

УДК 537.622

СТРУКТУРА И МАГНЕТИЗМ В МНОГОСЛОЙНЫХ НАНОСИСТЕМАХ Fe/MgO/Cr/MgO/Fe

© 2021 г. Е. М. Якунина^{a, *}, Е. А. Кравцов^{a, b, **}, Ю. Н. Хайдуков^{c, d},
Н. О. Антропов^{a, b}, В. В. Проглядо^a

^aИнститут физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, 620108 Россия

^bУральский федеральный университет, Екатеринбург, 620075 Россия

^cMax-Planck Institute for Solid State Research, Штутгарт, Германия

^dMax Planck Society Outstation at the FRM-II, Гархинг, Германия

*e-mail: eyakuninaart@gmail.com

**e-mail: kravtsov@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 23.12.2020 г.

После доработки 25.01.2021 г.

Принята к публикации 28.01.2021 г.

Слоистые наноструктуры Fe/MgO/Cr/MgO/Fe – искусственный ферромагнитный материал, в котором обменное взаимодействие магнитных моментов слоев Fe через промежуточные диэлектрические и металлические слои может приводить к магнитным конфигурациям, не реализующимся в хорошо изученных системах Fe/MgO/Fe и Fe/Cr/Fe. Исследована корреляция структурных и магнитных свойств слоистых наногетероструктур Fe(10 нм)/MgO(1.5 нм)/Cr(*t*)/MgO(1.5 нм)/Fe(7 нм) (*t* = 0.9 и 1.8 нм). Данные рентгеновской дифрактометрии и рефлектометрии высокого разрешения подтвердили формирование эпитаксиальной кристаллической структуры и выявили ее слоистый характер с резкими межслойными границами. Вибрационная магнитометрия не выявила существенных различий в петлях гистерезиса, которые имеют характерную ступенчатую форму. Рефлектометрия поляризованных нейтронов позволила установить, что процессы перемагничивания в образцах происходят различным образом на уровне отдельных слоев Fe. В образце с прослойками Cr толщиной 0.9 нм слои Fe связаны посредством обменного взаимодействия через прослойку MgO/Cr/MgO, и их вращение с приложением магнитного поля скоррелировано. В образце с прослойкой Cr толщиной 1.8 нм обменное взаимодействие между слоями Fe отсутствует, и они перемагничиваются независимо друг от друга. Установлено, что перемагничивание систем Fe/MgO/Cr/MgO/Fe характеризуется промежуточным состоянием, которым можно управлять с помощью небольшого внешнего поля напряженностью несколько десятков эрстед и изменением ориентации образца, а также варьируя толщину слоя MgO.

Ключевые слова: слоистые магнитные наноструктуры, магнитное упорядочение, эффект гигантского туннельного магнитосопротивления, магнитные многослойные материалы, спин-зависимое рассеяние электронов, обменная связь.

DOI: 10.31857/S1028096021080185

ВВЕДЕНИЕ

Эффект гигантского магнитосопротивления – явление, возникающее в магнитных многослойных материалах, которое представляет большое практическое значение для их применения в качестве элементов устройств наноспинтроники [1]. Мультислой Fe/Cr – это классическая система, демонстрирующая эффект гигантского магнитосопротивления [2, 3] за счет спин-зависимого рассеяния электронов и осциллирующего обменного взаимодействия магнитных моментов Fe, разделенных тонким слоем Cr. Другой технологически важной системой являются наногетеро-

структуры Fe/MgO/Fe, демонстрирующие гигантское туннельное магнитосопротивление за счет спин-зависимого туннелирования электронов через слой диэлектрика MgO [4, 5]. Fe/MgO/Cr/MgO/Fe – это новая система, в которой межслойная связь магнитных моментов Fe обеспечивается посредством тонких диэлектрических и металлических слоев. Существует всего несколько публикаций по системам Fe/MgO/Cr [6, 7], т.е. многослойные структуры, в которых к границе раздела Fe/Cr добавлен слой диэлектрика, изучены слабо. На данный момент неизвестно, как магнитные моменты Fe и Cr будут взаимодей-

Таблица 1. Структурные параметры образца Fe(10 нм)/MgO(1.5 нм)/Cr(0.9 нм)/MgO(1.5 нм)/Fe(7 нм), полученные после фитинга данных рентгеновской рефлектометрии

