

文章编号: 1005-4642(2021)12-0001-12



基于矢量磁光克尔效应测试的外延磁性 薄膜磁化翻转与反磁化机制研究

冯心薇, 张 慧, 薛珂磊, 詹清峰

(华东师范大学 物理与电子科学学院, 上海 200241)

摘 要: 利用磁光克尔效应测试磁性薄膜的磁滞回线, 是研究磁性薄膜表面磁性的重要方法。利用矢量磁光克尔效应测试磁化矢量的纵向和横向分量, 研究外延磁性薄膜和交换偏置异质结的磁化翻转路径, 获得了磁光克尔效应测试磁化翻转场的角度依赖关系, 结合畴壁形核与位移模型进行拟合, 提出了外延磁性薄膜与异质结中连续和分立发生的 90° 畴壁形核反磁化机制。

关键词: 外延磁性薄膜; 磁光克尔效应; 交换偏置效应; 畴壁形核与位移模型; 磁各向异性

中图分类号: O484.4; TM271

文献标识码: A

DOI: 10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.12.001

近年来, 磁性薄膜被广泛应用于磁电子学的各个领域^[1-2], 如信息存储^[3-4]、磁传感器^[5]、微波通信^[6]等。不同应用领域需要具备不同性能的磁性薄膜, 因此磁性薄膜性质的研究成为广大研究者关注的热点。本文重点介绍了华东师范大学在外延磁性薄膜与异质结领域中的研究进展, 主要包括: 外延磁性薄膜中单轴磁各向异性的调控及其对磁化翻转的影响, 外延交换偏置异质结中单轴磁各向异性的调控及其对磁化翻转的影响, 外延磁性薄膜与交换偏置异质结中畴壁形核与位移反磁化机制。展示了磁光克尔效应测试在磁学研究中的广泛应用。

1 外延磁性薄膜的反磁化机制

磁性薄膜主要是由能够直接或间接产生磁性的 Fe, Co, Ni 等过渡族金属及其化合物制备而成。外延磁性薄膜是指在单晶衬底上生长的具有和单晶衬底相同晶向或者薄膜的某个结晶取向的晶格常量与单晶衬底的晶格常量相匹配的磁性薄膜。因此, 外延生长的磁性薄膜都是单晶薄膜, 单晶磁性薄膜与多晶磁性薄膜的主要区别在于与晶轴取向相关的磁晶各向异性。

目前常用的外延磁性薄膜制备手段有分子束外延 (Molecular beam epitaxy, MBE)、磁控溅射 (Magnetron sputtering, MS) 以及离子束溅射 (Ion beam sputtering, IBS)。通过控制沉积速率以及衬底温度等参量, 使薄膜能够在适当的单晶衬底上外延生长。

磁性薄膜受到外加磁场的作用时, 通过磁畴转动和畴壁位移的方式, 使新的磁畴结构替代原有磁畴。从磁中性状态变为所有磁畴取向都为外磁场方向的技术磁饱和状态的过程称为磁化过程, 从一个方向的技术饱和磁化状态变为相反方向的技术饱和磁化状态的过程称为反磁化过程。反磁化机制主要包括 2 种理论模型, 分别是 Stoner-wohlfarth 模型和畴壁形核与位移模型。Stoner-wohlfarth 模型也称一致转动模型, 该理论假定磁性材料由单畴粒子的集合构成, 磁化强度的改变只能通过粒子磁矩在外磁场的作用下抵抗磁各向异性的一致转动来实现。畴壁形核与位移模型是指在外磁场的作用下, 小区域的反磁化核逐步长大成为反磁化畴, 并出现畴壁, 进而进行可逆和不可逆畴壁位移, 即在反磁化过程中分别经历磁畴生长和畴壁位移 2 个阶段。

收稿日期: 2021-09-11; **修改日期:** 2021-09-23

作者简介: 冯心薇 (1997—), 女, 江苏苏州人, 华东师范大学物理与电子科学学院 2020 级硕士研究生, 研究方向为铁磁/铁电复合多铁异质结的制备与电控磁。E-mail: 51204700027@stu.ecnu.edu.cn

通讯作者: 詹清峰 (1977—), 男, 江西余干人, 华东师范大学物理与电子科学学院教授, 博士, 从事磁性金属薄膜的制备及其在高频、传感、存储的应用基础研究工作。E-mail: qfzhan@phy.ecnu.edu.cn



2 矢量磁光克尔效应测试系统与方法

磁光克尔效应 (Magneto-optic Kerr effect, MOKE) 是指线偏振光经过磁性材料表面, 其反射光的偏振态发生变化的现象. MOKE 测试是一种高灵敏的测试技术, 可以表征磁性薄膜的面内和面外磁性^[7]. 研究外延磁性薄膜反磁化机制, 表征磁化翻转路径, 需要同时测量磁化矢量平行外磁场的纵向分量 m_x 和垂直外磁场的横向分量 m_y , 如图 1 所示^[8].

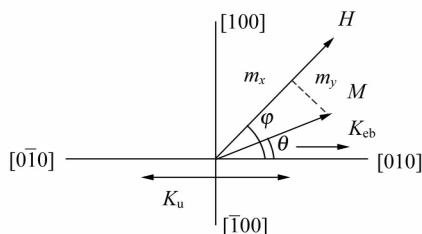


图 1 外延磁性薄膜的磁化矢量示意图

矢量 MOKE 测试装置如图 2 所示, 主要由 He-Ne 激光器、起偏器、四极磁铁、检偏器、光弹调制器、光电检测器组成. 通过四极磁铁可以对样品表面施加 x 方向和 y 方向磁场. 保持光平面不变, 通过改变磁场方向并旋转样品, 利用纵向克尔效应可以测出 m_x 和 m_y .

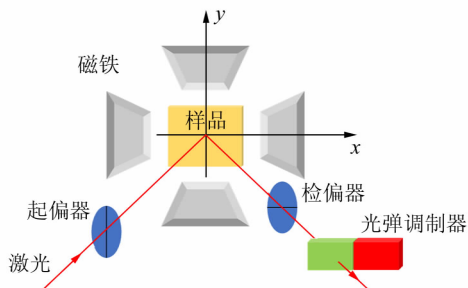


图 2 矢量磁光克尔效应测试系统示意图

具体操作方法为:

1) 使用 x 方向的 1 对磁极, 基于纵向 MOKE 测量, 得到 m_x (正比于克尔角 θ_K) 随外磁场的变化关系, 即纵向磁滞回线;

2) 将外磁场切换到 y 方向, 同时将样品旋转 90° , 使 m_y 处于光入射面内, 而磁场方向垂直于 m_y . 基于纵向 MOKE 测量, 得到 m_y (正比于克尔角 θ_K) 随外磁场的变化关系, 即横向磁滞回线;

3) 通过平面内旋转样品, 改变磁场 H 与易磁

化轴的夹角 φ , 获得不同磁场方向下的纵向与横向磁滞回线, 得到磁化翻转场的角度依赖关系.

