Магниторефрактивный эффект и гигантское магнитосопротивление в сверхрешетках Fe(*t_x*)/Cr

© И.Д. Лобов, М.М. Кириллова, Л.Н. Ромашев, М.А. Миляев, В.В. Устинов

Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук, Екатеринбург, Россия

E-mail: i_lobov@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 18 марта 2009 г. В окончательной редакции 6 мая 2009 г.)

> На серии образцов с переменной толщиной слоя железа $Fe(t_x, Å)/Cr(10 Å)$ (сверхрешетки, кластернослоистые наноструктуры), выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, исследован магниторефрактивный эффект в инфракрасной области спектра $\lambda = 2-13 \,\mu$ m при *s*- и *p*-поляризациях световой волны. На этих же образцах выполнены измерения магниторезистивного эффекта в постоянном магнитном поле $H \leq 32$ kOe. Установлено, что толщина слоя железа, необходимая для формирования магниторефрактивного отклика, составляет $t_{Fe} \geq 3 Å$. Обсуждается корреляция между величиной магниторефрактивного эффекта в средней ИК-области спектра и магнитосопротивлением.

> Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (проект № 07-02-01289), программы Президиума РАН "Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов" и проекта НШ РФ.

PACS: 75.70.Cn, 78.20.Ls

1. Введение

Магниторефрактивный эффект (МРЭ) экспериментально обнаружен и теоретически рассмотрен в работе [1]. Эффект характеризует влияние магнитного поля на комплексный показатель преломления гетерогенных магнитных материалов $N^2 = \varepsilon$ (ε — диэлектрическая проницаемость) и проявляется в изменении их оптических характеристик, в частности коэффициента отражения R, вследствие уменьшения электрического сопротивления во внешнем магнитном поле. Типичные объекты для исследования МРЭ — это металлические мультислойные пленки, спин-туннельные структуры и гранулированные пленки [2–9]. В указанных материалах внешнее магнитное поле Н изменяет конфигурацию намагниченностей в соседних ферромагнитных слоях (или частицах) от антиферромагнитной в исходном состоянии (H = 0) к ферромагнитной $(H \neq 0)$. При этом изменяются условия для спин-зависимого рассеяния электронов проводимости в объеме слоев и в интерфейсах, что приводит к росту электрической проводимости, появлению МРЭ и гигантского магнитосопротивления (ГМС). Теоретическое рассмотрение магниторефрактивного эффекта во взаимосвязи с ГМС выполнено в ряде работ (см., например, [10–12]). Интерес к экспериментальному исследованию МРЭ в последнее время обусловлен возможностью получения на оптических частотах сведений об основных параметрах спин-зависимого рассеяния и перспективой использования эффекта в качестве бесконтактного метода контроля магнитотранспортных свойств материалов. О приборе для контроля магниторезистивных материалов, основанном на измерении МРЭ в средней ИК-области, сообщалось недавно в работе [13].

Настоящая работа посвящена экспериментальному изучению корреляции между магниторефрактивным эффектом и магнитосопротивлением в сверхрешетках Fe/Cr. Нами выполнены первые сравнительные исследования МРЭ и ГМС на серии сверхрешеток Fe/Cr, различающихся толщиной слоев. Целью работы являлось определение минимальной толщины слоя Fe, необходимой для формирования магниторефрактивного отклика на свободных носителях тока. Кроме того, представляло интерес оценить соотношение между величинами ГМС и МРЭ при *s*- и *p*-поляризациях световой волны.