Материал слоя	Толщина слоя, нм	Межслойная шероховатость, нм	Плотность, г/см ³
Fe	9.4 ± 0.1	0.0008	9.3 ± 2
MgO	1.7 ± 0.1	0.002	4.2 ± 2
Cr	0.56 ± 0.1	7.8 ± 2	7.8 ± 2
MgO	2.4 ± 0.1	0.0004	1.8
Fe	6.3 ± 0.05	0.33	7.4 ± 3
Ta	44.4 ± 0.04	0.0002	18.4 ± 7
Ta ₂ O ₅	2.4 ± 0.3	0.0002	7.8 ± 1.5

ствовать через тонкую прослойку MgO и какие эффекты могут быть этим вызваны. Очень важно понимать микроскопическую картину перемагничивания в данных системах в зависимости от свойств разделяющих слоев MgO и Cr. Настоящее исследование направлено на создание многослойных наногетероструктур Fe/MgO/Cr/MgO/Fe и получение профилей намагничивания с разрешением на уровне монослоев.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Слоистые наногетероструктуры Fe/MgO/Cr/MgO/Fe были синтезированы методом высоковакуумного магнетронного напыления на монокристаллические подложки MgO(100) без какого-либо буферного слоя. Для защиты от окисления готовые структуры покрывали слоем Ta. К слоям MgO в процессе роста была применена специальная процедура отжига [8] с целью улучшения качества слоистой и кристаллической структуры MgO. Согласно предыдущим исследованиям [9, 10] отжиг во время роста положительно влияет на формирование кристаллической структуры MgO. Дальнейшие исследования были проведены на двух образцах: Fe(10 нм)/MgO(1.5 нм)/Cr(*t*)/MgO(1.5 нм)/Fe(7 нм)/Ta(5 нм), *t* = 0.9 нм (далее образец 1) и *t* = 1.8 нм (далее образец 2).

Структурную характеризацию исследуемых образцов осуществляли методами рентгеновской рефлектометрии высокого разрешения и рентгеновской дифрактометрии. Рентгеновские измерения были выполнены на дифрактометре Empyrean PANalytical с использованием CoK_α-излучения в геометрии параллельного пучка. Параллельный пучок сформирован с помощью рентгеновского зеркала W/Si, установленного на первичном пучке, и параллельного пластинчатого коллиматора,

и плоского графитового монохроматора, установленных на вторичном пучке. Щель для падающего луча составляла 0.05 мм, для дифрагированного луча – 0.1 мм.

Анализ рентгеновских данных проводили с помощью коммерческих программ PANalytical X'Pert Reflectometry и X'Pert Epitaxy. Магнитные свойства образцов исследовали методом вибрационной магнитометрии. Профили плотности намагниченности с послойным разрешением были определены методом рефлектометрии поляризованных нейтронов на установке NREX на исследовательском реакторе FRM2 (Мюнхен, Германия). Нейтронные измерения проводили при фиксированной длине волны нейтронов 0.43 нм. Поляризация падающего пучка $P_p > 99.99\%$. Анализ поляризации пучка после рассеяния проводили с помощью анализатора поляризации с эффективностью $P_a = 99.1\%$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Толщину слоев и среднеквадратичную шероховатость границы раздела определяли методом рефлектометрии высокого разрешения. Установлено, что структуры обоих образцов идентичны. Рефлектометрическая кривая для образца 1 и кривая наилучшего соответствия модели показаны на рис. 1. Соответствующие параметры модельной кривой приведены в табл. 1. Отметим, что толщины слоев близки к номинальным, формируется слоистая структура с четкими границами раздела во всех слоях, за исключением слоя Cr, у которого наблюдается шероховатость примерно два монослоя.

Кристаллическую структуру слоев образцов определяли методом рентгеновской дифракции. Дифрактограмма образца 1 в геометрии $\theta-2\theta$ по-

