

具有不同交换偏置方向的外延FeGa/IrMn双层膜的磁各向异性与磁化翻转

孟婧 冯心薇 邵倾蓉 赵佳鹏 谢亚丽 何为 詹清峰

Magnetic anisotropy and reversal in epitaxial FeGa/IrMn bilayers with different orientations of exchange bias

Meng Jing Feng Xin-Wei Shao Qing-Rong Zhao Jia-Peng Xie Ya-Li He Wei Zhan Qing-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 127501 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220166

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220166>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

双二次交换作用和各向异性对反铁磁体相变温度的影响

Effect of biquadratic exchange and anisotropy on the critical temperature of antiferromagnet

物理学报. 2020, 69(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200077>

N⁺注入修复外延Fe膜面内六重磁对称

Recovering in-plane six-fold magnetic symmetry of epitaxial Fe films by N⁺ implantation

物理学报. 2019, 68(12): 126102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190131>

三端磁隧道结的稳定性分析

Stability analysis in three-terminal magnetic tunnel junction

物理学报. 2019, 68(20): 207201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190927>

多铁异质结构中逆磁电耦合效应的研究进展

Progress of converse magnetoelectric coupling effect in multiferroic heterostructures

物理学报. 2018, 67(15): 157513 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181272>

二维双金属铁磁半导体CrMoI₆的电子结构与稳定性

Electronic structure and stability of two-dimensional bimetallic ferromagnetic semiconductor CrMoI₆

物理学报. 2021, 70(20): 207301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210949>

Verwey相变处Fe₃O₄的结构、磁性和电输运特性

Structure, magnetic and transport properties of Fe₃O₄ near verwey transition

物理学报. 2020, 69(4): 040505 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191763>

具有不同交换偏置方向的外延 FeGa/IrMn 双层膜的磁各向异性与磁化翻转*

孟婧¹⁾ 冯心薇¹⁾ 邵倾蓉¹⁾ 赵佳鹏¹⁾ 谢亚丽²⁾ 何为³⁾ 詹清峰^{1)†}

1) (华东师范大学物理与电子科学学院, 极化材料与器件教育部重点实验室, 上海 200241)

2) (中国科学院宁波材料技术与工程研究所, 中国科学院磁性材料与器件重点实验室, 宁波 315201)

3) (中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

(2022 年 1 月 23 日收到; 2022 年 2 月 26 日收到修改稿)

采用磁控溅射方法在 MgO(001) 单晶衬底上制备了交换偏置分别沿着 FeGa[100] 和 [110] 方向的 FeGa/IrMn 外延交换偏置双层膜, 研究了交换偏置取向对磁化翻转过程与磁化翻转场的影响. 铁磁共振场的角度依赖关系的测量与拟合, 表明样品存在不同取向的四重对称磁晶各向异性、单向交换磁各向异性和单轴磁各向异性的叠加. 矢量磁光克尔效应测量表明交换偏置沿着 [100] 方向的样品在不同磁场方向下表现矩形、非对称和单边两步磁滞回线; 交换偏置沿着 [110] 方向的样品在不同磁场方向下表现单边两步和双边两步磁滞回线. 考虑不同交换偏置方向的畴壁形核和位移模型, 能够很好地解释磁化翻转路径随磁场方向的变化规律和拟合磁化翻转场的角度依赖关系, 表明交换偏置方向的改变使得畴壁形核能发生显著变化.

关键词: 外延交换偏置, 磁各向异性, 磁化翻转, 畴壁形核与位移

PACS: 75.30.Et, 75.30.Gw, 75.60.-d, 75.60.Ch

DOI: 10.7498/aps.71.20220166

1 引言

交换偏置 (exchange bias, EB) 效应是指由铁磁层和反铁磁层界面交换耦合作用导致磁滞回线偏离磁场零点的现象^[1,2], 自 1956 年被发现以来, 一直受到众多研究者的关注^[3]. 作为自旋电子器件的核心, EB 效应已广泛应用于基于自旋阀与磁隧道结的磁传感器及磁随机存储器中^[4-6]. 目前, 已广泛研究的多晶 EB 体系不仅磁滞回线偏离零点并伴随着矫顽场增加^[7,8], 界面交换耦合作用给铁磁层施加单方向磁各向异性 K_{eb} , 并伴随诱导单轴磁各向异性 K_{u} , 考虑磁各向异性性能和外加磁场所产生的 Zeeman 能, 利用一致转动反磁化机制可很好地解释薄膜矫顽场的角度依赖关系. Jiménez 等^[9]通过改变冷却场获得 K_{eb} 和 K_{u} 非共线的 Co/IrMn

多晶 EB 双层膜, 表现出非对称的矫顽场和 EB 的角度依赖关系, 能够使用一致转动模型很好地解释.

前期研究中, 单晶外延 EB 双层膜由于制备困难从而被关注得较少, 外延 EB 体系有着锐利的铁磁/反铁磁界面以及有序的界面原子与磁矩的排列, 是研究 EB 效应的理想体系^[10,11]. EB 效应产生 K_{eb} 和 K_{u} , 与外延铁磁膜本征磁晶各向异性 K_1 共同决定着外延 EB 体系的磁化翻转过程与反磁化机制^[12,13]. Zhan 等^[14]通过改变反铁磁层厚度来改变 MnPd/Fe 外延 EB 双层膜的界面交换耦合强度, 在不同磁场方向下观察到矩形、非对称、单边两步和双边两步磁滞回线, 提出了 EB 体系的畴壁形核与位移模型, 能够定量解释外延 EB 异质结的磁化翻转过程和磁化翻转场的角度依赖关系. Zhang 等^[15]通过倾斜溅射改变 K_{u} 的大小和方向, 在 FeGa/IrMn 外延 EB 双层膜中实现了 $K_{\text{u}}/K_{\text{eb}}$ 和 $K_{\text{u}} \perp K_{\text{eb}}$,

* 国家自然科学基金 (批准号: 12174103, 11874150) 和上海市科委科技基金 (批准号: 21JC1402300) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: qfzhan@phy.ecnu.edu.cn

获得了具有 EB 的三步磁化翻转与非对称多步磁化翻转. 由此可见, 界面交换耦合强度以及 K_u 和 K_{eb} 的相对取向对于外延 EB 双层膜的磁化翻转过程均有显著影响. 目前, 人们对于 K_{eb} 与 K_1 的相对取向对外延 EB 双层膜磁化翻转的影响还缺乏足够的认识和研究. 本文利用磁控溅射镀膜设备在 MgO(001) 衬底上外延生长了单晶 FeGa/IrMn 交换偏置异质结, 通过调整生长时外加磁场的方向改变 K_{eb} 方向, 使其分别沿着 FeGa[100] 和 [110] 的方向. 通过测量铁磁共振场的角度依赖的变化确定磁各向异性的取向与强度. 矢量磁光克尔效应 (magneto optic Kerr effect, MOKE) 测量表明 K_{eb} 方向的改变使得不同磁场方向下的磁化翻转过程发生明显改变. 考虑不同 K_{eb} 方向的畴壁形核和位移模型能够很好地解释磁化翻转场的角度依赖关系, 表明 K_{eb} 方向的改变使得畴壁形核能发生显著变化.

