___ ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ ____ Свойства

УДК 539.216.2:537.621.2:537.623

МАГНИТОУПРУГИЕ СВОЙСТВА СПИНОВЫХ КЛАПАНОВ, СОДЕРЖАЩИХ СЛОИ СоFe/Dy

© 2023 г. Л. И. Наумова^{*a*, *b*, *, А. А. Захаров^{*a*}, М. А. Миляев^{*a*, *b*}, Н. Г. Бебенин^{*a*}, Р. С. Заворницын^{*a*, *b*}, И. К. Максимова^{*a*}, В. В. Проглядо^{*a*}, В. В. Устинов^{*a*, *b*}}

^аИнститут физики металлов имени М.Н. Михеева УрО РАН, ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108 Россия ^bУральский Федеральный Университет, ИЕНиМ, ул. Мира, 19, Екатеринбург, 620002 Россия

> *e-mail: naumova@imp.uran.ru Поступила в редакцию 02.12.2022 г. После доработки 21.12.2022 г. Принята к публикации 27.12.2022 г.

Спиновые клапаны, содержащие слой диспрозия, изготовлены на эластичной полиимидной пленке методом магнетронного напыления. Проведены измерения полевых зависимостей магнитосопротивления при различных деформациях растяжения образцов. Показано, что характер изменения магниторезистивных свойств спинового клапана при деформации растяжения зависит от толщины слоя диспрозия. В частности, толщина слоя диспрозия влияет на величину максимального относительного удлинения, при котором магнитосопротивление спиновых клапанов остается неизменным.

Ключевые слова: диспрозий, спиновый клапан, магнитосопротивление, полиимид, эффект Виллари **DOI:** 10.31857/S0015323022601817, **EDN:** CNJOVJ

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время элементы гибкой электроники, например, сенсоры [1-3], в том числе и медицинские [4–6], датчики контроля качества [7] привлекают большое внимание. Эти устройства способны принимать форму поверхности, ударопрочны, и могут использоваться в качестве носимой электроники. похожей на человеческую кожу. Практический интерес представляют как материалы с сильной зависимостью характеристик от деформации, так и обладающие стабильными свойствами в большом диапазоне деформаций. Эластичные сенсорные элементы изготавливают на полимерных подложках: полиэтилентерефталат (РЕТ), полиэфирэфиркетон (РЕЕК) или полиимид (PI). Рабочими элементами устройств могут являться обладающие эффектом гигантского магнитосопротивления наноструктуры типа "спиновый клапан" [8, 9].

В состав спинового клапана (СК) входят антиферромагнитный (АФМ) слой и два ферромагнитных (ФМ) слоя, разделенных немагнитным материалом. Особенностью СК является значительное изменение сопротивления в слабых магнитных полях [10]. Один из ФМ-слоев, примыкающий к АФМ, связан с ним обменным взаимодействием и называется закрепленным. В результате формируется однонаправленная анизотропия, которая характеризуется осью однонаправленной анизотропии (ООА). Петля гистерезиса перемагничивания этого слоя сдвинута относительно H=0на величину поля обменного взаимодействия. Другой ФМ-слой называется свободным. Его перемагничивание происходит вблизи H = 0. При напылении в магнитном поле в СК формируется одноосная анизотропия и ось легкого намагничивания (ОЛН). В работах [11, 12] на основе вычислений и данных визуализации магнитной структуры показано, что в зависимости от взаимодействия между ФМ-слоями, одноосной анизотропии и отклонения приложенного поля от ООА реализуется одна из трех мод перемагничивания свободного слоя А, В или С. В рамках используемой модели моды А и В интерпретируют как сочетание двух механизмов перемагничивания: смещения доменных стенок и когерентного вращения вектора намагниченности. При реализации моды С происходит только когерентное вращение вектора намагниченности.

Сопротивление СК зависит от угла между магнитными моментами ФМ-слоев, который можно изменить не только внешним магнитным полем, но и за счет механических деформаций вследствие обратного магнитострикционного эффекта (эффекта Виллари) [13]. В работах [14–16] рассматривается использование СК на основе переходных металлов в качестве датчиков величины и направления деформации. Ранее мы исследовали изменения магниторезистивных свойств СК при введении в них слоев редкоземельных металлов [17, 18]. В интерфейсе Dy/CoFe в результате диффузии возникает ряд сплавов Co-Fe-Dy, обладающих сперимагнитной структурой [19, 20]. Магнитные подсистемы 3d- и 4f-металлов связаны отрицательным обменным взаимодействием, при этом одна или обе подсистемы ориентируются случайным образом в пределах пространственного конуса. Температура Кюри для аморфных сплавов Co-Fe-Dy, составляет 300–500 K, а коэрцитивная сила зависит от температуры [21–23].

Магнитострикция насыщения (λ_s) 4*f*-металлов в сотни раз больше, чем у 3*d*-металлов [24]. В работе [25] показано, что тонкие пленки DyFeCo на подложках из стекла обладают значительным изменением коэрцитивной силы при деформации. В зависимости от давления Ar при напылении, пленки DyFeCo имеют разную чувствительность к деформации [26].

Введение диспрозия в состав СК и исследование особенностей, связанных с высокой химической активностью и дисперсией магнитной анизотропии 4*f*-металлов, представляет интерес в плане управления чувствительностью наноструктуры к деформации и синтеза материалов с широким спектром применений в гибкой электронике, медицине и биосенсорике.