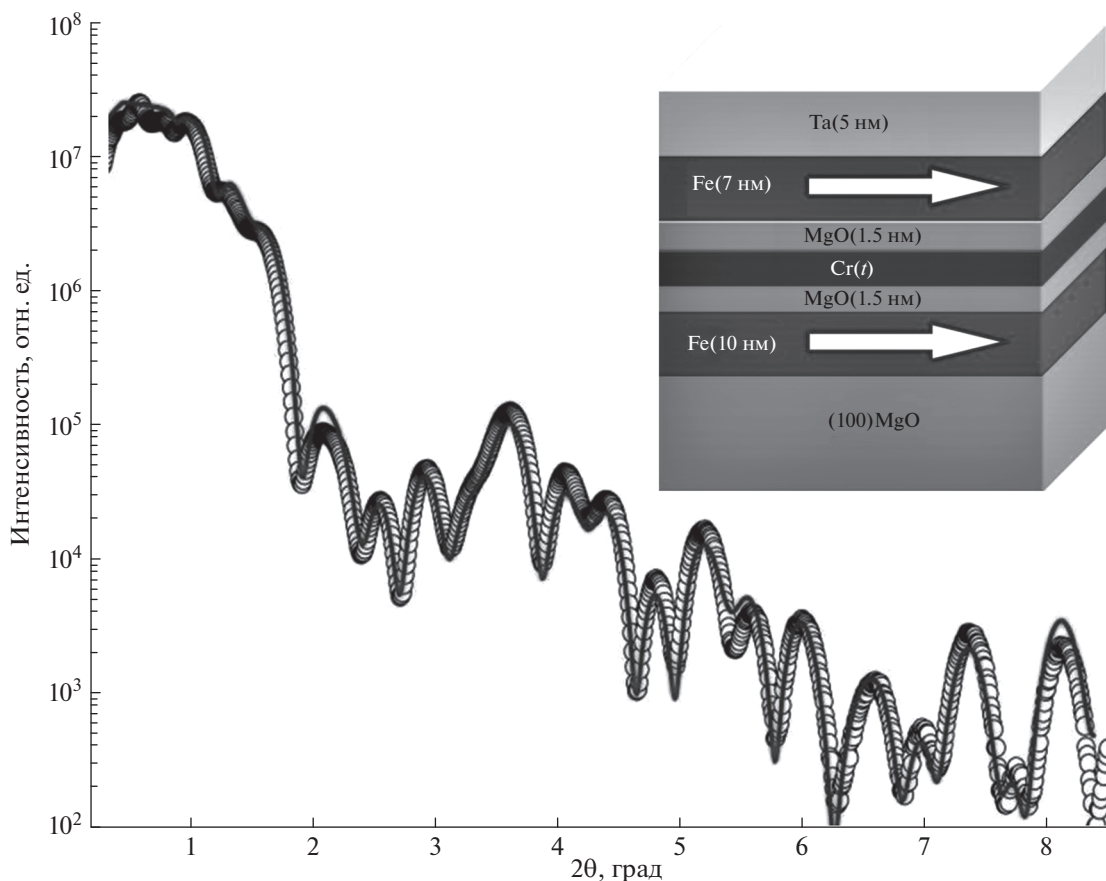


Рис. 1. Экспериментальная рентгеновская рефлектограмма образца 1 (символы) и модельная кривая (линия). На вставке приведена схематическая структура исследуемого образца с параллельным упорядочением магнитных моментов в слоях железа.

казана на рис. 2. На ней четко видны пики, соответствующие брэгговским отражениям 002 MgO, 004 MgO и 002 Fe. Эти пики свидетельствуют о наличии выраженной текстуры [001] Fe и [001] MgO в направлении роста образца.

Двумерная дифракционная карта образца 1, измеренная вблизи брэгговских пиков Fe и MgO, приведена на рис. 3. Анализ 2D данных структуры с помощью программы эпитаксии X'Pert дал информацию об эпитаксиальных соотношениях Fe–MgO перпендикулярно и параллельно плоскости границы раздела. Данный анализ показал, что значения постоянных решетки Fe оказались очень близкими к табличным. Внутри слоя Fe наблюдаются умеренная деформация и тетрагональные искажения из-за идеального согласования кристаллических решеток. Постоянные решетки Fe: $a = b = 0.298$ нм, $c = 0.286$ нм. Степень мозаичности составляет 2.1° , а длина латеральной корреляции 33.6 нм. Таким образом, в образцах формируется эпитаксиальная кристаллическая

