# David HRABOVSKÝ\*, Andre R. FERT\*\*, Jaromír PIŠTORA\*\*\*

# MAGNETOOPTICKÁ METODA PRO MĚŘENÍ RELAXACE VÝMĚNNÉ ANIZOTROPIE: APLIKACE NA SYSTÉM DVOJVRSTEV Co/NiO

# MAGNETO-OPTICAL METHOD FOR THE MEASUREMENT OF EXCHANGE ANISOTROPY RELAXATION: APPLICATION TO DOUBLE LAYERED Co/NiO SYSTEM

## Abstrakt

Efekt výměnné vazby mezi feromagnetikem a antiferomagnetikem hraje důležitou roli v budoucích prvcích pro spinelektroniku. V tomto příspěvku je popsána originální magnetooptická metoda (inspirovaná článkem Krivorotov et al. [1]) k jejímu měření v tenkých magnetických vrstvách. Použití této metody na systém dvojvrstev Co/NiO umožnilo získat hodnoty jednoosé a jednosměrné výměnné anizotropie a změřit časové závislosti výměnného pole. Tato závislost je interpretována jako důsledek relaxačních procesů v antiferomagnetiku podmíněných vazbou s feromagnetickou vrstvou podle modelu Fulcomer-Charap [2]. Tento model je rozšířen na systém s určitým rozdělením energií částic a je provedeno jeho přibližné řešení.

## Abstract

The effect of exchange coupling between ferromagnetic and antiferromagnetic layer plays important role in future elements for spinelectronics. In this paper an original magneto-optical method (inspired by paper [1]) for exchange coupling measurement is presented. Using this method for study of Co/NiO bilayers allowed to obtain values of uniaxial and unidirectional exchange anisotropy and gives appear the time dependence of exchange bias field. This time dependence is interpreted as a result of aftereffects in antiferromagnetic layer due to coupling with ferromagnetic layer. Model of Fulcomer-Charap [2] has been extended to the system with the distribution of particles energy, and approximative solution of the distribution is done.

Key words: magneto-optics, exchange coupling, magnetic anisotropy, bias field, magnetic aftereffects, relaxation.

# Úvod

Jev výměnné anizotropie způsobený výměnnou vazbou mezi feromagnetikem (F) a antiferomagnetikem (AF) je znám již od padesátých let [3]. Dva přímé projevy výměnné anizotropie jsou: zvětšení koercitivního pole a posuv hysterezní smyčky (bias pole). Od objevu výměnné anizotropie vzniklo několik modelů, které se snaží popsat její velikost, či časovou závislost [4], [2], [5]. Zájem o studium výměnné anizotropie je v posledních letech podnícen přímou aplikací v prvcích pro spinelektroniku (zvláště pak tunelový magnetický přechod), kde výměnná anizotropie hraje důležitou roli pro stabilizaci magnetizace a definici vzájemných poloh magnetizace ve dvou vrstvách. Úsilí je zaměřeno na dosažení vysokých hodnot jednoosé anizotropie a významného posuvu hysterezní smyčky. V neposlední řadě je to otázka relaxačních jevů v antiferomagnetiku, které potenciálně ohrožují stabilitu spinelektronického prvku.

<sup>\*</sup> Ing., VŠB - TUO, třída 17. listopadu 15, 708 00 Ostrava-Poruba, e-mail: david.hrabovsky@vsb.cz

<sup>\*\*</sup> INSA Dep. Physique, 135, Avenue de Rangueil, 31 077 TOULOUSE Cedex 4

<sup>&</sup>lt;sup>\*\*\*</sup> Prof. Ing., CSc., VŠB - TUO, třída 17. listopadu 15, 708 00 Ostrava-Poruba, e-mail: jaromir.pistora@vsb.cz

V následujícím textu prezentujeme dva typy vzorku dvojvrstvy Co/NiO připravené s cílem dosažení maximální anizotropie. Ačkoliv z pohledu velikosti jednoosé anizotropie a posuvu hysterezní smyčky jsou oba typy vzorků srovnatelné, pozorování relaxačních jevů v antiferomagnetiku zjevuje rozdílnou podstatu anizotropie.

Ke studiu AF magnetických relaxačních jevů jsme použili techniku explicitně oddalující časově závislé jevy v AF vrstvě od časově závislých jevů v F vrstvě [1]. Při této metodě statické magnetické (*dc*) pole saturuje magnetizaci F vrstvy, přičemž malé střídavé magnetické (*ac*) pole kolmé ke statickému ji vychyluje z dané pozice. Stupeň pootočení magnetizace je nepřímo úměrný součtu vnějšího *dc* magnetického pole a vnitřního výměnného pole  $H_{ex}$ .

Tato technika má podstatnou výhodu oproti studiím relaxačních jevů v AF/F dvojvrstvách založených na měření hysterezní smyčky, protože tvar smyčky závisí na dynamických jevech v obou vrstvách. Zvláště pak koercitivní pole, které narůstá vlivem dynamických jevů ve F vrstvě, zatímco se zmenšuje vlivem dynamických jevů v AF vrstvě. Navíc výměnné pole působící na F vrstvu není konstantní v žádném bodě hysterezní smyčky. Zde prezentovaná metoda eliminuje tyto těžkosti, jelikož F magnetizace zůstává saturována po celý proces měření a tedy dynamické jevy pocházející od F vrstvy jsou eliminovány.