2. Образцы

Квазимонокристаллические сверхрешетки Fe/Cr выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии на высоковакуумной установке "Катунь-С". Скорость напыления слоев хрома и железа была одинаковой и составляла примерно один атомный монослой (ML) в минуту. Номинальная (рассчитанная по скорости и времени напыления) толщина слоев железа в образцах варьировалась в интервале $t_{\rm Fe} \approx 1.2 - 15.3$ Å. Толщина слоев хрома, равная 10 Å в основной серии образцов MgO(001)/Cr(80 Å)/[Fe(t_x , Å)Cr(10 Å)]_n, соответствовала условиям формирования в сверхрешетках антиферромагнитного упорядочения намагниченностей соседних слоев железа при H = 0 и, следовательно, наибольшей величине магнитосопротивления. Для уменьшения вклада шероховатости подложки в структуру слоев сверхрешетки на подложку вначале осаждался буферный слой хрома толщиной 80 Å. Количество бислоев *п* в сверхрешетках изменялось (в зависимости от толщины слоя Fe) от 30 до 50. Дополнительно к этой серии были приготовлены еще два образца: сверхрешетка MgO(001)/Cr(80 Å)/[Fe(3.5 Å)/Cr(20 Å)]₅₀, у которой толщина слоев хрома 20 Å обеспечивала ферромагнитное упорядочение магнитных моментов соседних слоев железа в исходном состоянии (соответственно отсутствие ГМС и МРЭ), и сверхрешетка Al₂O₃(1010)/Fe(36 Å)/[Fe(12 Å)/Cr(15 Å)]₁₂ с неколлинеарной магнитной структурой.

Проведенные в пелях аттестации образнов $Fe(t_x, \dot{A})/Cr(10 \dot{A})$ эллипсометрические измерения эффективных показателей преломления *n*_{eff} и поглощения k_{eff} показали, что глубина проникновения световой волны $\delta = c/\omega k_{\rm eff}$ (c — скорость света в вакууме, ω — циклическая частота световой волны) в исследованной ИК-области спектра не превышает суммарную толщину металлических бислоев. Сверхрешетка, приготовленная на подложке из сапфира, имела суммарную толщину металлических слоев ~ 360 Å. Коэффициент пропускания этого образца, рассчитанный по формулам [14], учитывающим оптические постоянные объемных хрома и железа [15,16], на участке спектра $\lambda = 6 - 13 \, \mu \mathrm{m}$ составлял $\sim 1\%$.

3. Экспериментальные методики

Магнитосопротивление (МС) образцов измеряли стандартным четырехконтактным способом в постоянном магнитном поле $H \leq 32$ kOe. Магниторезистивный эффект определялся из выражения

$$r(H) = \frac{\rho(H) - \rho(0)}{\rho(0)},$$
(1)

где $\rho(0) = \rho(H = 0)$, а $\rho(H)$ соответствует электросопротивлению в поле H.

Магниторефрактивный эффект на отражение измерен в геометрии экваториального намагничивания при ри s-поляризациях падающей световой волны и углах падения света на образец соответственно $\varphi_1 = 70^\circ$ и $\varphi_2 = 10^{\circ}$. Источником света служил глобар. Для поляризации излучения использовалась решетка-поляризатор на основе полиэтилена со степенью поляризации $\sim 94\%$ при 3 µm. В качестве фотоприемного устройства применялся оптико-акустический приемник ОАП-7М с входным окном из CsI. Спектральный диапазон исследований составил $\lambda = 2 - 13 \, \mu$ m. Измерения проводились модуляционным методом. В качестве намагничивающего устройства использовался малогабаритный электромагнит панцирного типа. Образец перемагничивался с частотой 8 Hz, ток в электромагните имел форму однополярного меандра. Магнитное поле в зазоре изменялось от 0 до 9 kOe. При заданной длине световой волны, угле падения света и поляризации измерялась величина относительного изменения интенсивности отраженного света от образца в отсутствии магнитного поля и в поле Н. В этом случае выражение для МРЭ имеет вид

$$MRE(H) = \frac{R(0) - R(H)}{R(0)},$$
 (2)

где R(0) и R(H) — коэффициенты отражения света от образца без поля и в магнитном поле H соответственно. Измерения экваториального эффекта Керра в нескольких точках по спектральному диапазону показали, что вклад от линейного эффекта незначителен и укладывается в ошибку измерения, не превышающую $\pm 0.06\%$.

Измерения магнитосопротивления и МРЭ выполнены при комнатной температуре.