В настоящей работе исследуются микроструктура и магнитные свойства спиновых клапанов, содержащих 4*f*-металл в составе свободного слоя CoFe/Dy/CoFe. Для образцов, изготовленных на полимерных подложках, проводится наблюдение изменений магнитотранспортных свойств при деформации растяжения, а также интерпретация полученных данных в рамках модели Стонера— Вольфарта и смены механизма перемагничивания свободного слоя.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Спиновые клапаны композиции [Ta(5)/ $(Ni_{80}Fe_{20})_{60}Cr_{40}(5)]_{5}/Co_{90}Fe_{10}(1.5)/Dy(t_{Dv})/Co_{90}Fe_{10}$ (1.5)/Cu(3.2)/Co₉₀Fe₁₀(2)/Fe₅₀Mn₅₀(12)/Ta(6) были изготовлены методом магнетронного напыления на жесткие и гибкие подложки из стекла и полиимидной (PI) пленки. Толщины слоев наноструктуры здесь и далее указаны в нанометрах в круглых скобках после символа химического элемента. Толщина слоя диспрозия составляла $t_{Dy} = 0, 1, 1.5, 3, 7$ и 10 нм. При изготовлении образцов на стеклянную подложку наклеивали РІ-пленку (каптоновый скотч) толщиной $t_s = 60$ мкм, на поверхность которой напыляли наноструктуры. Затем при помощи оптической литографии изготавливали микрополоски шириной w = 20, 60, 80 и 100 мкм и длиной 10 мм. Были сформированы микрополоски с па-



Рис. 1. Фото закрепленного на держателе образца микрополоски спинового клапана с контактными площадками на PI пленке (вверху) и иллюстрация взаимной ориентации микрополоски и вектора деформации (внизу).

раллельным и перпендикулярным расположением ОЛН по отношению к длине микрополоски. Далее образец замачивали в ксилоле, который не взаимодействует с диспрозием, но позволяет легко отделить каптоновый скотч от стекла без необратимых деформаций напыленной пленки. Отделенную от стекла PI-пленку с напыленной наноструктурой разрезали на отдельные образцы размером 2 × 10 мм с микрополосками спиновых клапанов и при помощи маски напыляли медные контактные площадки.

Сопротивление при комнатной температуре измеряли четырехконтактным методом при протекании постоянного тока в плоскости пленки. Магнитосопротивление определяли как $MR = [(R(H) - R_s)/R_s]$, где R(H) и R_s – сопротивление образца в магнитном поле и в поле насыщения.

Деформацию растяжения образцов проводили при помощи специально изготовленного держателя (рис. 1).

Держатель представляет собой пластиковый канал квадратного сечения, внутри которого находится немагнитные винт и квадратная гайка. Винт фиксируется с внешней стороны держателя второй немагнитной гайкой. Один край образца фиксировали с помощью клея на пластиковом канале, а второй двигался поступательно вместе с квадратной гайкой при вращении винта.

В качестве величин, характеризующих растяжение образца, использовали вектор деформации **u** и относительное удлинение подложки $\varepsilon = (L - L_0)/L_0$, где L_0 и L – длина образца в недеформированном и деформированном состояниях. Удлинение



Рис. 2. Дифрактограммы спиновых клапанов $[Ta(5)/(NiFeCr(5)]_5/CoFe(1.5)/Dy(t_{Dy})/CoFe(1.5)/Cu(3.2)/CoFe(2)/FeMn(12)/Ta(6), напыленных на стекло и РІ подложку. На вставке показана зависимость среднего угла рассеяния текстуры от толщины слоя диспрозия в спиновых клапанах, напыленных на стекло.$

 $\Delta L = L - L_0$ оценивали как $\Delta L = Nd$, где N – количество оборотов винта, d – шаг резьбы.

Исследования микроструктуры проводили методом рентгеновской дифракции в излучении Со Ка. Текстурные исследования проводили по методу кривых качания [27].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Исследования микроструктуры

На рис. 2 показаны дифрактограммы спиновых клапанов с $t_{Dy} = 0$ и 7 нм, напыленных на стекло и PI. На всех дифрактограммах отсутствуют структурные рефлексы диспрозия и имеется только один пик, полученный от семейства плоскостей (111) гранецентрированной кубической (ГЦК) решетки Си и сплава СоFe. Видно, что при добавлении диспрозия в наноструктуру происходит значительное снижение интенсивности пика.

Во всех образцах в слоях СоFe и Cu была выявлена текстура $\langle 111 \rangle$, ось которой совпадает с нормалью к плоскости пленки. Средний угол рассеяния текстуры (γ) оценивали как полную ширину на полувысоте кривой качания (ω -скан) вокруг пика (111). На вставке рис. 2 показана зависимость среднего угла рассеяния текстуры от толщины слоя диспрозия. При появлении в наноструктуре слоя диспрозия толщиной 1 нм происходит снижение совершенства текстуры в слоях СоFe и Cu, и угол γ резко возрастает. Причиной является рассогласование ГЦК- и ГПУ-кристаллических решеток слоев СоFe/Cu и Dy. Дальней-



Рис. 3. Схематичное изображение слоев спинового клапана, интерфейсов Со–Fe–Dy и направления магнитных моментов в слоях при комнатной температуре.

шее увеличение t_{Dy} сопровождается слабой деградацией текстуры (111).

Исследование магнитных и магниторезистивных свойств спиновых клапанов, содержащих слой диспрозия

На рис. 3 схематично показаны слои спинового клапана, за исключением буферного и защитного. Ранее в работах [17, 18 и 28] мы использовали методы просвечивающей электронной микроскопии и рентгеновской рефлектометрии для исследования интерфейсов слоев CoFe/Dy/CoFe в составе спинового клапана. Было показано, что из-за сильного перемешивания атомов слоя Dy и слоев СоFe. среднеквадратичная шероховатость границ составляет $\sigma = 1.4$ нм, а фактическая толщина слоев отличается от номинальной на 10-15%. Схемы интерфейсов Со-Fe-Dy также показаны на рис. 3. Направления магнитных моментов в слоях при комнатной температуре показаны для случая, когда величина приложенного магнитного поля соответствует максимуму магнитосопротивления спинового клапана и области плато на магниторезистивной кривой.

