05;07

Магнитное взаимодействие в гетероструктуре манганит/интерметаллид

© И.В. Борисенко¹, В.В. Демидов¹, А.А. Климов^{1,2,4}, Г.А. Овсянников¹, К.И. Константинян¹, С.А. Никитов¹, В.Л. Преображенский^{2,3}, N. Tiercelin², P. Pernod²

¹ Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия

 ² International Associated Laboratory LEMAC-LICS: IEMN, UMR CNRS 8520, PRES Lille Nord de France, ECLille, 59651 Villeneuve d'Ascq, France
 ³ Научный центр волновых исследований Института общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия
 ⁴ Московский государственный университет информационных технологий, радиотехники и электроники (МИРЭА), Москва, Россия
 E-mail: iboris@hitech.cplire.ru

Поступило в Редакцию 3 сентября 2015 г.

Исследованы гибридные магнитные гетероструктуры, состоящие из тонких эпитаксиальных пленок оксидных ферромагнетиков La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ и сверхрешеток интерметаллидов (TeCo₂/FeCo)_n. Методами ферромагнитного резонанса и магнитооптического эффекта Керра изучены магнитные характеристики гетероструктур. Показано, что межслойное взаимодействие в гетероструктуре имеет антиферромагнитный характер. Также обнаружено, что наличие границы с интерметаллидом приводит к уширению линии ферромагнитного резонанса в пленке манганита.

Разработка устройств спинтроники на основе магнитоактивных материалов с наноразмерными границами, туннельных магнитных кон-

1

тактов, устройств с магнитоэлектрическим взаимодействием и других является актуальной задачей, решение которой связывается с пониманием физики процессов структурных и фазовых трансформаций в тонких пленках и на границах раздела [1–5]. В легированных двухвалентными элементами оксидах переходных металлов типа $R_{1-x}A_xMnO_3$ (манганитах), где R-La, Pr, A-Sr, Ca, могут возникать новые электронные и магнитные фазы под действием электрических полей, механических напряжений, а также на границах с диэлектриками или другими оксидами. Редкоземельные интерметаллические композиции, представляющие собой обменно-связанные нанослои $TbCo_2/FeCo$, обеспечивают гигантскую магнитострикцию, большое значение коэффициента магнитомеханической связи, управляемую наведенную магнитную анизотропию и спин-переориентационные переходы, индуцированные магнитным полем или упругими напряжениями [6–10].

Магнитное взаимодействие, электронное и спиновое состояние на границе слоев магнитной гетероструктуры определяют как механизмы ее перемагничивания, так и процессы протекания спин-поляризованного тока. В данной работе исследовалось магнитное взаимодействие на границах раздела в гетероструктурах, сформированных из эпитаксиально выращенных пленок манганитов La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ (LSMO) и сверхрешетки интерметаллидов (TeCo₂/FeCo)_n (TCFC).

Для роста эпитаксиальных пленок LSMO были использованы методы лазерной абляции и магнетронного распыления при температуре 700-750°С и давлении кислорода 0.1-0.3 mbar. В работе применялись подложки (110)NdGaO₃ (NGO), обеспечивающие эпитаксиальный рост манганитов. Орторомбическая структура NGO подложки обеспечивала доминирование одноосной магнитной анизотропии пленки LSMO в плоскости подложки [11]. Для создания магнитных пленок интерметаллидов использовались последовательно катодное напыление слоев TeCo₂ и FeCo в присутствии дополнительного магнитного поля, лежащего в плоскости подложек и обеспечивающего одноосную магнитную анизотропию полученных сверхрешеток [6-9]. Величина магнитной анизотропии определяется величиной внешнего магнитного поля в камере напыления. Гетероструктуры создавались таким образом, чтобы оси легкого намагничивания оксидного и интерметаллического магнитных слоев были параллельны друг другу. На подложке $5 \times 5 \times 0.5 \, \text{mm}$ из (110)NGO, где была эпитаксиально выращена пленка LSMO, через маску 3 × 3 mm проводилось напыление сверхрешетки TCFC. В резуль-

тате образовывались области гетероструктур TCFC/LSMO и области свободной пленки LSMO на подложке NGO.

Магнитные параметры — коэрцитивная сила (H_c) , поле насыщения (H_s) и намагниченность M_s гетероструктуры — исследовались с помощью меридионального эффекта Керра [11]. Магнитооптическая установка для измерения характеристик образцов состояла из полупроводникового лазера $(\lambda = 0.63 \,\mu\text{m}, P = 5 \,\mu\text{W})$, светоделительной стеклянной пластины для формирования опорного и сигнального лучей, фазовой полуволновой пластины для выбора *s*- или *p*-типа поляризации падающего на образец света, поляризатора—анализатора для выделения сигнала, обусловленного меридиональным эффектом Керра. Исследуемый образец размещался на поворотном столике в зазоре электромагнита.