4. Обсуждение результатов

В области свободных носителей (ИК-диапазон спектра) коэффициент отражения света в многослойных пленках $R(\omega, H = 0) < R(\omega, H)$. Увеличение R во внешнем поле H и отрицательный знак МРЭ обусловлены изменением магнитного упорядочения соседних слоев Fe в сверхрешетке от антиферромагнитного к ферромагнитному и связанным с этим ростом проводимости. Измерения МРЭ проведены в средней ИК-области спектра, в которой вклад от внутризонного механизма поглощения света нарастает с ростом длины волны λ и становится доминирующим в формировании диэлектрической проницаемости ε и коэффициента отражения R слоистой структуры.

На рис. 1 представлены графики МРЭ при *p*- и *s*-поляризациях падающего излучения для сверхрешетки



Рис. 1. Магниторефрактивный эффект (MRE) в сверхрешетке с бислоем Fe(12 Å)/Cr(15 Å) и неколлинеарной магнитной структурой при *p*- (*I*) и *s*-поляризациях света (*2*). Магнитное поле насыщения $H_s = 8$ kOe. На вставке — полевая зависимость магнитосопротивления (MR) (*I*) и MPЭ^s (*2*), измеренного при $\lambda = 2.75 \,\mu$ m.

с бислоем Fe(12 Å)/Cr(15 Å). Для этого образца поле магнитного насыщения составляет $H_s = 8$ kOe, а величина ГМС при этом равняется -6.2%. Отметим, что магниторефрактивный эффект в ближней ИК-области имеет положительный знак. С увеличением длины волны эффект изменяет знак на противоположный: при $\lambda = 7.2 \,\mu$ m для *p*-поляризации и 8.3 μ m для *s*-поляризации.

Известно, что межзонные переходы электронов играют активную роль в формировании оптических свойств ферромагнитного железа в ИК-области спектра. Специфической особенностью оптического поглощения в Fe является наличие интенсивной низкоэнергетической полосы межзонного поглощения при энергиях фотона $E = 0.15 - 0.5 \,\mathrm{eV}$ ($\lambda \sim 2.5 - 8 \,\mu\mathrm{m}$) [15]. Согласно теоретическим расчетам [17], формирование указанной аномалии обусловлено гибридизацией зон с противоположным направлением спинов в условиях спин-орбитального взаимодействия электронов. Недавно на примере многослойной структуры Со/Си в рамках метода сильной связи было показано, что МРЭ от межзонных переходов электронов имеет положительный знак [18]. Таким образом, немонотонную спектральную зависимость и положительный знак МРЭ в сверхрешетке Fe/Cr можно объяснить влиянием межзонного механизма возбуждения электронов в железе. Отметим, что для сверхрешетки Fe(12 Å)/Cr(15 Å) максимальная величина MP \exists^p (*р*-поляризация) и МРЭ^{*s*} (*s*-поляризация) при $\lambda = 13 \, \mu m$ составляет -1.8 и -0.62% соответственно. Из вставки на рис. 1 видно, что магнитосопротивление и МРЭ при намагничивании образца имеют квадратичную зависимость от внешнего поля Н. Следует отметить, что наблюдаемый в ближней ИК-области спектра магнитооптический сигнал положительного знака помимо вклада от MPЭ может содержать также вклад от ориентационного магнитооптического эффекта δ_q , обусловленного влиянием магнитного поля (намагниченности) на комплексный показатель преломления магнитнооднородной среды (в данном случае слоев Fe и Cr). Оба эффекта являются негиротропными и квадратичными по намагниченности, и их разделение затруднено. На основе имеющихся экспериментальных данных о величине ориентационного эффекта в переходных *d*-металлах ($\delta_q \sim 0.04 - 0.1\%$) [16,19] можно заключить, что основной вклад в формирование квадратичного эффекта, наблюдаемого в сверхрешетках Fe/Cr в ближней ИК-области, вносит магниторефрактивный отклик, связанный с изменением магнитного упорядочения соседних слоев Fe.