2 实验

利用超高真空磁控溅射系统 (本底真空优于 1×10^{-8} Torr ($1 \text{ Torr} = 1.33322 \times 10^2 \text{ Pa}$)) 在双面抛光 MgO(001) 衬底上制备了高质量外延 FeGa(10 nm)/IrMn(10 nm) 交换偏置异质结. 制备过程中利用永磁体分别沿 MgO[110] 和 [010] 方向原位施加 200 Oe ($1 \text{ Oe} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$) 的磁场诱导不同取向的 EB 场. 在进行薄膜生长之前, 先将 MgO 衬底置于真空腔室内在 600°C 下退火 1 h. 然后将衬底温度保持在 300°C , 通过溅射 Fe₈₁Ga₁₉ 合金靶材制备 FeGa 铁磁层, 原位退火 1 h 后, 通过溅射 Ir₂₀Mn₈₀ 合金靶材制备 IrMn 反铁磁层, 再次退火 1 h 后, 自然冷却至室温, 生长 3 nm 的 Ta 保护层防止样品氧化. 另外, 使用相同的制备工艺, 在 MgO(001) 衬底上生长了没有反铁磁层的 FeGa 外延薄膜, 作为参比样品. 薄膜溅射速率通过 X 射线

反射 (X-ray reflectivity, XRR) 技术预先校准, 并通过控制沉积时间来控制膜厚. 使用 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD) θ - 2θ 扫描和 φ 扫描对样品结构与外延关系进行表征. 使用矢量 MOKE 测试系统表征样品在不同外磁场方向下的磁化翻转场与磁化翻转过程. 使用电子自旋共振谱仪实现了铁磁共振图谱的测量, 得到不同外磁场方向下的共振场, 通过拟合获得样品的磁各向异性参数. 所有测试均在室温下进行.

3 实验结果与讨论

图 1(a) 是 FeGa/IrMn 异质结 X 射线衍射图, 衬底与薄膜仅表现出 (002) 峰, 表明了 FeGa 和 IrMn 层为 (002) 晶面取向生长. 图 1(b) 是固定 2θ 在 FeGa(110) 反射面处 FeGa/IrMn 异质结的 X 射线面内 φ 扫描图, FeGa 层与 MgO 衬底均出现 4 个间隔为 90° 的衍射峰, 表明 FeGa 层很好地外延生长在 MgO 单晶衬底上. FeGa 薄膜与衬底峰相互间隔 45° , 表明外延生长是通过面内旋转 45° 的方式, 外延关系为 MgO(001)[110]//FeGa(001)[100]. 没有观察到 IrMn 层的 X 射线面内 φ 扫描峰, 这是由于 IrMn 与 FeGa 层之间即使通过面内旋转 45° 的生长方式, 晶格失配度依然高达 7.9% (IrMn 和 FeGa 的晶格常数分别为 $0.38, 0.29 \text{ nm}$), 超过了外延生长通常需要晶格失配度小于 5% 的临界值^[16]. 因此 IrMn 层虽然表现出 (002) 面的取向生长, 但是并不能在薄膜面内形成很好的外延生长.

单晶外延的 FeGa 层在宏观上表现出与体心立方 (BCC) 晶体结构相对应的磁晶各向异性, 在薄膜面内表现出沿 FeGa<100> 方向的四重对称磁各向异性 K_1 . 由于 FeGa 铁磁磁矩与 IrMn 反铁磁磁矩通过界面交换耦合, 在 FeGa 层内会产生一个单方向的交换磁各向异性 K_{eb} , 通过在薄膜生长过

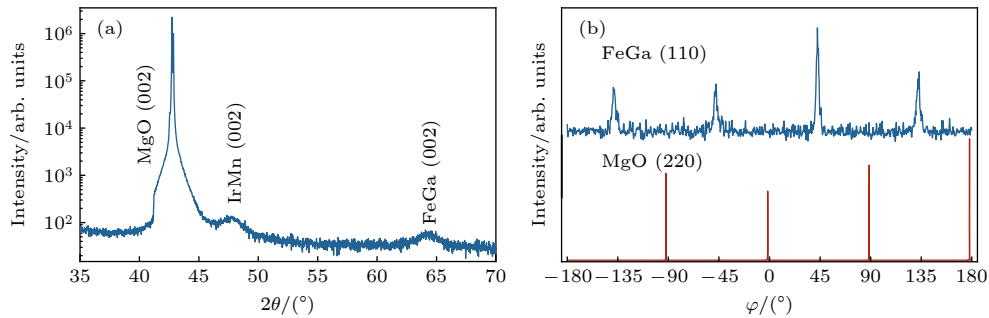


图 1 样品 FeGa/IrMn/MgO(001) 的 X 射线衍射图 (a) θ - 2θ 扫描图; (b) 面内 φ 扫描图

Fig. 1. X-ray diffraction measurement for the sample of FeGa/IrMn/MgO(001): (a) θ - 2θ scan; (b) in-plane φ -scan.

程中原位施加沿着 MgO[110](对应 FeGa[100]) 和 MgO[010](对应 FeGa[110]) 方向的磁场, 从而可以获得相应取向的 K_{eb} . 此外, 由于 IrMn 非补偿界面是反铁磁磁结构, 因此通常会伴随产生 1 个与 K_{eb} 方向相同的单轴磁各向异性 K_{u} ^[17–19]. 样品的磁各向异性参数可通过测试并拟合铁磁共振场的角度依赖关系定量获得. 图 2(a) 和图 2(b) 分别是 FeGa 单层膜和 K_{eb} 沿着 FeGa[100] 方向的 FeGa/IrMn 双层膜在外加磁场相对 FeGa[100] 方向的夹角 $\varphi_H = 0^\circ, 30^\circ$ 和 45° 时的代表性铁磁共振微分吸收谱, 使用的微波频率 $f = 9.31$ GHz. 由于 IrMn 在室温下处于反铁磁态, 因此在 0—2500 Oe 的测试磁场范围内只能检测到铁磁层 FeGa 的信号, 吸收峰的位置随着 φ_H 的变化而变化. 铁磁共振谱线信号可以分解为洛伦兹反对称和对称分量,

$$I(H) = a \frac{\Delta H(H - H_r)}{4[(H - H_r)^2 + \Delta H^2]^2} + b \frac{\Delta H^2 - 4(H - H_r)^2}{16[(H - H_r)^2 + \Delta H^2]^2}, \quad (1)$$

其中, a 和 b 分别是反对称和对称系数, H_r 是共振场, ΔH 是共振线宽. 利用 (1) 式可以很好地拟合不同磁场方向下的铁磁共振微分谱线, 获得铁磁共振场^[20].

