



Akademia Górniczo-Hutnicza im. Stanisława Staszica
Wydział Fizyki i Informatyki Stosowanej

Rozprawa Doktorska

mgr inż. Piotr Drózdź

Właściwości magnetyczne nanostruktur epitaksjalnych na bazie stopu FeRh

Promotor:

prof. dr hab. Tomasz Ślęzak

Promotor pomocniczy:

dr hab. Michał Ślęzak

Kraków 2020

Oświadczenie autora rozprawy:

Oświadczam świadomy odpowiedzialności karnej za poświadczenie nieprawdy, że niniejszą pracę doktorską wykonałem osobiście i samodzielnie i że nie korzystałem ze źródeł innych niż wymienione w pracy.

.....
Data, podpis autora

Oświadczenie promotora rozprawy:

Niniejsza rozprawa jest gotowa do oceny przez recenzentów.

.....
Data, podpis promotora rozprawy

Dziękuję mojemu promotorowi, prof. Tomaszowi Ślęzakowi za opiekę naukową, zaangażowanie oraz wsparcie w trakcie przygotowania niniejszej rozprawy doktorskiej.

Dziękuję również promotorowi pomocniczemu, dr hab. Michałowi Ślęzakowi za nieocenioną pomoc naukową, którą od niego otrzymałem.

Prof. Józefowi Koreckiemu dziękuję za zaangażowanie oraz wsparcie merytoryczne w trakcie realizowanych badań.

Pracownikom Katedry Fizyki Ciała stałego oraz Instytutu Katalizy i Fizykochemii Powierzchni, a w szczególności dr Annie Koziol-Rachwał, dr Krzysztofowi Matlakowi, dr Kindze Freindl oraz dr Dorocie Wilgockiej-Ślęzak dziękuję za okazaną życzliwość i wspaniałą atmosferę pracy.

Dr Nice Spiridis dziękuję za wykonanie oraz opracowanie części pomiarów metodą spektroskopii Mössbauerowskiej.

Mojej żonie Agnieszce dziękuję za cierpliwość i wszelkie wsparcie podczas realizacji niniejszego doktoratu.

Badania prezentowane w pracy zostały przeprowadzone w ramach projektu finansowanego przez Narodowe Centrum Nauki nr. nr 2015/19/B/ST3/00543.



NARODOWE CENTRUM NAUKI

Abstract

In 1938 Fallot discovered that the FeRh alloy undergoes a first-order magnetic phase transition from the antiferromagnetic (AFM) to ferromagnetic (FM) state at temperature around 350 K. This intriguing phenomena intensively studied in the bulk FeRh has recently attracted renewed attention in low dimensional FeRh alloys thanks to the potential applications in magnetic storage industry.

The main idea of experiments reported within the thesis was to utilize unique transformation of magnetic properties accompanying AFM \leftrightarrow FM phase transition of FeRh B2 ordered alloy in tailoring of magnetic properties of bi-layers and multilayers with built-in FeRh sublayers.

Epitaxial multilayers with FeRh film as one of the sublayers were grown on W(110) and MgO(001) substrates. The structure of samples was controlled with Low Energy Electron Diffraction (LEED – Low Energy Electron Diffraction). Magnetic properties were studied by magneto-optical Kerr effect (MOKE) and conversion electron Mössbauer spectroscopy (CEMS).

In case of Co/FeRh bilayer grown on W(110) the reorientation of Co magnetization induced by the AFM \leftrightarrow FM transition in FeRh layer was observed. The spins of epitaxial Co film switch reversibly between two orthogonal in-plane directions as the FeRh system undergoes an AFM \leftrightarrow FM phase transition. The collinear magnetic coupling between Co and FeRh alloy with magnetization along $[1\bar{1}0]$ direction occurs for the FM phase of the alloy while for AFM phase the spin-flop coupling results in an abrupt switching of the Co magnetization to the $[001]$ direction, which is orthogonal to the Fe spins in a FeRh layer.

In the Fe/FeRh/W(110) bilayers a large coercivity enhancement accompanying transition from FM to AFM phase was observed. CEMS measurements showed that spin-flop coupling induced uniaxial magnetic anisotropy was responsible for the increase in the coercive field in the Fe/FeRh bilayer in the AFM phase of the alloy. In contrast to the Co/FeRh system, spin-flop phenomenon involves switching of the FeRh spins from $[001]$ to $[1\bar{1}0]$ direction when the FeRh passes from the FM to the AFM state. The easy axis of Fe magnetization stayed parallel to the $[001]$ direction regardless of the FeRh alloy magnetic order.

In the Fe/Au/FeRh/MgO(001) trilayer, owing to the AFM \leftrightarrow FM phase transition in the FeRh film, the magnetic structure of the system can be temperature controlled. The indirect

exchange coupling between Fe and FeRh films mediated by the Au spacer enables to control the relative orientation of the Fe and FeRh magnetizations by the Au spacer thickness between ferromagnetic and non-collinear with nearly orthogonal magnetizations. Moreover, the evolution of magnetic structure of the Fe/Au/FeRh system along with the AFM \leftrightarrow FM transition is accompanied by the reversible in-plane rotation of the top Fe layer magnetization.