На рис. 2, *а*, *b* представлены графики МРЭ при *p*- и *s*-поляризациях падающего излучения для сверхрешеток с различной толщиной слоя железа. Отметим, что с увеличением длины волны от $\lambda = 5.3 \,\mu\text{m}$ для образца с толщиной слоя $t_{\text{Fe}} = 15.3 \,\text{\AA}$ до $\lambda = 7.4 \,\mu\text{m}$ для образца с $t_{\text{Fe}} = 3.2 \,\text{\AA}$ эффект меняет знак на противоположный (*p*-поляризация). Аналогично ведут себя спектры МРЭ при *s*-поляризации света. Выше уже отмечалось, что



Рис. 2. *a*) Спектры МРЭ сверхрешеток $Fe(t_x, Å)/Cr(10 Å)$ $(t_x, Å: I - 15.3, 2 - 10.6, 3 - 7.2, 4 - 5.2, 5 - 3.2, 6 - 1.2)$ и Fe(3.5 Å)/Cr(20 Å) (7), *р*-поляризация, $\varphi_1 = 70^\circ$. *b*) Спектры МРЭ сверхрешеток $Fe(t_x, Å)/Cr(10 Å)$, *s*-поляризация, $\varphi_2 = 10^\circ$. $t_x, Å: I - 15.3, 2 - 7.2, 3 - 3.2, 4 - 1.2$. Магнитное поле H = 9 кОе. Вертикальными отрезками показаны ошибки измерений.

положительный знак МРЭ обеспечивается вкладом в оптические свойства сверхрешеток от межзонных переходов электронов в железе.

Магнитные и магнитооптические (экваториальный эффект Керра (ЭЭК)) свойства сверхрешеток $Fe(t_x, A)/Cr(10 A)$ изучались нами ранее [20]. Было установлено, что спектры ЭЭК образцов с $t_{Fe} \ge 7 A$ сохраня-



Рис. 3. Нормированные спектры экваториального эффекта Керра (ТКЕ) сверхрешеток $Fe(t_x, \mathring{A})/Cr(10\,\mathring{A})$ [20]. $t_x = 15.3$ (1), 10.6 (2), 7.2 (3) и 5.2 Å (4).

ют "железоподобную" форму с максимумом при энергии фотона $E = 1.85 \,\text{eV}$, что свидетельствует о неизменной величине обменного расщепления спиновых подзон (↑) и (\downarrow) *d*-типа ($2\Delta_{\rm exc} \sim 2 \, {\rm eV}$) в ферромагнитных слоях железа. Дальнейшее уменьшение толщины слоя железа приводит не только к снижению амплитуды ЭЭК, но и к изменению его спектрального профиля. Толщины железа $t_{\rm Fe} \sim 5 - 6.6 \,\text{\AA} \ (\sim 3 - 4 \,\text{ML})$ оказались критическими, начиная с которых магнитные и магнитооптические свойства образцов изменяются. Это связано с нарушением сплошности пленки железа и образованием кластеров, состоящих из микрообластей ОЦК-Fe и сплавов FeCr. Нормированные значения ЭЭК (т.е. отнесенные к их максимальной величине для данной толщины слоев железа) демонстрируют рост магнитооптического отклика при энергиях фотона в районе 1 eV (рис. 3). Таким образом, можно заключить, что в узком интервале толщин Fe порядка 6 ± 1 Å происходит переход от слоистой к кластерно-слоистой структуре. В этой связи интересно проследить за эволюцией спектров МРЭ в ИК-диапазоне спектра с уменьшением толщины слоев железа.

Как следует из экспериментальных результатов, представленных на рис. 2, *a*, *b*, с изменением в Fe(t_x , Å)/Cr(10 Å) толщины слоя железа до $t_{Fe} = 3.2$ Å включительно спектральное поведение МРЭ сохраняет знакопеременный вид. При $t_{Fe} < 3.2$ Å величина эффекта в области внутризонного механизма поглощения света ($\lambda = 8-13 \,\mu$ m) резко уменьшается и изменяет знак на противоположный, что указывает на исчезновение МРЭ. Это означает, что в кластерно-слоистых наноструктурах Fe/Cr происходит значительное ослабление межслоевого обменного взаимодействия. Последнее может быть вызвано действием нескольких причин, в частности нарушением сплошности магнитного

слоя (приводящим к суперпарамагнитному поведению ансамбля кластеров Fe в матрице Cr) и увеличением расстояний между кластерами в соседних магнитных слоях.