## Teorie

#### Popis vektoru magnetizace v rovině

Chování magnetizace vzorku v závislosti na jeho parametrech a vnějším magnetickém poli může být popsáno pomoci Stonner-Wohlfarthova modelu koherentní rotace [6]. Ačkoliv je tento model určen k popisu magnetizace v nanočásticích při nulové teplotě (jediná nedělitelná doména, tuhý jednotkový vektor magnetizace), jeho použití je v našem případě opodstatněné, neboť experimentální podmínky (saturační *dc* pole, slabá perturbace) zajišťují, že systém se nachází v lineárním režimu, v oblasti spojité rotace, vylučující nespojitou reverzaci. Při popisu našich vzorků můžeme předpokládat, že se magnetizace díky dipolární interakci nachází v rovině vzorku. Energetická hustota E (erg/cm<sup>3</sup>) v závislosti na poloze magnetizace je pak

$$E = -H M_S \cos(\varphi) + E_A(\xi).$$

Situace je vyobrazena na obrázku 1, kde *H* je vnější magnetické pole (*Oe*),  $M_S$  je vektor saturované magnetizace (emu/cm<sup>3</sup>),  $\varphi$  úhel mezi magnetizací a vnějším magnetickým polem,  $\xi$  poloha magnetizace vzhledem k počátku a  $E_A(\xi)$  je magnetická anizotropní energie (erg/cm<sup>3</sup>) v rovině vzorku.



Obr. 1: Vzájemná poloha vektoru magnetizace a magnetického pole v rovině vzorku

Vzhledem k použité magnetooptické metodě (viz dále) je výhodné za počáteční osu vzít vertikální směr. Složky magnetizace označme jako longitudinální  $M_L$  a transversální  $M_T$  (vzhledem k rovině světla). Vnější magnetické pole pak můžeme rozdělit na složku stejnosměrnou  $H_{dc}$  a k ní kolmou perturbační střídavou  $H_{ac}$ . Z uvedeného vyplývají některé užitečné vztahy:

$$H = |H| = \sqrt{H_{dc}^2 + H_{ac}^2} \qquad M_s = |M| = \sqrt{M_L^2 + M_T^2}$$
  

$$\alpha = \arg(H) = \arctan(H_{ac} / H_{dc}) \qquad \xi = \arg(M) = \arctan(M_L / M_T)$$
  

$$H_{ac} = H \sin\alpha; \quad H_{dc} = H \cos\alpha \qquad M_L = M_s \sin\xi; \quad M_T = M_s \cos\xi$$

Při dané poloze vzorku vzhledem k počátku můžeme zapsat  $\varphi = \alpha - \xi$  a hustotu energie pak

$$E = -HM_s \cos(\alpha - \xi) + E_A(\xi)$$

Poloha magnetizace při daném vnějším poli je dána minimem energie systému a tedy může být nalezena derivací předchozího vztahu ( $dE/d\xi = 0$ ):

$$H_{ac}M_{s}\cos\xi - H_{dc}M_{s}\sin\xi = \frac{dE_{A}(\xi)}{d\xi}.$$
(1)

Pravá strana výrazu odpovídá "torque" měřenému běžnými "torque magnetometry". Jestliže tedy meříme úhel  $\xi$  (popsáno v následující sekci) a při znalosti  $H_{ac}$ ,  $H_{dc}$  a  $M_S$  můžeme obdržet hodnotu magnetické anizotropní energie v daném směru. Protože námi studované vzorky jsou popsány jednoosou jednosměrnou anizotropií

$$E_A = -K_{ua}\cos^2(\xi) - K_{ud}\cos(\xi),$$

můžeme obdržet z předchozího výrazu konkrétní parametry anizotropní funkce.

$$\operatorname{Pro} K_{ud} = M_S H_{ud} \text{ a } K_{ua} = M_S H_{ua}/2$$

$$E_{A} = -M_{S} \frac{H_{ua}}{2} \cos^{2}(\xi) - M_{S} H_{ud} \cos(\xi)$$

$$\frac{dE_{A}(\xi)}{d\xi} = M_{S} H_{ua} \cos(\xi) \sin(\xi) + M_{S} H_{ud} \sin(\xi)$$
(2)

Dosazením do rovnice (1)

$$H_{ac}M_{s}\cos(\xi) - H_{dc}M_{s}\sin(\xi) = H_{ua}M_{s}\cos(\xi)\sin(\xi) + H_{ud}M_{s}\sin(\xi)$$
(3)

$$H_{ac} / \sin(\xi) - H_{dc} / \cos(\xi) = H_{ua} + H_{ud} M_s / \cos(\xi)$$

$$\tag{4}$$

$$\frac{1}{\sin(\xi)}H_{ac} - H_{dc} = H_{ua} \pm H_{ud}$$
<sup>(5)</sup>

Dostáváme tedy konečný výsledek, že výměnná anizotropie ( $H_{ua} \pm H_{ud}$ ) je úměrná převrácené hodnotě sinu úhlu rotace. Znaménko  $H_{ud}$  závisí na směru magnetizace (plus pro 0 stupňů, minus pro 180 stupňů). Výsledkem je, že pomocí dvou měření můžeme separovat hodnoty  $H_{ua}$  a  $H_{ud}$ . Také si můžeme povšimnout, že  $sin(\xi) = M_I/M_S$  a tedy problém měření úhlu se mění v závislosti na longitudinální složce magnetizace.

