

УДК 669.1'24'74:539.216.2:537.621

**ОДНОНАПРАВЛЕННАЯ АНИЗОТРОПИЯ В НАНОСТРУКТУРАХ  
С АНТИФЕРРОМАГНИТНЫМ СЛОЕМ  $Ni_xFe_yMn_z$**

**Блинов И.В., Криницина Т.П., Миляев М.А., Попов В.В., Проглядо В.В., Устинов В.В.**

*Институт Физики Металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, e-mail: blinov@imp.uran.ru*

В работе исследованы магнитные свойства наноструктур с антиферромагнитным сплавом  $Ni_xFe_yMn_z$  в зависимости от способа приготовления данного антиферромагнитного слоя. Рассмотрена возможность использования антиферромагнитного сплава  $Ni_xFe_yMn_z$  в качестве материала для закрепляющего слоя в спиновых клапанах.

**Ключевые слова:** однонаправленная анизотропия, магнитосопротивление, спиновый клапан, сплав NiFeMn

**UNIDIRECTIONAL ANISOTROPY IN NANOSTRUCTURES  
WITH ANTIFERROMAGNETIC  $Ni_xFe_yMn_z$  LAYER**

**Blinov I.V., Krinitsina T.P., Milyaev M.A., Popov V.V., Progljado V.V., Ustinov V.V.**

*Institute of Metal Physics n.a. M.N. Mikheev, Ural Branch of Russian Academy of Sciences, Ekaterinburg, e-mail: blinov@imp.uran.ru*

Magnetic properties of nanostructures including an antiferromagnetic  $Ni_xFe_yMn_z$  alloy have been studied for various modes of this layer preparation. The possibility for application of the antiferromagnetic  $Ni_xFe_yMn_z$  alloy as a material of the pinning layer in spin valves is discussed.

**Keywords:** unidirectional anisotropy, bilayers, magnetoresistance, spin valve, NiFeMn alloy

Эффект однонаправленной анизотропии является основой для создания устройств, таких как датчики магнитного поля, магнитная память, широко используемых в различных технических приложениях. Эффект находит применение в спиновых клапанах – системах, состоящих из чередующихся достаточно тонких ферромагнитных (ФМ) и антиферромагнитных (АФ) слоев, между которыми реализуется обменное взаимодействие. Петля магнитного гистерезиса для образцов с такой слоистой структурой оказывается смещенной по оси магнитного поля ( $H$ ). Смещение центра петли гистерезиса относительно нуля характеризуется обменным сдвиговым полем ( $H_{ex}$ ). [1] К важным характеристикам, определяющим эффективную работу спиновых клапанов, относятся оптимальное значение обменного сдвигового поля ( $H_{ex}$ ) и высокое значение температуры блокировки ( $T_b$ ) – критической температуры, при которой величина  $H_{ex}$  для бислоя ФМ-АФ становится равной нулю.

Перспективы применения спиновых клапанов побудили поиск новых металлических антиферромагнетиков с высокой температурой Нееля ( $T_N$ ). За последнее время исследовано достаточно много антиферромагнитных материалов, демонстрирующих в контакте с ФМ эффект однонаправленной анизотропии. Однако металлических антиферромагнитных материалов, пригодных для использования в спиновых клапанах, не так много. Боль-

шинство из них – двойные сплавы включают марганец как основной элемент (FeMn, IrMn, CrMn, NiMn, PtMn).

В свою очередь тройные сплавы металлической системы Ni-Fe-Mn также могут быть использованы в качестве закрепляющих слоев в спиновых клапанах. Объемная фазовая диаграмма показывает, что неупорядоченные твердые растворы в системе Ni-Fe-Mn с определенной концентрацией компонент могут быть антиферромагнитными при температурах выше комнатной. [2] Кроме того, в этой системе возможно образование упорядоченной антиферромагнитной фазы. В частности, в [3] при отжиге бислоев пермаллой – марганец путем диффузии марганца по границам зерен пермаллоя была получена упорядоченная антиферромагнитная фаза NiFeMn. В подобных бислоях, прошедших особую термомагнитную обработку, температура блокировки может достигать 330 °C [4], что заметно выше температуры Нееля неупорядоченного твердого раствора в системе Ni-Fe-Mn ( $T_N \cong 230$  °C).

В настоящей работе ставилась задача исследовать магнитные свойства наноструктур, включающих антиферромагнитный сплав  $(NiFe)_{1-x}Mn_x$ , в зависимости от способа приготовления данного антиферромагнитного слоя. Рассмотреть возможность применения антиферромагнитного сплава  $(NiFe)_{1-x}Mn_x$  в качестве материала для закрепляющего слоя в спиновых клапанах.

