

05,13

## Синтез, структура и магнитные свойства многослойных наногетероструктур Fe|MgO|Cr|MgO|Fe

© Е.М. Якунина<sup>1</sup>, Е.А. Кравцов<sup>1,2</sup>, Yu.N. Khaydukov<sup>3,4</sup>, Н.О. Антропов<sup>1,2</sup>, В.В. Проглядо<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, Россия

<sup>2</sup> Уральский федеральный университет, Екатеринбург, Россия

<sup>3</sup> Институт исследований твердого тела им. Макса Планка, Heisenbergstraße 1, Штутгарт, 70569, Германия

<sup>4</sup> Общество научных исследований им. Макса Планка на ядерном реакторе FRM-II, Lichtenbergstraße 1, Гархинг-бай-Мюнхен, 85748, Германия

E-mail: eyakuninaart@gmail.com

Поступила в Редакцию 9 апреля 2021 г.

В окончательной редакции 9 апреля 2021 г.

Принята к публикации 19 апреля 2021 г.

Слоистые наногетероструктуры 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. В настоящей работе исследованы корреляции структурных и магнитных свойств слоистых наногетероструктур Fe(10 nm)|MgO(1.5 nm)|Cr(*t* nm)|MgO(1.5 nm)|Fe(7 nm) (толщина *t* = 0.9 и 1.8 nm). Структурные исследования, выполненные с помощью рентгеновской дифрактометрии и рефлектометрии высокого разрешения, подтвердили формирование текстурированной структуры и выявили ее хорошо определенный слоистый характер с резкими межслойными границами.

**Ключевые слова:** слоистые магнитные наногетероструктуры, межслойное магнитное упорядочение, рефлектометрия поляризованных нейтронов, эффект гигантского туннельного магнитосопротивления.

DOI: 10.21883/FTT.2021.09.51256.21H

### 1. Введение

Fe|MgO|Cr|MgO|Fe — это новая система, в которой магнитные моменты Fe связаны между собой через диэлектрические и металлические промежуточные слои. Магнитные и магнитотранспортные свойства магнитных многослойных структур с границами раздела металл–металл и металл–диэлектрик были глубоко изучены; напротив, системы, включающие как металлические, так и диэлектрические промежуточные слои, изучены гораздо меньше. В частности, физически интересные системы Fe|MgO|Cr изучены в очень ограниченном количестве публикаций [1,2].

В данной работе мы сообщаем о синтезе, структуре и магнитных свойствах наногетероструктур Fe|MgO|Cr. В основном мы сосредоточились на технологии изготовления образцов и их магнитных свойствах, включая макроскопические свойства, а также на получении профилей намагничивания с разрешением на уровне монослоев. Мы исследовали два образца Fe(10 nm)|MgO(1.5 nm)|Cr(*t* nm)|MgO(1.5 nm)|Fe(7 nm)|Ta(5 nm) с толщиной *t* = 0.9 nm (образец 1) и *t* = 1.8 nm (образец 2). Такие толщины Cr, как известно, обеспечивают антиферромагнитное и ферромагнитное упорядочение в сверхрешетках Fe|Cr [3]. Металлы выращивались методом магнетронного распыления на постоянном токе,

слои MgO — методом высокочастотного распыления. Рентгеновскую рефлектометрию и дифракцию для определения структурных характеристик образцов проводили на дифрактометре Empyrean PANalytical с использованием излучения CoK<sub>α</sub> в геометрии параллельного пучка. Намагниченность измеряли методом вибрационной магнитометрии.