Магнитный момент закрепленного слоя (\mathbf{M}_{P}) связан обменным взаимодействием с антиферромагнетиком и направлен против приложенного поля. Свободный слой разделен слоем диспрозия на две части с магнитными моментами (\mathbf{M}_{F1}) и (\mathbf{M}_{F2}) . Диспрозий при комнатной температуре находится в парамагнитном состоянии. В интерфейсах атомы Со и Fe проникают в диспрозий [17, 18], и антиферромагнитное обменное взаимодействие стремится выстроить магнитные моменты диспрозия антипараллельно магнитным



Рис. 4. Полевые зависимости намагниченности спиновых клапанов $[Ta(5)/(NiFeCr(5)]_5/CoFe(1.5)/Dy(t_{Dv})/CoFe(1.5)/Cu(3.2)/CoFe(2)/FeMn(12)/Ta(6).$

моментам Со и Fe. Из-за высокой дисперсии локальной магнитной анизотропии магнитные моменты Dy в интерфейсах Co–Fe–Dy ориентируются в пределах конуса с углом раствора β . Выше температуры компенсации [29], в частности, при комнатной температуре, суммарный магнитный момент атомов Со и Fe в интерфейсе (\mathbf{M}_{CoFe}) больше суммарного магнитного момента атомов Dy (\mathbf{M}_{Dy}). В результате \mathbf{M}_{CoFe} сонаправлен с приложенным полем и магнитными моментами \mathbf{M}_{F1} и \mathbf{M}_{F2} . Существование при комнатной температуре магнитного момента \mathbf{M}_{Dy} должно приводить к уменьшению суммарного магнитного момента свободного слоя (\mathbf{M}_F).

Полевые зависимости намагниченности были измерены при комнатной температуре для спиновых клапанов с различной толщиной слоя диспрозия. Намагниченность вычисляли относительно суммарного номинального объема всех ферромагнитных слоев Со Fe в образце СК. Некоторые петли магнитного гистерезиса показаны на рис. 4. Несмотря на то, что диспрозий находится в парамагнитном состоянии, добавление его слоя в СК и последующее увеличение t_{Dv} существенно изменяет форму петель гистерезиса. Возрастает ширина и уменьшается высота низкополевой петли гистерезиса, относящейся к перемагничиванию свободного слоя. По высоте петли была проведена оценка величины суммарного магнитного момента (M_F) свободного слоя CoFe/Dy/CoFe (вставка на рис. 5). На рис. 5 показано, как уменьшается $M_{\rm F}$ с увеличением толщины прослойки диспрозия. Атомы Со и Fe, проникая в слой Dy, выстраивают магнитные моменты атомов диспрозия так, что \mathbf{M}_{Dv} направлен против \mathbf{M}_{F1} и \mathbf{M}_{F2} .

При $t_{Dy} < 3$ нм наклон зависимости $M_F(t_{Dy})$ больше, чем при $t_{Dy} > 3$ нм. Возможная причина



Рис. 5. Зависимость магнитного момента свободного слоя спиновых клапанов $[Ta(5)/(NiFeCr(5)]_5/CoFe(1.5)/Dy(t_{Dy})/CoFe(1.5)/Cu(3.2)/CoFe(2)/FeMn(12)/Ta(6) от толщины слоя диспрозия. На вставке показано, как проводили оценку величины магнитного момента.$

изменения крутизны зависимости состоит в том, что при $t_{\rm Dy} < 3$ нм в СК отсутствует слой чистого диспрозия. Тогда увеличение $t_{\rm Dy}$ приводит лишь к соответствующему возрастанию магнитного интерфейса Co-Fe-Dy. Начиная с $t_{\rm Dy} \approx 3$ нм, в наностуктуре появляется немагнитный слой диспрозия, толщина которого возрастает с увеличением $t_{\rm Dy}$. Важно, что при этом толщина интерфейса Co-Fe-Dy, по-видимому, практически не изменяется.

На рис. 6 показаны зависимости ширины (H_c) и поля сдвига (H_j) низкополевой петли гистерезиса от t_{Dy} . Величина H_j характеризует взаимодействие между свободным и закрепленным слоями. Наблюдаемый для всех исследуемых спиновых клапанов малый сдвиг низкополевой петли указывает на достаточно слабое межслойное взаимодействие. Тенденция к возрастанию H_j при введении в состав СК слоя диспрозия толщиной 1 и 1.5 нм обусловлена, вероятно, возрастанием шероховатости межслойных границ. При увеличении t_{Dy} межслойное взаимодействие становится слабее, что согласуется с наблюдаемым уменьшением магнитного момента свободного слоя (рис. 5).

Величина H_c резко возрастает при появлении в составе свободного слоя прослойки диспрозия и далее увеличивается при возрастании t_{Dy} . Причиной, вероятно, является снижение совершенства текстуры $\langle 111 \rangle$ [30] в спиновых клапанах со слоем Dy, и высокая дисперсия магнитной анизотропии интерфейса Co–Fe–Dy.

На рис. 7 показаны полевые зависимости магнитосопротивления для спиновых клапанов с $t_{\rm Dy} = 0, 1, 3$ и 10 нм. В согласии с магнитными дан-



Рис. 6. Зависимости ширины и поля сдвига низкополевой петли гистерезиса перемагничивания спиновых клапанов [Ta(5)/(NiFeCr(5)]₅/CoFe(1.5)/Dy($_{Dy}$)/ CoFe(1.5)/Cu(3.2)/CoFe(2)/FeMn(12)/Ta(6) от толщины слоя диспрозия.

ными, при увеличении t_{Dy} происходит возрастание ширины низкополевой петли гистерезиса. При этом смещение высокополевой петли гистерезиса от H = 0 уменьшается. Это вызвано возрастанием шероховатости межслойных границ во всех слоях СК, напыленных поверх слоя Dy [28] и ослаблением обменного взаимодействия между закрепленным и АФМ-слоем. Для всех образцов, содержащих Dy, величина максимального магнитосопротивления значительно меньше, чем при $t_{Dy} = 0$.

Оценка поля одноосной анизотропии (H_i) свободного была сделана по результатам измерения петель гистерезиса в поле, приложенном параллельно и перпендикулярно ОЛН. При $t_{Dy} = 0$, 1 и 10 нм получены величины $H_i \approx 70$, 200 и 500 Э.