На рис. 1 представлены петли гистерезиса гетероструктуры TCFC/LSMO с n = 25 (пунктир) при фокусировке пучка лазера (диаметром 1 mm) в центр образца. При направлении внешнего магнитного поля вдоль трудной оси намагничивания TCFC (рис. 1, *a*) получена кривая, характерная для вращения магнитного момента намагниченности TCFC сверхрешетки в плоскости образца с небольшим гистерезисом петли — около 50 Ое. Поле насыщения $H_s \approx 1000$ Ое существенно превышало H_s пленки LSMO, что свидетельствует о доминирующем влиянии сверхрешетки TCFC на петли гистерезиса гетероструктуры. Влияние магнетизма нижней пленки LSMO не проявляется, вероятно, из-за экранировки луча лазера пленкой TCFC. При фокусировке пучка лазера на то место образца, где отсутствует сверхрешетка TCFC, намагниченность меняет знак, что, возможно, указывает на антиферромагнитное упорядочение слоев TCFC и LSMO.

На рис. 1, *b* показаны петли гистерезиса, измеренные при направлении поля вдоль легкой оси. Значение коэрцитивной силы сверхрешетки TCFC составило 140 Ое. При фокусировке луча лазера на пленку LSMO петля гистерезиса зависит от амплитуды изменения магнитного поля. В малом диапазоне свипирования магнитного поля петля гистерезиса пленки LSMO меняет знак, так же как это было при направлении магнитного поля вдоль трудной оси, и ширина петли гистерезиса приблизительно равна коэрцитивной силе пленки LSMO (см. вставку к рис. 1, *a*). При амплитуде поля более 400 Ое кривая намагничивания пленки LSMO повторяет форму петли гистерезиса сверхрешетки TCFC. Поскольку предварительные (до напыления TCFC) измерения петли



Рис. 1. Кривые намагничивания гетероструктуры TCFC/LSMO, толщина пленки TCFC 200 nm (n = 25) и пленки LSMO 30 nm. a — для направления внешнего магнитного поля вдоль трудной оси, на вставке дана увеличенная центральная часть графика, b — для направления внешнего магнитного поля по легкой оси намагничивания и широкого диапазона свипирования магнитного поля ± 2 kOe, на вставке показана увеличенная центральная часть кривой намагничивания пленки LSMO для трех диапазонов свипирования ± 100 , ± 400 и ± 2 kOe.

гистерезиса LSMO показали малые значения $H_c = 10$ Oe, то результаты, представленные на рис. 1, свидетельствуют о магнитном взаимодействии пленок LSMO и TCFC, однако характер этого взаимодействия установить трудно из-за разнесения точек измерений петель гистерезиса слоев.

Характер магнитного взаимодействия пленок в гетероструктуре удается определить с помощью ферромагнитного резонанса (ФМР). Спектры ФМР изучались с использованием стандартного спектрометра магнитного резонанса ER 200 фирмы Bruker, работающего в 3-сантиметровом диапазоне сверхвысоких частот (СВЧ). Изучались угловые и температурные зависимости величины резонансного поля H₀ и ширины Δ*H* линий ΦMP в условиях, когда постоянное магнитное поле и магнитная составляющая СВЧ-поля были направлены перпендикулярно друг к другу и во время вращения подложки оставались в плоскости пленки (так называемая параллельная ориентация). Вращение производилось вокруг оси, перпендикулярной плоскости пленки. Такая методика исключает изменение сигналов, вызванное анизотропией формы, и позволяет исследовать только плоскостную анизотропию. Резонансное поле ФМР Но связано с частотой резонанса соотношением, которое содержит в качестве параметров величины намагниченности и полей анизотропии различной симметрии [12].