### Материалы и методы исследования

Наноструктуры, включающие неупорядоченный АФ сплав  $(\text{NiFe})_{1-x}\text{Mn}_x$ , приготовлены методом магнетронного напыления на постоянном токе с помощью напылительной системы MPS-4000-C6 (Ulvac) на подложки из монокристаллического сапфира ( $10\bar{1}2$ )  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и стекла (Corning). Для создания однонаправленной анизотропии в процессе напыления наноструктур было приложено магнитное поле напряженностью 110 Э, создаваемое с помощью постоянных магнитов. Напыление пленок происходило при комнатной температуре, фиксированном давлении аргона 0,1 Па и мощности магнетронов 100 Вт. Базовое остаточное давление в камере напыления составляло  $P = 10^{-7}$  Па. Определение скорости напыления каждого материала производилась с помощью оптического профилометра Zygo NewView 7300 по известному времени напыления и измеренной на профилометре высоте «ступеньки».

Образцы  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{77}\text{Fe}_{23}$  (5 нм)/ $\text{Mn}$ (50 нм)/ $\text{Ni}_{77}\text{Fe}_{23}$  (30 нм)/ $\text{Ta}$ (5 нм) приготовлены методом электронно-лучевого напыления на установке Varian при давлении  $10^{-5}$  Па после предварительного прогрева подложки при температуре  $250^\circ\text{C}$  в течение 1 часа. Скорость осаждения материалов контролировалась при помощи встроенного кварцевого толщиномера. Термомагнитная обработка наноструктур для формирования однонаправленной анизотропии выполнялась при давлении  $10^{-4}$  Па в постоянном магнитном поле 2 кЭ, приложенном в плоскости образца при температуре  $260^\circ\text{C}$  в течение 4 часов. Направление магнитного поля при измерении петель гистерезиса совпадало с направлением поля при отжиге.

Магнитные свойства наноструктур измерены с использованием вибрационного магнитометра при комнатной температуре в диапазоне магнитных полей  $\pm 5$  кЭ. Температурная зависимость поля обменного сдвига измерена при помощи СКВИД-магнитометров MPMS-5XL и MPMS-XL-7 (Quantum Design) с высокотемпературной приставкой, в интервале температур  $27$ - $257^\circ\text{C}$ . Коэрцитивная сила  $H_c$  и обменное сдвиговое поле  $H_{ex}$  определялись из петель гистерезиса как половина ширины петли и сдвиг

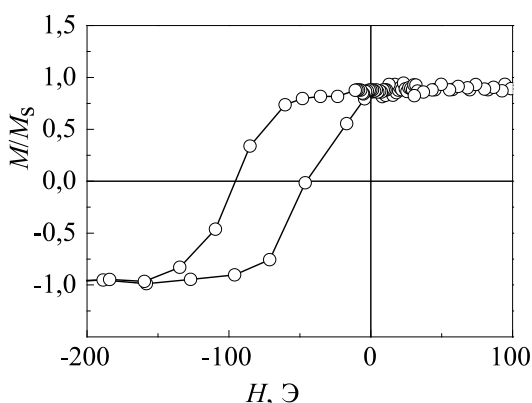
центра петли гистерезиса относительно нуля по оси магнитного поля. Сопротивление образцов измерялось на постоянном токе стандартным четырехконтактным методом при протекании тока в плоскости слоев. Магнитное поле напряженностью до 2 кЭ было направлено в плоскости пленки перпендикулярно току. Магнитосопротивление определялось как  $\Delta R/R_s = (R(H) - R_s)/R_s * 100\%$ , где  $R_s$  – сопротивление в поле магнитного насыщения.

Структура пленок исследовалась на просвечивающем электронном микроскопе Philips CM-30. Для изготовления образцов для просвечивающей микроскопии использовалась специальная методика, заключающаяся в скалывании подложки под определенным углом с целью получения кусочка пленки, выступающего за край подложки.