#### Závislost magnetooptického jevu na magnetizaci

Pro měření magnetizace můžeme s výhodou využít magnetooptického jevu. Předností této metody je, že je bezkontaktní, při vhodném zaostření světelného svazku umožňuje měřit na relativně malém povrchu (20 x 20 μm) a dovoluje nám separovat požadovanou složku magnetizace.

První přiblížení k MO jevům je založeno na konceptu Lorenzovy síly působící na světlem buzené elektrony [7]. Lineárně polarizovaný svazek nutí oscilovat elektrony ve směru polarizace (rovině elektrického pole světla). Regulárně odražené světlo  $R_N$  je polarizované ve stejné rovině. Současně Lorenzova síla vytváří malou přídavnou složku  $R_K$  kolmou k polarizaci dopadajícího světla a k magnetizaci. Superpozice obou složek vede k rotaci polarizační roviny světla závislé na magnetizaci.

Detailnější popis založený na Maxwellově elektromagnetické teorii vede k určení čtyř reflexních koeficientů a ukazuje přesněji závislosti magnetooptických jevů na magnetizaci. Analytické řešení pro longitudinální jev může být nalezeno v článcích profesora Višňovského [8]. Závislost jednotlivých reflexních

koeficientů na magnetizaci se zahrnutím kvadratického magnetooptického jevu spočítané numericky [9] jsou shrnuty v tabulce 1.

Tabulka 1: Závislost jednotlivých reflexních koeficientů na složkách magnetizace pro kubický krystal. Jednotlivé sloupce označují stupeň závislosti na magnetizaci. Sloupec anizotropní shrnuje jevy závisející na orientaci krystalových os.

orientu				
	Nemagnetický	Lineární	Kvadratický	Anisotropní
r <sub>ss</sub>	<i>F.R.</i>	-	$M_{\scriptscriptstyle P}^{\scriptscriptstyle 2}$ , $M_{\scriptscriptstyle L}^{\scriptscriptstyle 2}$ , $M_{\scriptscriptstyle T}^{\scriptscriptstyle 2}$	$M_L M_T$
$r_{pp}$	F.R.	$M_T$	$M_{\scriptscriptstyle P}^{\scriptscriptstyle 2}$ , $M_{\scriptscriptstyle L}^{\scriptscriptstyle 2}$ , $M_{\scriptscriptstyle T}^{\scriptscriptstyle 2}$	$M_L  M_T$
r <sub>sp</sub> , r <sub>ps</sub>	-	$M_P$ , $M_L$	$M_{_P}M_{_T}$ , $M_{_L}M_{_T}$	$M^{\scriptscriptstyle 2}_{\scriptscriptstyle L}$ , $M^{\scriptscriptstyle 2}_{\scriptscriptstyle T}$

Situace při dopadající s-polarizaci je naznačena v obrázku 2. Odražená polarizace bude obecně eliptická a stupeň této změny je popsán komplexním úhlem magnetooptické rotace

$$\chi = \frac{E_{oy}}{E_{ox}} = \frac{r_{sp}}{r_{ss}} = \frac{\tan\theta + i\tan\varepsilon}{1 - \tan\theta\tan\varepsilon} \,. \tag{6}$$

Vzhledem k tomu, že MO jevy jsou slabé (malý úhel rotace), výše uvedený výraz se zjednoduší na  $\chi = \theta + i\varepsilon$  a tedy  $\theta = Re\left\{\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\}$ . Z tabulky 1 vyplývá, že při omezení se na lineární MO jevy  $\theta \approx M_L$  (jak však bude ukázáno dále, díky synchronní metodě jsou explicitně vyloučeny jevy vyšších řádů).



Obr. 2: Situace při dopadající s-polarizaci, odražená vlna je obecně eliptická

#### Elipsometrická detekční metoda

Pro detekci rotace polarizační roviny odraženého světla je použita v magnetooptice známá elipsometrická metoda zvaná měření rozdílové intenzity. Odražený svazek je rozdělen polarizačním děličem (Wollastonův hranol) na dva svazky dopadající na dva detektory (Si fotodiody). Pokud dojde ke stočení polarizační roviny, nastane nerovnováha intenzit a měřený rozdílový signál bude odpovídat úhlu rotace polarizace (obr. 3).

Následuje detailní popis pro dopadající s-polarizaci.

$$J_{R} = \frac{A_{0}}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos\alpha & \sin\alpha \\ -\sin\alpha & \cos\alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_{ss} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{pp} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$
(7)

$$J_{R} = \frac{A_{0}}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} r_{ss} \cos \alpha + r_{sp} \sin \alpha \\ -r_{ss} \sin \alpha + r_{sp} \cos \alpha \end{pmatrix}$$
(8)



Obr. 3: Optické uspořádaní pro měření metodou rozdílové intenzity

 $A_0$  je amplituda dopadající EM vlny. První matice v relaci (7) představuje pootočení Wollastonova hranolu ze základní polohy o úhel  $\alpha$ , druhá matice je maticí reflexních koeficientů vzorku a třetí je vektor dopadající s-polarizace. Složky výsledného vektoru představují amplitudy dvou vystupujících svazků. Jejich jednotlivé intenzity jsou:

$$I_{1} = \frac{I_{0}}{2} |r_{ss}|^{2} (\cos^{2} \alpha + 2 \operatorname{Re}\left\{\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\} \sin 2\alpha + \left\|\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\|^{2} \sin^{2} \alpha )$$
$$I_{2} = \frac{I_{0}}{2} |r_{ss}|^{2} (\sin^{2} \alpha - 2 \operatorname{Re}\left\{\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\} \sin 2\alpha + \left\|\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\|^{2} \cos^{2} \alpha )$$