### 2. Эксперимент

Были исследованы две слоистые наногетероструктуры: Fe(10 nm)|MgO(1.5 nm)|Cr(*t*)|MgO(1.5 nm)|Fe(7 nm)|Ta(5 nm), *t* = 0.9 nm (далее — образец 1) и *t* = 1.8 nm (далее — образец 2), выращенные методом высоковакуумного магнетронного напыления на монокристаллические подложки MgO (100) без какого-либо буферного слоя. Для защиты от окисления готовые структуры покрывались слоем Ta. К слоям MgO в процессе роста была применена специальная процедура отжига. Данная манипуляция была проведена с целью улучшения качества слоистой и кристаллической структуры MgO. Согласно предыдущим исследованиям, отжиг во время роста положительно влияет на формирование кристаллической структуры MgO [4]. Рентгеноструктурные исследования были выполнены в геометрии параллельного пучка на лабораторном дифрактометре PANalytical

Empyrean Series 2 с использованием  $\text{CoK}\alpha$ -излучения. Параллельный пучок сформирован с помощью рентгеновского зеркала W/Si, установленного на первичном пучке, и параллельного пластинчатого коллиматора и плоского графитового монохроматора — на вторичном пучке. Щель для падающего луча составляла 0.05 mm, для дифрагированного луча — 0.1 mm. Измерения рефлектометрии поляризованных нейтронов были выполнены в стандартной  $\theta - 2\theta$  геометрии на рефлектометре NREX на исследовательском реакторе FRM II (Гархинг, Германия). Измерения с полным поляризационным анализом проведены на длине волны 4.3 Å. Поляризация падающего пучка  $P_p > 99.99\%$ . Анализ поляризации пучка после рассеяния проводили с помощью анализатора поляризации с эффективностью  $P_a = 99.1\%$ .

### 3. Результаты и обсуждение

Свойства слоистых наносистем и структуры межслойных границ были определены с помощью рентгеновской рефлектометрии и дифракции высокого разрешения. Толщину слоев и среднеквадратичную шероховатость границы раздела определяли методом рефлектометрии. Установлено, что структурные свойства образцов 1 и 2 идентичны, поэтому далее большинство результатов приводится для образца 1. На рис. 1 представлены результаты рефлектометрических исследований наногетероструктур и результаты их обработки (фитинга). Анализ рентгеновских данных проводили с помощью коммерческих программ PANalytical X'Pert Reflectometry и X'Pert Epitaxy. Соответствующие параметры модельной кривой приведены в таблице. Из обработки рефлектометрических кривых установлено, что толщины слоев близки к номинальным, а также наблюдается формирование слоистой структуры с четкими границами раздела во всех слоях, за исключением слоя Cr, у которого наблюдается шероховатость примерно два монослоя. Уменьшенное значение плотности верхнего слоя Fe может быть обусловлено его некоторым структурным несовершенством из-за роста на немонокристаллической прослойке MgO. Плотность нижнего слоя Fe, выращен-

Структурные параметры образца  $\text{Fe}(10 \text{ nm})|\text{MgO}(1.5 \text{ nm})|\text{Cr}(0.9 \text{ nm})|\text{MgO}(1.5 \text{ nm})|\text{Fe}(7 \text{ nm})$ , полученные после фитинга данных рентгеновской рефлектометрии

Материал слоя	Толщина слоя, Å	Межслойная шероховатость, Å	Плотность, $\text{g/cm}^3$
Fe	$94 \pm 1$	0.008	$9.3 \pm 2$
MgO	$17 \pm 1$	0.02	$4.2 \pm 2$
Cr	$5.6 \pm 1$	3.1	$7.8 \pm 2$
MgO	$24 \pm 1$	0.004	1.8
Fe	$63 \pm 0.5$	3.3	$7.4 \pm 3$
Ta	$44 \pm 0.4$	0.002	$18.4 \pm 7$
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	$24 \pm 0.3$	0.002	$7.8 \pm 1.5$