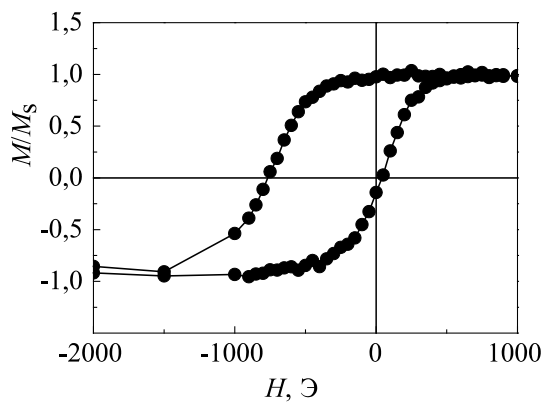
### Результаты исследования и их обсуждение

На рис. 1 показаны измеренные вдоль оси легкого намагничивания петли гистерезиса образцов 1) стекло/ $\text{Ta}$ (5 нм)/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (10 нм)/ $\text{Ni}_{13}\text{Fe}_6\text{Mn}_{80}$ (20 нм)/ $\text{Ta}$ (2 нм), приготовленного магнетронным напылением и приготовленного электронно-лучевым напылением образца 2)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{77}\text{Fe}_{23}$ (5 нм)/ $\text{Mn}$ (50 нм)/ $\text{Ni}_{77}\text{Fe}_{23}$ (30 нм)/ $\text{Ta}$ (5 нм) после отжига в магнитном поле при температуре  $260^\circ\text{C}$  в течение 4 часов.

При термомагнитной обработке происходит возникновение упорядоченной антиферромагнитной фазы  $\text{NiFeMn}$ , результатом чего является смещение петли гистерезиса и увеличение коэрцитивной силы в исследуемом образце. Электронно-микроскопическое исследование также подтверждает образование упорядоченной антиферромагнитной фазы при отжиге. Об этом свидетельствует появление сверхструктурных колец на электронограммах образцов, в которых наблюдался обменный сдвиг [5].



а



б

Рис. 1. петли гистерезиса образцов: а) стекло/ $\text{Ta}$ (5 нм)/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (10 нм)/ $\text{Ni}_{13}\text{Fe}_6\text{Mn}_{80}$ (20 нм)/ $\text{Ta}$ (2 нм), б)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{77}\text{Fe}_{23}$ (5 нм)/ $\text{Mn}$ (50 нм)/ $\text{Ni}_{77}\text{Fe}_{23}$ (30 нм)/ $\text{Ta}$ (5 нм) после термомагнитной обработки

Смещение петли гистерезиса образца 1 составляет  $H_{ex} = 130$  Э, а  $H_{ex}$  образца 2 = 380 Э. При этом энергия обменного взаимодействия на границе раздела ФМ/АФ,  $J_{ex} = M_{ФМ} \cdot t_{ФМ} \cdot H_{ex}$  [1] ( $M_{ФМ}$  – намагниченность насыщения ферромагнетика,  $t_{ФМ}$  – толщина ФМ), составляет  $J_{ex} = 0,059$  эрг/см<sup>2</sup>, что сопоставимо с  $J_{ex} = 0,051$  при использовании АФ сплава  $Ni_{19}Fe_9Mn_{69}$  [6]. Значительно более высокое значение  $J_{ex} = 0,27$  эрг/см<sup>2</sup> получено при использовании упорядоченной АФ фазы NiFeMn. Детальные расчеты  $J_{ex}$  приведены в работе [5]

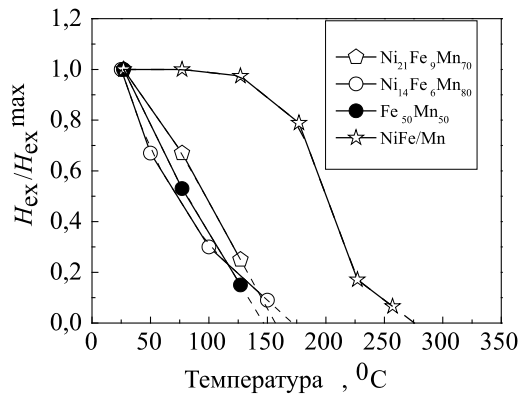


Рис. 2. Зависимость  $H_{ex}$  от температуры для различных видов АФ

На рис. 2 показаны температурные зависимости  $H_{ex}$  образцов с различными АФ. Температура блокировки  $T_b$ , определенная экстраполяцией составляет от 145 до 270 °C в зависимости от АФ материала. При этом, минимальная  $T_b = 145$  °C зафиксирована для образца  $Al_2O_3/Ta(5\text{ нм})/Ni_{80}Fe_{20}(20\text{ нм})/Fe_{50}Mn_{50}(50\text{ нм})/Ta(5\text{ нм})$ . Немного большая  $T_b = 155$  °C и 170 °C получена для  $Al_2O_3/Ta(5\text{ нм})/Ni_{80}Fe_{20}(20\text{ нм})/Ni_{19}Fe_9Mn_{69}(50\text{ нм})/$