Pro rozdíl intenzit tedy dostáváme,

$$I_1 - I_2 = \frac{I_0}{2} |r_{ss}|^2 \left(\cos 2\alpha + 2Re\left\{\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\}\sin 2\alpha - \left\|\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\|^2 \cos 2\alpha\right)$$

Pro úhel  $\alpha = \pi/4$  a s využitím  $Re\left\{\frac{r_{sp}}{r_{ss}}\right\} = \theta$  vyplývá

$$I_1 - I_2 = \frac{I_0}{2} |r_{ss}|^2 2\theta$$

Rozdílová intenzita je tedy úměrná úhlu Kerrovy rotace. Faktor  $(I_0/2)|r_{ss}|^2$  může být odstraněn podělením součtem intenzit a konečný výraz nabývá tvaru:

$$\frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} = 2\theta \tag{9}$$

Shrnutí experimentální metody: měřením rozdílové intenzity dostáváme hodnotu Kerrovy rotace polarizační roviny světla, která je přímo úměrná longitudinální složce magnetizace. Poměr  $M_L/M_S$  je úhel rotace magnetizace odpovídající parametrům vzorku a aplikovanému poli podle rovnice (5). Veličiny  $M_L$  a  $M_S$  mohou být nahrazeny  $\theta$  a  $\theta_{sat}$ , kde  $\theta_{sat}$  se získá měřením hysterezní smyčky v longitudinálním směru a zbavuje nás nutnosti znát absolutní hodnotu  $M_S$ . Modifikovaná rovnice je tedy:

$$\frac{\theta_{sat}}{\theta}H_{ac} - H_{dc} = H_{ua} \pm H_{ud} .$$
<sup>(10)</sup>

## Experiment

#### Popis vzorku

Dvojvrstvy Co/NiO byly připraveny metodou katodického naprašování (sputtering deposition) na skleněném substrátu. Jako první byla připravena 125 nm vrstva NiO pomocí rf magnetronu v argon-kyslíkové plazmě. Následně byla nanesena 5 nm vrstva kobaltu pomocí dc magnetronu a doplněna ochranná hliníková vrstva tloušťky 5 nm. Byly připraveny dva druhy vzorků, lišící se ve způsobu přípravy NiO vrstvy. První typ, zde nazvaný FIX, zůstává během depozice v pevné poloze vzhledem k magnetronu. Druhý vzorek MAG po celou dobu rotuje kolem své osy s tím, že na držáku substrátu jsou umístěny magnety vystavující vzorek konstantnímu magnetickému poli 1 kOe. Detaily přípravy vzorků a jejich vlastnosti jsou popsány v [10]. Oba typy vzorků vykazují silnou jednoosou anizotropii (ačkoliv její původ je pravděpodobně rozdílný) a "exchange bias" (jednosměrnou anizotropii). Hysterezní smyčky měřené při pokojové teplotě jsou znázorněny v obrázku 4.



Obr. 4: Hysterezní smyčky u vzorků FIX a MAG při pokojové teplotě

#### Experimentální procedura

Při našich experimentech jsme využili faktu, že vzorky vykazují dobře definovanou jednoosou anizotropii. Vzorky byly nejprve magnetovány podél snadné magnetické osy. Po několika dnech byla měřena počáteční hodnota výměnné anizotropie  $H_{ex}^{imi}$  podél snadné osy způsobem popsaným výše při  $H_{dc} = 0$ . V dalším kroku byl vzorek přemagnetován polem 1 kOe po dobu 1 s ve směru opačném k počátečnímu poli a následně byla měřena hodnota  $H_{ex}^{rev}$  jako funkce času. Časová závislost  $H_{ex}$  po reverzování magnetizace je zobrazena v obrázku 5. V tomto případě je snadný směr jednosměrné anizotropie opačný ke směru magnetizace a tedy pokles hodnoty  $H_{ex}$  indikuje pokles jednosměrné výměnné anizotropie.

Jak je vidět z grafu, po několika počátečních sekundách se průběh ustálí a vykazuje logaritmický pokles. Tvar relaxační křivky můžeme popsat následujícím vztahem

$$H_{ud}(t) = H_{ud}(0) - K \log(t/t_1).$$
(11)

Parametry K, které vyjadřují rychlost relaxace v Oe/dekádu, a čas zlomu  $t_1$  mohou být získány přímým odečtem z grafu. Počáteční hodnota  $H_{ud}(0)$  je získána z  $H_{ex}^{ini}$  a  $H_{ex}^{rev}$ . Hodnoty pro dva typy vzorků jsou shrnuty v tabulce 2.



*Obrázek 5: Relaxační proces ze stavu S2*  $\rightarrow$  *S1 na vzorku FIX* 

Tabulka 2: Hodnoty jednoosé  $H_{ua}$  a jednosměrné  $H_{ud}$  anizotropie, relaxační rychlost K a normalizovaná relaxační rychlost  $K_N$  pro dva druhy vzorků.

vzorek	výchozí stav	$H_{ua}(\text{Oe})$	$H_{ud}(\text{Oe})$	K(Oe/dec)	$K_N$
FIX	S1	865	86	18.7	0.22
	S2	832	4.7	-34.2	
MAG	S1	851	160	51.0	0.32
	S2	881	-116	-98.0	

Za účelem porovnání relaxačních procesů vzorků s různými hodnotami  $H_{ud}$  jsme zavedli normalizovanou relaxační rychlost  $K_N = K/H_{ud}(0)$ . Průběhy pro dva vzorky jsou porovnány v obrázku 6, ze kterého je zřejmá větší relaxační rychlost pro vzorek MAG.



