## Медленные осцилляции перпендикулярной намагниченности спинового вентиля Pt/Co/Ir/Co/Pt

 $P. Б. Моргунов^{+*\times}, \Gamma. Л. Львова^{+\times 1}$ 

+Институт проблем химической физики РАН, 142432 Черноголовка, Россия

\* Тамбовский государственный технический университет, 392000 Тамбов, Россия

× Российский университет транспорта (МИИТ), 109012 Москва, Россия

Поступила в редакцию 29 мая 2018 г. После переработки 21 июня 2018 г.

Исследованы временные зависимости перехода магнитного момента между стабильными магнитными состояниями гетероструктур с двумя ферромагнитными слоями Pt/Co/Ir/Co/Pt с перпендикулярной намагниченностью. Обнаружены спонтанные колебания макроскопической намагниченности с периодом несколько часов, которые происходят после переключения магнитного поля к новому значению. Фазовый портрет магнитной релаксации соответствует затухающим колебаниям. Осцилляция макроспина, возможно, обусловлена высокой скоростью зарождения фазы обратной намагниченности, наведенной обменным и магнитным дипольным взаимодействием между зародышами фаз, возникающими в разных слоях. Рассмотрены изменения Зеемановской энергии системы при магнитных осцилляциях.

DOI: 10.1134/S0370274X18140114

1. Введение. Исследование свойств многослойных гетероструктур на основе металлических ферромагнитных пленок с гигантским магнитосопротивлением активно развивается в силу их широкого практического применения в качестве биосенсоров, датчиков магнитного поля, системах навигации. Спиновые вентили, состоящие из двух ферромагнитных слоев, разделенных немагнитной прослойкой демонстрируют необычные физические свойства. В частности, хорошо известны осцилляции намагниченности спиновых вентилей, инициируемые пропусканием через них спин-поляризованного тока [1,2] или возбуждаемые при воздействии внешнего магнитного поля [3]. Эти колебания наблюдаются в наносекундном диапазоне времени, что отвечает времени перемагничивания наноразмерных гетероструктур, в которых стабильные состояния намагниченности разделены барьером, связанным с величиной энергии магнитной анизотропии. Отсутствие доменных стенок и других нелинейных спиновых ансамблей в наноразмерных спиновых вентилях делает удобным описание этих осцилляций в рамках теории макроспина, которая рассматривает магнитный момент макроскопического слоя и взаимодействие пары слоев в рамках формализма Гейзенберга, применимого к отдельным спинам.

Более сложная динамика магнитной релаксации была обнаружена в спиновых вентилях крупных размеров ~ 1 мм. В таких образцах намагниченность становится неоднородной, появляется доменная структура и зародыши обратной намагниченности, поэтому в процессе перемагничивания наблюдается длительная релаксация намагниченности [4]. Теория "макроспина" в такой ситуации неприменима, а динамика перемагничивания сенсоров определяется движением доменных стенок и зарождением доменов обратной намагниченности. В многослойных структурах была обнаружена экспоненциальная динамика магнитной релаксации [5], зарождение фазы обратной намагниченности, обусловленное перпендикулярной анизотропией [6, 7], магнитная релаксация Лабрунэ-Фатуззе, определяющая вклад движения доменных стенок и фазы обратной намагниченности [8,9]. Наличие доменных стенок и зародышей обратной намагниченности, а также взаимодействие между ними в соседних ферромагнитных слоях значительно усложняет теоретическое описание магнитной релаксации в спиновых вентилях, одновременно делая экспериментальные результаты весьма неожиданными и разнообразными. Задержанная магнитная релаксация имеет важное практическое значение при создании сенсоров, чувствительных к присутствию ферромагнитных наночастиц на их по-

<sup>&</sup>lt;sup>1)</sup>e-mail: gale.l9vova@mail.ru

верхности, навигационных приборов, устройств магниторезистивной памяти и др.