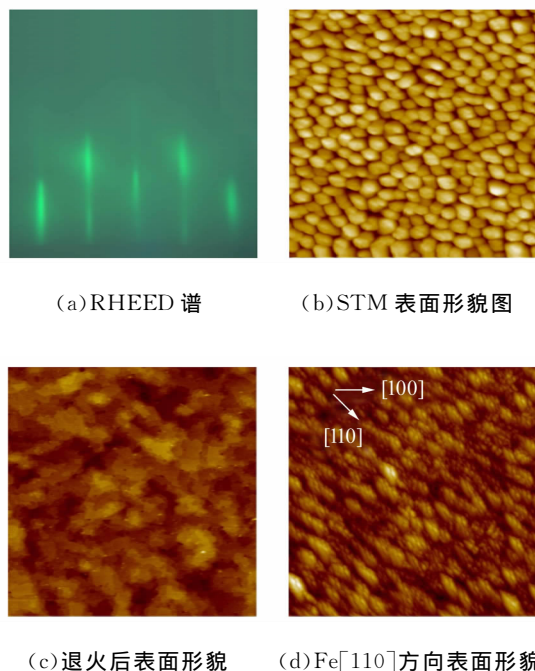
3 实验研究进展

外延磁性薄膜表现出内禀磁晶各向异性 K_1 , 对于具有体心立方结构的 Fe, 磁晶各向异性在面内具有四重对称性, 如图 1 所示. 此外, 由于单晶衬底的斜切以及倾斜生长等原因, 单晶外延磁性薄膜中还会额外引入 1 个感生单轴磁各向异性 K_u ^[9]. 对于单晶外延交换偏置异质结, 铁磁层与反铁磁层界面处的交换耦合作用会给铁磁层施加 1 个单向磁各向异性 K_{eb} , 并诱导出 1 个 K_u . 通过倾斜生长, 可以在铁磁层中获得另外 1 个 K_u . 由于这 3 种磁各向异性的共同作用, 外延磁性薄膜和交换偏置异质结在不同外磁场方向下表现出不同的磁化翻转行为, 磁化翻转场表现出复杂的角度依赖关系.

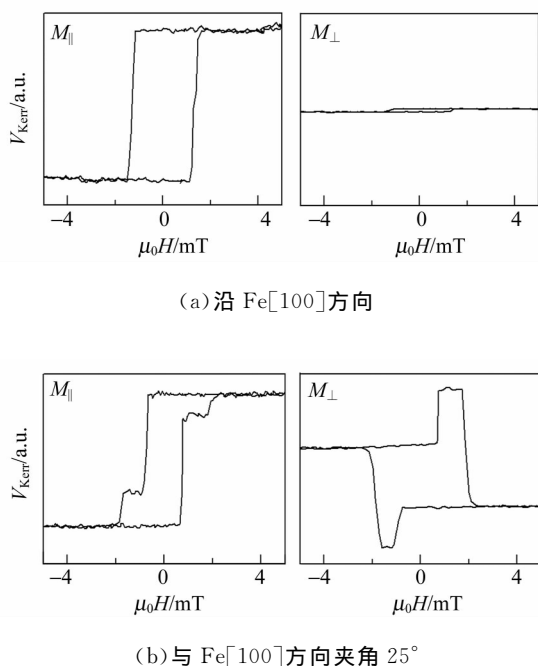
采用矢量 MOKE 系统通过测试磁化矢量的纵向分量 m_x 和横向分量 m_y , 研究了 K_{eb} 和 K_u 的强度与方向对外延磁性薄膜与异质结磁化翻转行为影响的规律, 建立了两步连续和分立发生的 90° 畴壁形核与位移反磁化机制, 阐明了外延磁性薄膜与异质结的反磁化行为.

3.1 外延磁性薄膜中单轴磁各向异性的调控及其对磁化翻转的影响

利用 MBE 技术在 MgO(001) 单晶衬底上采用 150°C 的衬底温度外延生长厚度分别为 20 nm 和 100 nm 的 2 种 Fe 薄膜. 反射高能电子衍射 (Reflection high-energy electron diffraction, RHEED) 沿 Fe[110] 方向测试表现为条纹状, 表明薄膜为原子有序的单晶态, 如图 3(a) 所示. 扫描隧道显微镜 (Scanning tunneling microscopy, STM) 测试表明 Fe 薄膜表面呈现 30 nm 大小的颗粒状, 如图 3(b) 所示. Fe 薄膜在真空中 700°C 退火 1 h 后, 颗粒状表面变得非常平整, 达到原子级平整度, 如图 3(c) 所示. 使用 2 keV 的 Ar 离子束沿 Fe[110] 方向以 60° 入射轰击 100 nm 薄膜样品表面 200 min, 薄膜表面呈现出沿 Fe[110] 方向横向周期为 35 nm 的条纹状形貌结构, 如图 3(d) 所示. Ar 离子束刻蚀不仅能够有效改变薄膜的表面形貌, 还能够减小样品厚度, 经过 Ar 离子刻蚀处理的外延 Fe 薄膜样品, X 射线反射 (X-ray reflectivity, XRR) 测试表明其厚度仅为 20 nm.

图 3 外延 Fe/MgO 薄膜在制备态时的形貌^[10]

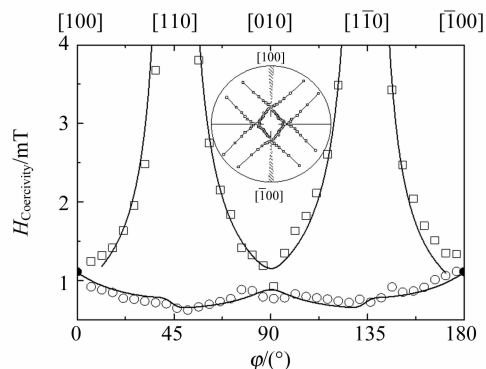
矢量 MOKE 测试表明,经过和未经过 Ar 离子束表面刻蚀处理的样品,当外磁场沿 Fe[100] 方向测试时,磁化矢量的纵向分量 M_{\parallel} 表现为单步跳跃的矩形磁滞回线,对应 180° 磁化翻转过程,磁化翻转场也就是矫顽场 H_c ;磁化矢量的横向分量 M_{\perp} 信号很弱,表明反磁化机制为畴壁形核与位移过程,如图 4(a) 所示。

图 4 外延薄膜在不同磁场方向下的磁滞回线^[10]

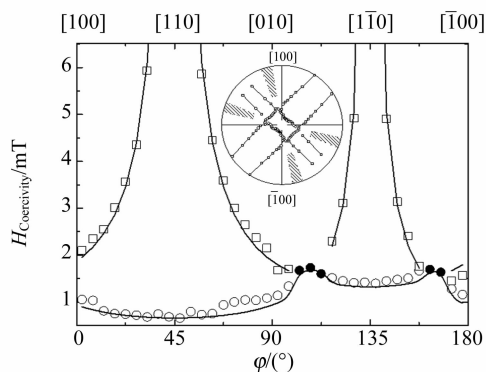
当外磁场远离 Fe[100] 方向时,磁化矢量的纵向分量 M_{\parallel} 和横向分量 M_{\perp} 均表现为两步跳跃的台阶型磁滞回线,对应 2 次 90° 磁化翻转过程,2 个磁化翻转场分别为 H_{c1} 和 H_{c2} ,如图 4(b) 所示。

通过平面内旋转样品,改变磁场方向与 Fe[100] 方向的夹角,获得磁化翻转场的角度依赖关系。由于磁化翻转场由磁各向异性决定,因此磁化翻转场的角度依赖关系对称性以及单步跳跃矩形磁滞回线和两步跳跃台阶型磁滞回线存在的磁场方向区间直接反映了磁性薄膜的磁各向异性。

未经过 Ar 离子刻蚀处理的 Fe/MgO(001) 薄膜的磁化翻转场与不同类型磁滞回线发生的磁场区间沿面内 Fe[100] 方向对称,表明感生单轴磁各向异性沿 Fe[100] 方向,与有关 Fe/MgO(001) 的研究报道中磁各向异性构型相同^[11],如图 5(a) 所示。经过 Ar 离子刻蚀处理的 Fe/MgO(001) 薄膜的磁化翻转场与磁滞回线发生磁场区间沿面内 Fe[110] 方向对称,表明感生单轴磁各向异性沿着 Fe[110] 方向,如图 5(b) 所示。



(a) 未经过 Ar 离子束定向刻蚀



(b) 经过 Ar 离子束定向刻蚀

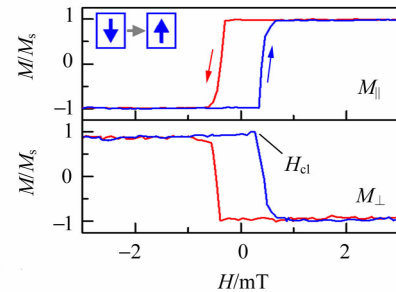
图 5 外延 Fe/MgO(001) 薄膜在不同磁场方向下的磁化翻转场的角度依赖关系^[10]

这种磁各向异性构型通常能够在 Fe/GaAs (001) 薄膜中被观察到,但是从未在 Fe/MgO(001) 薄膜中被观察到^[12]. 通过离子束刻蚀定向修饰外延 Fe 薄膜表面,由于表面晶粒形状的取向性,产生沿 Fe[110] 方向的单轴磁各向异性,获得有别于以往 Fe/MgO(001) 相关研究工作的全新磁各向异性构型^[10].