Obr. 6: Srovnání normalizovaného relaxačního procesu H<sub>ud</sub> vzorků FIX a MAG

## Analýza

Předchozí experiment ukazuje, že výměnné pole na rozhraní AF/F je časově závislé. Tento jev byl v minulosti vícekrát pozorován [11] jako závislost bias pole na historii a konečném stavu F magnetizace. Podle jednoho modelu AF/F vazby (Malozemoff [4]) se v AF vrstvě formují domény paralelní s rozhraním a předpokládá se, že každá z nich vykazuje malý magnetický moment způsobený nevykompenzovanými spiny. Jelikož jsou magnetické domény (z důvodů přípravy vzorku) orientovány podle určitého směru (snadná magnetická osa), vznikne makroskopické magnetické bias pole a hysterezní smyčka bude posunuta.

K vysvětlení časové závislosti bias pole současné modely [2] říkají, že zbytkové magnetické momenty AF domén (feromagneticky vázány - pozitivní výměnná anizotropie - s magnetizací F vrstvy) jsou většinově orientovány ve směru F magnetizace. V okamžiku reverzace magnetizace F vrstvy jsou AF domény vystaveny síle, která se snaží reverzovat jejich magnetizaci. Rychlost procesu je výsledkem tepelně aktivovaného přechodu přes energetickou bariéru, jejíž velikost je přímo svázána s rozměrem domén, jejich anizotropní energií a teplotou procesu.

## Anizotropní energie AF domény

Celková energie AF domény tloušťky  $t_{AF}$  s uniaxiální anizotropií  $K_{af}$ , která je na rozhraní vázána s feromagnetickou vrstvou, může být zapsána jako

$$E_{AF} = K_{AF} t_{AF} \sin^2(\gamma) + J_{eff} \cos(\gamma), \qquad (12)$$

kde  $\gamma$  je úhel mezi AF momenty a společnou snadnou magnetickou osou.  $J_{eff}$  je konstanta efektivní výměnné vazby způsobená nevykompenzovanými AF momenty na rozhraní. Tato může být zapsána jako  $1/\sqrt{N}$ , kde N je počet magnetických spinů v AF doméně na rozhraní.

$$J_{eff} = \frac{J_0}{\sqrt{N}},\tag{13}$$

kde  $J_0$  je výměnná vazba na rozhraní pro zcela nevykompenzované rozhraní.



*Obr. 7: Antiferomagnetická doména s uniaxiální anizotropií. γ je úhel mezi magnetizací a snadnou magnetickou osou. Magnetizace přilehlé feromagnetické vrstvy leží podél snadné osy AF domény.* 



a) b) *Obrázek 8: Závislost magnetické anizotropní energie*  $E_{AF}$  *na poloze magnetizace (a) pro*  $2K_{AF} t_{AF} > J_{eff}$  existují dvě minima, (b) pro  $2K_{AF} t_{AF} < J_{eff}$  existuje jen jeden stabilní stav

Analýzou výrazu (12) můžeme nalézt, že pro  $2K_{AF} t_{AF} > J_{eff}$  (obr. 8a) existují dvě lokální energetická minima ( $\gamma = 0$  a  $\gamma = \pi$ ) s hodnotou  $\pm J_{eff}$  oddělená maximem o velikosti

$$E_{max} = K_{AF} \left[ 1 + \left( \frac{J_{eff}}{2K_{AF} t_{AF}} \right)^2 \right]$$

Toto vede k existenci dvou rozdílných výšek bariéry:

$$\Delta E_{0 \to \pi} = E_{max} - J_{eff}$$
$$\Delta E_{\pi \to 0} = E_{max} + J_{eff}$$

Také můžeme konstatovat, že pro  $2K_{AF} t_{AF} < J_{eff}$  (obr. 8b) energetická bariéra vymizí a v důsledku toho i bias pole a posuv hysterezní smyčky.

#### Časová závislost bias pole

Teplotně aktivovaný relaxační proces (přechod z jednoho stavu do druhého) může být popsán původním Arrheniovým zákonem

$$R = A \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_{\rm B}T}\right)$$

kde *R* je rychlost procesu, *A* je obecně neznámá teplotně nezávislá konstanta,  $\Delta E$  je energetická bariéra,  $k_B$  je Boltzmanova konstanta a *T* je absolutní teplota.

Časová konstanta procesu je pak převrácená hodnota relaxační rychlosti R, tedy

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{\Delta E}{k_{\rm B}T}\right).$$

 $\tau_0$  je mikroskopický čas daný reverzačním mechanismem. Různí autoři věnující se relaxaci v systémech nezávislých malých feromagnetických částic konstatují, že volba hodnot  $\tau_0$  mezi 10<sup>-7</sup> až 10<sup>-14</sup> s nemá velký vliv na model relaxačního procesu.