Таким образом, напыленные на стеклянную подложку спиновые клапаны со слоем диспрозия обладают сочетанием слабого межслойного взаимодействия и сильной одноосной магнитной анизотропии, которая усиливается при возрастании *t*_{Dv}.

Магнитотранспортные и магнитоупругие свойства спиновых клапанов со слоями CoFe/Dy/CoFe

Эксперименты по исследованию изменения магниторезистивных свойств спиновых клапанов при деформации растяжения проводили на образцах, напыленных на PI-подложки. По сравнению с подложками из стекла полиимидная пленка имеет значительно большую шероховатость поверхности. Для уменьшения влияния шероховатости поверхности подложки на магниторезистивные характеристики были использованы составной буферный слой композиции [Ta(5)/(Ni₈₀Fe₂₀)₆₀Cr₄₀(5)]₅ и образцы меньших



Рис. 7. Полевые зависимости магнитосопротивления напыленных на стекло спиновых клапанов [Ta(5)/(NiFeCr(5)]₅/CoFe(1.5)/Dy(t_{Dy})/CoFe(1.5)/Cu(3.2)/CoFe(2)/FeMn(12)/Ta(6).

размеров — микрополоски [31]. Буферный слой, содержащий слои тантала и парамагнитного сплава (Ni₈₀Fe₂₀)₆₀Cr₄₀, не только сглаживает шероховатость подложки, уменьшая ферромагнитное неелевское взаимодействие между ФМ-слоями, но и способствует формированию в напыляемых на него слоях СоFе-текстуры (111) [32]. Тем не менее большая шероховатость поверхности PI подложек привела к возрастанию полей межслойного взаимодействия в напыленных на них спиновых клапанах до $H_j = 8-17$ Э, по сравнению с образцами, напыленными на стекло.

Были изготовлены и исследованы образцы с перпендикулярным и параллельным расположением ОЛН по отношению к длинной стороне микрополоски. Таким образом была реализована возможность двух вариантов приложения механических напряжений: **u** \perp ОЛН и **u** \parallel ОЛН.

На рис. 8 показаны полевые зависимости магнитосопротивления спинового клапана, измеренные при разном относительном удлинении є для перпендикулярного (рис. 8а) и параллельного (рис. 8б) расположения вектора деформации по отношению к ОЛН.

Будем интерпретировать наблюдаемые изменения формы магниторезистивной кривой как результат появления добавочной одноосной анизотропии, которая обусловлена магнитоупругим взаимодействием, а именно, положительным эффектом Виллари. Ось магнитоупругой анизотропии параллельна вектору деформации. Растяжение образца приводит к изменению соотношения между энергиями магнитоупругой и одноосной анизотропии. Отметим, что в результате прило-



Рис. 8. Полевые зависимости магнитосопротивления микрополоски (w = 20 мкм) спинового клапана [Ta(5)/NiFeCr(5)]₅/CoFe(1.5)/Dy(3)/CoFe(1.5)/Cu(3.2)/ CoFe(2)/FeMn (12)/Ta(6), измеренные в состоянии деформации растяжения при **u** \perp ОЛН (а) и **u** \parallel ОЛН (б). На вставках показано относительное расположение ОЛН и вектора деформации, а также схематичное изображение магнитной структуры интерфейса Со–Fe–Dy.

жения механического напряжения может изменяться угол раствора конуса β, в пределах которого ориентированы магнитные моменты Dy. В этом случае изменяется и магнитный момент свободного слоя.

В случае **u** ⊥ ОЛН происходят более существенные изменения формы низкополевой части магниторезистивной кривой чем при **u** || ОЛН. Похожий характер изменения магниторезистивных кривых получен другими авторами в работе [15].

Оценка константы

магнитоупругой анизотропии спинового клапана

На рис. 9 показано, как из полевых зависимостей магнитосопротивления СК в деформированном и недеформированном состояниях проводили оценку величин, необходимых для расчета константы магнитоупругой анизотропии.



Рис. 9. Полевые зависимости магнитосопротивления спиновых клапанов $[Ta(5)/(NiFeCr(5)]_5/CoFe(1.5)/Dy(1)/CoFe(1.5)/Cu(3.2)/CoFe(2)/FeMn(12)/Ta(6).$

Для характеристики гистерезисных свойств свободного слоя использовали величину H_c^{FL} , равную полной ширине на полувысоте низкополевой петли. В недеформированном состоянии низкополевая петля гистерезиса имеет прямоугольную форму. При деформации растяжения **u** \perp ОЛН петля становится наклонной, и максимальное магнитосопротивление ($MR_{\text{max}}\downarrow$) на нисходящей ветви, а именно, при изменении поля от +H до -H, меньше, чем на восходящей. В этом случае $H_c^{\text{FL}}(\varepsilon)$ оценивали как полную ширину на высоте 0.5 ($MR_{\text{max}}\downarrow$).

Воспользуемся моделью Стонера-Вольфарта и запишем свободную энергию слоя при деформации и \perp ОЛН как

$$F = K_i \sin^2 \theta + K_{\varepsilon} \sin^2 (\pi/2 - \theta) - -HM_{\varepsilon} \cos \theta - J \cos \phi,$$
(1)

где H — внешнее магнитное поле, θ — угол между намагниченностью свободного слоя и ОЛН, M_s намагниченность насыщения свободного слоя, K_i и K_{ε} — константы одноосной и магнитоупругой анизотропии, J — константа межслойного взаимодействия ферромагнитных слоев, φ — угол между намагниченностью свободного слоя и закрепленного.

Из условий минимума свободной энергии $dF/d\theta = 0$ и $d^2F/d\theta^2 > 0$ получаем выражение для ширины петли гистерезиса свободного слоя:

$$H_{\rm c}^{\rm FL} = 4\left(K_i - K_{\rm \epsilon}\right) / M_{\rm s} \,. \tag{2}$$

Используя (2), выражаем константу магнитоупругой анизотропии как

$$K_{\varepsilon} = M_{\rm s} \left(H_{\rm c}^{\rm FL} - H_{\rm c}^{\rm FL}(\varepsilon) \right) / 4, \qquad (3)$$



Рис. 10. Зависимости магнитоупругой константы от относительного удлинения микрополосок (w = 60 мкм) спиновых клапанов с разной толщиной слоя диспрозия, напыленных на PI подложку при **u** \perp ОЛН (*a*) и **u** \parallel ОЛН (δ).