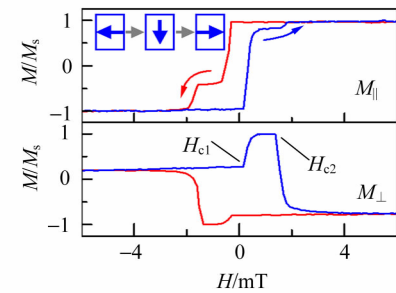
倾斜生长是在磁性薄膜中诱导产生单轴磁各向异性的常用方法,其原理为生长过程中薄膜晶粒产生的自遮蔽效应^[13],从而薄膜表面晶粒在垂直原子入射方向上被拉长,由于晶粒的形状呈现各向异性,导致薄膜表现出垂直于原子入射方向的单轴磁各向异性. 在 Fe/MgO(001) 薄膜外延生长过程中,改变 Fe 原子束流与衬底法线方向的倾斜生长夹角,控制原子束流的平面内方位角沿 Fe[010] 或 Fe[110] 方向.

利用 MOKE 测试,研究了不同倾斜生长角下制备的外延 Fe/MgO(001) 薄膜的磁化翻转过程. 对于原子束流沿 Fe[010] 方向,正入射生长以及倾斜生长角为 11° 和 30° 的样品,磁场方向靠近 Fe[100] 方向时,磁化矢量的纵向与横向分量都表现出常规的单步跳跃矩形磁滞回线,磁场远离 Fe[100] 方向时,磁化矢量的纵向与横向分量都表现出两步跳跃台阶磁滞回线,如图 6(a)~(b) 所示. 磁化矢量的横向分量能够给出磁化翻转的具体路径,对于图 6(a)~(b) 中磁滞回线的磁场上行支(蓝色曲线),磁化翻转路径分别是 Fe[$\bar{1}00$] \rightarrow [100] 和 Fe[0 $\bar{1}0$] \rightarrow [$\bar{1}00$] \rightarrow [010]. 随着倾斜生长角增大到 49° 和 60° ,样品除了表现出单步和两步跳跃型磁滞回线,磁场在 Fe[010] 方向附近时,可以观察到由 2 个分离子回线构成的“反型”两步跳跃台阶磁滞回线,如图 6(c) 所示. 磁化矢量的横向分量表明磁场上行支磁化翻转路径是 Fe[0 $\bar{1}0$] \rightarrow [100] \rightarrow [010],磁滞回线台阶处对应的磁化矢量所处的 Fe[100] 晶向与图 6(b) 中的 Fe[$\bar{1}00$] 方向相反. 磁场稍微远离 Fe[010] 方向时,可以观察到三步跳跃台阶磁滞回线,如图 6(d) 所示,磁化矢量的横向分量表明磁场上行支的磁化翻转路径是 Fe[0 $\bar{1}0$] \rightarrow [$\bar{1}00$] \rightarrow [100] \rightarrow [010]. “反型”两步跳跃与三步跳跃台阶磁滞回线的出现,表明倾斜生长角增大到一定值后(约为 45°),才能有效提高单轴磁各向异性,从而与四重对称磁晶各向异性共同作用,表现出这 2 种新型

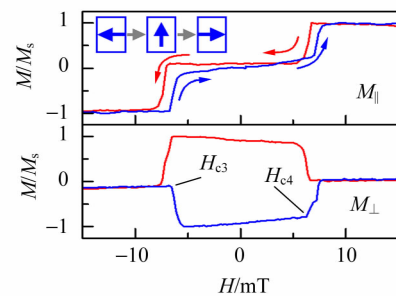
磁化翻转过程. 对于原子束流沿 Fe[110] 方向,由于产生的单轴磁各向异性沿着四重对称磁晶各向异性的难磁化方向,而单轴磁各向异性的强度远小于磁晶各向异性,所以随着倾斜生长角度的增加,薄膜的磁化翻转过程并没有明显的变化,仅表现出单步和两步跳跃磁滞回线^[14].



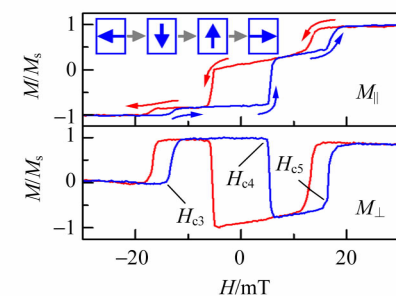
(a) 单步



(b) 两步



(c) “反型”两步



(d) 三步

图 6 倾斜生长外延 Fe/MgO(001) 薄膜的磁滞回线^[14]

生长在不同单晶衬底上的外延磁性薄膜通常都会出现感生单轴磁各向异性,叠加在内禀四重对称磁晶各向异性上,这个感生单轴磁各向异性的来源有多种可能,例如,在 Fe/GaAs(001)薄膜中观察到的单轴磁各向异性归因于 GaAs 衬底表面悬挂键的单轴特性^[15];生长在台阶表面的 Fe 薄膜由于奈尔表面效应会表现出 1 个垂直于原子台阶的单轴磁各向异性^[16];倾斜生长由于自遮蔽效应会表现出 1 个垂直于原子束流方向的单轴磁各向异性^[17]。

为研究外延 Fe/MgO(001)薄膜中单轴磁各向异性来源的物理机制,制备厚度为 5~100 nm 的外延 Fe/MgO(001)薄膜。在薄膜生长过程中,通过不断旋转衬底的方法,避免倾斜生长导致的单轴磁各向异性。利用矢量 MOKE 测试获得薄膜在不同磁场方向下的磁化翻转场,利用畴壁形核与位移模型对磁化翻转场的角度依赖关系进行拟合,能够定量获得单轴磁各向异性 K_u 与 90°畴壁形核能 ε_{90° ,如图 7 所示。

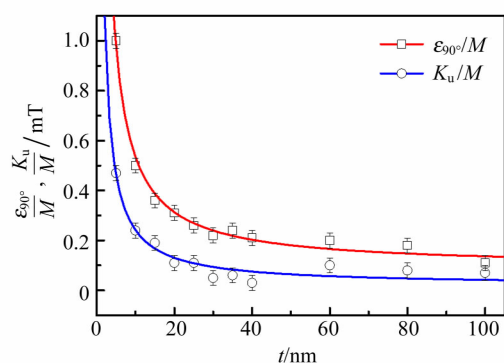


图 7 外延 Fe/MgO(001)薄膜的单轴磁各向异性 K_u 及 90°畴壁形核能 ε_{90° 与 Fe 层厚度成反比^[9]

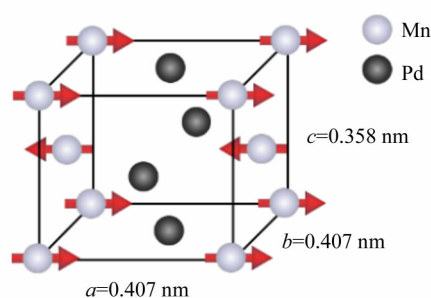
薄膜的单轴磁各向异性和畴壁形核能均与 Fe 层厚度成反比,表明单轴磁各向异性与畴壁形核能均来自于与界面相关的物理效应。由于单晶衬底斜切导致的原子台阶是薄膜单轴磁各向异性的最主要可能来源。此外,晶格失配产生的外延应变由于磁致伸缩效应而产生的磁应力各向异性也是单轴磁各向异性的可能来源。异质外延生长在界面处会存在位错等结构缺陷,对畴壁位移起到钉扎作用,从而增大畴壁形核能^[9]。