K získaní časové závislosti  $H_{ud}$  je třeba vyřešit pravděpodobnost obsazení jednotlivých stavů. Z evoluční rovnice dvoustavového systému (S1  $\rightarrow$  S2) vyplývá

$$\frac{\partial P_1}{\partial t} = \frac{1}{\tau_2} P_2 - \frac{1}{\tau_1} P_1,$$

kde  $P_1$  a  $P_2$  jsou pravděpodobnosti obsazení stavu S1 a S2 a kde  $1/\tau_1$  a  $1/\tau_2$  jsou rychlosti přechodu S1  $\rightarrow$  S2 a S2  $\rightarrow$  S1. Řešení  $P_1$  pro specifický případ  $P_1(t=0) = 1$  a  $1/\tau_1 > 1/\tau_2$  (všechny AF domény jsou ve stavu S1 a F magnetizace byla právě reverzována tak, že upřednostňuje přechod do stavu S2) je

$$P_1(t) = exp(-t/\tau), \quad \text{kde} \quad \frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_2}.$$

AF domény budou postupně přecházet do nového stavu s nejmenší energií s konečnou orientací ve směru F magnetizace.

Jednoosé pole  $H_{ud}(t)$  pak získáme součtem pozitivních příspěvků od domén ve stavu S1 a negativních příspěvků od domén ve stavu S2:

$$H_{ud}(t) = H_{ud}(0) P_{l}(t) - H_{ud}(0) [1 - P_{l}(t)]$$

$$H_{ud}(t) = H_{ud}(0)[2 \exp(-t/\tau)-1]$$

Výše uvedená rovnice pro  $H_{ud}(t)$  - odvozená pro systém identických neinteragujících částic - vykazuje exponenciální časovou závislost. Toto však není ve shodě s pozorováním (obrázek 5). Zjevnou příčinou je fakt,

že částice nemají stejnou velikost či anizotropní energii. Zavedeme tedy určité rozdělení charakteristického relaxačního času  $\rho(\tau)$ . Funkce časové odezvy  $H_{ud}(t)$  tedy nabývá formu integrálu

$$H_{ud}(t) = \int_{0}^{\infty} \rho(\tau) \left[ 2 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1 \right] d\tau, \quad \text{kde } \int_{0}^{\infty} \rho(\tau) d\tau = H_{ud}(0)$$
(14)

### Řešení rozdělení ρ(τ)

Rozdělení relaxačního času  $\rho(\tau)$  dostaneme srovnáním výše uvedené integrální formy s logaritmickým průběhem měřeného signálu (rovnice 11).

$$H_{ud}(0) - K \log(t/t_1) = 2 \int_{0}^{\infty} \rho(\tau) exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d\tau - H_{ud}(0)$$

Zanedbáním konstanty a zavedením substituce  $b = K/2 \ln(10)$  dostáváme

$$-b\ln(t) = \int_{0}^{\infty} \rho(\tau) exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d\tau$$

K nalezení analytického řešení této integrální rovnice použijeme podobnosti s definicí Laplaceovy integrální transformace:

$$F(s) = \int_{0}^{\infty} f(t) exp^{-st} dt, \quad F(s) = L\{f(t)\}$$

Po substituci  $u=1/\tau$  získáváme

$$-b\ln(t) = -\int_{0}^{\infty} \frac{\rho(1/u)}{u^{2}} exp^{-u} du, \quad b\ln(t) = L\left\{\frac{\rho(1/u)}{u^{2}}\right\}$$

Abychom obdrželi  $\rho(\tau)$  je třeba provést inverzní Laplaceovu transformaci *b* ln(t), která však neexistuje. Můžeme si pomoci přechodem přes integrální tvar  $ln(t) = \int (1/q) dq$ , a použitím pravidla o integraci obrazu dostáváme

$$\int_{0}^{\infty} F(q) dq = L\left\{\frac{1}{t}f(t)\right\},\$$

f(t) se získá jako  $L^{-1} = \{F(q)\}^{-1}$ . V tom případě F(q) = (b/q), které může být transformováno  $L^{-1}\{b/q\} = b$ . Pravá strana je  $f(u) = \rho(1/u) / u$ . Srovnáním obou stran rovnice a zpětnou substitucí  $\tau = 1/u$  získáváme rozdělení

$$\rho(\tau) = b/\tau. \tag{15}$$

Kvůli způsobu odvození  $\rho(\tau)$ , je integrál  $\int_{0}^{\infty} \rho(\tau)$  nekonečný (na rozdíl od fyzikální reality, kdy počet částic a jejich příspěvek k celkovému signálu je určitě konečný). K odstranění této nesrovnalosti zavádíme dolní a horní mez ( $\tau_{min}$ ,  $\tau_{max}$ ) integrace. Mimo tyto meze bude  $\rho(\tau)$  nulová.

Funkce  $H_{ud}(t)$  tedy závisí na parametru K, který je získán přímo z měření a na  $\tau_{min}$  a  $\tau_{max}$ , které určují šířku distribuce a mohou být určeny fitem měřeného signálu.

$$H_{ud}(t) = \frac{K}{2\ln(10)} \int_{\tau_{min}}^{\tau_{max}} \frac{1}{\tau} \left[ 2 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1 \right] d\tau$$
(16)

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Může být konstatováno že integrál  $\int_{0}^{\infty} (1/q) dq$  neexistuje kvůli horní mezi  $(\lim_{t \to inf} ln(t) = inf)$ , avšak s ohledem na fyzikální realitu relaxačního procesu  $\lim_{t \to inf} H_{ud}(t) = -1$ .