图 2(c) 和图 2(d) 分别是 FeGa 单层膜和 $K_{\text{eb}}//[100]$ 的 FeGa/IrMn 双层膜 H_r 的角度依赖关系. 对于 FeGa 单层膜, H_r 随 φ_H 的变化表现出了很好的四重对称性, 在 $\varphi_H = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ 和 270° 出现极小值, 在 $\varphi_H = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ$ 和 315° 出现极大值, 表明 FeGa 薄膜的易磁化轴沿着 $\langle 100 \rangle$ 方向, 难磁化轴沿着 $\langle 110 \rangle$ 方向. 对于 $K_{\text{eb}}//[100]$ 的 FeGa/IrMn 样品, H_r 在 $\varphi_H = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ 和 270° 表现四重对称极小值, 由于诱导的 K_{eb} 沿着 $[100]$ 方向, 使得 H_r 在 $\varphi_H = 0^\circ$ 处表现为全局极小值. 对于 $K_{\text{eb}}//[110]$ 的样品, H_r 在 $\varphi_H = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ 和 270° 表现为极小值, 在 $\varphi_H = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ$ 和 315° 表现为极大值, 在 4 个极大值中, 由于诱导的 K_{eb} 沿着 $[110]$ 方向, 使得 H_r 在 $\varphi_H = 45^\circ$ 处的值相对较小. H_r 随 φ_H 的变化可以使用 Kittel 方程进行拟合^[21,22]:

$$\left(\frac{2\pi f}{\gamma}\right)^2 = \left[H_r + 4\pi M + \frac{2K_{\text{u}}}{M} \cos 2(\varphi_H - \beta) + \frac{K_1}{2M} (3 + \cos 4\varphi_H) + \frac{K_{\text{eb}}}{M} \cos(\varphi_H - \beta) \right] \times \left[H_r + \frac{2K_1}{M} \cos 4\varphi_H + \frac{2K_{\text{u}}}{M} \cos 2(\varphi_H - \beta) + \frac{K_{\text{eb}}}{M} \cos(\varphi_H - \beta) \right], \quad (2)$$

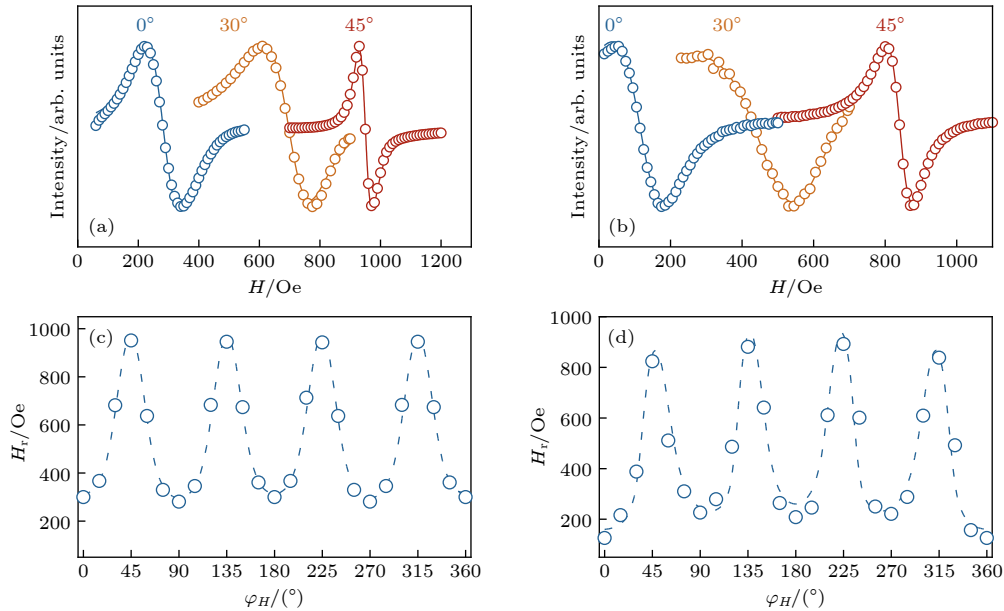


图 2 (a) FeGa 单层膜和 (b) $K_{\text{eb}}//[100]$ 的 FeGa/IrMn 双层膜在 $\varphi_H = 0^\circ, 30^\circ, 45^\circ$ 时的代表性铁磁共振微分吸收谱; (c), (d) 相应的共振场 H_r 随 φ_H 的变化关系 (空心点为实验值, 实线 (a), (b) 和虚线 (c), (d) 为拟合曲线)

Fig. 2. Representative ferromagnetic resonance derivative absorption spectra for (a) FeGa single layer and (b) FeGa/IrMn bilayer with $K_{\text{eb}}//[100]$ measured at $\varphi_H = 0^\circ, 30^\circ, 45^\circ$; (c), (d) the corresponding resonance field H_r as a function of φ_H (Open dots are the experimental data, solid (a), (b) and dashed (c), (d) lines are the theoretical fitting results).

其中 γ 是旋磁比, M 是磁化强度; β 是 K_{cb} 和 K_{u} 的方向, 对于 $K_{\text{cb}}//[100]$ 的样品, $\beta=0^\circ$; 对于 $K_{\text{cb}}//[110]$ 的样品, $\beta=45^\circ$. 利用(2)式可以很好地拟合 H_{r} 随 φ_H 的变化关系. 对于FeGa单层膜, 通过拟合得到磁晶各向异性场 $2K_1/M=341.8\text{ Oe}$, 单轴各向异性场 $2K_{\text{u}}/M$ 是由于生长或衬底诱导的, $2K_{\text{u}}/M=8.6\text{ Oe}$ [23]. 对于 $K_{\text{cb}}//[100]$ 的FeGa/IrMn样品, 拟合得到 $2K_1/M=344.6\text{ Oe}$, $2K_{\text{u}}/M=12.4\text{ Oe}$, 以及EB场 $K_{\text{cb}}/M=34.5\text{ Oe}$. 对于 $K_{\text{cb}}//[110]$ 的样品, 拟合得到 $2K_1/M=345.2\text{ Oe}$, $2K_{\text{u}}/M=13.4\text{ Oe}$, $K_{\text{cb}}/M=34.0\text{ Oe}$. FeGa层的磁晶各向异性为内禀属性, 基本保持不变, 与FeGa块体材料符合得较好 [24]. 两个FeGa/IrMn异质结样品的EB场与单轴磁各向异性虽然取向不同, 但是大小基本相同.