3.2 外延交换偏置异质结中单轴磁各向异性的调控及其对磁化翻转的影响

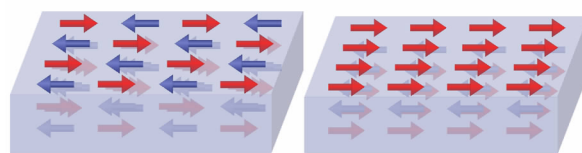
交换偏置效应是铁磁/反铁磁异质结由于界

面交换耦合作用导致磁滞回线偏离中心的现象。反铁磁界面磁结构是决定界面交换耦合的重要因素,不同的界面磁结构导致不同的界面交换耦合方式,根据铁磁矩与反铁磁矩取向之间的关系,可以分为平行耦合与垂直耦合^[18]。以往对于铁磁/反铁磁交换偏置异质结的研究,磁性层大多以多晶形式存在,而单晶外延交换偏置体系由于制备困难而很少被关注。

相比多晶体系,外延交换偏置异质结的界面磁结构更容易控制,通过改变制备工艺可以获得补偿或非补偿的反铁磁界面,从而产生不同的界面交换耦合方式与交换偏置特性。MnPd 是具有 CuAu-I 型原子有序结构的反铁磁合金,奈尔温度为 540 °C,晶格常量 $a=0.407$ nm, $c=0.358$ nm,如图 8(a)所示。通过精确控制衬底温度,在 MgO(001)单晶衬底上获得了 MnPd 的 c 轴取向生长(补偿反铁磁面)和 a 轴取向生长(非补偿反铁磁面),如图 8(b)和 8(c)所示,不同取向生长的反铁磁层与 Fe 层构成的外延交换偏置异质结表现出截然不同的磁学性质^[19]。



(a) MnPd 原子结构

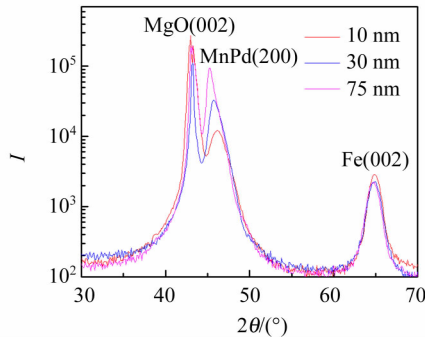


(b) 补偿反铁磁表面 (c) 非补偿反铁磁表面

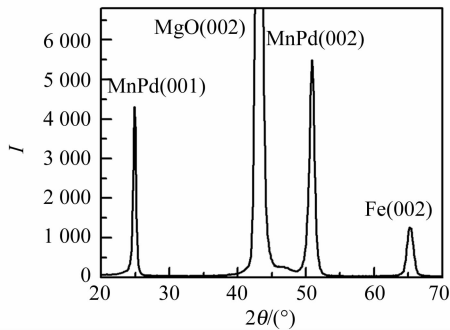
图 8 具有 CuAu-I 型原子有序结构的 MnPd 反铁磁合金表面特性

图 9 是外延生长的 MnPd/Fe 异质结的 X 射线衍射(X-ray diffraction, XRD)图, a 轴取向样品表现出 MnPd(200)和 Fe(002)峰, c 轴取向样品表现出 MnPd(001),MnPd(002)和 Fe(002)峰,表明外延生长关系分别是 MnPd(100)[100]|| Fe(001)[110]|| MgO(001)[100]和 MnPd(001)

$[100]||\text{Fe}(001)[110]||\text{MgO}(001)[100]$. a 轴取向的 MnPd/Fe 异质结, Fe 层厚度固定为 10 nm, 晶格常量为 0.288 nm. 随着 MnPd 层厚度从 5 nm 增加到 75 nm, MnPd 的晶格常量逐渐从 0.392 nm 增加到 0.400 nm, 表明由于晶格失配导致的外延应变随着薄膜厚度的增加而通过产生结构缺陷的方式逐渐被释放.



(a) a 轴取向

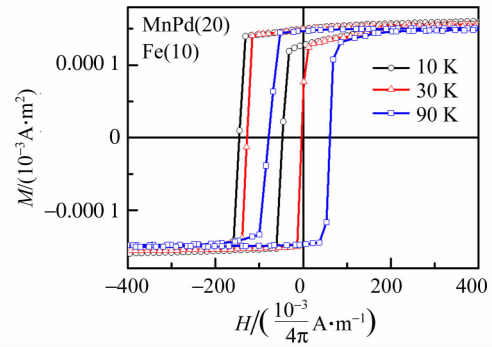


(b) c 轴取向

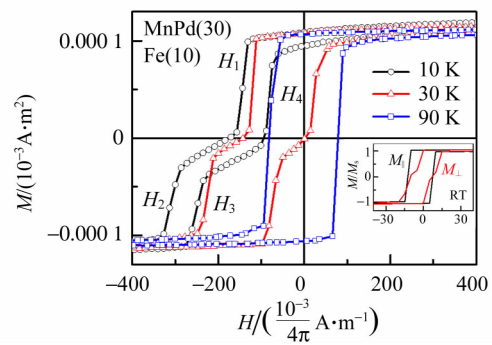
图 9 不同轴取向生长的外延 MnPd/Fe/MgO(001) 异质结的 X 射线衍射图^[20]

使用量子设计公司的物性测试系统 (PPMS) 对 a 轴取向的 MnPd/Fe 异质结的磁性进行测试. 样品在 $\frac{5}{4\pi}$ A/m 的磁场下从 300 K 冷却到 10 K, 而后磁场扫描 10 个循环以降低磁锻炼效应, 最后从 10 K 升温到 300 K 测试磁滞回线. 当 MnPd 厚度不超过 20 nm 时, 在 10~300 K 温度区间, 样品磁滞回线始终保持矩形, 如图 10(a) 所示. 当 MnPd 厚度为 30 nm 时, 样品在低温下呈现两步跳跃台阶磁滞回线, 随着温度升高, 台阶逐渐消失, 磁滞回线变成矩形, 如图 10(b) 所示. 无论是矩形还是台阶磁滞回线, 交换偏置场都随温度升高而逐渐降低, 在 90 K 时消失. 矩形与台阶磁滞回线表明随着 MnPd 厚度的增加, 界面铁

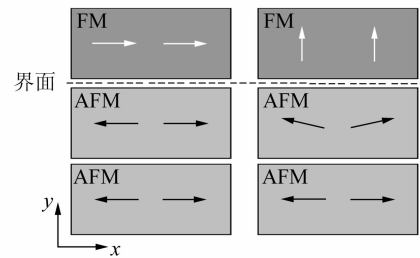
磁/反铁磁交换耦合作用增强, 界面耦合机制由平行变为垂直, 如图 10(c) 所示^[20].