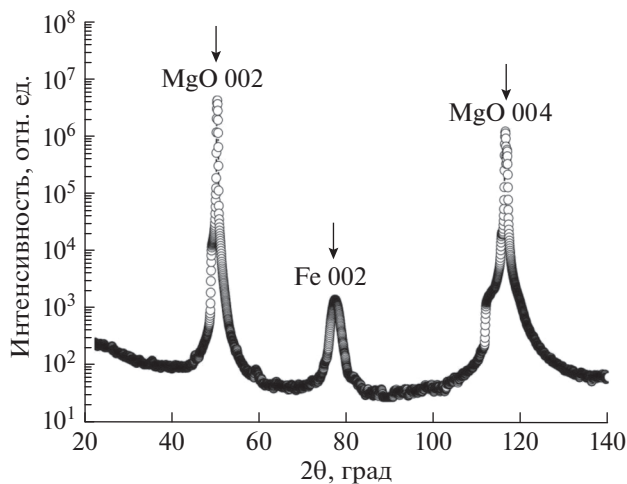


Рис. 2. Рентгеновская дифрактограмма образца 1 с четко определенными структурными пиками, соответствующими брэгговским отражениям 002 MgO, 004 MgO и 002 Fe, свидетельствующая о выраженной текстуре [001] Fe и [001] MgO вдоль направления роста образца.

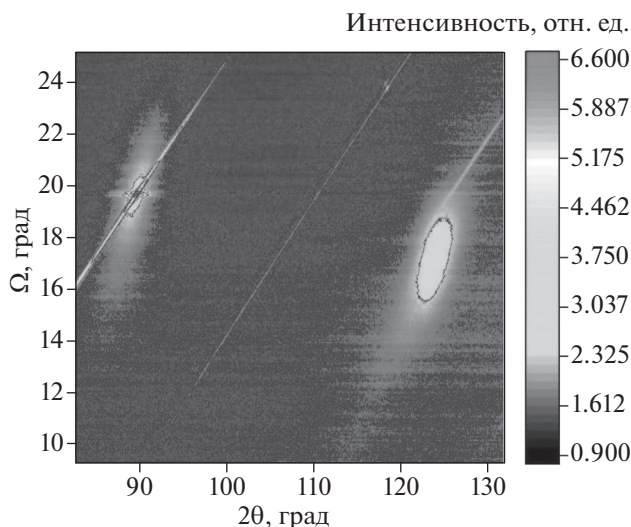


Рис. 3. Двумерная дифракционная карта высокого разрешения образца 1, измеренная вблизи брэгговских пиков Fe и MgO.

структура слоев с небольшими искажениями решетки.

Макроскопические магнитные свойства изучали методом вибрационной магнитометрии. На рис. 4 показаны петли гистерезиса для обоих образцов, измеренные при трех различных ориентациях внешнего магнитного поля относительно оси легкого намагничивания [100] Fe. Как видно из приведенного графика, петли гистерезиса имеют особенности, а именно плато около значений магнитного поля $H = 15$ и 40 Э. Возможно, в этих полях магнитные моменты слоев Fe направлены вдоль оси легкого намагничивания, и неясно, их когерентное вращение происходит вместе или по отдельности. Такое поведение намагниченности наблюдалось в обоих образцах.

Чтобы получить профили намагниченности с разрешением по глубине слоев при указанных значениях магнитного поля, были проведены эксперименты с поляризованными нейтронами. На рис. 5 показаны рефлектометрические кривые обоих образцов, измеренные при $H = 15$ и 40 Э после намагничивания в отрицательном поле $H = -4.5$ кЭ. Во время эксперимента поле прикладывали параллельно направлению [100] подложки MgO. На рис. 5а изображены кривые спин-поляризованного отражения для образца 1, измеренные при $H = 15$ Э. Кривые отражения без переверота спина R^{++} и R^{--} характеризуются полным отражением ниже критического края с $Q_{\text{crit}} = 0.16 \text{ nm}^{-1}$ и интерференционными колебаниями выше Q_{crit} . Кривые разделены, что свидетельствует о наличии в образце одного магнитного