где H_c^{FL} и $H_c^{\text{FL}}(\epsilon)$ — ширина петли гистерезиса свободного слоя в недеформированном и деформированном состояниях соответственно.

Для случая **u** || ОЛН свободная энергия запишется как:

$$F = K_i \sin^2 \theta + K_{\varepsilon} \sin^2 \theta - HM_s \cos \theta - J \cos \varphi, \quad (4)$$

что дает выражение для константы магнитоупругой анизотропии:

$$K_{\varepsilon} = M_{\rm s} \left(H_{\rm c}^{\rm FL}(\varepsilon) - H_{\rm c}^{\rm FL} \right) / 4.$$
 (5)

Аналогичные измерения и оценки константы магнитоупругой анизотропии были сделаны для CK композиции [Ta(5)/NiFeCr(5)]₂/CoFe(6)/Cu(4)/ CoFe(3.5)/FeMn(15)/Ta(6) без слоя диспрозия $(t_{\text{Dy}} = 0)$. Толщины слоев выбраны таким образом, чтобы характерные поля перемагничивания свободного слоя $H_j = 10$ Э и $H_c = 120$ Э в недеформированном состоянии близки к аналогичным полям для спиновых клапанов, со слоем диспрозия. На рис. 10 представлены некоторые из полученных зависимостей K_{ε} от относительного удлинения спиновых клапанов с различной толщиной слоя диспрозия.

Рассмотрим вначале результаты, полученные для растяжения спиновых клапанов при **u** \perp ОЛН (рис. 10a). На всех зависимостях $K_{\varepsilon}(\varepsilon)$ для СК с $t_{\text{Dy}} \leq 3$ нм при некоторой критической величине относительного удлинения (ε_{c}) имеется особенность, подобная локальному минимуму.

При растяжении образца и приближении є к єс константа магнитоупругой анизотропии перестает увеличиваться. При є > єс зависимость $K_{\varepsilon}(\varepsilon)$ близка к линейной и быстро возрастает. Величина є увеличивается с увеличением t_{Dy} . Для спиновых клапанов с $t_{Dy} = 7$ и 10 нм, по-видимому, величина є не была достигнута в исследуемом диапазоне деформаций. Для этих образцов отсутствует область линейного роста $K_{\varepsilon}(\varepsilon)$, которая была обнаружена для СК с $t_{Dy} \le 3$ нм при є > єс.

Возможно следующее объяснение различия в магнитоупругих свойствах клапанов с разной толщиной прослойки диспрозия. Причиной увеличения ε_c при возрастании t_{Dy} является усиление одноосной анизотропии, формирующейся при напылении, а также уменьшение эффективного модуля Юнга $E_{э\phi}$ всей наноструктуры. Модуль Юнга диспрозия $E_{Dy} = 61.4$ ГПа [33] гораздо меньше, чем у сплава СоFe с $E_{CoFe} \sim 200$ ГПа [34, 35]. Таким образом, при том же относительном удлинении подложки структура будет испытывать меньшее механическое напряжение. Запишем выражение для константы магнитоупругой анизотропии как

$$K_{\varepsilon} = \frac{3}{2} \lambda_s E_{\Im \Phi} \varepsilon, \qquad (6)$$

где $\lambda_{\rm s}$ — магнитострикция насыщения. С увеличением $t_{\rm Dy}$ эффективный модуль Юнга наноструктуры уменьшается и, соответственно, происходит уменьшение величины K_{ε} , что и наблюдается в наших экспериментах (рис. 10).

Принимая во внимание выражение (6), можно также предположить, что нелинейный характер $K_{\varepsilon}(\varepsilon)$ при $\varepsilon < \varepsilon_{c}$ связан с тем, что на этом начальном этапе деформации происходят изменения $E_{3\phi}$ или λ_{s} . Наиболее вероятным представляется изменение величины λ_{s} , обусловленное увеличением или уменьшением угла раствора конуса β , в пределах которого ориентированы магнитные моменты Dy в интерфейсах Co–Fe–Dy. Важно отметить, что для CK без диспрозия $K_{\varepsilon}(\varepsilon)$ монотонно возрастает и не имеет описанных выше особенностей.

Иной характер зависимостей $K_{\varepsilon}(\varepsilon)$ был получен при **u** || ОЛН (рис. 10б). В этом случае для всех исследованных образцов увеличение ε сопровождается монотонным возрастанием K_{ε} с последующим выходом на насыщение.

Изменение механизма перемагничивания спинового клапана при деформации растяжения

Для связи наблюдаемых вариаций формы низкополевой петли гистерезиса и константы анизотропии с изменениями механизмов перемагничивания воспользуемся диаграммами [11, 12], предсказывающими реализацию различных мод перемагничивания свободного слоя в зависимости от отношения H_i/H_a , величины угла θ между ООА и приложенным полем Н для случаев параллельного и перпендикулярного взаимного расположения ООА и ОЛН. Запишем выражение для поля межслойного взаимодействия и поля анизотропии как: $H_J = J/M_F D$ и $H_a = 2K/M_F$, где $M_F - M_F$ магнитный момент свободного слоя, *D* – толщина свободного слоя, К – константа анизотропии. В условиях деформации растяжения $K = K_i - K_{\epsilon}$ при $\mathbf{u} \perp OЛH$ и $K = K_i + K_s$ при $\mathbf{u} \parallel OЛH$, где K_i и K_s – константы одноосной анизотропии, наведенной при напылении в магнитном поле и анизотропии, возникающей благодаря эффекту Виллари.

Введем обозначение: $h_J = H_J/H_a = J/2KD$, которое определяется через экспериментально найденные значения полей и магнитные константы.