Získané hodnoty pro dva studované vzorky jsou shrnuty v tabulce 3. Fitované průběhy jsou vyneseny v obrázku 6 plnou čarou spolu s experimentálními daty. Parametr  $\tau_{max}$  (horní mez rozdělení) je svázán přímo s rychlostí relaxačního procesu. Je zřetelně vidět, že  $\tau_{max}$  pro vzorek MAG je o tři řády menší než pro vzorek FIX, což naznačuje, že relaxační proces v AF je rychlejší, jak bylo ostatně pozorováno na průběhu normalizovaného  $H_{ud}$  v obrázku 6.

Tubuika 5. Tubuika jilovahyon purameira								
vzorek	$ au_{min}\left(\mathbf{s} ight)$	$ au_{max}$ (s)	K(Oe/dec)					
FIX	12.1	$2.28 \cdot 10^{10}$	18.7					
MAG	8.7	$2.33 \cdot 10^{07}$	51.0					

Tabulka 3: Tabulka fitovaných parametrů

### Diskuse

### Rozměr AF domén

Předpokládáme, že v NiO rozměr magnetických domén odpovídá rozměru krystalitu. Pomocí elektronové mikroskopie s vysokým rozlišením byla identifikována pravidelná krystalová zrna o šířce 10 až 15 nm. Tloušťka NiO vrstvy je sice 125 nm, ale vezmeme-li v úvahu Malozemoffův model, reverzace způsobená vazbou na rozhraní se týká jen vrstvy tloušťky okolo 5 nm (polovina šířky domény). Geometrické rozměry domény jsou tedy  $r = 5 \cdot 10^{-7}$ cm,  $S = 7.85 \cdot 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>,  $t_{AF} = 5 \cdot 10^{-7}$ cm,  $V = 3.93 \cdot 10^{-19}$ cm<sup>3</sup>.

Ačkoliv nemáme možnost přímého pozorovaní AF domén, je hypotéza malých rozměrů potvrzena v práci Wang et al. [12]. V experimentu je dvojvrstva NiO/NiFe patternována na elementy rozměru 1 μm. V případě epitaxní NiO vrstvy výměnné pole narůstá se zmenšujícím se rozměrem elementu, což dokazuje, že AF domény byly větší než jeden mikrometr. Naopak v případě polykrystalické NiO vrstvy výměnné pole nezávisí na rozměru elementu, což dokazuje, že AF domény jsou řádově menší.

Rozměr magnetických domén může být také určen z předpokladu, že domény se snaží zmenšovat (jak vysvětluje Malozemoff), dokud se jejich rozměr nepřiblíží šířce doménové stěny  $\delta = \pi \sqrt{A_{AF} / K_a^{AF}}$ . Vezmeme-li v úvahu absolutní hodnoty konstant výměnné interakce  $A_1 = 1.6 \cdot 10^{-7}$  erg/cm mezi prvními sousedy a  $A_2 = 6.7 \cdot 10^{-7}$  erg/cm mezi druhými sousedy a střední konstantu anizotropie  $K_a^{AF} = 3.3 \cdot 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>, získáváme hodnotu  $\delta = 14$  nm. Tato hodnota je konzistentní s předchozím pozorováním.

#### Efektivní výměnná vazba

Představa, že se AF vrstva v blízkosti rozhraní dělí na klasické domény, je zřejmě přílišné zjednodušení fyzikální reality. Nerovnosti na rozhraní způsobují silnou magnetickou frustraci v AF vrstvě vedoucí k magnetickému neuspořádání tak, jako v kterémkoliv systému s náhodnou anizotropií. Nicméně můžeme předpokládat regulérní síť AF domén s lokální magnetizací, která je výsledkem nevykompenzovaných magnetických momentů, vázanou s magnetizací F vrstvy. V prvé radě předpokládáme, že konstanta výměnné vazby na rozhraní  $J_0$ , mezi vrstvou Co a zcela nevykompenzovanou AF rovinou je 10 erg/cm<sup>2</sup>. Stejně jako v Imry - Ma problému náhodného pole, počet nevykompenzovaných spinů na povrchu AF domény plochy S je  $\sqrt{N}$ , kde N je počet magnetických center. Efektivní výměnná vazba na jednotkovou plochu je  $J_{eff} = J_0/\sqrt{N}$ . Pokud  $N = 2 S / a^2 = 900$ , pak  $J_{eff} = 0.33 \text{ erg/cm}^2$ .

#### **Energie anizotropie**

Z předchozích dvou předpokladů o rozměru domén a velikosti efektivní vazby a z měřených charakteristických relaxačních časů můžeme obdržet rozsah hodnot anizotropní energie. Za předpokladu, že všechny domény mají stejný rozměr,  $\tau_0 = 10^{-9}$ s a  $J_S = 0.2 \cdot 10^{-12}$  erg, získáváme pro vzorek FIX rozsah konstanty anizotropie

$$0.8 \cdot 10^6 < K_{AF} < 1.2 \cdot 10^6 \text{ erg/cm}^3$$

Tato hodnota odpovídá očekávaní, když vezmeme v úvahu, že magneto-krystalická anizotropie NiO je  $3.3 \cdot 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>. Připomeňme, že anizotropie ve vzorku FIX je strukturálního původu, zatímco v případě vzorku MAG jde zřejmě o magneto-elastické jevy. Srovnáme-li tyto výsledky s předchozí prací na systému Co/NiO (S. Dubourg [13]), kdy byl vzorek připraven při rotujícím substrátu a následně zahříván při aplikovaném magnetickém poli, je získaná hodnota anizotropie  $K_{AF} = 0.1 \cdot 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> asi desetkrát menší.