момента, который коллинеарен \mathbf{H} . Отметим, однако, что расщепление кривых при малых значениях Q , близких к Q_{crit} , довольно незначительно. В дополнение к кривым отражения без переверота спина в эксперименте наблюдается сильное рассеяние с переверотом спина с пиком при $Q = Q_{\text{crit}}$ с амплитудой порядка 20%. Наличие такого рассеяния говорит о том, что в системе существует неколлинеарный магнитный момент \mathbf{H} . Экспериментальные данные были подогнаны к модельным кривым с использованием известного суперматричного подхода [11]. Некоторое различие между экспериментальными и теоретическими кривыми (рис. 5в) в области малых значений коэффициента отражения объясняется значительным вкладом фона в этой области. При подгонке варьировали намагниченность слоев Fe (7 нм) и Fe (10 нм) ($M1$ и $M2$) и углы между векторами намагниченности и внешним полем ($\alpha1$ и $\alpha2$). Наилучшим образом подходят значения $\alpha1 = 54^\circ$ и $\alpha2 = 154^\circ$, чувствительность определения углов около 5° . Соответствующая магнитная конфигурация показана на вставке рис. 5а. Видно, что верхний слой железа уже “перевернулся” и соответствует положительной легкой оси [110], а нижний все еще отвечает отрицательному направлению $[\bar{1}10]$. Коллинеарные компоненты магнитных моментов слоев Fe направлены антипараллельно друг другу, так что их сумма близка к нулю [12, 13]. Это согласуется с данными вибрационной магнитометрии, а также объясняет относительно небольшую разницу кривых в случае отражения без переверота спина вблизи Q_{crit} . Эта разница значительно увеличивается с увеличением поля до $H = 40$ Э (рис. 5б). Однако с увеличением магнитного поля рассеяние с переверотом спина практически не меняется. Количественно это удалось описать, “перевернув” нижний слой Fe в направлении положительной оси легкого намагничивания [110]. Это не меняет неколлинеарный момент, но делает коллинеарные моменты параллельными.

Кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов образца 2 при $H = 15$ Э (рис. 5в) аналогичны кривым образца 1, измеренным в том же поле, и могут быть описаны аналогичным магнитным состоянием. Кроме того, когда поле было увеличено до $H = 40$ Э, кривые отражения без переверота спина вели себя аналогично кривым образца 1 — их расщепление увеличилось. Это означает, что коллинеарные компоненты ведут себя в образцах одинаково. Однако наблюдается сильная разница при рассеянии с переверотом спина. Пик сместился от Q_{crit} к более высокому значе-