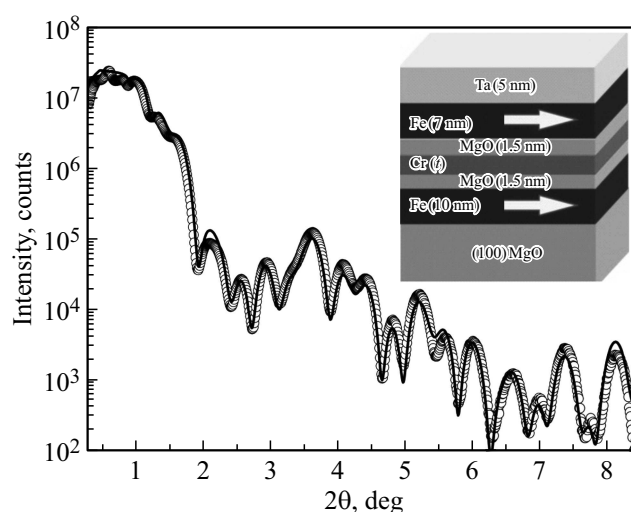


Рис. 1. Экспериментальная рентгеновская рефлектограмма образца 1 (символы) и модельная кривая (линия). На вставке приведена схематическая структура исследуемого образца с параллельным упорядочением магнитных моментов в слоях железа.

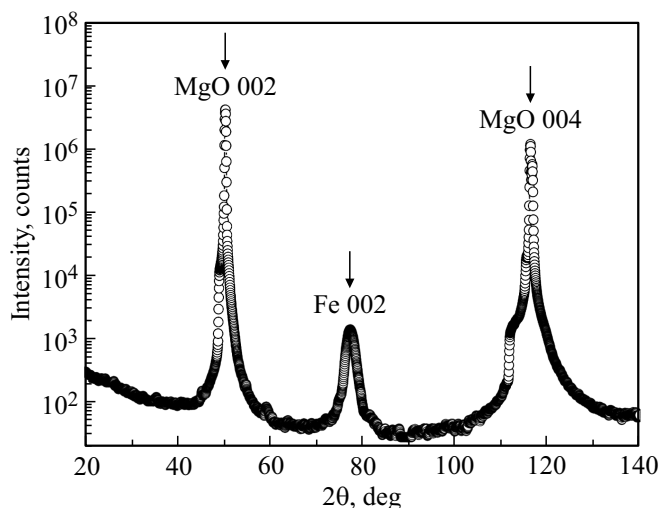
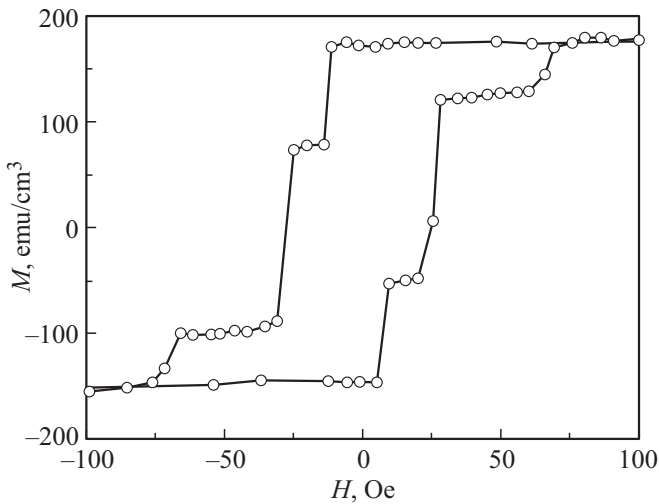


Рис. 2. Рентгеновская дифрактограмма образца 1 с четко определенными структурными пиками, соответствующими брэгговским отражениям 002 MgO, 004 MgO и 002 Fe, свидетельствующая о выраженной текстуре (001) Fe и (001) MgO вдоль направления роста образца.

ного на монокристаллической подложке MgO, близка к значению плотности объемного Fe.