使用矢量MOKE测试系统表征FeGa/IrMn异质结在不同外磁场方向下的磁化翻转场与磁化翻转过程. 由于MOKE测试系统使用的激光在金属薄膜中的穿透深度只有10 nm, 无法穿透3 nm的Ta保护层和10 nm的IrMn反铁磁层, 从而无法探测FeGa铁磁层的信号. 因此本实验使用了双面抛光具有良好透光性的MgO衬底, 激光从未生长磁性薄膜的一侧入射MgO衬底, 不经IrMn层直接探测FeGa层的磁性. 激光斑点聚焦到100 μm , 薄膜磁畴远大于光斑尺寸, 光斑在薄膜不同位置处测得的磁滞回线具有很好的一致性 [12,25]. 图3是采用磁光克尔测量系统得到的FeGa/IrMn双层膜在不同磁场方向下的纵向(//)和横向(\perp)磁滞回线. 根据磁化翻转过程中涉及的初始和最终的易磁化方向, 将顺时针方向发生的 90° 磁化翻转过程对应的磁化翻转场定义为 $H_{\text{cl}}-H_{\text{clV}}$, 逆时针方向发生的 90° 磁化翻转过程对应的磁化翻转场定义为 $H_{\text{cl}}-H_{\text{clA}}$. 对于 $K_{\text{cb}}//[100]$ 的样品, 磁场施加在[100]方向($\varphi_H=0^\circ$)附近时, 表现出朝着磁场负方向偏移的矩形磁滞回线, EB场 $H_{\text{eb}}=K_{\text{cb}}/M=34.5\text{ Oe}$, 相应的横向磁滞回线信号很弱, 表明FeGa磁矩通过畴壁形核和位移的反磁化机制在[100]和 $\bar{[100]}$ 方向之间翻转, 如图3(a)所示.

本课题组前期工作表明在外延铁磁性薄膜和EB异质结中发生的 180° 磁化翻转的反磁化机制是两步连续发生的 90° 畴壁形核与位移 [14,23]. 当磁场偏离[100]方向($\varphi_H=30^\circ$)时, 如图3(b)所示, 样品表现出非对称型磁滞回线, 对于磁场上行支FeGa磁矩经历两步磁化翻转过程从[100]转变到 $\bar{[100]}$ 方

向, 对于磁场上行支FeGa磁矩从 $\bar{[100]}$ 直接翻转到[100]方向. 相应的横向磁滞回线表明下行支中磁化翻转的中间态对应FeGa磁矩指向 $[0\bar{1}0]$ 方向, 磁矩通过两次 90° 畴壁形核和位移机制实现磁化翻转. 当外磁场沿着[110]方向($\varphi_H=45^\circ$)时, 在磁场上行支中, 磁矩从 K_1 难磁化[110]方向通过一致转动到[100]方向, 而后通过畴壁形核与位移机制翻转到 $\bar{[100]}$ 方向, $[100] \rightarrow \bar{[100]}$ 的跳跃, 如图3(c)中黑框所示. 随着负方向磁场的逐步增强, 磁矩最终一致转动到 $\bar{[110]}$, 相对应的磁化翻转场依然表现出磁场零点不对称. 横向磁滞回线表明磁场上行支与下行支都经过[100]交换偏置方向. 需要说明的是纵向磁滞回线的剩磁(0.791)高于理论值(0.707). 一方面是由于MOKE测量中的二次方效应(quadratic effect)使纵向克尔信号中混入少量横向克尔信号, 导致纵向克尔信号并不严格与磁化强度成正比 [26]; 另一方面是由于磁场方向有一定误差($<5^\circ$), 并不严格平行[110]方向. 当磁场沿着 $[010]$ 方向($\varphi_H=90^\circ$)时, 也就是垂直 K_{cb} 方向附近处, 如图3(d)所示, 纵向磁滞回线表明磁场上下行支均为两步磁化翻转, 磁化翻转场相对磁场零点对称, 横向磁滞回线表明下行支和上行支的磁化翻转路径均经过[100]方向, 分别为 $[010] \rightarrow [100] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 和 $[0\bar{1}0] \rightarrow [100] \rightarrow [010]$. 这种单边两步型磁滞回线的出现是由于 K_{cb} 沿着[100]方向, 使得磁矩位于[100]方向的磁各向异性能低于相对应的 $\bar{[100]}$ 方向, 从而无论磁场上行或下行, 磁化翻转的中间态都倾向于经过能量较低的[100]方向.

对于 $K_{\text{cb}}//[110]$ 的样品, 当磁场沿着[100]方向($\varphi_H=0^\circ$)时, 如图3(e)所示, 纵向磁滞回线表明磁场上下行支均为两步磁化翻转. 由于 K_{cb} 的作用使得[100]和 $[010]$ 方向的磁各向异性能低于 $\bar{[100]}$ 和 $[0\bar{1}0]$ 方向的能量, 横向磁滞回线表明下行支和上行支的磁化翻转路径分别为 $[100] \rightarrow [010] \rightarrow \bar{[100]}$ 和 $\bar{[100]} \rightarrow [010] \rightarrow [100]$, 磁化翻转的中间态都倾向于经过能量较低的 $[010]$ 方向, 而不是相对的 $[0\bar{1}0]$ 方向. 当磁场偏离[100]方向($\varphi_H=35^\circ$)时, 如图3(f)所示, 样品表现出双边两步型磁滞回线. 无论是磁场上行支或下行支, FeGa磁矩均经历两次畴壁形核和位移过程实现[100]和 $\bar{[100]}$ 方向之间翻转, 相应的横向磁滞回线表明下行支中磁化翻转的中间态为 $[010]$ 方向, 而上行支中磁化翻转的中间