#### Poděkování

Autoři by chtěli především poděkovat B. Dioufovi a L. Gabillet (INSA Toulouse) za přípravu vzorků a plodné diskuse při vývoji prezentované experimentální metody a při interpretaci výsledků. Tato práce byla částečně sponzorována Grantovou agenturou České republiky (grant č. 202/03/0776) a realizována v rámci francouzsko - české vědecké spolupráce (INSA Toulouse x TU Ostrava).

## Literatura

- [1] Krivorotov, I. N., Gredig, T., Nikolaev, K. R., Goldman, A. M., and Dahlberg, E. D.: Role of magnetic aftereffect in coercivity enhancement of Co/CoO bilayers. *Physical Review B Condensed Matter and Materials Physics*, 65(18):180406/1 4, 1 May 2002.
- [2] Fulcomer, E. and Charap, S. H.: Temperature and frequency dependence of exchange anisotropy effects in oxidized NiFe films. *Journal of Applied Physics*, 43(10):4184 90, Oct 1972.
- [3] Meiklejohn, W. H. and Bean, C. P.: New magnetic anisotropy. *Physical Review*, 105(6):904 913, Nov 1956.
- [4] Malozemoff, P.: Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces. *Physical Review B Condensed Matter*, 35(7):3679 82, 1 March, 1987.
- [5] Koon, N. C.: Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic / antiferromagnetic interfaces. *Physical Review Letters*, 78(25):4865 8, 23 June 1997.
- [6] Wohlfarth, E. P. and Stoner, E. C.: A simple mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Philos. Trans. R. Soc., A240:599 642, 1948.*
- [7] Hubert, A. and Schäfer, R.: Magnetic Domains. Springer-Verlag, 1998.
- [8] Višňovský, Š.: Magneto-optical longitudinal Kerr effect in a film-substrate system. *Czechoslovak Journal* of *Physics, Section B, B36(9):1049 57, 1986.*
- [9] Postava, K., Pištora, J., Ciprian, D., Hrabovský, D., Lesňák, M., and Fert, A. R.: Linear and quadratic magneto-optical effects in reflection from a medium with an arbitrary direction of magnetization. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 3820:412 422, 1999.
- [10] Diouf, B., Gabillet, L., Fert, A. R., Hrabovský, D., Procházka, V., Snoeck, E., and Bobo, J. F.: Anisotropy, exchange bias, dipolar coupling and magnetoresistive response in NiO-Co-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Co magnetic tunnel junctions. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 265(2):204 - 214, September 2003.
- [11] Cartier, M.: PhD thesis, Université Joseph Fourrier, 2000.
- [12] Wang, Y. J. and Lai, Ch. H.: Size and shape effects on exchange field of patterned NiO/NiFe films. Journal of Applied Physics, 89(11):7537 - 9, 1 June 2001.
- [13] Dubourg, S.: Élaboration et caractérisation magnétique de bicouches NiO-Co. Étude de couplage déchange. *PhD thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse, 2001.*

### Resumé

In this paper we observed the effect of exchange coupling between ferromagnetic (F) and antiferromagnetic (AF) layers, which has been studied with two types of samples consisting of Co/NiO bilayers.

These samples (FIX and MAG) were different in way of NiO layer preparation and shown great uniaxial and unidirectional anisotropy.

For the study of AF magnetic relaxation effects we used special method, where static magnetic field (dc) saturated the magnetization of F layer and dynamic magnetic field (ac) perpendicular to dc field deflected it. It has been demonstrated this exchange anisotropy is directly proportional to the reversal value of the magnetization angle of rotation. Because the rotation of magnetization is very closely related to the longitudinal and transversal magnetization components, we can easily convert this problem to the area of measurements of ellipsometric angles, such as Kerr rotation or Kerr ellipticity. The set-up for Kerr rotation measuring consists of the polarizer, analyzer, two mentioned samples, retarder, Wollaston prism, and two detectors. Kerr rotation is proportional to the difference of two measured intensities (so-called differential ellipsometric method).

In our experiments the samples were first magnetized along the easy axis and then re-magnetized using the field of 1 kOe per second in reversal direction. It has been specified, that the dependence of external magnetic field on time is logarithmic, whereas faster relaxation process proceeded at MAG sample. This experiment obviously shown the time dependence of the field at interface AF/F, hence it was necessary to investigate another important parameters of relaxation process, for example total energy of AF domain at interface with ferromagnetic layer, bias field time dependence and also relaxation time distribution. The figure 6 shows very good agreement of experimental and theoretical values.

In conclusion we can say, that to determinate range of anisotropic constant corresponds with our theoretical expectation, whereas anisotropic constant of the MAG sample was perhaps 10 times lower than of FIX sample. This result is connected with different sample preparation. Moreover it supports very simplified theory, that AF layer close to the interface is distributed into the classic domains and roughness of interface leads to the magnetic disorder.

Recenzenti: Doc. RNDr. Petr Hlubina, CSc., Ústav fyziky FPF SU Opava, Doc. Ing. Lubomír Grmela, CSc., Ústav fyziky, Fakulta elektrotechniky a komunikačních technologií, VUT Brno.