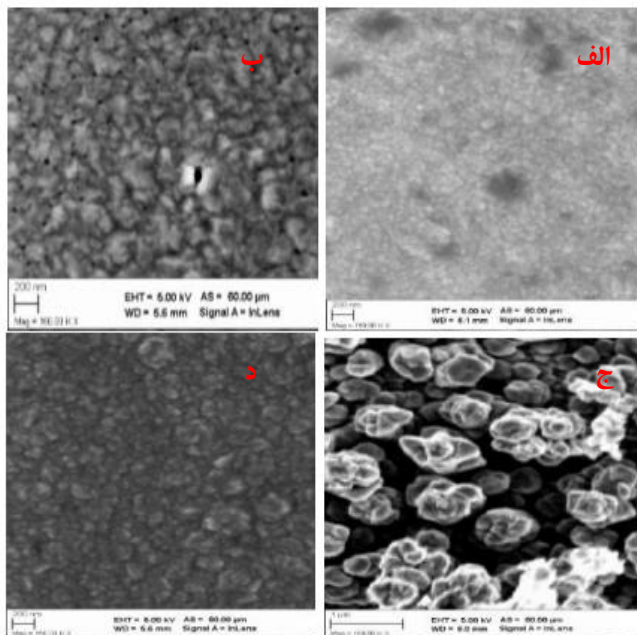
پادموازی باشند، در این صورت مغناطش کل در چندلایه‌های صفر می‌شود که دقیق بیانگر (H_C) در منحنی پسماند است [۱۸].



شکل ۷: مقایسه وادارندگی (H_C) و قله مغناطومقاومت (H_P)

۵-۳- مطالعه‌ی ساختاری و ریخت شناسی نمونه‌ها

هنگامی که یک چندلایه‌ای دارای ساختار ابرشبه‌کریستالی باشد، اگر دولایه‌ای‌ها به صورت دوره‌ای تکرار شوند، در این صورت دو نوع قله در الگوی XRD نمونه‌ها ظاهر می‌شود. قله نوع اول، قله‌ی براگ اصلی (۱۱۱) متناظر با دوره‌ای بودن صفحات اتمی است که فاصله‌ی صفحات اتمی را مشخص می‌کند. قله نوع دوم، قله‌های ماهواره‌ای شکل (Satellite peaks) هستند که حول قله‌ی براگ اصلی ظاهر می‌شوند. این قله‌ها بیانگر دوره‌ای بودن ساختار ابر شبکه‌ای هستند و با استفاده از آن‌ها می‌توان ضخامت دولایه‌ای را محاسبه کرد. ضخامت دولایه‌ای از دو قله‌ی ماهواره‌ای متوالی حول قله‌ی پراش اصلی محاسبه می‌شود، به گونه‌ای که شرط براگ از طریق بازتابش پرتوهای ایکس از دولایه‌ای‌های متوالی برقرار باشد [۱۹].



شکل ۹: تصاویر SEM چندلایه‌های (الف) A1، (ب) A4، (ج) A7 و (د) A10

همان‌طور که تصاویر SEM در شکل ۹ نشان می‌دهد، سطح نمونه‌ها یکنواخت و عاری از وجود حفره است که دلالت بر یکنواختی انباشت در طول فرایند لایه‌نشانی دارد. البته افزایش ضخامت لایه Cu موجب ظاهر شدن مناطق غنی از Ni شده که به شکل جزایر مغناطیسی مطابق شکل ۹-ج از میزبان فلزی غیرمغناطیسی جدا شده است. همچنین، با افزایش ضخامت Cu رنگ لایه‌ها تیره‌تر شده است [۲۳].

$$\Lambda = \frac{\lambda}{(\sin \theta_{i+1} - \sin \theta_{i-1})} \quad (4)$$
 طول موج پرتو ایکس ($\lambda = 0.154056 \text{ nm}$)، θ_i موقعیت قله پراش اصلی، θ_{i+1} و θ_{i-1} زوایایی که قله‌های ماهواره‌ای مشاهده می‌شوند و Λ ضخامت دو لایه‌ای است. مطابق شکل ۸، برای نمونه A7: Ni-Cu(۳nm)/Cu(۴/۲nm) دو قله ماهواره‌ای متوالی حول قله پراش اصلی (۱۱۱) ظاهر می‌شوند و ضخامت دو لایه‌ای Ni/Cu، (Λ_{XRD}) با استفاده از رابطه ۴، $6/\Lambda \text{ nm}$ است. از طرفی ضخامت اسمی دو لایه‌ای ($\Lambda_{\text{nominal}} = d_{\text{NM}} + d_{\text{FM}}$) برای نمونه A7، $7/2 \text{ nm}$ است و بنابراین (Λ_{XRD}) قابل مقایسه با (Λ_{nominal}) است