$Ta(5\text{ нм})$  и стекло  $/Ta(5\text{ нм})/Ni_{80}Fe_{20}(10\text{ нм})/Ni_{13}Fe_6Mn_{80}(20\text{ нм})/Ta(2\text{ нм})$ , соответственно. Повышение  $T_b$  с 15 °C до 170 °C в образцах, включающих сплав  $(NiFe)_{1-x}Mn_x$  обусловлено, большим содержанием марганца в АФ слое, что согласуется с магнитной фазовой диаграммой системы NiFeMn. Указанные значения  $T_b$  несколько ниже температуры Нееля  $T_N$  объемного сплава NiFeMn [2], состав которого близок к изучаемому нами. Отметим, что условие, экспериментально определенное,  $T_b < T_N$  для бислоев ФМ/АФ является типичным, а величина  $T_b$  зависит от толщины, размера зерна и микроструктуры пленки АФ [7]. Значительно более высокой  $T_b \approx 270$  °C обладает образец  $Al_2O_3/Ni_{77}Fe_{23}(5\text{ нм})/Mn(50\text{ нм})/Ni_{77}Fe_{23}(30\text{ нм})/Ta(5\text{ нм})$  после термомагнитной обработки. Полученное значение заметно превышает  $T_b$  для системы ФМ/АФ, включающей антиферромагнитный слой  $Fe_{50}Mn_{50}$  и сопоставимо с  $T_b$  системы с АФ слоем IrMn (240–290 °C), широко используемой при разработке элементов магнитной памяти (MRAM) [1, 8]. Также отметим, что после измерений петли гистерезиса до 127 °C были проведены измерения при комнатной температуре. Эти исследования показали, что смещение петли гистерезиса обратимо. Кроме того, при дальнейшем нагреве до 257 °C магнитный момент образца не изменился. Таким образом, полученная упорядоченная АФ фаза NiFeMn может быть перспективной для использования в спиновых клапанах вследствие высокой температуры блокировки и высоких значений обменного сдвигового поля. На её основе могут быть созданы спиновые клапаны с повышенной термостабильностью и улучшенными гистерезисными характеристиками, например, по методике, описанной в работе [9].

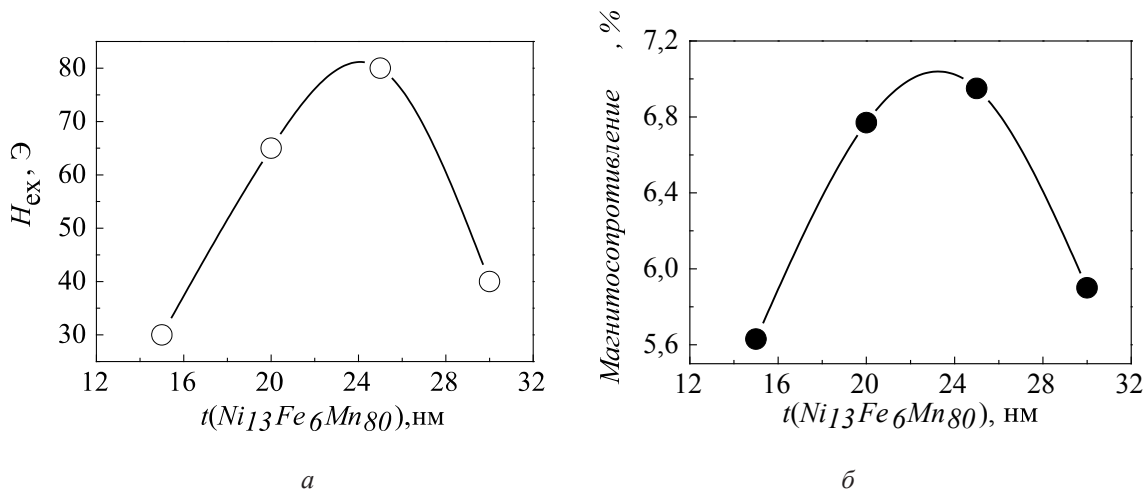


Рис. 3. (а) Зависимость  $H_{ex}$  и (б) магнитосопротивления от толщины АФ слоя  $Ni_{13}Fe_6Mn_{80}$