В настоящей работе сообщается о релаксации спинового вентиля между двумя устойчивыми состояниями его намагниченности в таких условиях, когда скорость нуклеации фазы обратной намагниченности во внешнем магнитном поле оказывается столь велика, что система сначала проходит через третье энергетически неустойчивое состояние, а только затем приближается к равновесию. Это вызывает повторяющиеся колебания макроскопической намагниченности двухслойной ферромагнитной системы, которые происходят благодаря быстрому прохождению через состояние термодинамического равновесия и возврашению к стабильному состоянию системы. Этот процесс оказывается достаточно медленным (несколько часов), поскольку зависит от термоактивированного движения доменных стенок и размножения зародышей фазы обратной намагниченности. Спонтанные затухающие колебания макроскопической намагниченности, протекающие в спиновых вентилях без преобразования энергии между электрической и магнитной компонентами поля, по-видимому, являются новым фундаментальным явлением в коллекции периодических процессов в нелинейных диссипативных системах. Медленные колебания макроскопической намагниченности наблюдались ранее в таких системах, как реакционная смесь с нелинейными колебаниями Белоусова-Жаботинского [10], или колебания намагниченности в плазме [11]. В спиновых вентилях ранее были исследованы лишь вынужденные колебания намагниченности закрепленного слоя, возникающие в результате периодического перемагничивания свободного слоя во внешнем магнитном поле [12].

2. Методика. Многослойные структуры Pt(3 нм)/Co(0.7 нм)/Ir(1.5 нм)/Co(1.0 нм)/Pt(3 нм)/ Та/Si и Pt(3 нм)/Co(0.6 нм)/Ir(1.5 нм)/Co(1.0 нм)/ Pt(3 нм)/Ta/Si размерами  $0.4 \times 4 \times 5 \text{ мм}^3$  (рис. 1) осаждали с использованием магнетронного распыления постоянного тока с элементарными источниками при комнатной температуре. Толщины слоев кобальта, а также слои платины, которые имеют границу раздела с кобальтом, выбирались так, чтобы получить перпендикулярную магнитную анизотропию (ПМА). Толщина слоя иридия является наиболее чувствительным параметром для этих образцов: она определяет связь между ферромагнитными взаимодействием РККИ слоями, (Рудермана-Киттеля-Касуя-Иосиды). Изменяя толщину иридия в нашей структуре, мы можем получить локальную максимальную антиферромагнитную связь для



Рис. 1. Схема гетероструктур с различной толщиной свободного слоя Со

толщины 1.4 нм. Можно отметить, что глобальный максимум антиферромагнитной связи достигается около 0.6 нм. Тем не менее, мы решили увеличить толщину иридиевой прослойки толщиной 1.4 нм, чтобы исключить вклад шероховатости и неровности на границах раздела между слоями. Таким образом, толщины слоев кобальта, а также слоев платины, которые имеют границу раздела с кобальтом, выбирались так, чтобы образовывать искусственную сверхрешетку с перпендикулярной магнитокристаллической анизотропией. Толщина разделительного слоя иридия была выбрана таким образом, чтобы обеспечить антиферромагнитный обмен РККИ между двумя ферромагнитными слоями. Кратковременный отжиг в течение 3 мин проводили при 500 К для кристаллизации слоев Pt/Co и увеличения значения перпендикулярной магнитной анизотропии. Во время отжига диффузионный слой Со смешивался с промежуточным слоем Ir, что усиливало антиферромагнитное взаимодействие между двумя соседними слоями Со. Подробно образцы, их изготовление и предварительная аттестация магнитных свойств описаны в [13, 14].

Петли магнитного гистерезиса в диапазоне температур 50–100 К и временные зависимости намагниченности в постоянном магнитном поле были получены с помощью магнитометра MPMS 5XL Quantum Design (рис. 2). Температура образца и стабильность магнитного поля контролировалась путем записи этих параметров параллельно с измерениями. Было



Рис. 2. Последовательность переключений магнитного поля во времени

установлено, что вариации *H* и *T* после переключения магнитного поля не могли повлиять на полученные результаты, составляя менее 0.1 % для температуры и менее 0.01 % для магнитного поля. Переходы из состояния  $AP^+$  в  $AP^-$  в образце регистрировались с помощью процедуры, схематически изображенной на рис. 2. На первом этапе образец намагничивался в поле  $H_{\rm S} = 4 \, {\rm k} \Theta$ , отвечающее насыщению образца. Магнитное поле было перпендикулярно пленке (т.е. вдоль оси легкого намагничивания). Продолжительность стадии намагничивания составляла 300 с. Таким образом, начальное магнитное состояние образца было одинаково во всех экспериментах. На втором этапе поле H<sub>S</sub> было уменьшено до значения  $H^* < H_{\rm S}$ . Продолжительность переключения магнитного поля ("мертвое время") составляла 60 с. Сразу же после стабилизации записи значения поля  $H^*$  записывалась временная зависимость магнитного момента М. Поля переходов, в которых происходило измерение временных зависимостей, были получены из петель гистерезиса, записанных в соответствующих температурах. Время записи для зависимости M(t) составляло 3600 с.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение. Петли магнитного гистерезиса для двухслойной системы с различной толщиной свободного слоя Со 0.6 и 0.7 нм были записаны в диапазоне температур 50-100 К. На рис. За показан пример типичной петли гистерезиса для образца с толщиной  $t_{\rm Co} =$ = 0.7 нм при 100 К, на вставках изображены намагниченности ферромагнитных слоев структуры для ее четырех стабильных состояний  $P^+$ ,  $AP^+$ ,  $AP^-$ ,  $P^-$ . Правая стрелка соответствует намагничиванию "закрепленного" слоя ("pinning layer") с толщиной 1 нм. Левая стрелка соответствует намагничиванию "свободного" ("free layer") слоя с толщиной  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм. Состояния  $P^+$  и  $P^-$  соответствуют параллельным ориентациям намагниченности ( $\uparrow\uparrow$ ,  $\downarrow\downarrow$ ) верхнего и нижнего слоя. Магнитные моменты  $M_{\rm f}$  и  $M_{\rm d}$  этих слоев направлены вдоль ↑↑ или против ↓↓ направ-