[7] K. Neurohr, L. Peter, L. Pogany, D. Rafaja, A. Csik, K. Vad, G. Molnar, I. Bakonyi, "Influence of Ag additive to the spacer layer on the structure and giant magnetoresistance of electrodeposited Co/Cu multilayers". *Journal of Electrochemical Society*, 162, D331-D340, 2015.

[8] I. Bakonyi, L. Peter, "Electrodeposited multilayer films with giant magnetoresistance (GMR): progress and problems", *Progress in Material Science*, 55, 107-245, 2010.

[9] S.M.S.I.Dulal, E.A.Charles, "Electrodeposition and composition modulation of Co-Ni(Cu)/Cu multilayers", *Journal of Alloys and Compounds*, 455, 274-279, 2008.

[10] M. Jafari Fesharaki, S. Manouchehri, Z. Sadeghi, M. H. Yousefi, R. Jalajjerdi, "Magnetic properties and structural study of Ni-Co/Cu multilayers prepared by electrodeposition method", *Journal of Nanostructures*, 5, 281-287, 2015.

[11] A. Tekgul, H. Kockar, H. Kuru, M. Alper, C.G.Unlu, "Electrochemical, structural and magnetic analysis of electrodeposited CoCu/Cu multilayers: influence of Cu layer deposition potential", *Journal of Electronic Materials*, 47, 1896-1903, 2018.

[12] W.H.Safranek, "The properties of electrodeposited metals and alloys; A Handbook", American Elsevier Publishing; New York, 1974.

[13] B. Deiny, U.S.Sperious, S.S.P.Parkin, B.A.Gurney, "Giant magnetoresistance in soft ferromagnetic multilayers", *Physical Review B*, 43, 1297-1300, 1991.

[14] D.S.Lashmore, Y. Zhang, S. Hua, "Magnetoresistance measurements of electrochemically produced Cu/Ni multilayers", *The Electrochemically Society Proceedings Series*, 94-96, 1994.

[15] H. Kuru, H. Kockar, M. Alper, M. Hacıismailoglu, "Relation between ferromagnetic layer thickness (NiCu) and properties of NiCu/Cu multilayers" *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 26, 5014-5021, 2015.

[16] M. Jafari Fesharaki, L. Peter, T.Schucknecht, D. Rafaja, J. Degi, L. Pogany, K. Neurohr, E. Szeles,

۴- نتیجه گیری

در پژوهش حاضر، اثر ناخالصی Co در الکتروانباشت چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu روی مغناطو مقاومت نمونه‌ها بررسی شد. نتایج بررسی‌های MR برای الکتروولیت ناخالص نشان داد که حضور ناخالصی Co تأثیر بسزایی در ویژگی GMR دارد، این در حالی است که نمونه‌های تهیه شده از الکتروولیت خالص همگی ویژگی AMR نشان دادند. بررسی منحنی پسماند برای چندلایه‌ای‌های Ni-Cu/Cu در ضخامت‌های مختلف Cu نشان داد با کاهش ضخامت Cu، وادارندگی کاهش و مغناطش اشباع افزایش می‌یابد. همین‌طور، موقعیت قله‌ها در نمودار مغناطو مقاومت (Hp) با مقادیر وادارندگی (Hc) برآورد شده از منحنی پسماند با هم متناظرند. بررسی XRD نیز ساختار لایه مانند با ضخامت نانومتری را تأیید کرده است.

مراجع

[1] E. Tsymbal, D.G.Pttifor, "Perspectives of giant magnetoresistance", *Solid state Physics*, 56, 113-237, 2001.

[2] Y. Ouyang, Z. Wang, G. Zhao, J. Hu, S. Ji, J. He, S.X.Wang, "Current sensors based on GMR effect for smart grid applications", *Sensors and Actuators A: Physical*, 294, 8-16, 2019.

[3] E. Hiroto, H. Sakalima, K. Inomoto, "Giant magneto-resistance devices", Springer. 2002.

[4] S. M. Tompson, "The discovery, development and future of GMR: the nobel prize 2007", *Applied Physics*, 41, 1-20, 2008.