Кристаллическая структура образцов была определена с помощью рентгеновской дифракции в геометрии  $\theta - 2\theta$  с использованием  $\text{CoK}\alpha$ -излучения. На рис. 2 представлена дифрактограмма, измеренная для образца 1. Из дифрактограммы видно, что в скане от образца  $\text{Fe}(10 \text{ nm})|\text{MgO}(1.5 \text{ nm})|\text{Cr}(0.9 \text{ nm})|\text{MgO}(1.5 \text{ nm})|\text{Fe}(7 \text{ nm})$  присутствуют сигналы, соответствующие брэгговским отражениям (002) MgO, (004) MgO и (002) Fe. Эти пики свидетельствуют о наличии выраженной текстуры



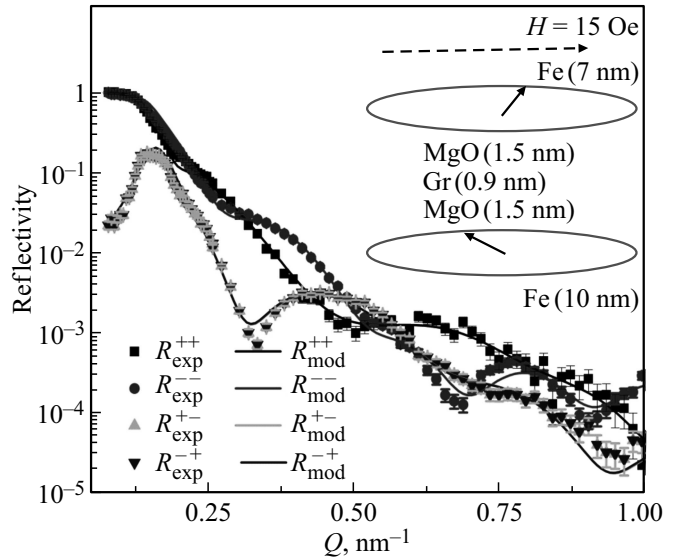
**Рис. 3.** Петля магнитного гистерезиса образца 1, измеренная для ориентации внешнего магнитного поля относительно оси легкого намагничивания [100] Fe при приложении магнитного поля под углом 30°.

(001) Fe и (001) MgO в направлении роста образца. Данные рентгеновской дифрактометрии указывают на наличие формирования в исследуемых наногетероструктурах кристаллического Fe и MgO.

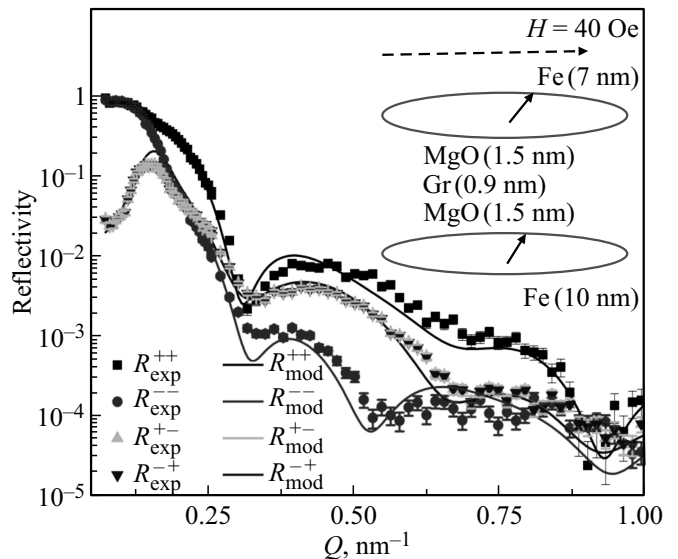
Как видно из приведенного графика на рис. 3, петли гистерезиса имеют особенности, а именно плато около значений магнитного поля  $H = 15$  и  $40$  Oe. Возможно, в этих полях магнитные моменты слоев Fe направлены вдоль оси легкого намагничивания, и неясно, происходит их когерентное вращение вместе или 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. 4 и 5 представлены результаты измерений рефлектометрии поляризованных нейтронов для образца 1, а рис. 6 соответствует аналогичным данным, полученным для образца 2. Измерения были проведены при величинах внешнего магнитного поля  $H = 15$  и  $40$  Oe после намагничивания в отрицательном поле  $H = -4.5$  kOe. Во время эксперимента поле прикладывали параллельно направлению [100] подложки MgO. На рис. 4 изображены кривые спин-поляризованного отражения, измеренные при  $H = 15$  Oe. Кривые отражения без переворота спина  $R^{++}$  и  $R^{--}$  — характеризуются полным отражением ниже критического края с  $Q_{crit} = 0.16 \text{ nm}^{-1}$  и интерференционными колебаниями выше  $Q_{crit}$ . Кривые разделены, что свидетельствует о наличии в образце одного магнитного момента, который коллинеарен  $H$ . Отметим, однако, что расщепление кривых при малых значениях  $Q$ , близких к  $Q_{crit}$ , довольно незначительно. В дополнение к кривым отражения без переворота спина в эксперименте наблюдается сильное