Рис. 3. Гистерезисы намагниченности для образца с толщиной свободного слоя Со  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм при T = 100 K (а) и для образца с толщиной свободного слоя Со  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм при T = 50 K (b). Символы  $P^+$ ,  $AP^+$ ,  $AP^-$ ,  $P^-$  соответствуют стабильным состояниям намагниченности гетероструктуры, показанным на врезках. Стрелки соответствуют направлениям намагниченности  $M_{\rm f}$  и  $M_{\rm p}$  толстого и тонкого слоя Со

ления приложенного поля H. Состояния  $AP^+$ ,  $AP^-$  соответствуют антипараллельным взаимным ориентациям  $M_f$  и  $M_p$ , которые различаются направлением суммарного магнитного момента по отношению к внешнему магнитному полю, так как  $M_f \neq M_p$ .

Карта зависимости переходов между стабильными состояниями от приложенного поля и температуры была представлена в работе для образцов, исследуемых в этой работе [15]. С уменьшением температуры меняется набор возможных переходов между стабильными состояниями, следовательно, изменяется тип петли гистерезиса. Такие же радикальные изменения формы петли гистерезиса происходят и при изменении толщины свободного слоя. Поэтому для рассмотрения одинакового набора переходов между стабильными состояниями гетероструктур с разной толщиной свободного слоя, при исследовании образца с  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм была подобрана температура 50 К (рис. 3b), такая, чтобы получить в этой структуре тип петли гистерезиса, сходный с тем, что наблюдается в гетероструктуре с  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм. Отметим, что при 50 K для гетероструктуры с  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм тип петли изменяется, и изучаемые нами переходы не реализуются. Поэтому сравнить магнитную релаксацию в изучаемых образцах при одной и той же температуре и одинаковых значениях магнитного поля было невозможно.

Для исследования динамики перехода из состояния  $AP^+$  в  $AP^-$  мы измерили временные зависимости магнитного момента образца с толщиной свободного слоя Со  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм при температуре 100 К (рис. 4a) и для образца  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм при 50 К (рис. 4b). Можно увидеть два типа релаксации.



Рис. 4. (а) – Зависимости магнитного момента M от времени для образца с толщиной свободного слоя Со  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм при T = 100 К во внешнем магнитном поле – 1355, –1360 и –1365 Э. (b) – Зависимости магнитного момента M от времени для образца с толщиной свободного слоя Со  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм при T = 50 К во внешнем магнитном поле –1360, –1370 и –1375 Э

Первый тип релаксации, отвечающий монотонному уменьшению намагниченности, наблюдается в поле $-1350\, \Im$ для образца  $t_{\rm Co}=0.7\, \rm hm$  при 100 K, и в поле

Письма в ЖЭТФ том 108 вып. 1-2 2018

-1365 Э для образца  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм при 50 К. Второй тип релаксации – немонотонное поведение зависимостей магнитного момента от времени, наблюдается для приложенных магнитных полей  $H^* = -1355$  Э и  $H^* = -1360$  Э при 100 К в образце с  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм, и  $H^* = -1370$  Э и  $H^* = -1375$  Э при 50 К в образце с  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм.