(a) MnPd 厚度 20 nm



(b) MnPd 厚度 30 nm

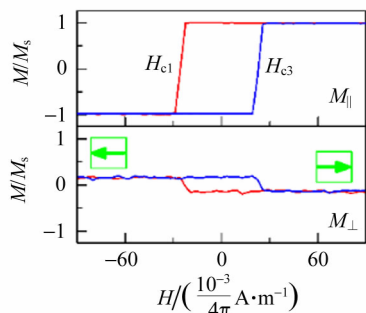


(c) 界面铁磁/反铁磁交换耦合作用随 MnPd 厚度变化

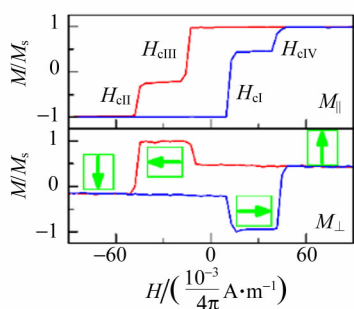
图 10 MnPd/Fe 异质结磁性变化趋势^[20]

固定铁磁层厚度为 10 nm, 制备具有不同反铁磁层厚度的 c 轴取向 MnPd/Fe 异质结, 使用矢量 MOKE 测试探究室温下具有不同反铁磁层厚度的外延 MnPd/Fe 交换偏置异质结的磁化翻转, 结果如图 11 所示. 当 MnPd 厚度较小时 (如 10 nm), 界面交换耦合较小, 外延 MnPd/Fe 异质结的纵向和横向磁滞回线与外延 Fe/MgO(001) 薄膜相似, 当磁场沿 Fe $[010]$ 方向交换偏置时, 纵向与横向信号呈现出偏离中心的矩形磁滞回线, 如图 11(a) 所示. 在其他方向表现出“双边”两步跳跃磁化翻转过程, 例如与 Fe $[010]$ 夹角 65° 时,

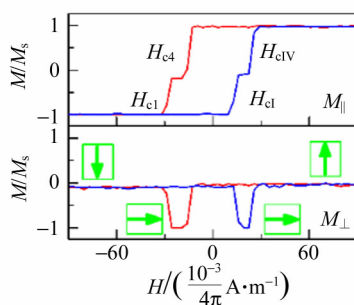
磁场上行支磁化翻转路径为 $\text{Fe}[\bar{1}00] \rightarrow [010] \rightarrow [100]$, 磁场下行支为 $\text{Fe}[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0] \rightarrow [100]$, 磁滞回线上下行支台阶处对应的磁化矢量所处的 $\text{Fe}[010]$ 与 $[0\bar{1}0]$ 晶向相反, 如图 11(b) 所示.



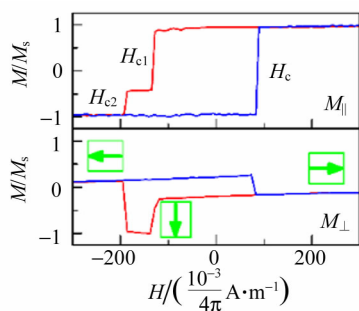
(a) 偏离中心的单步跳跃矩形磁滞回线



(b) “双边”两步跳跃台阶磁滞回线



(c) “单边”两步跳跃台阶磁滞回线



(d) 上行支单步、下行支两步的非对称磁滞回线

图 11 外延 MnPd/Fe 交换偏置异质结的磁化翻转

当磁场沿 $\text{Fe}[100]$ 方向垂直交换偏置时, 外延交换偏置异质结表现出“单边”两步跳跃磁化翻转过程, 磁化矢量的横向分量表明磁滞回线上下行支都经过 $\text{Fe}[010]$ 交换偏置方向, 如图 11(c) 所示. 随着反铁磁层厚度增大, 交换偏置场逐渐增大, 例如 MnPd 厚度为 75 nm 时, 样品在偏离 $\text{Fe}[010]$ 方向 20° 交换偏置时呈现出上行支单步、下行支两步的非对称磁滞回线, 如图 11(d) 所示.

通过畴壁形核模型对磁化翻转场的角度依赖关系进行拟合, 结果表明交换偏置单向磁各向异性 K_{eb} 、单轴磁各向异性 K_{u} 、畴壁形核能 ϵ_{90° 随着反铁磁厚度的增加而变大, 当 MnPd 层厚度达到 75 nm 时还未达到饱和, 明显区别于多晶交换偏置体系^[21].

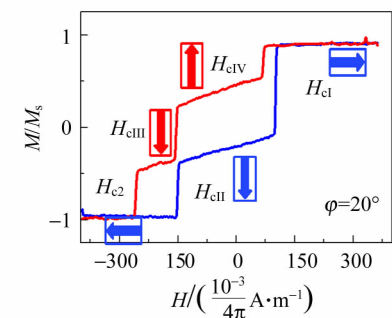
根据交换偏置反铁磁畴理论, 反铁磁层中的结构缺陷导致反铁磁畴的产生, 导致未补偿反铁磁矩和交换偏置^[22]. 外延单晶反铁磁薄膜中的缺陷较少, 随着反铁磁层厚度增加, 结构缺陷的产生使得外延应变逐渐被释放, 反铁磁畴尺寸逐渐减小, 从而使得交换偏置及其诱导的单轴磁各向异性不断增大. 界面结构缺陷同时对铁磁畴形成钉扎作用, 使得畴壁形核能不断增大.

外延交换偏置异质结中磁化翻转过程是由铁磁层内禀四重对称磁晶各向异性、反铁磁/铁磁界面交换耦合导致的单向磁各向异性和单轴磁各向异性共同决定. 通常的反铁磁/铁磁交换偏置双层膜, 反铁磁矩与铁磁矩在界面处是平行耦合, 诱导产生的单向磁各向异性与单轴磁各向异性方向平行. 倾斜生长是能够有效控制单轴磁各向异性方向与强度的常用方法. 在 $\text{MgO}(001)$ 单晶衬底上外延生长 $\text{IrMn}(20 \text{ nm})/\text{FeGa}(10 \text{ nm})$ 交换偏置异质结过程中, 沿 $\text{FeGa}[010]$ 方向原位施加 $\frac{1}{8\pi} \text{ A/m}$ 的磁场以产生该方向的交换偏置; 通过控制 FeGa 倾斜生长角为 45° , 原子束流平行或垂直于交换偏置方向, 可以人工控制单轴磁各向异性 K_{u} 平行或垂直单向磁各向异性 K_{eb} .

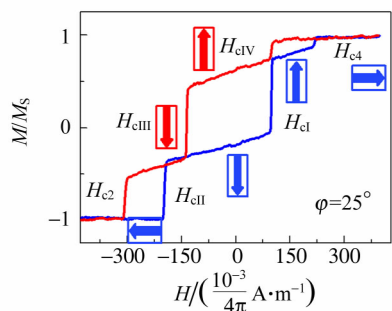
利用矢量 MOKE, 可以研究不同磁各向异性构型对外延交换偏置异质结磁化翻转过程的影响规律. 具有传统 $K_{\text{u}} // K_{\text{eb}}$ 磁各向异性构型的 IrMn/FeGa 异质结在不同磁场方向下表现出类似 MnPd/Fe 体系中的单步跳跃矩形磁滞回线, “双边”与“单边”两步跳跃台阶磁滞回线, 以及上

行支单步、下行支两步的非对称磁滞回线。

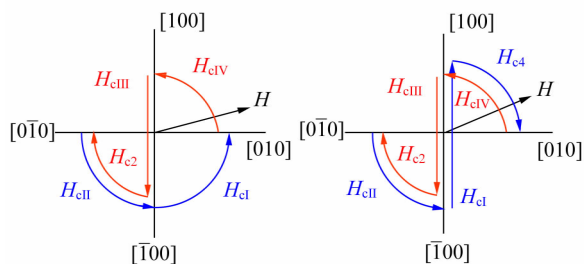
通过倾斜生长控制可以获得具有 $K_u \perp K_{eb}$ 磁各向异性构型的 IrMn /FeGa 样品, 实验结果如图 12 所示。



(a) 新型非对称磁化翻转



(b) 具有交换偏置的三步磁化翻转



(c) 上行支路径

(d) 下行支路径

图 12 具有 $K_u \perp K_{eb}$ 磁各向异性构型的 IrMn /FeGa 样品, 一定磁场方向的磁化翻转行为及相应的磁化翻转路径

在偏离交换偏置 FeGa[010] 方向 20° 和 25° 时, 观察到新型的上行支两步、下行支三步非对称磁化翻转[图 12(a)], 以及具有交换偏置的三步磁化翻转行为[图 12(b)]. 磁化矢量的横向分量表明新型非对称磁化翻转的上行支路径为 FeGa[010] \rightarrow [100] \rightarrow [010], 下行支路径为 FeGa[010]

\rightarrow [100] \rightarrow [100] \rightarrow [010], 如图 12(c) 所示. 交换偏置三步磁化翻转的磁场上行支路径为 FeGa[010] \rightarrow [100] \rightarrow [100] \rightarrow [010], 磁场下行支为上行支的逆过程, 如图 12(d) 所示^[23].