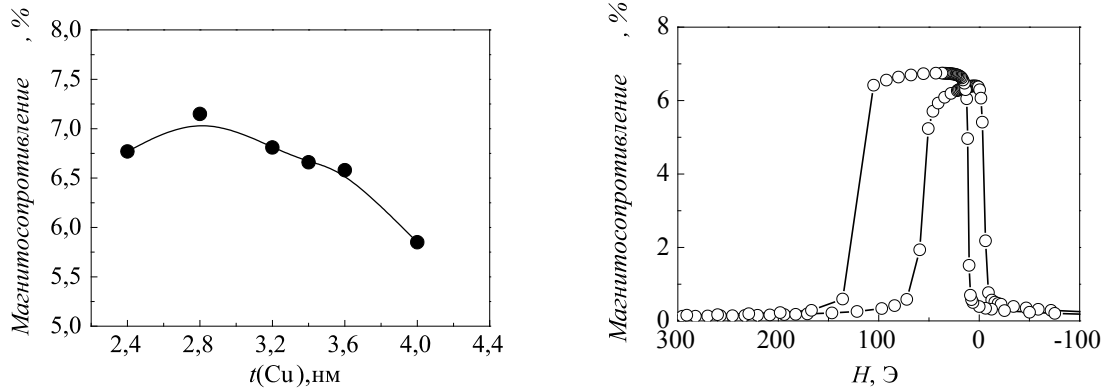


Рис. 4. а) зависимость магнитосопротивления спинового клапана стекло /Ta(5 нм)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(2 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Cu(*t*<sub>Cu</sub>)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub>(25 нм)/Ta(3 нм) от, *t*<sub>Cu</sub>, б) Полевая зависимость магнитосопротивления спинового клапана стекло /Ta(5 нм)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(2 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Cu(2,8 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub>(25 нм)/Ta(3 нм)

На рис. 3 показаны зависимости  $H_{ex}$  и магнитосопротивления от толщины АФ слоя Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub> спинового клапана стекло /<sup>13</sup>Ta(5 нм)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(2 нм)//Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Cu(2,4 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub>(*t*<sub>Ni13Fe6Mn80</sub>)/Ta(3 нм). При изменении толщины *t*<sub>Ni13Fe6Mn80</sub> = (15; 20; 25; 30) нм были получены следующие значения ( $\Delta R/R_s$ ) = (5,63; 6,77; 6,95; 5,89); % и  $H_{ex}$ : = (30; 65; 80; 30) Э, соответственно. Оптимальная толщина АФ слоя, при которой наблюдаются максимальные значения магнитосопротивления и  $H_{ex}$  составляет *t*<sub>Ni13Fe6Mn80</sub> = 25 нм.

На рис. 4, а. приведена зависимость магнитосопротивления спинового клапана стекло /Ta(5 нм)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(2 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Cu(*t*<sub>Cu</sub>)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub>(25 нм)/Ta(3 нм) от толщины медной прослойки, *t*<sub>Cu</sub>. Полученная зависимость имеет немонотонный характер и качественно согласуется с данными работы [10]. При увеличении толщины меди происходит сначала рост и затем уменьшение магнитосопротивления. Максимальному значению ( $\Delta R/R_s$ ) = 7,15% соответствует *t*<sub>Cu</sub> = 2,8 нм. Соответствующая полевая зависимость магнитосопротивления показана на рис. 4, б.

Для сравнения функциональных характеристик спиновых клапанов, содержащих разные АФ материалы были изготовлены образцы стекло /Ta(5 нм)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(2 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Cu(3,6 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/АФ(25 нм)/Ta(3 нм), где в качестве АФ закрепляющего слоя использован сплав Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub> и Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>. Соответствующие полевые зависимости магнитосопротивления показаны на рис.5. Полученная величина магнитосопротивления равна 6,67% и 6,40% при ис-

пользовании Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub> и Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>, соответственно. Ширина петли гистерезиса свободного слоя  $\Delta H^{free}$  (Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub>) = 17 Э,  $\Delta H^{free}$  (Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>) = 14 Э. При этом,  $H_{ex}$  = 88 закрепленного слоя при использовании Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub> немного меньше  $H_{ex}$  = 136 Э при использовании АФ слоя Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>. Полученные данные демонстрируют возможность применения неупорядоченного сплава Ni<sub>13</sub>Fe<sub>6</sub>Mn<sub>80</sub> в качестве закрепляющего слоя в спиновых клапанах. Функциональные характеристики данных наноструктур не уступают спиновым клапанам с АФ слоем Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>.