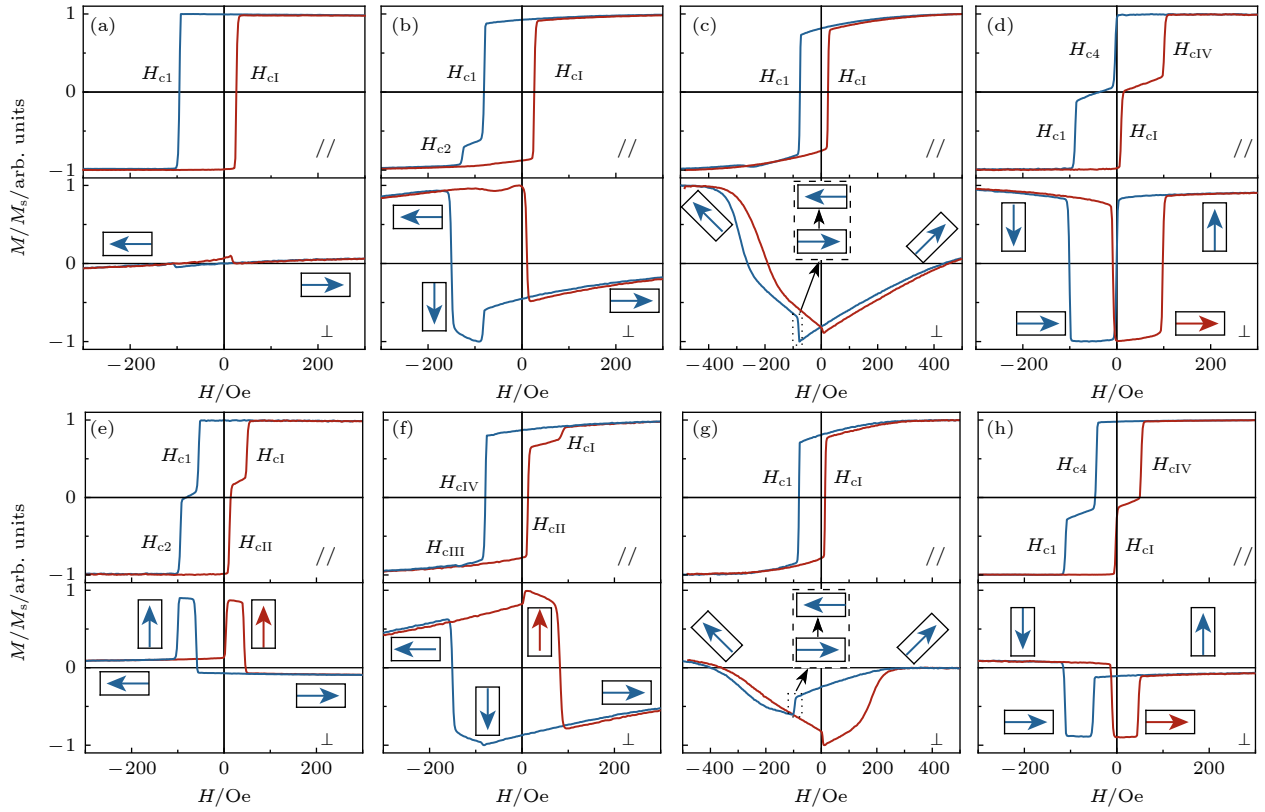


图3 在不同外磁场方向 φ_H 下, $K_{fb}//[100]$ 和 $K_{fb}//[110]$ 的 FeGa/IrMn 双层膜的典型纵向和横向 MOKE 磁滞回线 (M_s 是饱和磁化强度) (a) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 0^\circ$; (b) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 30^\circ$; (c) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 45^\circ$; (d) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 90^\circ$; (e) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 0^\circ$; (f) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 35^\circ$; (g) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 45^\circ$; (h) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 90^\circ$. 蓝线和红线分别对应于磁滞回线的磁场下行支和磁场上行支; 磁化翻转过程中 FeGa 自旋方向用箭头表示; 相应的磁化翻转场也标记在图中

Fig. 3. Typical longitudinal and transverse MOKE loops at different external field orientations φ_H for the FeGa/IrMn bilayer with $K_{fb}//[100]$ and $K_{fb}//[110]$, M_s is the saturation magnetization: (a) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 0^\circ$; (b) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 30^\circ$; (c) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 45^\circ$; (d) $K_{fb}//[100]$, $\varphi_H = 90^\circ$; (e) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 0^\circ$; (f) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 35^\circ$; (g) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 45^\circ$; (h) $K_{fb}//[110]$, $\varphi_H = 90^\circ$. The blue and red curves correspond to the magnetic field descending and ascending branches of hysteresis loops, respectively; the arrows enclosed by a square represent the orientation of FeGa spins in the magnetic switching routes; the corresponding magnetic switching fields are presented as well.

态则是相对应的 $[0\bar{1}0]$ 方向. 当外磁场沿着 $[110]$ 方向 ($\varphi_H = 45^\circ$) 时, 即 K_{fb} 方向, 如图 3(g) 所示, 磁滞回线中心向磁场负方向偏移, EB 场 $H_{eb} = 34.0$ Oe, 磁化翻转路径与 $K_{fb}//[100]$ 的样品相同, 磁场下行支为 $[110] \rightarrow [100] \rightarrow [\bar{1}00] \rightarrow [\bar{1}\bar{1}0]$, 上行支是下行支的逆过程. 纵向磁滞回线的剩磁 (0.768) 依然略高于理论值. 当磁场沿着 $[010]$ 方向 ($\varphi_H = 90^\circ$) 时, 如图 3(h) 所示, 磁滞回线偏离磁场中心, EB 场依然存在. 横向磁滞回线表明磁化翻转为单边两步型, 磁场上行支和下行支磁化翻转的中间态都倾向于经过能量较低的 $[100]$ 方向, 相应的磁化翻转路径分别为 $[0\bar{1}0] \rightarrow [100] \rightarrow [010]$ 和 $[010] \rightarrow [100] \rightarrow [0\bar{1}0]$. 在 $K_{fb}//[110]$ 的样品中, 通过改变外磁场方向, 并不能观察到矩形磁滞回线以及非对称磁滞回线, 这表明 EB 场方向的改变使得样品的磁化翻转过程发

生了明显的变化.

图 4(a) 是在不同外磁场方向 φ_H 下 $K_{fb}//[100]$ 的 FeGa/IrMn 双层膜的磁化翻转场. 当 $0^\circ \leq \varphi_H \leq 45^\circ$ 时, 样品表现为矩形磁滞回线和非对称磁滞回线, 其中矩形磁滞回线转变为非对称磁滞回线的临界角 $\varphi_H \approx 10^\circ$; 当 $45^\circ < \varphi_H \leq 180^\circ$ 时, 表现为单边两步磁滞回线. 图 4(b) 是 $K_{fb}//[110]$ 的 FeGa/IrMn 双层膜的磁化翻转场随 φ_H 的变化关系. 当 $0^\circ \leq \varphi_H \leq 45^\circ$ 时, 样品表现为单边两步磁滞回线和双边两步磁滞回线, 其中单边两步磁滞回线转变为双边两步磁滞回线的临界角 $\varphi_H \approx 35^\circ$; 当 $45^\circ < \varphi_H \leq 180^\circ$ 时, 表现为单边两步磁滞回线.

具有不同 EB 取向的外延 FeGa/IrMn 双层膜的磁化翻转场角度依赖关系可以采用畴壁形核与位移模型解释. FeGa 磁性层的总自由能为

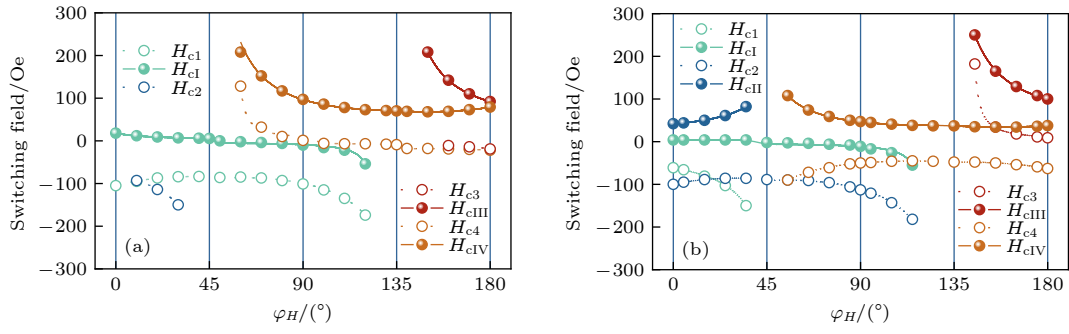


图 4 FeGa/IrMn 双层膜的磁化翻转场随外磁场方向 φ_H 的变化关系 (a) $K_{eb}//[100]$; (b) $K_{eb}//[110]$ (实心和空心点对应于实验值, 实线和虚线对应于拟合曲线)