3.3 外延磁性薄膜与交换偏置异质结中畴壁形核与位移反磁化机制

外延磁性薄膜与交换偏置异质结表现出多种磁化翻转过程, 具体磁化翻转路径由磁晶各向异性、单轴磁各向异性、单向磁各向异性, 以及不同方向下施加的外磁场共同决定. 剑桥大学 Cowburn 等人认为 180° 磁化翻转遵从 180° 畴壁形核机制, 90° 磁化翻转遵从 90° 畴壁形核机制, 相应的能量为 180° 畴壁形核能和 90° 畴壁形核能^[24-25]. Cowburn 等人建立的模型能够解释外延磁性薄膜中 90° 磁化翻转场的角度依赖关系, 但是并不能解释 180° 磁化翻转场的角度依赖关系^[26]. 在 Fe/MgO(001) 薄膜中, 180° 磁化翻转存在于单步跳跃矩形磁滞回线以及三步跳跃台阶磁滞回线的中间一步磁化翻转[图 6(a)和 6(d)].

图 13 给出了具有不同单轴磁各向异性的 Fe/MgO(001) 薄膜的磁化翻转场的角度依赖关系, 其中图 13(a) 是 15 nm 厚的 Fe/MgO(001) 薄膜, 49° 倾斜生长诱导了 1 个沿 Fe[010] 方向相对较强的单轴磁各向异性, 在磁场沿 Fe[010] 方向 ($\varphi=0^\circ$) 附近表现矩形磁滞回线, 具有 1 个磁化翻转场; 在磁场沿 Fe[100] 方向 ($\varphi=90^\circ$) 附近表现两步台阶磁滞回线, 具有 2 个磁化翻转场; 进一步远离 Fe[100] 方向表现三步台阶磁滞回线, 具有 3 个磁化翻转场. 180° 畴壁形核机制预测单步矩形磁滞回线和三步台阶磁滞回线中 180° 磁化翻转场的角度依赖关系为 $H_c = \frac{\epsilon_{180^\circ}}{2M|\cos \varphi|}$, 在 $\varphi=0^\circ$

时磁化翻转场 H_c 表现为极小值, 在 $\varphi=90^\circ$ 时为无限大, 如图 13(a) 插图中绿线所示, 表明 180° 畴壁形核机制明显不符合由矢量 MOKE 获得的实验值. 图 13(b) 是无倾斜角生长的 15 nm 厚的 Fe/MgO(001) 薄膜, 图 13(c) 是使用 2 keV 的 Ar 离子束沿着介于 Fe[100] 和 Fe[110] 之间的方向以 60° 入射轰击样品表面 250 min 剩余厚度 15 nm 的 Fe/MgO(001) 薄膜, 在 $\varphi=0^\circ$ 附近表现矩形磁滞回线, 而在其他磁场方向表现为两步台阶磁滞回线, 其中绿线是 180° 畴壁形核机制得到的磁化翻转场角度依赖关系, 明显不符合实验值.

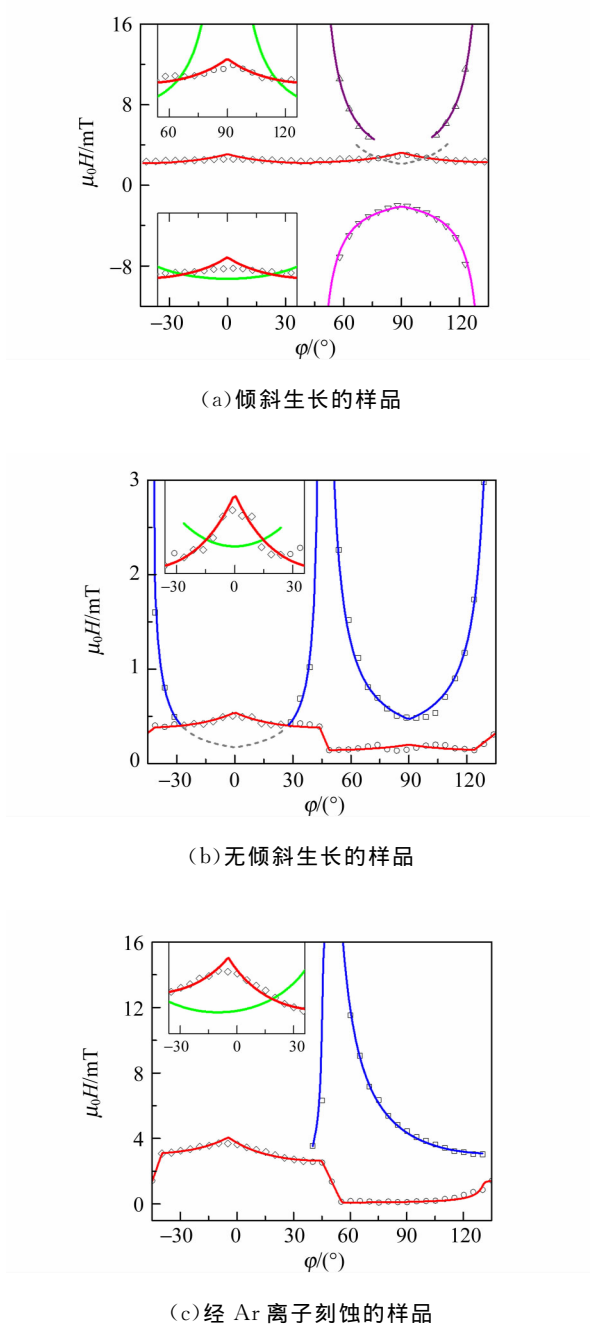


图 13 具有不同单轴磁各向异性的 Fe/MgO(001) 薄膜的磁化翻转场的角度依赖关系^[26]

为从理论上理解外延磁性薄膜与交换偏置异质结的磁化翻转过程与反磁化机制,探究 180° 畴壁形核机制不能解释 180° 磁化翻转过程的原因,在 Cowburn 等人建立的畴壁形核与位移模型基础上进一步推广与补充. 外延磁性薄膜具有磁晶各向异性 K_1 和单轴磁各向异性 K_u ,外延交换偏置异质结除此之外还具有交换偏置单向磁各向异性 K_{eb} . 因此,外延磁性薄膜与异质结中任意单畴

的总自由能包括四重对称磁晶各向异性、单轴磁各向异性、单向磁各向异性和外磁场导致的塞曼能:

$$E = \frac{K_1}{4} \sin^2(2\theta) - K_u \cos^2 \theta - K_{eb} \cos \theta - MH \cos(\varphi - \theta), \quad (1)$$

其中, M 是磁化强度, H 是外磁场强度, φ 是 H 和 $[010]$ 方向的夹角, θ 是 M 和 $[010]$ 方向的夹角,如图 14 所示.