Рассматривая релаксационные кривые (рис. 4), можно заметить, что существует задержка в начале измерений в связи с установкой магнитного поля. Это задержка необходима для стабилизации нового значения магнитного поля, и она не позволяет получить самые первые точки релаксационной кривой. Таким образом, первая точка кривых, определенная интерполяцией, должна соответствовать состоянию  $AP^+$ . На первом этапе намагниченность полностью переключается из состояния  $AP^+$  в состояние  $P^-$ . Затем с задержкой происходит следующий переход между состояниями  $P^-$  и  $AP^-$ .

На рисунке 5 представлены фазовые портреты магнитной релаксации, т.е. релаксационные кривые в



Рис. 5. Фазовый портрет процесса магнитной релаксации, полученный для образца  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм при температуре T = 100 K в магнитном поле H = -1365 Э (а) и для образца  $t_{\rm Co} = 0.6$  нм при температуре T = 50 K в магнитном поле H = -1375 Э (b)

координатах M(dM/dt). Движение вблизи устойчивого состояния равновесия совершается по траектории скручивающейся спирали, что соответствует затухающим колебаниям. В тот момент, когда будет достигнута точка минимума энергетического потенциала, дальнейшее уменьшение энергии станет невозможным, и система перейдет в состояние устойчивого равновесия  $AP^-$ .

Неустойчивость стабильных состояний образца связана с высокой скоростью зарождения фазы обратной намагниченности. Энергетическая модель для перехода  $AP^+ \leftrightarrow AP^-$  может быть рассмотрена в рамках теории макроспина для каждого магнитного слоя (рис. 6). Четырем стабильным магнит-



Рис. 6. Энергетическая модель, описывающая колебательное поведение релаксационных кривых. Стрелками показаны пути переходов между энергетическими состояниями системы

ным состояниям соответствуют четыре уровня энергии. Например, для образца с Со  $t_{\rm Co} = 0.7$  нм константа межслоевой обменной Jex =  $2t_{\rm P}M_{\rm P}B_{\rm C}$  =  $= -0.24 \,\mathrm{M}\mathrm{J}\mathrm{K}\,\mathrm{M}^{-2}$  связи была получена из условия переключения, с критическим полем  $B_{\rm C}$  = 1200 Э. Константы магнитокристаллической анизотропии каждого слоя были оценены по расчетам, приведенным в [4]:  $K_{\rm f} = 1.1 \, {\rm мДж} \, {\rm m}^{-2}$  для верхнего слоя Со $(0.7\,{\rm Hm})$  и  $K_{\rm p}=1.9\,{\rm MДж\,M^{-2}}$ для нижнего слоя Со (1.0 нм). Намагниченности этих слоев были равны  $M_{\rm f} = 1300$  к<br/>А м $^{-1}$  и  $M_{\rm p} = 1400$  к<br/>А м $^{-1}$ соответственно. Пользуясь этими данными, нетрудно рассчитать высоты потенциальных барьеров для перехода между различными состояниями в модели "макроспина", в рамках которой перемагничивание всего слоя происходит одновременно (без участия до-

менных стенок и зародышей намагниченности, вклад которых учесть трудно). Высоты потенциальных барьеров в нулевом поле получаются равны  $\Delta E_{23} =$  $= K_{\rm f} \cdot V_{\rm f} + K_{\rm p} \cdot V_{\rm p} = 0.3$  мДж м<sup>-2</sup> + 0.4 мДж м<sup>-2</sup>,  $\Delta E_{24} = K_{\rm p} \cdot V_{\rm p} = 0.4 \,\mathrm{m}\mathrm{Jm}\,\mathrm{m}^{-2}, \ \Delta E_{43} = K_{\rm f} \cdot V_{\rm f} =$  $0.3 \,\mathrm{MJm\,M^{-2}}$  ( $V_{\rm f}$  и  $V_{\rm p}$  – объемы свободного и закрепленного слоев соответственно). Таким образом, для переключения стабильного состояния АР<sup>+</sup> в АР<sup>-</sup> возможны два пути реализации, если ограничится однодоменным поведением слоев. С одной стороны, имеет место комбинация последовательных переходов  $E_2 \leftrightarrow E_4$  и  $E_4 \leftrightarrow E_3$ , при которой затрачивается наименьшая энергия (рис. 6). Комбинация этих переходов становится двухэтапным процессом. С другой стороны, переход  $E_2 \to E_3$  имеет только один энергетический барьер, но требует большей энергии. Следовательно, система релаксирует по тому каналу, который реализуется быстрее путем последовательных переходов  $E_2 \rightarrow E_4$  и  $E_3 \rightarrow E_4$  с последующим возвращением в  $E_3$ . Вышеописанные соображения позволяют качественно описать лишь однократный проход системы мимо положения абсолютного равновесия. В действительности перемагничивание слоев большой площади протекает путем размножения зародышей фазы обратной намагниченности и путем движения доменных стенок при росте зародышей. Если учесть этот процесс, то наличие зародыша в одном слое инициирует появление зародыша намагниченности в другом слое потому, что участки намагниченности соседних слоев связаны антиферромагнитным взаимодействием, к которому добавляется также магнитно-дипольное взаимодействие. Последнее связано с полями рассеяния и равно практически нулю в модели "макроспина", поскольку сводится к краевым эффектам. Если же имеются неоднородно намагниченные области, могут возникать эффекты избыточной концентрации зародышей намагниченности, что приводит к осцилляциям намагниченности.