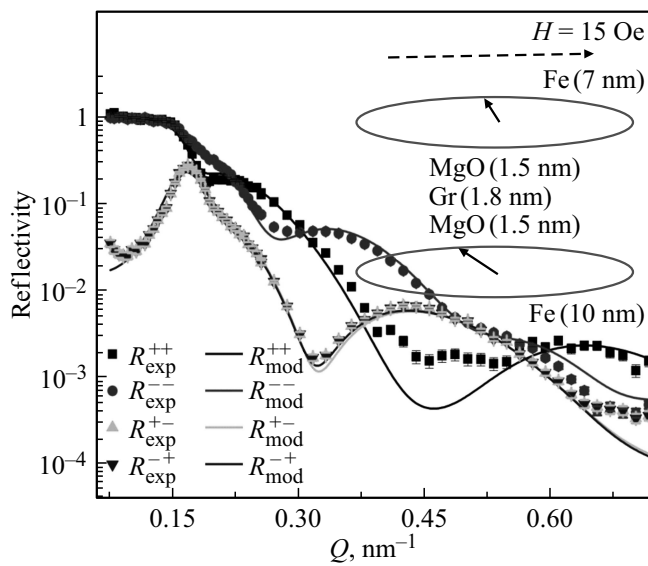
рассеяние с переверотом спина с пиком при  $Q = Q_{crit}$  с амплитудой порядка 20%. Наличие такого рассеяния говорит о том, что в системе существует неколлинеарный  $H$  магнитный момент. Экспериментальные данные были подогнаны к модельным кривым с использованием известного суперматричного подхода [5]. Некоторое



**Рис. 4.** Экспериментальные кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов (символы) и результат подгонки (линии) для образца 1, измеренные в магнитном поле 15 Oe. На вставках показано направление магнитных моментов в слоях, определенное в результате подгонки экспериментальных данных к модели.



**Рис. 5.** Экспериментальные кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов (символы) и результат подгонки (линии) для образца 1, измеренные в магнитном поле 40 Oe. На вставках показано направление магнитных моментов в слоях, определенное в результате подгонки экспериментальных данных к модели.



**Рис. 6.** Экспериментальные кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов (символы) и результат подгонки (линии) для образца 2, измеренные в магнитном поле 15 Ое. На вставках показано направление магнитных моментов в слоях, определенное в результате подгонки экспериментальных данных к модели.

различие между экспериментальными и теоретическими кривыми на рис. 6 в области малых значений коэффициента отражения объясняется значительным вкладом фона в этой области. При подгонке варьировали намагниченность слоев Fe (7 nm) и Fe (10 nm) ( $M_1$  и  $M_2$ ) и углы между векторами намагниченности и внешним полем ( $\alpha_1$  и  $\alpha_2$ ). Наилучшим образом подходят значения  $\alpha_1 = 54^\circ$  и  $\alpha_2 = 154^\circ$ , чувствительность определения углов около  $5^\circ$ . Соответствующая магнитная конфигурация показана на вставке рис. 4. Видно, что верхний слой железа уже перевернулся и соответствует положительной легкой оси  $[110]$ , а нижний все еще отвечает отрицательному направлению  $[\bar{1}10]$ . Комбинированные магнитные и нейтронографические измерения показали, что коллинеарные компоненты магнитных моментов слоев Fe выровнены и направлены антипараллельно друг другу, так что их сумма близка к нулю [6,7]. Это объясняет относительно небольшую разницу кривых в случае отражения без переворота спина вблизи  $Q_{\text{crit}}$ . Эта разница значительно возрастает с увеличением поля до  $H = 40$  Ое (рис. 5). Однако с увеличением магнитного поля рассеяние с переворотом спина практически не меняется. Количественно это удалось описать, перевернув нижний слой Fe в направлении положительной легкой оси  $[110]$ . Это не меняет неколлинеарный момент, но делает коллинеарные моменты параллельными.