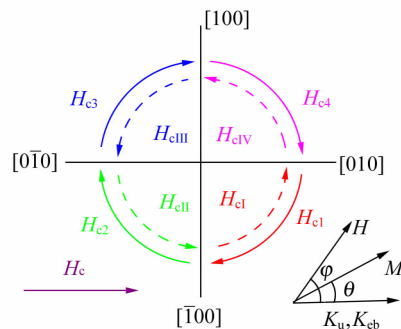


图 14 外延磁性薄膜与交换偏置异质结具有 K_1 , K_u 和 K_{eb}

外延磁性薄膜中, $K_{eb} = 0$. 外延交换偏置异质结中, $K_{eb} \neq 0$, $K_u > 0$ 表明 K_u 沿 $[010]$ 方向, $K_u // K_{eb}$; $K_u < 0$ 表明 K_u 沿 $[100]$ 方向, $K_u \perp K_{eb}$. 磁化强度在四重对称磁晶各向异性易磁化方向之间的磁化翻转场分别定义为 $H_{c1} \sim H_{c4}$ 和 $H_{cI} \sim H_{cIV}$. 通过计算磁化翻转过程中的终止轴和起始轴之间的能量差可以得到 90° 磁化翻转场的理论表达式^[23]:

$$\begin{aligned} H_{c1} &= \frac{\epsilon_{90^\circ} + K_{eb} + K_u}{M(-\sin \varphi - \cos \varphi)}, H_{c2} = \frac{\epsilon_{90^\circ} + K_{eb} - K_u}{M(\sin \varphi - \cos \varphi)}, \\ H_{c3} &= \frac{\epsilon_{90^\circ} - K_{eb} + K_u}{M(\sin \varphi + \cos \varphi)}, H_{c4} = \frac{\epsilon_{90^\circ} - K_{eb} - K_u}{M(-\sin \varphi + \cos \varphi)}, \\ H_{cI} &= \frac{\epsilon_{90^\circ} - K_{eb} - K_u}{M(\sin \varphi + \cos \varphi)}, H_{cII} = \frac{\epsilon_{90^\circ} - K_{eb} + K_u}{M(-\sin \varphi + \cos \varphi)}, \\ H_{cIII} &= \frac{\epsilon_{90^\circ} + K_{eb} - K_u}{M(-\sin \varphi - \cos \varphi)}, H_{cIV} = \frac{\epsilon_{90^\circ} + K_{eb} + K_u}{M(\sin \varphi - \cos \varphi)}, \end{aligned} \quad (2)$$

其中, ϵ_{90° 是 90° 畴壁形核能.

对于从 $[010]$ 方向到 $[0\bar{1}0]$ 方向的 180° 磁化翻转,通过计算终止轴和起始轴之间的能量差可以得到 180° 磁化翻转场的理论表达式

$$H_c = \frac{\epsilon_{180^\circ} - 2K_{eb}}{2M \cos \varphi}, \quad (3)$$

其中, ϵ_{180° 是 180° 畴壁形核能.

使用式(2)能够很好地拟合图 13 中 3 个具有典型磁各向异性构型的外延 Fe/MgO(001)薄膜的 90° 磁化翻转场的角度依赖关系, 表明其反磁化机制为 90° 畴壁形核与位移机制。但是, 使用式(3)得到的绿色理论曲线, 明显区别于 180° 磁化翻转场的实验结果, 表明 180° 磁化翻转的反磁化机制并不是 180° 畴壁形核与位移机制。利用 H_{c1} 的理论表达式(对应 $[010] \rightarrow [\bar{1}00]$ 方向的 90° 磁化翻转)能够很好地拟合 $\varphi=0^\circ$ 附近发生的 $[010] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 方向的 180° 磁化翻转场(对应单步跳跃矩形磁滞回线), 同时也能够很好地拟合 $\varphi=90^\circ$ 附近发生的 $[010] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 方向的 180° 磁化翻转场(对应三步跳跃台阶磁滞回线的中间一步磁化翻转)。

沿 $[0\bar{1}0]$ 方向施加外磁场, 系统自由能曲线[图 15(a)]表明从 $[010] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 方向的 180° 磁化翻转需要克服 $[010] \rightarrow [\bar{1}00]$ 和 $[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 2 个分立的能量势垒。在 $H_c = \frac{\epsilon_{180^\circ}}{2M\cos\varphi}$ 时, $[010] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 之间的能量差为 ϵ_{180° , 根据 180° 畴壁形核机制, 此时将发生 180° 磁化翻转。注意到此时 $[010] \rightarrow [\bar{1}00]$ 和 $[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 之间的能量差并不相同, $[010] \rightarrow [\bar{1}00]$ 之间的能量差小于 ϵ_{90° , $[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 之间的能量差大于 ϵ_{90° , 考虑这 2 个分立的能量势垒, H_c 并不足以驱动磁化强度从 $[010]$ 方向翻转到 $[\bar{1}00]$ 方向, 因此磁化翻转不能发生。当继续增大外磁场到 H_{c1} , $[010] \rightarrow [\bar{1}00]$ 之间的能量差为 ϵ_{90° , 根据 90° 畴壁形核机制, 磁化强度将由 $[010]$ 翻转到 $[\bar{1}00]$ 方向, 如图 15(b) 所示。考虑到 $[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 之间的能量差大于 ϵ_{90° , 因此磁化强度在 $[\bar{1}00]$ 方向并不是稳定态, 将继续由 $[\bar{1}00]$ 翻转到 $[0\bar{1}0]$ 方向, 也就是磁化强度通过 2 次连续发生的 90° 畴壁形核机制完成 180° 磁化翻转, 相应的临界磁化翻转场为 H_{c1} 而不是 H_c , 磁滞回线表现为单步矩形。

当磁场远离 $[0\bar{1}0]$ 方向, 外磁场增加到 H_{c1} , $[010] \rightarrow [\bar{1}00]$ 之间的能量差为 ϵ_{90° , 根据 90° 畴壁形核机制, 磁化强度将由 $[010]$ 翻转到 $[\bar{1}00]$ 方向, $[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 之间的能量差小于 ϵ_{90° , 因此磁化强度在 $[\bar{1}00]$ 方向能够稳定存在, 如图 15(c) 所示。当继续增大外磁场到 H_{c2} , $[\bar{1}00] \rightarrow [0\bar{1}0]$ 之间的能量差增大到 ϵ_{90° , 根据 90° 畴壁形核机制, 磁

化强度将由 $[\bar{1}00]$ 翻转到 $[0\bar{1}0]$ 方向, 即磁化强度通过 2 次分立的 90° 畴壁形核机制完成了 180° 磁化翻转, 磁滞回线表现为两步台阶型, 如图 15(d) 所示。

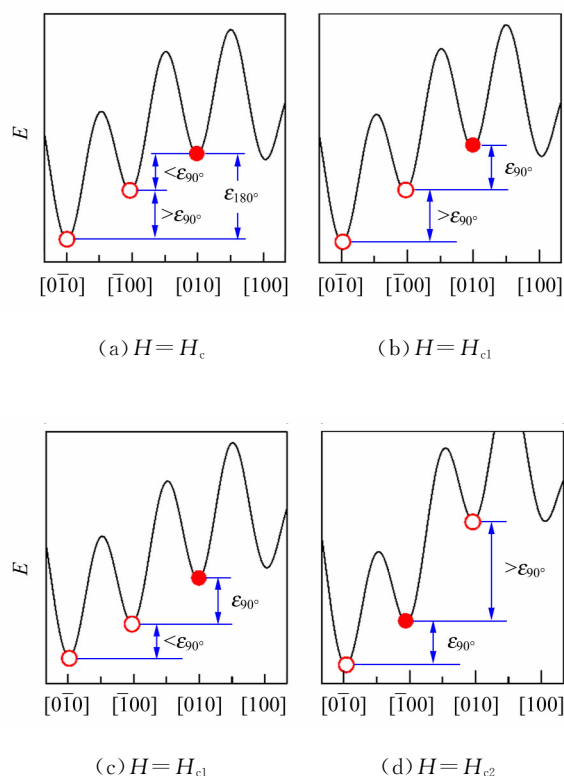


图 15 具有四重对称磁晶各向异性和单轴磁各向异性的外延磁性薄膜体系在不同外磁场下的自由能曲线图^[9]