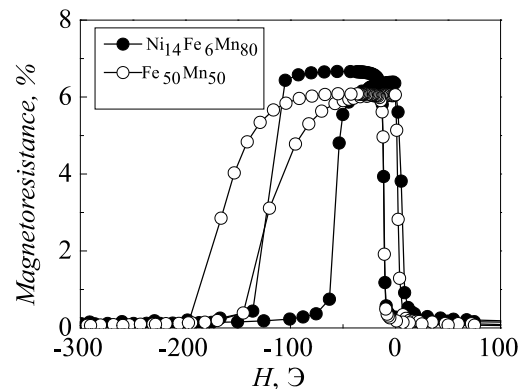


Рис. 5. Полевая зависимость магнитосопротивления спинового клапана стекло /Ta(5 нм)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(2 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/Cu(3,6 нм)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5,5 нм)/АФ(25 нм)/Ta(3 нм)

#### Заключение

В работе исследованы магнитные свойства наноструктур, включающих антиферромагнитный сплав (NiFe)<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>. Максимальной  $J_{ex}$  = 0,27 эрг/см<sup>2</sup> и  $T_b \cong 270$  °С

обладает образец, включающий упорядоченную АФ фазу NiFeMn, полученной в результате термомагнитной обработки бислоев марганец/пермаллой.

Характеристики спиновых клапанов с АФ слоем  $\text{Ni}_{13}\text{Fe}_6\text{Mn}_{80}$  сравнимы с аналогами при использовании АФ слоя  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ .

*Работа выполнена в рамках государственного задания по теме «Спин» № г/р 01201463330 при поддержке программы фундаментальных исследований УрО РАН (проект № 15-9-2-44) и НИИ № 1540.2014.2.*

#### Список литературы

1. Coehoorn R. Giant magnetoresistance and magnetic interaction in exchange biased spin valves. // In Novel Magnetoelectronic Materials and Devices: Handbook of Magnetic Materials. – Amsterdam.: Elsevier, 2003. – P. 1–198.
2. Men'shikov A.Z., Kazantsev V.A., and N.N. Kuz'min. Amorphous magnetism in iron–nickel manganese alloys // Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. – 1976. – № 23 – P. 6–10.
3. Blinov I.V., Krinitsina T.P., Matveev S.A., Milyaev M.A., Sedova P.N., Popov V.V., Ustinov V.V.. Effect of thermomagnetic treatment on the magnetic properties of permalloy/manganese bilayer films // Phys. Met. Metallogr. – 2011. – № 112 – P. 350–355.
4. Glazer A.A., Potapov A.P., Tagirov R.P., Uryasheva L.D., and Ya.S. Shur. Temperature dependence of magnetic properties of thin permalloy–manganese films with exchange anisotropy // Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. – 1967. – № 31 – P. 735–738.
5. Blinov I.V., Krinitsyna T.P., Korolev A.V., Matveev S.A., Arkhipova N.K., Milyaev M.A., Popov V.V., Ustinov V.V. Formation of Ordered NiFeMn Antiferromagnetic Phase in Permalloy/Manganese Bilayers in the Course of Thermomagnetic Treatment // Phys. Met. Metallogr. – 2014. – № 115 – P. 335–341.
6. Blinov I.V., Korolev A.V., T.P. Krinitsina, S.A. Matveev, M.A. Milyaev, V.V. Popov, V.V. Ustinov, Investigation of nanostructures based on Ni80Fe20/(Ni80Fe20)20Mn80 bilayers with a unidirectional exchange anisotropy. // Phys. Met. Metallogr. – 2012. – № 113 – P. 749–755.
7. Nogues J., Schuller Ivan K. Exchange Bias // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. – Vol. 192. – P. 203–232.
8. Freitas P.P., Ferreira R., Cardoso S. Cardoso F. Magnetoresistive sensors. // J. Phys.: Condens. Matt. – 2007. – Vol. 19. № 16. – P. 165221-1–21.
9. Svalov A.V., Vas'kovskii V.O., and Yu.M. Yarmoshenko, Production and study of spin valve structures on the permalloy film base. // Fiz. Met. Metalloved. – 1995. № 79 – P. 270–273.
10. Ustinov V.V., Milyaev M.A., L.I. Naumova, V.V. Proglyado, N.S. Bannikova, T.P. Krinitsina, High Sensitive Hysteresisless Spin Valve with a Composite Free Layer. // Phys. Met. Metallogr. – 2012. – № 113 – P. 341–348.