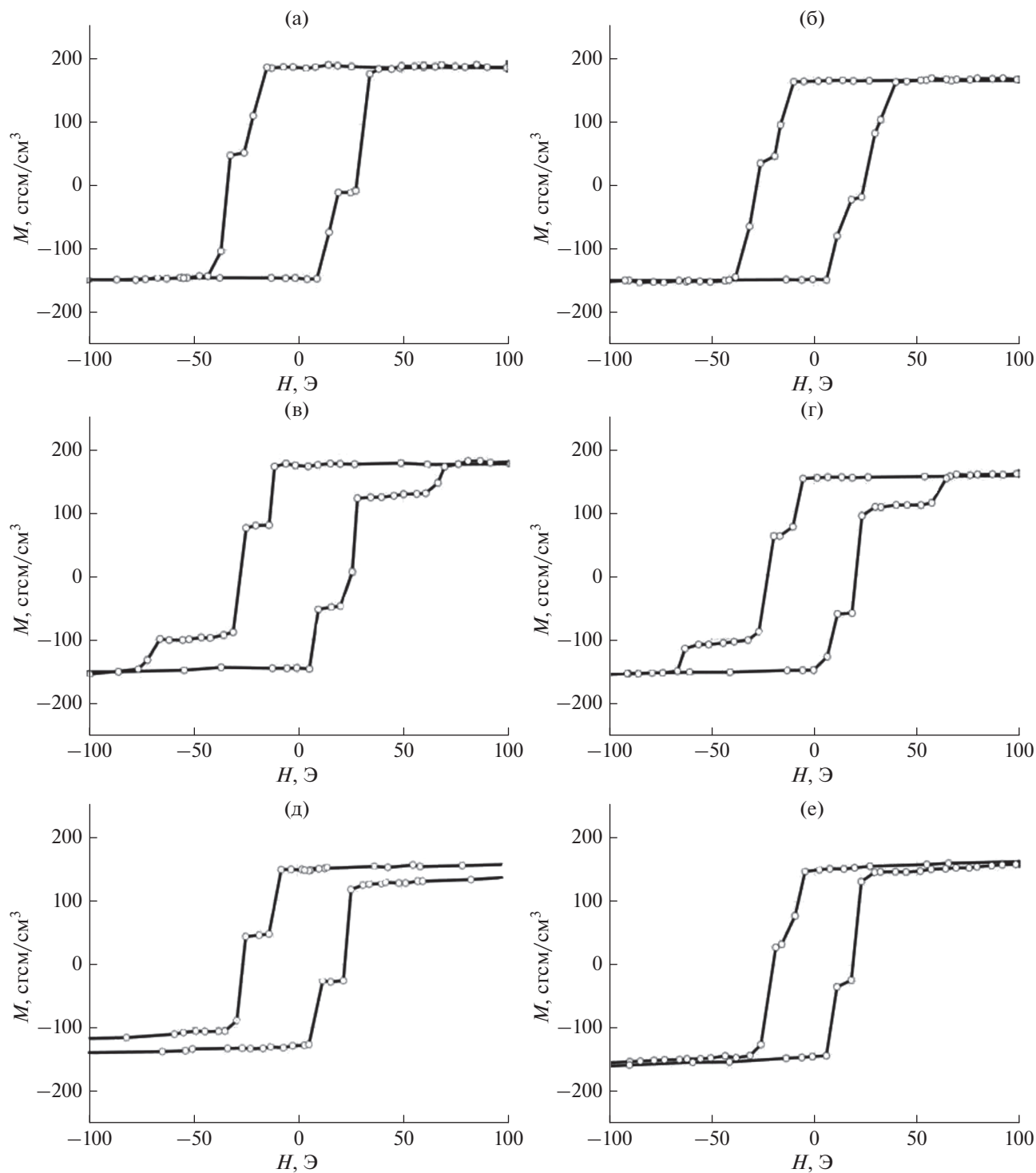


Рис. 4. Петли магнитного гистерезиса обоих образцов, измеренные для трех различных ориентаций внешнего магнитного поля относительно оси легкого намагничивания $[100]$ Fe: а, в, д – кривые намагничивания образца 1, измеренные при приложении магнитного поля под углом 0° , 30° и 45° соответственно; б, г, е – аналогичные данные для образца 2.

нию $Q = 0.26 \text{ нм}^{-1}$, т.е. неколлинеарная конфигурация образца 2 при $H = 40 \text{ Э}$ отличается от образца 1. С помощью подгонки установлено, что верхний и нижний слои перевернуты в направлениях

$[\bar{1}10]$ и $[110]$ соответственно. Остальные данные были подогнаны аналогичным образом. Соответствующая магнитная конфигурация показана на рис. 4.