Для сравнения нами была исследована сверхрешетка с бислоем Fe(3.5 Å)/Cr(20 Å), в которой толщина слоя хрома соответствует ферромагнитному упорядочению намагниченностей соседних слоев железа в исходном состоянии (H = 0). По этой причине в данной сверхрешетке отсутствует ГМС и должен отсутствовать магниторефрактивный эффект как его высокочастотный аналог. Действительно, графики МРЭ наноструктур с бислоями Fe(3.5 Å)/Cr(20 Å) и Fe(1.2 Å)/Cr(10 Å) отличаются по спектральной зависимости от остальных образцов положительными значениями магнитооптического отклика при длинах волн, больших 7 μ m (рис. 2, *a*), т.е. магниторефрактивный эффект на свободных носителях тока в этих наноструктурах не наблюдается. Поэтому можно утверждать, что при толщинах $t_{\rm Fe} \leq 1.2$ Å (комнатная температура) отсутствуют также условия для проявления ГМС. Слабый магнитооптический отклик, зарегистрированный в указанных выше образцах, мы относим к ориентационному квадратичному магнитооптическому эффекту [19].

На рис. 4 показаны полевые зависимости магнитосопротивления сверхрешеток $Fe(t_x, Å)/Cr(10 Å)$, а на рис. 5 проведено сопоставление величин МРЭ и МС в магнитном поле H = 9 kOe для *p*-поляризации. При сравнении были использованы максимальные по величине в пределах длинноволнового участка спектра $(\lambda \sim 8-13 \mu m)$ значения |МРЭ|, где межзонный вклад в оптическую проводимость железа практически отсутствует, а МРЭ имеет отрицательный знак, характерный для области свободных носителей тока. Как следует из



Рис. 4. Магнитосопротивление сверхрешеток $Fe(t_x, Å)/Cr(10 Å)$ с различной толщиной слоев железа. $t_x = 15.3$ (1), 10.6 (2), 7.2 (3), 5.2 (4) и 3.2 Å (5).

Физика твердого тела, 2009, том 51, вып. 12



Рис. 5. Корреляция между зависимостями магнитосопротивления (*I*) и МРЭ^{*p*} ($\varphi = 70^{\circ}$) (*2*) в Fe(t_x , Å)/Cr(10 Å) от толщины слоев железа. Магнитное поле H = 9 kOe.

рис. 5, наблюдается хорошее совпадение полученных толщинных зависимостей МРЭ и магнитосопротивления. В поле $H = 9 \,\mathrm{kOe}$ максимальные значения MPЭ^p на ИК-частотах (*p*-поляризация световой волны, $\varphi_1 = 70^\circ$) составляют –1% — Fe(15.3 Å)/Cr(10 Å), –0.50% — Fe(10.6 Å)/Cr(10 Å), -0.34% - Fe(7.2 Å)/Cr(10 Å),-0.3% — Fe(5.2 Å)/Cr(10 Å) и -0.2% — Fe(3.2 Å)/ Cr(10Å). В случае *s*-поляризации величина эффекта уменьшается в 2-3 раза. Для этих образцов с антиферромагнитным упорядочением магнитных моментов соседних слоев железа в исходном состоянии мы имеем $MC(H = 9 \text{ kOe})/MPЭ^{p} \sim 7.5 - 11$. В сверхрешетке Fe(12 Å)/Cr(15 Å) с неколлинеарной магнитной структурой отношение ГМС/МРЭ^p = 3.5. Отметим, что при изучении мультислойной пленки Со/Си получено отношение ГМС/МРЭ^p ~ 9.8 ($\phi = 75^{\circ}$, $\lambda = 20 \,\mu m$) [6]. Причины, вызывающие различие коэффициента пропорциональности между магнитосопротивлением и МРЭ в сверхрешетках Fe/Cr, приготовленных на подложках из MgO и Al₂O₃ с различными буферными слоями, нам пока не ясны. Экспериментальные исследования в более длинноволновой области спектра на дополнительных сериях образцов будут весьма полезными.