Fig. 4. External magnetic field orientation φ_H dependence of the magnetic switching fields for the FeGa/IrMn bilayers: (a) $K_{eb}//[100]$; (b) $K_{eb}//[110]$ (The solid and open dots represent experimental values, and the solid and dashed lines represent fitted curves).

$$E = -MH\cos(\varphi_M - \varphi_H) + \frac{K_1}{4}\sin^2(2\varphi_M) - K_u\cos^2(\varphi_M - \beta) - K_{eb}\cos(\varphi_M - \beta), \quad (3)$$

其中, 第一项是静磁能, 第二项是磁晶各向异性能, 第三项是单轴磁各向异性能, 第四项是单向磁各向异性能. 这里 φ_M 是磁化强度 M 与 $[100]$ 方向的夹角. 在磁晶各向异性、单轴磁各向异性、单向磁各向异性的共同作用下, 磁各向异性能的面内四重对称性被打破, 极小值不再是严格沿着面内 $\langle 100 \rangle$ 方向.

图 5(a) 和图 5(b) 是利用铁磁共振定量获得的磁各向异性参数, 得到 $K_{eb}//[100]$ 和 $K_{eb}//[110]$ 的 FeGa/IrMn 双层膜的磁各向异性能随磁化强度方向的变化关系. 当 $K_{eb}//[100]$ 时, 磁各向异性能极小值出现在 $\varphi_M = 0^\circ, 90^\circ - \delta, 180^\circ$ 和 $270^\circ + \delta$. 由于四重对称的 K_1 叠加了沿着 $[100]$ 方向的 K_u 和 K_{eb} , 使得磁矩处于 $[100]$ 方向的磁各向异性能低于其他易磁化方向, 并且使得原本处于 $[010]$ 和 $[0\bar{1}0]$ 的易磁化方向偏向 $[100]$ 方向 δ 角. 偏离角 δ 的大小由磁各向异性的相对大小决定, 在 $K_u < K_{eb}$ 的范围内, δ 随着 K_{eb} 和 K_u 的增大而增大. 利用实验测得 $K_{eb}//[100]$ 样品的 K_1, K_u 和 K_{eb} 值, 得到 $\delta = 6.1^\circ$. 当 $K_{eb}//[110]$ 时, 磁各向异性能极小值出现在 $\varphi_M = \delta_1, 90^\circ - \delta_1, 180^\circ - \delta_2$, 和 $270^\circ + \delta_2$. 由于 K_{eb} 指向 $[110]$ 方向, 使得 δ_1 和 $90^\circ - \delta_1$ 处的磁各向异性能低于 $180^\circ - \delta_2$ 和 $270^\circ + \delta_2$ 处的磁各向异性能. 在 $K_u < K_{eb}$ 的范围内, δ_1 和 δ_2 随着 K_{eb} 的增大而增大, δ_1 则随着 K_u 的增大而增大, δ_2 随着 K_u 的增大而减小, 当 K_u 较小时 δ_1 和 δ_2 的大小差异可忽略. 利用实验测得 $K_{eb}//[110]$ 样品的磁各向异性值, 得到 $\delta_1 = 5.7^\circ$ 和 $\delta_2 = 5.4^\circ$. 类似的情况, 由于沿着 $[110]$ 方向 K_u 的引入, 导致

K_1 四重对称性发生改变, 易磁化方向偏离 $[100]$ 晶向的现象, 在本课题组前期 Fe/MgO(001) 外延磁性薄膜中已经有报道^[10]. 需要说明的是, 本工作中由于铁磁共振谱线测量的面内磁场方向间隔为 15° , 因而不能明显反映出易磁化方向偏离角.

对于 $K_{eb}//[100]$ 的情况, FeGa 单畴在 4 个易磁化轴的能量分别为: $E_{0^\circ} = -MH\cos\varphi_H - K_u - K_{eb}$, $E_{90^\circ-\delta} = -MH\sin(\varphi_H + \delta) - \frac{K_1}{4}\sin^2 2\delta - K_u\sin^2\delta - K_{eb}\sin\delta$, $E_{180^\circ} = MH\cos\varphi_H - K_u + K_{eb}$ 和 $E_{270^\circ+\delta} = MH\sin(\varphi_H - \delta) + \frac{K_1}{4}\sin^2 2\delta - K_u\sin^2\delta - K_{eb}\sin\delta$. 磁矩在不同易磁化方向之间的磁化翻转场可以通过磁化翻转过程前后所在易磁化方向的能量差值来获得^[15]. 图 5(c) 和图 5(d) 分别是 $K_{eb}//[100]$ 和 $K_{eb}//[110]$ 时磁各向异性改变示意图.

基于畴壁形核与位移模型给出的磁化翻转场理论表达式, 能够很好地拟合磁化翻转场的角度依赖关系, 进而定量得到畴壁形核能, 结果如图 4 所示. 对于 $K_{eb}//[100]$ 的样品, 通过拟合得到畴壁形核能参数 $\varepsilon_{90^\circ-\delta}/M$, $\varepsilon_{90^\circ+\delta}/M$ 分别为 51.9, 71.9 Oe. $\varepsilon_{90^\circ+\delta}$ 显然大于 $\varepsilon_{90^\circ-\delta}$, 这是由于 $90^\circ + \delta$ 畴壁形核需要克服 $[\bar{1}10]$ 或 $[1\bar{1}0]$ 方向的能量势垒, $90^\circ - \delta$ 畴壁形核需要克服 $[110]$ 或 $[1\bar{1}0]$ 方向的能量势垒. 由于沿着 $[100]$ 方向的 K_{eb} 和 K_u 的引入, 磁各向异性能的四重对称性被打破, 使得 $[\bar{1}10]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向的能量势垒明显高于 $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向. 对于 $K_{eb}//[110]$ 的样品, 通过拟合得到畴壁形核能参数 ε_{90°/M , $\varepsilon_{90^\circ+2\delta_1}/M$, $\varepsilon_{90^\circ-2\delta_1}/M$ 分别为 51.7, 77.2, 44.1 Oe. $\varepsilon_{90^\circ+2\delta_1} > \varepsilon_{90^\circ} > \varepsilon_{90^\circ-2\delta_1}$. 这是由于 $90^\circ + 2\delta_1$ 畴壁形核需要克服 $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向的能量势垒, 90° 畴壁形核