На рис. 2 показаны температурные зависимости H_0 и ΔH трех спектральных линий, наблюдаемых в гетероструктуре. Спектр, представленный на вставке к рис. 2, регистрировался при комнатной температуре на частоте $\omega/2\pi = 9.74$ GHz. При этом постоянное магнитное поле было направлено вдоль легкой оси намагничивания. Из вставки к рисунку видно, что наблюдаются три ферромагнитно упорядоченные спиновые подсистемы. Из анализа температурных зависимостей Н₀ регистрируемых линий (рис. 2, а) видно, что низкополевая линия ФМР имеет температуру Кюри выше 360 К и относится к пленке TCFC, напыленной на пленку из LSMO, а две остальные — к пленке из LSMO. Количество спинов в обеих подсистемах, относящихся к пленке из LSMO (оценка проводилась по сопоставлению площадей линий поглощения), сравнимо друг с другом, как и площади этих участков пленки. Одну из этих подсистем можно ассоциировать со спинами, принадлежащими той части пленки LSMO, которая лежит непосредственно под квадратом пленки TCFC (LSMO-1), а другую — со спинами остальной части пленки (LSMO-2). Ширины линий ΔH , измеренные между пиками производной линии поглощения, этих частей пленки LSMO отличаются



Рис. 2. Температурные зависимости параметров пленок, полученные с помощью ферромагнитного резонанса: a — резонансные поля H_0 , b — ширины резонансных линий ΔH . Открытые треугольники и заполненные квадраты относятся к пленке LSMO, а кружки — к TCFC. На вставке показан спектр ФМР гетероструктуры TCFC/LSMO, снятый при комнатной температуре, и при направлении внешнего магнитного поля вдоль легкой оси намагничивания. Амплитуда низкополевой линии TCFC увеличена в десять раз по сравнению с двумя другими линиями.

на 40–50 Ос. Поскольку эти части пленки LSMO расположены на одной и той же подложке и имеют одинаковое кристаллическое качество, то различия в ΔH , скорее всего, вызваны взаимодействием TCFC и LSMO. Такое уширение линии ФМР в системе ферромагнетик-нормальный металл наблюдалось ранее и было теоретически описано в работе [13] как следствие утечки чисто спинового тока из ферромагнетика в металл.

На рис. 3 показана угловая зависимость резонансных полей для наблюдаемых трех спиновых подсистем, снятая при комнатной температуре. Видно, что резонансные поля спиновых подсистем в гетероструктуре изменяются в диапазоне магнитных полей, существенно превышающих диапазон изменения намагниченности (рис. 1). Следовательно, в диапазоне магнитных полей измерений ФМР (см. вставку к рис. 2) происходит насыщение всех спиновых подсистем в структуре, а все магнитные моменты направлены вдоль внешнего магнитного поля. Для части пленки LSMO-2 можно использовать резонансное соотношение, полученное в работе [14]:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(H_0 + H_u \cos 2\varphi_u + H_c \cos 4\varphi_c\right)$$
$$\times \left(4\pi M_0 + H_0 + H_u \cos^2 \varphi_u + H_c \frac{1 + \cos^2 2\varphi_c}{2}\right). \tag{1}$$

Здесь γ — гиромагнитное отношение, $H_u = 2K_u/M_0$ и $H_c = 2K_c/M_0$ — поля одноосной плоскостной анизотропии и двуосной кубической анизотропии с соответствующими константами K_u и K_c , φ_u и φ_c — углы, под которыми направлены легкие оси одноосной анизотропии и кубической двуосной анизотропии относительно внешнего магнитного поля, M_s — величина равновесной намагниченности, H_0 — величина резонансного магнитного поля.

Из рис. З видно, что легкие оси во всех трех спиновых подсистемах (минимальное значение H_0) практически параллельны друг другу (разворот осей не превышает 2–3 deg). Две верхние зависимости (треугольники и квадраты на рис. 3) относятся к двум подсистемам LSMO. Зависимость с меньшими резонансными полями описывает поведение линии ФМР, полученной от части пленки LSMO-1, так как параметры этой линии — ширина и резонансное поле — характерны для пленки LSMO на подложке из NGO. Для описания линии ФМР от другой части пленки LSMO-2 следует учесть межслойное обменное взаимодействие двух ферромагнитно упорядоченных слоев: LSMO и TCFC. В результате необходимо рассматривать свободную энергию объединенной спиновой системы контактирующих пленок LSMO-2 и TCFC, состоящую из энергий зеемановского взаимодействия, магнитной анизотропии с соответствующими константами, а также учитывать билинейный обмен с константой *J*. При этом предполагается, что



Рис. 3. Угловая зависимость резонансных полей трех линий ФМР гетероструктуре TCFC/LSMO. Сплошные линии — расчетные зависимости. Треугольники и прямоугольники относятся к пленке LSMO, кружки — к TCFC.

намагниченности в этих пленках однородны по объему. Заметим, что энергии межслойного обмена пропорциональны площади контактирующих поверхностей, а зеемановские энергии и энергии анизотропии пропорциональны объему слоев [15].