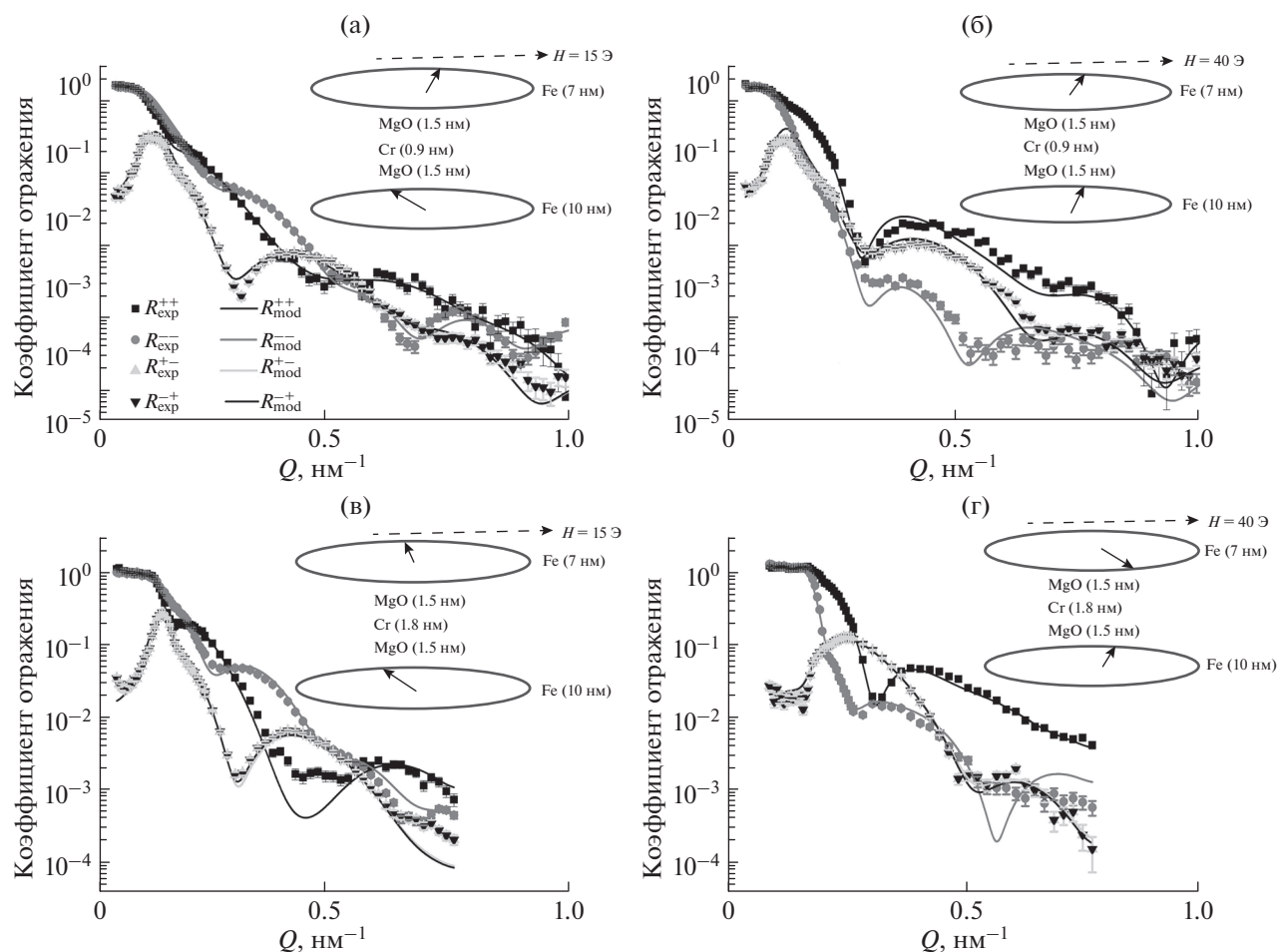


Рис. 5. Экспериментальные кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов (символы) и результаты подгонки (линии) для образцов 1 (а, б) и 2 (в, г), измеренные в магнитном поле 15 (а, в) и 40 Э (б, г). На вставках показано направление магнитных моментов в слоях, определенное в результате подгонки экспериментальных данных к модели.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Были исследованы структурные и магнитные свойства слоистых наногетероструктур Fe(10 нм)/MgO(1.5 нм)/Cr(*t*)/MgO(1.5 нм)/Fe(7 нм) (*t* = 0.9 и 1.8 нм). Рентгеновские методы подтвердили формирование эпитаксиальной кристаллической структуры с ориентацией MgO[001]||Fe[001]||Cr[001] вдоль нормали к образцу, а также наличие хорошо определенной слоистой структуры с резкими межслойными границами [14].

Магнитометрические исследования не выявили существенных различий в петлях гистерезиса обоих образцов, которые имеют характерную ступенчатую форму. Методом рефлектометрии поляризованных нейтронов установлено, что процессы перемагничивания в образцах происходят различным образом на уровне отдельных слоев Fe. В образце с прослойками Cr толщиной 0.9 нм слой Fe связан посредством обменного взаимо-