На диаграммах (рис. 11) показаны линии, разделяющие области реализации мод перемагничивания А, В и С в случае параллельного (рис. 116) и перпендикулярного (рис. 11в) взаимного расположения осей однонаправленной и одноосной анизотропии.

В наших экспериментах магнитное поле при измерении было приложено параллельно ООА и, следовательно, $\theta = 0$.

Рассмотрим изменение формы низкополевой петли гистерезиса для случая **и** ⊥ ОЛН. При нарастании механических напряжений K_E возрастает, соответственно, K уменьшается и h_J возрастает. Процесс можно разделить на 3 этапа. (I) С увеличением є петля гистерезиса остается вертикальной, но ширина ее уменьшается. Если при этом $h_I < 1$, то можно отнести этот этап к области А на диаграмме (рис. 11б). В этом случае перемагничивание происходит преимущественно за счет движения доменных стенок. На этапе (II) петля гистерезиса становится наклонной, а ширина ее увеличивается. Вероятно, на этом этапе $h_I > 1$, что соответствует области В на диаграмме (рис. 11б). Этот механизм перемагничивания сочетает смещение доменных стенок и когерентное вращение намагниченности. (III) При дальнейшем растяжении происходит резкое уменьшение ширины низкополевой петли и переход к безгистерезисному перемагничиванию свободного слоя. По-видимому, перемагничивание свободного слоя происходит путем когерентного вращения вектора намагниченности, что соответствует области C диаграммы. При $\theta = 0$ эта область реализуется только при перпендикуляр-



Рис. 11. Направление внешнего поля *H* и вектора деформации **u** по отношению к осям магнитной анизотропии и диаграммы с модами перемагничивания спинового клапана для случаев (а): $K_{\varepsilon} \leq K_{i}$ (б) и $K_{\varepsilon} > K_{i}$ (в).

ном взаимном расположении осей одноосной и однонаправленной анизотропии (рис. 11в). Таким образом, можно предположить, что на этапе (III) энергия магнитоупругой анизотропии превышает энергию анизотропии, наведенной при напылении спинового клапана и характеризуемой ОЛН. При перемагничивании теперь ведущую роль играет именно магнитоупругая анизотропия, ось которой параллельна **u** и перпендикулярна ОЛН и ООА, что и приводит к реализации безгистерезисной моды перемагничивания С.

При $t_{Dy} = 7$ и 10 нм в процессе изменения формы низкополевой петли гистерезиса наблюдали только этапы (I) и (II), а безгистерезисная мода перемагничивания не была достигнута. Как было показано, по мере увеличения t_{Dy} значительно усиливается наведенная при напылении в магнитном поле одноосная анизотропия и уменьшается модуль Юнга наноструктуры. Соответственно, K_{ε} не превышает K_i , и $h_J < 1$ во всем исследуемом диапазоне ε .

Переходя к рассмотрению случая **u** || ОЛН, отметим, что возрастание K_{ε} приводит к увеличению *K*. В результате отношение h_J уменьшается. Изменения формы магниторезистивной кривой можно разделить на 2 этапа: (I) с увеличением є низкополевая петля гистерезиса становится шире, и (II) ширина петли гистерезиса свободного слоя перестает изменяться, наблюдается подобие насыщения. Смены моды перемагничивания не происходит.



Рис. 12. Зависимость магнитосопротивления спинового клапана на нисходящей ветви петли гистерезиса (а) и его нормировка на максимальное магнитосопротивление при $\varepsilon = 0$ (б) от относительного удлинения в поле $H \sim 0.5$ Э для микрополоски w = 60 мкм.

Отметим, что свободный слой в исследуемых СК является составным, и, без сомнения, в интерфейсе Со-Fe-Dy имеется градиент концентрации Co, Fe и Dy. Величина и знак константы магнитострикции зависят от состава сплавов Со-Fe-Dy и CoFe [36-38]. В работе [39] показано, что константа магнитострикции сплава СоFe зависит от толщины слоя и подслоя ферромагнетика. Таким образом, в наших экспериментах возможно изменение угла β и величины магнитного момента свободного слоя при деформации, но сложно предсказать, как именно он изменяется. Тем не менее перечисленные выше факторы не мешают интерпретировать наблюдаемые при растяжении вариации формы магниторезистивной кривой как результат конкуренции между энергиями магнитоупругой и наведенной при напылении магнитной анизотропии и соответствующей смены механизма перемагничивания СК.

Изменение магнитосопротивления спиновых клапанов при деформации растяжения

Наибольшие изменения магнитосопротивления СК в процессе растяжения происходят при **u** \perp ОЛН. На рис. 12а показаны зависимости максимального магнитосопротивления СК от относительного удлинения в слабом магнитном поле 0.5 Э, которое близко к геомагнитному. Магнитосопротивление спиновых клапанов со слоем диспрозия толщиной менее 3 нм на начальном этапе растяжения остается неизменным вплоть до $\varepsilon = 4\%$. Для сравнения, в работе [16] для спиновых клапанов без прослойки диспрозия изменение магнитосопротивления при растяжении наблюдали уже при $\varepsilon = 0.4\%$.

Дальнейшее растяжение сопровождается резким уменьшением магнитосопротивления в 2 раза при возрастании є до 6.5% (рис. 12б). Это связано с изменением механизма перемагничивания свободного слоя. Магнитный момент М_{Е1} вблизи H = 0 ориентируется вдоль оси анизотропии, возникающей благодаря деформации и перпендикулярной ООА || ОЛН. В этом случае угол между Мр и М_{Е1} составляет не 180, а 90 градусов, и, соответственно, максимальное магнитосопротивление уменьшается в 2 раза. При большей толщине слоя $t_{\rm Dy} = 7$ и 10 нм практически отсутствует область начального растяжения, в которой магнитосопротивление в малых полях остается неизменным, и далее при увеличении є магнитосопротивление уменьшается менее резко.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования микроструктуры показали, что введение слоя диспрозия толщиной 1 нм в нижнюю часть слоистой структуры спинового клапана приводит к резкому снижению совершенства текстуры $\langle 111 \rangle$ в напыляемых на него слоях меди и сплава CoFe.