Кривые рефлектометрии поляризованных нейтронов образца 2 при  $H = 15$  Ое (рис. 6) аналогичны кривым образца 1, измеренным в том же поле, и могут быть описаны аналогичным магнитным состоянием. Кроме того, когда поле было увеличено до  $H = 40$  Ое, кривые

отражения без переворота 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 переворотом спина. Пик сместился от  $Q_{\text{crit}}$  к более высокому значению  $Q = 0.26 \text{ nm}^{-1}$ , т.е. неколлинеарная конфигурация образца 2 при  $H = 40$  Ое отличается от образца 1. С помощью подгонки установлено, что верхний и нижний слои перевернуты в направлениях  $[1\bar{1}0]$  и  $[110]$  соответственно. Остальные данные были подогнаны аналогичным образом.

#### 4. Заключение

С помощью магнетронного напыления мы синтезировали высококачественные слоистые наногетероструктуры Fe|MgO|Cr|MgO|Fe; их структурные свойства были определены методами рентгеновской рефлектометрии и дифракции. Магнетометрия показывает, что перемагничивание характеризуется наличием промежуточного состояния. Этой неколлинеарностью можно управлять с помощью небольшого внешнего поля в несколько десятков Ое и изменением ориентации образца; также на нее влияет толщина слоя MgO. Были исследованы структурные и магнитные свойства слоистых наногетероструктур Fe(10 nm)|MgO(1.5 nm)|Cr(t nm)|MgO(1.5 nm)|Fe(7 nm) ( $t = 0.9$  и 1.8 nm). Рентгеновские методы подтвердили формирование текстурированной структуры с ориентацией MgO[001] || Fe[001] || Cr[001] вдоль нормали к образцу, а также наличие хорошо определенной слоистой структуры с резкими межслойными границами. Проведенное исследование может быть полезно для создания устройств спинтроники для работы при комнатной температуре, а также при низких температурах, в сверхпроводящих спин-вентильных структурах, где требуется неколлинеарность для генерации спинового триплетного конденсата.

#### Благодарности

Синтез образцов, магнетометрические и рентгеноструктурные измерения выполнены в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. Эксперименты по нейтронной рефлектометрии поляризованных нейтронов выполнены на инструменте NREX исследовательского реактора FRM II (Гархинг, Германия).

#### Финансирование работы

Исследование выполнено в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема „Спин“ № АААА-А18-118020290104-2) при поддержке РФФИ (проект № 19-02-00674).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] S. Yuasa, D. Djayaprawira. Appl. Phys. **40**, 21, 337 (2007).
- [2] A. Koziol-Rachwał, T. Nozaki, V. Zayets, H. Kubota, A. Fukushima, S. Yuasa, Y. Suzuki. J. Appl. Phys. **120**, 8, 085303 (2016).
- [3] J.A.C. Bland, B. Heinrich (Eds). Ultrathin Magnetic Structures, vol. I–IV. Springer Verlag, Berlin (1994–2005).
- [4] Е.М. Якунина, В.И. Боднарчук, В.В. Проглядо, Т.А. Чернышова, Е.А. Кравцов. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования **1**, 30 (2014).
- [5] A. Rühm, B. Toperverg, H. Dosch. Phys. Rev. B **60**, 23, 16073 (1999).
- [6] E. Młyńczak, K. Freindl, N. Spiridis, J. Korecki. J. Appl. Phys. **113**, 2, 024320 (2013).
- [7] X. Jia, K. Xia, G.E.W. Bauer. Phys. Rev. Lett. **107**, 17, 176603 (2011).

*Редактор Е.В. Толстякова*