действия через прослойку MgO/Cr/MgO, и их вращение с приложением магнитного поля скоррелировано. В образце с прослойкой Cr толщиной 1.8 нм между слоями Fe нет обменного взаимодействия, и они перемагничиваются независимо друг от друга. Установлено, что перемагничивание систем Fe/MgO/Cr/MgO/Fe характеризуется промежуточным состоянием, которым можно управлять с помощью небольшого внешнего поля напряженностью несколько десятков эрстед и изменением ориентации образца, а также варьируя толщину слоя MgO. Проведенное исследование может быть полезно для создания устройств спинтроники [15] для работы при комнатной температуре, а также при низких температурах, в сверхпроводящих спин-вентильных структурах, где требуется неколлинеарность для генерации спинового триплетного конденсата.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ennen I., Kappe D., Rempel T. et al.* // *Sensors*. 2016. V. 16. P. 904. <https://doi.org/10.3390/s16060904>
2. *Baibich M.N., Broto J.M., Fert A. et al.* // *Phys. Rev. Lett.* 1988. V. 61. P. 2472. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.61.2472>
3. *Binasch G., Grunberg P., Saurenbach F., Zinn W.* // *Phys. Rev. B*. 1989. V. 39. P. 4828. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.39.4828>
4. Якунина Е.М., Боднарчук В.И., Проглядо В.В. и др. // Поверхность. Рентген-, синхротрон. и нейтрон. исслед. 2014. № 1. С. 30. <https://doi.org/10.7868/S0207352814100205>
5. *Halley D., Majjad H., Bowen M. et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 2008. V. 92. P. 212115. <https://doi.org/10.1063/1.29386966>
6. *Parkin S.S.P., Kaiser C., Panchula A. et al.* // *Nature Mater.* 2004. V. 3. P. 862. <https://doi.org/10.1038/nmat1256>
7. *Kozioł-Rachwał A., Nozaki T., Zayets V. et al.* // *J. Appl. Phys.* 2016. V. 120. P. 085303. <https://doi.org/10.1063/1.4961203>
8. *Yuasa S., Nagahama T., Fukushima A. et al.* // *Nature Mater.* 2004. V. 3. P. 868. <https://doi.org/10.1038/nmat1257>
9. *Yuasa S., Djayaprawira D.D.* // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2000. V. 40. P. 337. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/21/R01>
10. *Hayakawa J., Lee M., Ikeda S. et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 2006. V. 89. P. 232510. <https://doi.org/10.1063/1.2402904>
11. *Rühm A., Toperverg B., Dosch H.* // *Phys. Rev. B*. 1999. V. 60. P. 16073. <https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.60.16073>
12. *Młyńczak E., Freindl K., Spiridis N. et al.* // *J. Appl. Phys.* 2013. V. 113. P. 024320. <https://doi.org/10.1063/1.4775707>
13. *Jia X., Xia K., Bauer G.E.W.* // *Phys. Rev. Lett.* 2011. V. 107. P. 176603. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.176603>
14. *Jai E., Kortright J.B., Chase T. et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 2015. V. 107. P. 092404. <https://doi.org/10.1063/1.4929990>
15. *Seifu D.* // *Nanowires – Synthesis, Properties and Applications*, 2018. <https://doi.org/10.5772/intechopen.79819>

Structure and Magnetism in Multilayer Fe/MgO/Cr/MgO/Fe Nanosystems

E. M. Yakunina^{1,*}, E. A. Kravtsov^{1,2,**}, Yu. N. Khaydukov^{3,4}, N. O. Antropov^{1,2}, V. V. Proglyado¹

¹*Institute of Metal Physics, Ekaterinburg, 620108 Russia*

²*Ural Federal University, Ekaterinburg, 620075 Russia*

³*Max-Planck Institute for Solid State Research, Stuttgart, Germany*

⁴*Max Planck Society Outstation at the FRM-II, Garching, Germany*

*e-mail: eyakuninaart@gmail.com

**e-mail: kravtsov@imp.uran.ru

Layered Fe/MgO/Cr/MgO/Fe nanostructures are an artificial ferromagnetic material in which the exchange interaction of magnetic moments of Fe layers through intermediate dielectric and metal layers can lead to magnetic configurations that are not realized in the well-studied Fe/MgO/Fe and Fe/Cr/Fe systems. The correlation between the structural and magnetic properties of layered Fe(10 nm)/MgO(1.5 nm)/Cr(*t*)/MgO(1.5 nm)/Fe(7 nm) (*t* = 0.9 and 1.8 nm) nanoheterostructures was studied. X-ray diffractometry and high-resolution reflectometry data confirmed the formation of an epitaxial crystal structure and revealed its well-defined layered nature with sharp interlayer boundaries. Vibration magnetometry did not reveal significant differences in the hysteresis loops of a characteristic stepped shape. Reflectometry of polarized neutrons made it possible to establish that the processes of magnetization reversal in these samples occurred in different ways at the level of individual Fe layers. In the sample with a 0.9 nm thick Cr interlayer, the Fe layers were exchange-coupled through the MgO/Cr/MgO interlayer, and their rotation was correlated with the application of a magnetic field. In the sample with a 1.8 nm thick Cr interlayer, the Fe layers were not exchange-coupled and magnetized independently of each other. It was found that the magnetization reversal of the Fe/MgO/Cr/MgO/Fe systems was characterized by an intermediate state, which could be controlled using a small external field of several tens of oersted and a change in the orientation of the sample, as well as by varying the thickness of the MgO layer.

Keywords: layered magnetic nanostructures, magnetic ordering, giant tunneling magnetoresistance effect, magnetic multilayer materials, spin-dependent electron scattering, exchange coupling.