Cowburn 等人认为 180° 磁化翻转对应 180° 畴壁形核机制, 简单地以单一势垒来考虑 180° 和 0° 之间的能量差, 忽略了 90° 中间态仍存在能量最低点。本文采用 2 次连续发生的 90° 畴壁形核机制能够很好地解释磁化翻转场的角度依赖关系, 能够与 2 次分立发生的 90° 畴壁形核机制很好地统一^[9]。本文提出的模型能够很好地拟合具有不同磁各向异性的外延磁性薄膜与外延交换偏置异质结的磁化翻转场的角度依赖关系, 进一步验证了提出机制的正确性与普适性^[27]。

4 结束语

磁光克尔效应是很多高校开设的本科生近代物理实验, 利用磁光克尔效应能够测试磁性薄膜的磁滞回线。本文利用 Ar 离子束表面刻蚀处理、倾斜生长等技术调控外延磁性薄膜与交换偏置异

质结的磁各向异性构型。将矢量磁光克尔效应测试作为主要表征手段,通过测试磁化矢量的纵向与横向分量,确定了外延磁性薄膜与交换偏置异质结的磁化翻转路径。利用磁光克尔效应转角测试获得了外延磁性薄膜与交换偏置异质结的磁化翻转场的角度依赖关系。建立了基于畴壁形核与位移的反磁化机制模型,能够很好地解释外延磁性薄膜与异质结的各种磁化翻转过程。

参考文献:

- [1] Yamaguchi M, Miyazawa Y, Kaminishi K, et al. Soft magnetic applications in the RF range [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2004,268(1/2):170-177.
- [2] Ledieu M, Acher O. New achievements in high-frequency permeability measurements of magnetic materials [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2003,258:144-150.
- [3] Wang S X, Taratorin A M. Magnetic information storage technology: A volume in the electromagnetism series [M]. Amsterdam: Elsevier, 1999.
- [4] Wang S X, Sun N X, Yamaguchi M, et al. Properties of a new soft magnetic material [J]. *Nature*, 2000,407(6801):150-151.
- [5] Tan K J, Yamaguchi M, Yamakawa K, et al. Micro-size magnetic strip for ultra-high frequency carrier type magnetic field sensor [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2001,37(4):2004-2006.
- [6] Webb D C. Microwave magnetic thin-film devices [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 1988, 24 (6):2799-2804.
- [7] Qiu Z Q, Bader S D. Surface magneto-optic Kerr effect [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2000, 71(3):1243-1255.
- [8] Daboo C, Bland J A C, Hicken R J, et al. Vectorial magnetometry with the magneto-optic Kerr effect applied to Co/Cu/Co trilayer structures [J]. *Physical Review B*, 1993,47(18):11852-11859.
- [9] Zhan Q F, Vandezande S, Temst K, et al. Magnetic anisotropies of epitaxial Fe/MgO (001) films with varying thickness and grown under different conditions [J]. *New Journal of Physics*, 2009,11 (6):63003-63003.
- [10] Park Y S, Fullerton E E, Bader S D. Growth-induced uniaxial in-plane magnetic anisotropy for ultrathin Fe deposited on MgO (001) by oblique-incidence molecular beam epitaxy [J]. *Applied Physics Letters*, 1995,66(16):2140-2142.
- [11] Daboo C, Hicken R J, Gu E, et al. Anisotropy and orientational dependence of magnetization reversal processes in epitaxial ferromagnetic thin films [J]. *Physical Review B*, 1995, 51 (22): 15964-15973.
- [12] Zhan Q F, Vandezande S, Van Haesendonck C, et al. Manipulation of in-plane uniaxial anisotropy in Fe/MgO (001) films by ion sputtering [J]. *Applied Physics Letters*, 2007,91(12):122510.
- [13] Shim Y, Amar J G. Effects of shadowing in oblique-incidence metal (100) epitaxial growth [J]. *Physical Review Letters*, 2007,98(4):046103.
- [14] Zhan Q F, Van Haesendonck C, Vandezande S, et al. Surface morphology and magnetic anisotropy of Fe/MgO (001) films deposited at oblique incidence [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94 (4): 042504.
- [15] Freeland J W, Coulthard I, Antel W J, et al. Interface bonding for Fe thin films on GaAs surfaces of differing morphology [J]. *Physical Review B*, 2001,63(19):797-801.
- [16] Chen J, Erskine J L. Surface-step-induced magnetic anisotropy in thin epitaxial Fe films on W (001) [J]. *Physical Review Letters*, 1992,68(8):1212-1215.
- [17] Bubendorff J L, Zabrocki S, Garreau G, et al. Origin of the magnetic anisotropy in ferromagnetic layers deposited at oblique incidence [J]. *Europhysics Letters*, 2006,75(1):119-125.
- [18] Nascimento F I F, Dantas A L, Oliveira L L, et al. Thermal hysteresis of ferromagnetic/antiferromagnetic compensated bilayers [J]. *Physical Review B*, 2009,80(14):144407.
- [19] Cheng N, Ahn J, Krishnan K M. Epitaxial growth and exchange biasing of PdMn/Fe bilayers grown by ion-beam sputtering [J]. *Journal of Applied Physics*, 2001,89(11):6597-6599.
- [20] Zhan Q F, Krishnan K M. In-plane reorientation of magnetization in epitaxial exchange biased Fe/MnPd bilayers [J]. *Applied Physics Letters*, 2010,96(11):112506.
- [21] Zhan Q F, Zhang W, Krishnan K M. Antiferromagnetic layer thickness dependence of the magnetization reversal in the epitaxial MnPd/Fe exchange bias system [J]. *Physical Review B*, 2011,

- 83(9):094404.
- [22] Nowak U, Usadel K D, Keller J, et al. Domain state model for exchange bias. I. Theory [J]. Physical Review B, 2002, 66(1):014430.
- [23] Zhang Y, Zhan Q F, Zuo Z H, et al. Magnetization reversal in epitaxial exchange-biased IrMn/Fe-Ga bilayers with anisotropy geometries controlled by oblique deposition [J]. Physical Review B, 2015, 91(17):174411.
- [24] Cowburn R P, Gray S J, Ferré J, et al. Magnetic switching and in-plane uniaxial anisotropy in ultrathin Ag/Fe/Ag (100) epitaxial films [J]. Journal of Applied Physics, 1995, 78(12):7210-7219.
- [25] Cowburn R P, Gray S J, Bland J A C. Multijump magnetic switching in in-plane magnetized ultrathin epitaxial Ag/Fe/Ag (001) films [J]. Physical Review Letters, 1997, 79(20):4018-4021.
- [26] Zhan Q F, Vandezande S, Temst K, et al. Magnetic anisotropy and reversal in epitaxial Fe/MgO (001) films [J]. Physical Review B, 2009, 80(9):094416.
- [27] Zhang Y, Zhan Q F, Zuo Z H, et al. Magnetic anisotropy and reversal in epitaxial FeGa/MgO (001) films deposited at oblique incidence [J]. IEEE Transactions on Magnetics, 2015, 51 (11): 2300804.

Mechanism of magnetization switching and reversal in epitaxial magnetic films based on vector magneto-optic Kerr effect

FENG Xin-wei, ZHANG Hui, XUE Ke-lei, ZHAN Qing-feng

(School of Physics and Electronic Science, East China Normal University, Shanghai 200241, China)

Abstract: The hysteresis loops of magnetic films can be measured based on the magneto-optic Kerr effect (MOKE) magnetometry, which is an important method for studying the surface magnetism of magnetic films. We have used the vector MOKE magnetometry to obtain the longitudinal and transverse components of the magnetization vector, and studied the magnetization reversal routes of the epitaxial magnetic films and exchange bias heterojunctions. The angle dependence of magnetization reversal field measured by MOKE was obtained. Combined with the fitting of domain wall nucleation and displacement model, the mechanism of 90° domain wall nucleation reversal magnetization in epitaxial magnetic films and heterojunctions was proposed.

Key words: epitaxial magnetic film; magneto-optic Kerr effect; exchange bias effect; domain wall nucleation and displacement model; magnetic anisotropy

[责任编辑:任德香]