На основе анализа магнитных данных показано, что при номинальной толщине слоя диспрозия менее 3 нм в наноструктуре формируется преимущественно интерфейсный слой Co–Fe–Dy, а чистый диспрозий практически отсутствует.

Показано, что появление слоя диспрозия в спиновом клапане приводит к значительному изменению его магнитотранспортных свойств при комнатной температуре, соответствующей парамагнитному состоянию диспрозия. Наблюдаемые изменения: снижение максимального магнитосопротивления и изменение гистерезиса перемагничивания свободного слоя обусловлены не только деградацией текстуры (111), но, в основном, магнитными свойствами интерфейсной области Со–Fe–Dy.

При деформации растяжения спиновых клапанов, содержащих диспрозий в составе свободного слоя, значительные изменения формы низкополевой петли гистерезиса происходят при перпендикулярной ориентации вектора деформации по отношению к осям однонаправленной и одноосной анизотропии. Для спиновых клапанов с номинальной толщиной слоя диспрозия не более 3 нм максимальное магнитосопротивление остается практически неизменным вплоть до относительного удлинения эластичной полимерной подложки 4%. При больших величинах относительного удлинения усиление магнитоупругой анизотропии приводит к безгистерезисному перемагничиванию свободного слоя и реализации механизма когерентного вращения вектора намагниченности. Эти изменения сопровождаются двукратным уменьшением максимального магнитосопротивления.

Такие особенности магнитоупругих свойств спиновых клапанов со слоем диспрозия могут быть полезны для разработки эластичных магниточувствительных материалов, магниторезистивные характеристики которых не меняются при деформации растяжения, а также материалов, магнитосопротивление которых резко уменьшается при достижении некоторого порогового значения относительного удлинения.

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема "Спин", № 122021000036-3 и тема "Магнит", № 122021000034-9).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Ha M., Cañón Bermúdez G.S., Kosub T., Mönch I., Zabila Y., Oliveros E.S., Illing R., Wang Y., Fassbender J., Makarov D. Printable and Stretchable Giant Magnetoresistive Sensors for Highly Compliant and Skin-Conformal Electronics // Adv. Mater. 2021. V. 33. P. 2005521.
- Rivkin B., Becker C., Akbar F., Ravishankar R., Karnaushenko D.D., Naumann R., Mirhajivarzaneh A., Medina-Sánchez M., Karnaushenko D. and Schmidt O.G. Shape-Controlled Flexible Microelectronics Facilitated by Integrated Sensors and Conductive Polymer Actuators // Adv. Intell. Syst. 2021. V. 3. P. 2000238.
- Cañón Bermúdez G.S., Makarov D. Magnetosensitive E-Skins for Interactive Devices // Adv. Funct. Mater. 2021. V. 31. P. 2007788.
- Kai Wu, Denis Tonini, Shuang Liang, Renata Saha, Vinit Kumar Chugh, Jian-Ping Wang. Giant Magnetoresistance Biosensors in Biomedical Applications // ACS Appl. Materials & Interfaces. 2022. V. 14. P. 9945– 9969.
- Hawsawi M., Amara S., Mashraei Y., Almansouri A., Mohammad H., Sevilla G.T., Jakob G., Jaiswal S., Kläui M., Haneef A., Saoudi A., Hussain M., Kosel J. Flexible Magnetoresistive Sensors for Guiding Cardiac Catheters // IEEE Intern. Symposium on Medical Measurements and Applications. 2018. P. 1–5.
- Cardoso S., Leitao D.C., Dias T.M., Valadeiro J., Silva M.D., Chicharo A., Silverio V., Gaspar J., Freitas P.P. Challenges and trends in magnetic sensor integration with microfluidics for biomedical applications // J. Phys. D: Appl. Phys. 2017. V. 50. P. 213001.

- Carvalho M., Ribeiro P., Romão V., Cardoso S. Smart fingertip sensor for food quality control: Fruit maturity assessment with a magnetic device // J. Magn. Magn. Mater. 2021. V. 536. P. 168116.
- Cheng W., Zhou Z., Pan M., Yang H., Xie Y., Wang B., Zhan Q., Li R.-W. Stretchable spin valve with strain-engineered wrinkles grown on elastomeric polydimethylsiloxane // J. Phys. D: Appl. Phys. 2019. V. 52. P. 095003.
- Ferreira M.V., Mouro J., Silva M., Silva A., Cardoso S., Leitao D.C. Bringing flexibility to giant magnetoresistive sensors directly grown onto commercial polymeric foils // J. Magn. Magn. Mater. 2021. V. 538. P. 168153.
- Dieny B. and Speriosu V.S. and Parkin S.S.P., Gurney B.A., Wilhoit D.R., Mauri D. Giant magnetoresistive in soft ferromagnetic multilayers // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 1297–1300.
- King J.P., Chapman J.N., Kools J.C.S., Gillies M.F. On the free layer reversal mechanism of FeMn-biased spin-valves with parallel anisotropy // J. Phys. D: Appl. Phys. 1999. V. 32. P. 1087–1096.
- Labrune M., Kools J.C.S., Thiaville A. Magnetization rotation in spin-valve multilayers // J. Magn. Magn. Mater. 1997. V. 171. P. 1–15.
- Жуков Д.А., Крикунов А.И., Амеличев В.В., Костюк Д.В., Касаткин С.И. магнитострикционные наноструктуры с гигантским магниторезистивным эффектом для устройств магнитной стрейнтроники // Изв. РАН. Сер. Физическая. 2020. Т. 84. № 5. С. 730–732.
- Ota S., Ando A., Chiba D. A flexible giant magnetoresistive device for sensing strain direction // Nat. Electron. 2018. V. 1. P. 124–129.
- Matsumoto H., Ota S., Ando A., Chiba D. A flexible exchange-biased spin valve for sensing strain direction // Appl. Phys. Lett. 2019. V. 114. P. 132401.
- Saito K., Imai A., Ota S., Koyama T., Ando A., Chiba D. CoFeB/MgO-based magnetic tunnel junctions for film-type strain gauge // Appl. Phys. Lett. 2022. V. 120. P. 072407.
- Наумова Л.И., Миляев М.А., Заворницын Р.С., Криницина Т.П., Чернышова Т.А., Проглядо В.В., Устинов В.В. Магниторезистивные свойства псевдо спиновых клапанов CoFe/Cu/CoFe/Dy в условиях интердиффузии слоев диспрозия и ферромагнитного сплава CoFe // ФММ. 2019. Т. 120. № 5. С. 464–470.
- Наумова Л.И., Миляев М.А., Заворницын Р.С., Макарова М.В., Проглядо В.В., Устинов В.В., Русалина А.С. Магнитотрансопртные свойства спиновых клапанов на основе обменно-связанных нанослоев гелимагнетика Dy и ферромагнетика Co₉₀Fe₁₀ // ФММ. 2022. Т. 123. № 10. С. 1011–1019.
- Bhatt R. C., Ye L.-X., Luo Y.-C., Wu T-H. Study of RE_xFe_{100 x} (RE = Tb, Dy, Gd) ferrimagnets for SOT application // J. Appl. Phys. 2019. V. 125. P. 113902.
- Bhattacharjee A. K., Jullien R., Zuckermann M.J. Magnetic properties of amorphous metallic alloys containing rare earth impurities // J. Phys. F: Met. Phys. 1977. V. 7. P. 393–399.