5. Заключение

Впервые изучены спектры магниторефрактивного эффекта в сверхрешетках Fe/Cr с переменной толщиной слоев железа и хрома. Установлено, что минимальная толщина слоя Fe, необходимая для возникновения магниторефрактивного эффекта, составляет $t_{\text{Fe}} \sim 3 \text{ Å}$. В кластерно-слоистых наноструктурах Fe $(t_x, \text{Å})/\text{Cr}(10 \text{ Å})$ с $t_{\text{Fe}} < 3 \text{ Å}$ в ИК-диапазоне спектра зафиксирован только ориентационный квадратичный магнитооптический эффект. Показано, что зависимости магнитосопротивления и МРЭ от толщины слоя железа ($t_{\text{Fe}} = 3.2 - 15.3 \text{ Å}$) нелинейны и схожи между собой.

Список литературы

- J.C. Jacquet, T. Valet. In: Magnetic ultrathin films, multilayers and surfaces. MRS Symp. Proc. 384, 477 (1995).
- [2] S. Uran, M. Grimsditch, E.E. Fullerton, S.D. Bader. Phys. Rev. B 57, 2705 (1998).
- [3] И.В. Быков, Е.А. Ганышина, А.Б. Грановский, В.С. Гущин. ФТТ 42, 487 (2000).
- [4] V.G. Kravets, D. Bozec, J.A.D. Matthew, S.M. Thompson, H. Menard, A.B. Horn, A.F. Kravets. Phys. Rev. B 65, 054 415 (2002).
- [5] А. Грановский, В. Гущин, И. Быков, А. Козлов, N. Kobayashi, S. Ohnuma, T. Masumoto, M. Inoue. ФТТ 45, 867 (2003).
- [6] M. Vopsaroiu, D. Bozec, J.A.D. Matthew, S.M. Thompson, C.H. Marrows, M. Perez. Phys. Rev. B 70, 214423-1 (2004).
- [7] Jian-Qing Wang, M.T. Sidney, J.D. Rokitowski, Nam H. Kim, Keqiang Wang. J. Appl. Phys. 103, 07F316 (2008).
- [8] R.T. Mennicke, D. Bozec, Y.G. Kravets, M. Vopsaroiu, J.A.D. Matthew, S.M. Thompson. J. Magn. Magn. Mater. 303, 92 (2006).
- [9] R.T. Mennicke, J.A.D. Matthew, S.M. Thompson. IEEE Trans. Magn. 42, 2627 (2006).
- [10] Н.Ф. Кубраков, А.К. Звездин, К.А. Звездин, В.А. Котов. ЖЭТФ 114, 1101 (1998).
- [11] А.Б. Грановский, В.М. Кузьмичев, Ж.П. Клерк. ЖЭТФ 116, 1762 (1999).
- [12] В.И. Белотелов, А.К. Звездин, В.А. Котов, А.П. Пятаков. ФТТ 45, 1862 (2003).
- [13] T. Stanton, M. Vopsaroiu, S.M. Thompson. Meas. Sci. Technol. 19, 125 701 (2008).
- [14] В.М. Маевский. Деп. № 2461-В93. ВИНИТИ, М. (1993).
- [15] В.П. Широковский, М.М. Кириллова, Н.А. Шилкова. ЖЭТФ 82, 784 (1982).
- [16] И.Д. Лобов, М.М. Кириллова, В.М. Маевский, Л.Н. Ромашев. ЖЭТФ 132, 932 (2007).
- [17] С.В. Халилов, Ю.А. Успенский. ФММ 66, 1097 (1988).
- [18] R.J. Baxter, D.G. Pettifor, E.Y. Tsymbal, D. Bozec, J.A.D. Matthew, S.M. Thompson. J. Phys.: Cond. Matter 15, L 695 (2003).
- [19] Г.С. Кринчик, Е.А. Ганьшина, В.С. Гущин. ЖЭТФ 60, 209 (1971).
- [20] I.D. Lobov, M.M. Kirillova, L.N. Romashev, V.V. Ustinov, V.M. Maevskii, M.A. Milyaev. J. Magn. Magn. Mater. 300, e359 (2006).