5. Выводы. Спонтанные колебания макроскопической намагниченности наблюдались для систем с разной толщиной свободного слоя Со при температурах 50 и 100 К. Фазовый портрет осциллятора соответствует затухающим колебаниям. Осцилляции намагниченности обусловлены высокой скоростью зарождения фазы обратной намагниченности. Энергетический барьер для такого перехода системы, который соответствует одновременному перемагничиванию двух слоев, оказывается выше, чем энергия, необходимая для последовательного перемагничивания каждого из этих слоев по отдельности. Поэтому система сначала достигает метастабильного промежуточного по энергии состояния, а потом самопроизвольно переходит в состояние с меньшей энергией, но с большей намагниченностью. Этот процесс может повторяться благодаря взаимодействию зародышей намагниченности в соседних ферромагнитных слоях и связан с избыточной скоростью генерации термодинамически "невыгодных" зародышей.

Работа выполнена при поддержке гранта 3.1992.2017/4.6 в рамках конкурса научных проектов, выполняемых научными коллективами исследовательских центров и (или) научных лабораторий образовательных организаций высшего образования. Авторы благодарны проф. С. Манжин, Т. Фаше, А. Хамадех за предоставленные спиновые вентили и плодотворные дискуссии.

- S. I. Kiselev, J. C. Sankey, I. N. Krivorotov, N. C. Emley, R. J. Schoelkopf, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, Nature 425, 380 (2003).
- P. Tabor, V. Tiberkevich, A. Slavin, and S. Urazhdin, Phys. Rev. B 82, 020407(R) (2010).
- M. Forrester, F. Kusmartsev, and E. Kovacs, Phys. Rev. B 87, 174416 (2013).
- O. Koplak, A. Talatsev, Y. Lu, A. Hamadeh, P. Pirro, T. Hauet, R. Morgunov, and S. Mangin, J. Magn. Magn. Mater. 433, 91 (2017).

- S. J. Yung, S. H. Lim, and S.-R. Lee, AIP Advances 6, 025112 (2016).
- P. J. Chenetal, M. Zhu, S. Tibus, T. Dyer, J. Piccirillo, B. Ocker, and R. D. Shull, J. Phys. D: Appl. Phys. 50, 025006 (2017).
- Y. J. Chang, A. Canizo-Cabrera, V. Garcia-Vasquez, Y.-H. Chang, and T.-H. Wu, J. Appl. Phys. **113**, 17B909 (2013).
- R. Ranjbar, K. Suzuki, A. Sugihara, T. Miyazaki, Y. Ando, and S. Mizukami, Materials 8, 6531 (2015).
- P. Gargiani, R. Cuadrado, H. B. Vasili, M. Pruneda, and M. Valdivares, Nat. Commun. 8, 699 (2017).
- P. V. Lalithaa, P. Sambasiva Rao, and R. Ramaswamya, Chem. Phys. Lett. **201**, 559 (1993).
- L. Ofman, T. J. Wang, and J. M. Davila, arXiv:1205.5732 (2012).
- L. Thomas, J. Lüning, A. Scholl, F. Nolting, S. Anders, J. Stöhr, and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. 84, 3462 (2000).
- P. F. Carcia, M. Reilly, and Z. G. Li, IEEE Transactions on Magnetics 6, 4395 (1994).
- A. Talantsev, Y. Lu, T. Fache, M. Lavanant, A. Hamadeh, A. Aristov, O. Koplak, R. Morgunov, and S. Mangin, J. Phys.: Cond. Matt. **30**, 135804 (2018).
- R. Morgunov, A. Hamadeh, T. Fache, G. Lvova, O. Koplak, A. Talantsev, and S. Mangin, Superlattices and Microstructures **104**, 509 (2017).