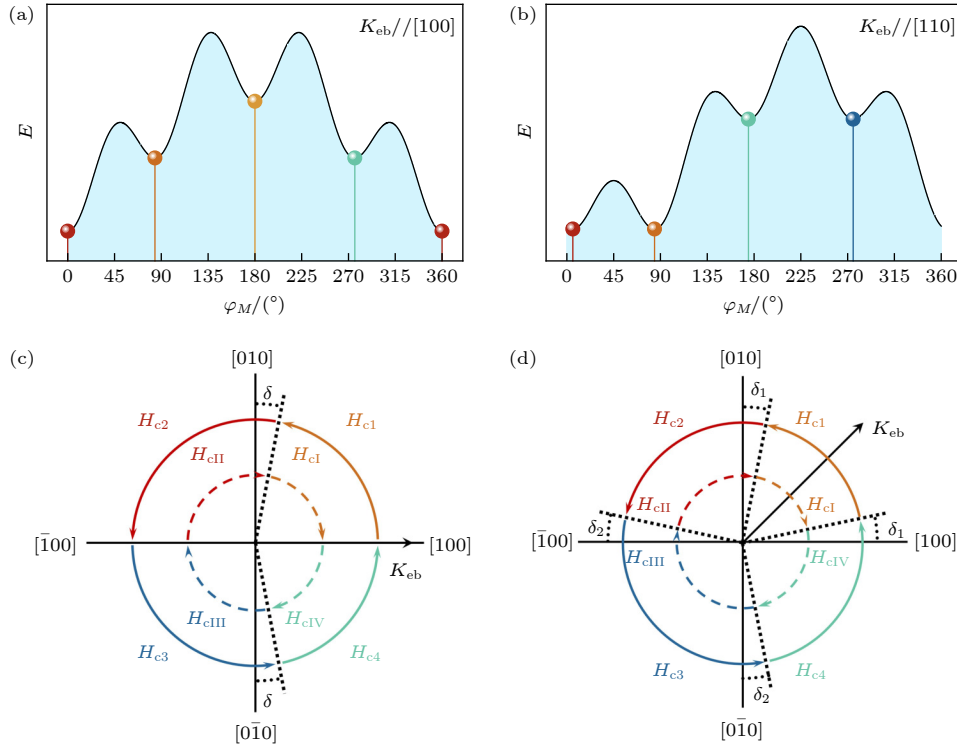


图 5 FeGa/IrMn 双层膜的磁各向异性随磁化强度方向的变化关系 (a) $K_{eb}//[100]$; (b) $K_{eb}//[110]$; (c), (d) 相对应的磁各向异性改变示意图

Fig. 5. Magnetic anisotropy energy as a function of orientation of magnetization in FeGa/IrMn bilayers: (a) $K_{eb}//[100]$; (b) $K_{eb}//[110]$; (c), (d) corresponding schematic diagram of magnetic anisotropy change.

需要克服 $[110]$ 或 $[1\bar{1}0]$ 方向的能量势垒, $90^\circ - 2\delta_1$ 畴壁形核需要克服 $[110]$ 方向的能量势垒. 由于沿着 $[110]$ 方向的 K_{eb} 和 K_u 的引入, 使得 $[1\bar{1}0]$ 方向的能量势垒最高, $[110]$ 和 $[1\bar{1}0]$ 方向其次, $[110]$ 方向最低. 需要强调的是, 畴壁形核能属于外禀参数, 其大小不仅取决于磁各向异性能量势垒, 而且与薄膜中的杂质、缺陷和应力的分布密切相关^[23].

在磁化翻转过程中, 磁矩倾向于经历磁化翻转场更小的路径, 因此不同磁场方向下的磁化翻转路径可以通过比较不同路径所需要的临界磁化翻转场进行判断. 对于 $K_{eb}//[100]$ 的样品, 当 $0^\circ \leq \varphi_H \leq 45^\circ$ 时, 不同类型的磁化翻转路径主要由 H_{c1} 和 H_{c2} 的大小决定. 当 $H_{c1} > H_{c2}$ 时, 磁滞回线的磁场下行支表现为两步连续发生的 90° 畴壁形核与位移过程; 而当 $H_{c1} < H_{c2}$ 时, 表现为两步分立发生的 90° 畴壁形核与位移过程. 因此, 可以获得矩形磁滞回线和非对称磁滞回线改变的磁场方向临界角为

$$\varphi_H = \tan^{-1} \frac{K_u \sin 2\delta}{\varepsilon_{90^\circ} + 2K_u \sin \delta - 2K_{eb}} - \delta, \text{ 利用拟合参}$$

数可以得到理论临界角 $\varphi_H = 15^\circ$, 与图 3(a) 中实验结果基本一致. 对于 $K_{eb}//[110]$ 的样品, 当 $0^\circ \leq$

$\varphi_H \leq 45^\circ$ 时, 磁化翻转路径主要由 H_{c1} 和 H_{c3} 的大小决定. 当 $H_{c1} < H_{c3}$ 时, 磁滞回线表现为双边两步磁滞回线, 磁场上下行支中间态分别经过相对的 $[010]$ 和 $[0\bar{1}0]$ 方向, 而当 $H_{c1} > H_{c3}$ 时, 磁滞回线表现为单边两步磁滞回线, 磁场上下行支中间态均经过能量较低的 $[010]$ 方向. 因此, 可以获得单边两步和双边两步磁滞回线发生改变的临界角为 $\varphi_H =$

$$\tan^{-1} \frac{\varepsilon_{90^\circ} \sin 2\delta + \sqrt{2}K_{eb}(2\sin \delta + \cos \delta)}{2\varepsilon_{90^\circ} - \varepsilon_{90^\circ} \sin 2\delta + \sqrt{2}K_{eb}(\cos \delta - 2\sin \delta)} - \delta, \text{ 利}$$

用拟合参数得到理论临界角 $\varphi_H = 28^\circ$, 与图 3(b) 中实验结果符合较好.

4 结 论

采用磁控溅射方法在 MgO(001) 单晶衬底上制备了 FeGa/IrMn 外延 EB 双层膜, 通过调整生长时外加磁场的方向使 EB 方向分别沿着 $[100]$ 和 $[110]$ 方向. 通过测量铁磁共振场随外磁场角度的变化关系, 基于 Kittel 方程的拟合确定了四重对称磁晶各向异性、单向磁各向异性和单轴磁各向异性的取向与强度. 矢量 MOKE 测量表明 EB 方向的

改变使磁化翻转过程发生明显改变, $K_{\text{eb}}//[100]$ 的样品在不同磁场方向下表现为矩形、非对称和单边两步磁滞回线; $K_{\text{eb}}//[110]$ 的样品表现为单边两步和双边两步磁滞回线. 考虑不同 K_{eb} 方向的畴壁形核和位移模型, 能够很好地解释不同外磁场方向下的磁化翻转路径和磁化翻转场, 结果表明 EB 方向的改变使得畴壁形核能发生显著变化.