ФИЗИКА МЕТАЛЛОВ И МЕТАЛЛОВЕДЕНИЕ том 124 № 3 2023

- Shan Z.C., Sellmyer D.J. Magnetism of rare-earth-transition metal nanoscale multilayers // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. № 16. P. 433–445.
- Raasch D. Recording characteristics of Dy-Fe-Co based magneto-optical disks in comparison to other MO materials // IEEE Trans. Magn. 1993. V. 29. № 1. P. 34-40.
- Hansen P., Klahn S., Clausen C., Much G., Witter K. Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Dy, Ho, Fe, Co // J. Appl. Phys. 1990. V. 69. P. 3194–3207.
- 24. *Белов К.П.* Магнитострикционные явления. Материалы с гигантской магнитострикцией // Соровский образовательный журн. 1998. № 3. С. 112–117.
- Nakagawa S., Yamada M., Tokuriki N. Stress Induced Enhancement of Magnetization Reversal Process of DyFeCo Films With Perpendicular Magnetization // IEEE Trans. Magn. 2006. V. 42. P. 3773–3775.
- Saito N., Yamada M., Nakagawa S. Improvement of stress-induced magnetization reversal process of DyFeCo thin films // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. P. 07A706.
- Горелик С.С., Расторгуев Л.Н., Скаков Ю.А. Рентгенографический и электроннооптический анализ // Металлургия. 1970. С. 209–213.
- 28. Заворницын Р.С., Наумова Л.И., Миляев М.А., Макарова М.В., Криницина Т. П., Проглядо В.В., Устинов В.В. Неколлинеарное магнитное упорядочение в слое диспрозия и магнитотранспортные свойства спинового клапана, содержащего структуру CoFe/Dy/CoFe // ФММ. 2020. Т. 121. № 7. С. 688–695.
- Svalov A.V., Kurlyandskaya G.V., Vas'kovskiy V.O. Thermo-sensitive spin valve based on layered artificial ferrimagnet // Appl. Phys. Lett. 2016. V. 108. P. 063504(1–4).
- 30. Jerome R., Valet T., Galtier P. Correlation between magnetic and structural properties of Ni₈₀Fe₂₀ sputtered

thin films deposited on Cr and Ta buffer layers // IEEE Trans. Magn. 1994. V. 30. P. 4878–4880.

- Naumova L.I., Zavornitsyn R.S., Milyaev M.A., Bebenin N.G., Pavlova A.Y., Makarova M.V., Maksimova I.K., Proglyado V.V., Zakharov A.A., Ustinov V.V. Bending sensor based on flexible spin valve // Chinese Phys. B. 2022.
- Milyaev M., Naumova L., Proglyado V., Krinitsina T., Bannikova N., Ustinov V. High GMR Effect and Perfect Microstructure in CoFe/Cu Multilayers// IEEE Trans. Magn. 2019. V. 55. P. 2300904.
- Gschneidner K.A. Physical properties of the rare earth metals. Bulletin of Alloy Phase Diagrams // Bulletin of alloy phase diagrams. 1990. V. 11. P. 216–224.
- Belousov O.K., Palii N.A. Concentration and temperature dependences of the elastic properties of quenched Fe-Co and FeCo-2V alloys // Russ. Metall. 2009. P. 41-49.
- Vas'ko V.A., Rantschler J.O., Kief M.T. Structure, Stress, and Magnetic Properties of High Saturation Magnetization Films of FeCo // IEEE Trans. Magn. 2004. V. 40. P. 2335–2337.
- Lü R., Hashimoto T., Toriyama T., Funayama T., Sahashi M., Tang Y. Co Substitution Effect on Magnetic and Magnetostrictive Properties of DyFe₂ // Jpn. J. Appl. Phys. 1995. V. 34. P. 1848–1850.
- Clark A.E., Abbundi R., Savage H.T., McMasters O.D. Magnetostriction of rare earth-Fe₂ laves phase compounds // Physica B+C. 1977. V. 86–88. P. 73–74.
- Pfeifer F, Radeloff C. Soft magnetic Ni–Fe and Co–Fe alloys—some physical and metallurgical aspects // J. Magn. Magn. Mater. 1980. V. 19. P. 190–207.
- Fukuzawa H., Kamiguchi Y., Koi K., Iwasaki H., Sahashi M. Saturation magnetostriction of an ultrathin CoFe freelayer on double-layered underlayers // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. P. 3120–3124.