[5] M. Angelakeris, E. Th. Papaioannou, P. Pouloupoulos, O. Valassiades, N.K.Flevaris, "Giant magnetoresistance response in Ag-Co multilayers and nanoparticles", *Sensors and Actuators A: Physical*, 106, 91-95, 2003.

[6] J. Kanaka, T. Stobiecki, P. Wisniowski, G. Gladyszecki, W. Maassc, B. Szymanski, "XRD study of the structure of NiFe/Au and NiFe/Cu superlattices". *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 239, 329-331, 2002.

G. Nabiyouni, I. Bakonyi, "Magnetoresistance and structural study of electrodeposited Ni-Cu multilayers, Journal of Electrochemical Society, 159, D162-D171, 2012.

[17] H. Kuru, H. Kockar, M. Alper, "Giant magnetoresistance (GMR) behaviour of electrodeposited NiFe/Cu Multilayers: Dependence of non-magnetic and magnetic layer thicknesses", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 444, 132-139, 2017.

[18] S. Zsurzsa, L. Peter, L.F.Kiss, I. Bakonyi, "Magnetic and magnetoresistance studies of nanometric electrodeposited Co films and Co/Cu layered structures: influence of magnetic layer thickness", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 421, 194-206, 2017.

[19] K.E.Meyer, G.P.Felcher, S.K.Sinha, I.K.Schuller, "Models of diffraction from layered ultrathin coherent structures", Journal of Applied Physics, 52, 6608-6610, 1981.

[20] N. Rajasekaran, L. Pogany, A. Revesz, B.G. Toth, S. Mohan, L. Peter, I. Bakonyi, "Structure and giant magnetoresistance of electrodeposited Co/Cu multilayers prepared by two-pulse (G/P) and three-pulse (G/P/G) plating", Journal of Electrochemical Society, 161, D339-D338, 2014.

[21] N. Rajasekaran, J. Mani, B.G. Toth, G. Molnar, S. Mohan, L. Peter, I. Bakonyi, "Giant magnetoresistance and structure of electrodeposited Co/Cu multilayers: the influence of layer thicknesses and Cu deposition potential", Journal of Electrochemical Society, 162, D204-D212, 2015.

[22] M. Jafari Fesharaki, K. Neurohr, L. Peter, A. Revesz, L. Pogany, G. Molnar, I. Bakonyi, "Influence of Pb additive to the space layer on the structure and giant magnetoresistance of electrodeposited Co/Cu multilayers", Journal of Electrochemical Society, 163, D485-D492, 2016.

[23] K. Neurohr, L. Pogany, B.G. Toth, A. Revesz, I. Bakonyi, L. Peter, "Electrodeposition of Ni from various non-aqueous media: the case of alcoholic solutions", Journal of Electrochemical Society, 162, D256-D264, 2015.



Influence of Co on the Magnetoresistance of Ni-Cu/Cu Multilayers

M. Jafari Fesharaki*, M. R. Jalali

Department of Physics, Payame Noor University, Esfahan

Abstract: In this study, Ni-Cu/Cu multilayers from a single sulfate/sulfamate bath using electrodeposition method from two solutions; ultrapure solution (without impurity of Co) and impure solution (with 0.2% Co) in galvanostat/potentiostat (G/P) mode was prepared at optimized Cu deposition potential. Magnetoresistance (MR) measurements were performed at room temperature for the Ni-Cu/Cu multilayers as a function of (Cu) layer thickness for both ultrapure and impure electrolytes. The magnetoresistance curves represent an anisotropic magnetoresistance (AMR) for multilayered samples prepared by ultrapure electrolyte and giant magnetoresistance (GMR) by impure electrolyte, so that the maximum GMR value was obtained for Ni-Cu/Cu multilayer with 3.0nm/4.2nm thickness. The X-ray diffraction pattern (XRD) was used for structural analysis of multilayer films. The XRD pattern confirmed the presence of satellite peaks, indicating the existence of a superlattice structure. The nominal thickness of the multilayers (Λ_{nominal}) was compared with the thickness of the X-ray diffraction pattern (Λ_{XRD}), which was significantly consistent. The morphology of the samples was performed using scanning electron microscopy (SEM) which implies uniformity of deposition during the layering process. The results showed that with decreasing thickness of nonmagnetic layer (Cu) the coercivity decreased and saturation magnetization increased.

Keywords: Ni-Cu/Cu multilayer, Anisotropic magnetoresistance, Giant magnetoresistance, Satellite peaks