感谢中国科学院强磁场科学中心稳态强磁场实验装置的支持.

参考文献

- [1] Nogues J, Schuller I K 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **192** 203
- [2] Blachowicz T, Ehrmann A 2021 *Coatings* **11** 122
- [3] Meiklejohn W H, Bean C P 1956 *Phys. Rev.* **102** 1413
- [4] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, Von Molnar S, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [5] Wen X, Wu R, Yang W Y, Wang C S, Liu S Q, Han J Z, Yang J B 2020 *Chin. Phys. B* **29** 098503
- [6] Wu S M, Cybart S A, Yu P, Rossell M D, Zhang J X, Ramesh R, Dynes R C 2010 *Nat. Mater.* **9** 756
- [7] Schafer D, Geshev J, Nicolodi S, Pereira L G, Schmidt J E, Grande P L 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 042501
- [8] Zhang X S, Zhan Q F, Dai G H, Liu Y W, Zuo Z H, Yang H L, Chen B, Li R W 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 022412
- [9] Jiménez E, Camarero J, Perna P, Mikuszeit N, Terán F J, Sort J, Nogués J, García Martín J M, Hoffmann A, Dieny B, Miranda R 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 07D730
- [10] Zhan Q F, Vandezande S, Van Haesendonck C, Temst K 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 122510
- [11] Bera A K, Kumar D 2020 *AIP Conf. Proc.* **2265** 030315
- [12] Wang S G, Kohn A, Wang C, Petford Long A K, Lee S, Fan R, Goff J P, Singh L J, Barber Z H, Ward R C C 2009 *J. Phys. D* **42** 225001
- [13] Camarero J, Sort J, Hoffmann A, Garcia Martin J M, Dieny B, Miranda R, Nogués J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 057204
- [14] Zhan Q F, Zhang W, Krishnan K M 2011 *Phys. Rev. B* **83** 094404
- [15] Zhang Y, Zhan Q F, Zuo Z H, Yang H L, Zhang X S, Dai G H, Liu Y W, Yu Y, Wang J, Wang B M, Li R W 2015 *Phys. Rev. B* **91** 174411
- [16] Chen Y, Washburn J 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 4046
- [17] Zhan Q F, Krishnan K M 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 112506
- [18] Mendes J B S, Cunha R O, Alves Santos O, Ribeiro P R T, Machado F L A, Rodríguez Suárez R L, Azevedo A, Rezende S M 2014 *Phys. Rev. B* **89** 140406
- [19] Baltz V, Manchon A, Tsoi M, Moriyama T, Ono T, Tserkovnyak Y 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 015005
- [20] Sun R, Li Y, Xie Z K, Li Y, Zhao X T, Liu W, Zhang Z D, Zhu T, Cheng Z H, He W 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **497** 165971
- [21] Farle M 1998 *Rep. Prog. Phys.* **61** 755
- [22] Li Y, Li Y, Liu Q, Xie Z K, Vetter E, Yuan Z, He W, Liu H L, Sun D L, Xia K, Yu W, Sun Y B, Zhao J J, Zhang X Q, Cheng Z H 2019 *New J. Phys.* **21** 103040
- [23] Zhan Q F, Stijn V, Kristiaan T, Chris V H 2009 *New J. Phys.* **11** 063003
- [24] Dean J, Bryan M T, Morley N A, Hrkac G, Javed A, Gibbs M R J, Allwood D A 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 043902
- [25] Cowburn R P, Gray S J, Ferré J, Bland J A C, Miltat J 1995 *J. Appl. Phys.* **78** 7210
- [26] Postava K, Jaffres H, Schuhl A, Van Dau F N, Goiran M, Fert A R 1997 *J. Magn. Magn. Mater.* **172** 199

Magnetic anisotropy and reversal in epitaxial FeGa/IrMn bilayers with different orientations of exchange bias*

Meng Jing¹⁾ Feng Xin-Wei¹⁾ Shao Qing-Rong¹⁾ Zhao Jia-Peng¹⁾
Xie Ya-Li²⁾ He Wei³⁾ Zhan Qing-Feng^{1)†}

¹⁾ (Key Laboratory of Polar Materials and Devices (MOE), School of Physics and Electronic Science,
East China Normal University, Shanghai 200241, China)

²⁾ (Key Laboratory of Magnetic Materials and Devices, Ningbo Institute of Material Technology and Engineering,
Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China)

³⁾ (State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 23 January 2022; revised manuscript received 26 February 2022)

Abstract

Epitaxial FeGa/IrMn bilayers with exchange biases along the FeGa[100] and [110] directions are prepared on MgO(001) single crystal substrates by magnetron sputtering through controlling the orientation of the external field *in situ* applied during growth. The effect of the exchange bias orientation on the magnetic switching process and the magnetic switching field are studied. The X-ray φ -scan indicates that the FeGa layer is epitaxially grown with a 45° in-plane rotation on the MgO(001) substrate along the FeGa(001)[110] direction and the MgO(001)[100] direction. The measurements of the angular dependence of the ferromagnetic resonance field and the corresponding fitting to the Kittel equation show that the samples have a superposition of fourfold symmetric magnetocrystalline anisotropy K_1 , unidirectional magnetic exchange bias anisotropy K_{eb} , and uniaxial magnetic anisotropy K_u with configuration of $K_{\text{eb}}//[100]$ or $K_{\text{eb}}//[110]$. The combined longitudinal and transverse magneto-optical Kerr effect measurements show that sample with $K_{\text{eb}}//[100]$ exhibits square loops, asymmetrically shaped loops, and one-sided two-step loops in different external magnetic field directions. In contrast, the sample with $K_{\text{eb}}//[110]$ exhibits one-sided two-step and two-sided two-step loops as the magnetic field orientation changes. Because the K_1 is superimposed by K_u and K_{eb} , the in-plane fourfold symmetry of the magnetic anisotropy energy is broken. The local minima are no longer strictly along the in-plane $\langle 100 \rangle$ directions, but make a deviation angle which depends on the relative orientation and strength of magnetic anisotropy. A model based on the domain wall nucleation and propagation is proposed with considering the different orientations of K_{eb} , which can nicely explain the change of the magnetic switching route with the magnetic field orientation and fit the angular dependence of the magnetic switching fields, indicating a significant change of domain wall nucleation energy as the orientation of K_{eb} changes.

Keywords: epitaxial exchange bias, magnetic anisotropy, magnetization reversal, domain wall nucleation and propagation

PACS: 75.30.Et, 75.30.Gw, 75.60.-d, 75.60.Ch

DOI: 10.7498/aps.71.20220166

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174103, 11874150) and the Shanghai Committee of Science and Technology, China (Grant No. 21JC1402300).

† Corresponding author. E-mail: qfzhan@phy.ecnu.edu.cn