Решение уравнения Ландау–Лифшица–Гильберта приводит к двум резонансным соотношениям, описывающим ФМР слоев ТСFС и LSMO-2. Вид этих соотношений аналогичен выражению (1), но величину H_0 в них следует заменить на суммы двух слагаемых: $H_{01} + H_{J1}$ и $H_{02} + H_{J2}$ для слоев LSMO-2 и ТСFС соответственно. Здесь $H_{J1} = J/(M_1d_1)$ и $H_{J2} = J/(M_2d_2)$ — эффективные поля межслойного обмена для слоев LSMO-2 и ТСFС соответственно, а d_1 и d_2 — толщины этих слоев.

Угловые зависимости, полученные из резонансных соотношений для слоев LSMO-2 и TCFC, которые наилучшим образом описывают экспериментальные данные, приведены на рис. 3 сплошными линиями.

Сначала с помощью соотношения (1) строилась расчетная кривая для одиночной пленки LSMO-1. Затем, используя полученную намагниченность слоя LSMO и резонансное соотношение в условиях межслойного обмена, строилась расчетная кривая для пленки LSMO-2, что позволило найти величину межслойного обмена *J*. Наконец, используя полученную величину *J*, строилась расчетная кривая для пленки TCFC, что позволило найти величину M_2 . В результате можно утверждать, что в исследованной структуре TCFC/LSMO, выращенной на подложке из NGO, между ферромагнитными пленками TCFC и LSMO реализуется межслойное обменное взаимодействие с отрицательной константой J = -0.24 erg/cm, что обусловливает антиферромагнитный характер этого взаимодействия.

Авторы благодарны В.А. Ацаркину, Ю.В. Кислинскому, А.В. Шадрину за помощь в проведении эксперимента и полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке Российской академии наук, проектов РФФИ 14-02-00165, 14-07-00258 и 14-07-93105, гранта президента РФ по поддержке ведущих научных школ НШ-4871.2014.2.

Список литературы

- [1] Dagotto E. // Science. 2005. V. 309. P. 257.
- Mannhart J. // Thin Films and Heterostructures for Oxide Electronics. S. Ogale (ed.). Springer, 2005. P. 251–278.
- [3] Ahn C.H. et al. // Rev. Mod. Phys. 2006. V. 78. P. 1185.
- [4] Wu S.M., Cybart Shane A., Yu P., Rossell M.D., Zhang J. et al. // Nat. Mater. 2010. V. 9. P. 756–761.
- [5] Константинян К.И., Кислинский Ю.В., Овсянников Г.А., Шадрин А.В., Шейерман А.Е., Васильев А.Л., Пресняков М.Ю., Комиссинский Ф.В. // ФТТ. 2013. Т. 55. С. 417.
- [6] Gall H.Le, Youssef J. Ben, Socha F., Tiercelin N., Preobrazhensky V., Pernod P. // J. Appl. Phys. 2000. V. 87.
- [7] Quandt E., Ludwig A., Lord D.G., Faunce C.A. // J. Appl. Phys. 1998. V. 83. P. 7267.
- [8] Tiercelin N., Preobrazhensky V., Pernod P., Gall H. Le, Youssef J. Ben // J. Magn. Magn. Mater. 2000. V. 210. P. 302.
- [9] Tiercelin N., Preobrazhensky V., Pernod P., Ostachenko A. // Appl. Phys. Lett. 2008. V. 92. P. 062 904.
- [10] Dusch Y., Rudenko V., Tiercelin N., Giordano S., Preobrazhensky V., Pernod P. // Nanomater. Nanostruct. 2012. V. 2. P. 44.
- [11] Овсянников Г.А., Петрэкик А.М., Борисенко И.В., Климов А.А., Игнатов Ю.А., Демидов В.В., Никитов С.А. // ЖЭТФ. 2009. Т. 135. С. 56.

- [12] Demidov V.V., Ovsyannikov G.A., Petrzhik A.M., Borisenko I.V., Shadrin A.V., Gunnarsson R. // J. Appl. Phys. 2013. V. 113. P. 163 909.
- [13] Tserkovnyak Y, Brataas A. // Phys. Rev. Lett. 2002. V. 88. Р. 117 601.
 [14] Демидов В.В., Борисенко И.В., Климов А.А, Овсянников Г.А., Петр-жик А.М., Никитов С.А. // ЖЭТФ. 2011. Т. 139. С. 943.
- [15] Дровосеков А.Б., Жотикова О.В., Крейнес Н.М. и др. // ЖЭТФ. 1999. Т. 116. C. 1817.