In Au/FeRh/MgO(001) systems the magnetic transition of the FeRh alloy between the FM and AFM phases is not complete. The residual FM phase in the nominally AFM alloy state is located at the FeRh/MgO interface and reveals a perpendicular magnetic anisotropy as evidenced by MOKE and CEMS. In addition, CEMS measurements showed that the transition to the FM phase is also incomplete and remaining AFM phase undergoes direct transition to the paramagnetic phase above the Néel temperature.

Streszczenie

Magnetyczne przejście fazowe pierwszego rodzaju występujące w stopie FeRh zostało odkryte przez Fallota w 1938 roku. Przejście to polega na zmianie uporządkowania magnetycznego pomiędzy stanem ferromagnetycznym (FM) i antyferromagnetycznym (AFM) w temperaturze około 350 K. To nietypowe przejście magnetyczne, intensywnie badane w układach litych, budzi ostatnio szczególne zainteresowanie w systemach FeRh o obniżonej wymiarowości ze względu na potencjalne zastosowanie w magnetycznym zapisie informacji.

Głównym celem badań, będących przedmiotem niniejszej rozprawy doktorskiej, było wykorzystanie wyjątkowej właściwości stopu FeRh, polegającej na termicznie wzbudzonym przejściu AFM \leftrightarrow FM, do sterowania właściwościami magnetycznymi wielowarstwowych układów, gdzie jedną z podwarstw stanowił stop FeRh.

Wytworzone w ramach pracy wielowarstwowe epitaksjalne układy magnetyczne preparowane były na podłożach W o orientacji (110) oraz MgO o orientacji (001). Do charakteryzacji strukturalnej naniesionych warstw użyto metodę dyfrakcji niskoenergetycznych elektronów (LEED – Low Energy Electron Diffraction). W badaniach właściwości magnetycznych wykorzystano metodę magneto-optycznego efektu Kerra (MOKE – Magneto-optical Kerr Effect) oraz spektroskopię Mössbauerowską elektronów konwersji (CEMS – Conversion Electron Mössbauer Spectroscopy).

W układzie Co/FeRh/W(110) w warstwie Co zaobserwowano zjawisko reorientacji spinowej (SRT – Spin Reorientation Transition) pomiędzy dwoma prostopadłymi do siebie kierunkami leżącymi w płaszczyźnie (110). Zjawisko SRT było wzbudzone przejściem AFM \leftrightarrow FM zachodzącym w podwarstwie FeRh. W FM fazie stopu obserwowano kolinearne sprzężenie pomiędzy warstwami Co oraz FeRh z osią łatwą namagnesowania wzdłuż kierunku $[1\bar{1}0]$. Natomiast dla AFM fazy stopu oddziaływanie wymienne typu *spin-flop* pomiędzy warstwami prowadziło do indukowania anizotropii jednoosiowej w warstwie Co preferującej obrót osi łatwej namagnesowania na kierunek $[001]$.

W dwuwarstwie Fe/FeRh/W(110) w trakcie przejścia od fazy FM do AFM wykazano znaczny wzrost pola koercji w zmierzonych pętłach histerezy magnetycznej. Pomiar CEMS pokazały, że ponownie oddziaływanie typu *spin-flop* jest źródłem dodatkowej jednoosiowej anizotropii odpowiedzialnej za wzrost pola koercji w dwuwarstwie Fe/FeRh w AFM fazie stopu. W przeciwieństwie do układu Co/FeRh ortogonalne sprzężenie typu *spin-flop* przebiega

na drodze reorientacji spinowej zachodzącej w warstwie FeRh pomiędzy kierunkami [001] i $[1\bar{1}0]$, odpowiednio w FM oraz AFM fazie stopu. Oś łatwa namagnesowania warstwy Fe jest równoległa do kierunku [001] bez względu na uporządkowanie magnetyczne stopu.

W trójwarstwie Fe/Au/FeRh/MgO(001) pokazano, że struktura magnetyczna utworzonego zaworu spinowego może być termicznie kontrolowana poprzez obecne w stopie FeRh przejście AFM \leftrightarrow FM. Pośrednie oddziaływanie wymienne zachodzące pomiędzy warstwami Fe i FeRh pozwala na kontrolowanie względnego namagnesowania warstw, które zmienia się w zależności od grubości separującej warstwy Au pomiędzy ustawieniem kolinearnym oraz ortogonalnym. Dodatkowo, wraz z zachodzącym przejściem AFM \leftrightarrow FM w układzie Fe/Au/FeRh zaobserwowano odwracalną płaszczyznową reorientację spinową zachodzącą w warstwie Fe.

W układach Au/FeRh/MgO(001) pokazano, że magnetyczne przejście w stopie FeRh pomiędzy fazą FM, a AFM nie jest kompletne. Pomiary MOKE oraz CEMS pokazały, że obserwowana reszkowa faza FM w nominalnie AFM fazie stopu jest zlokalizowana na międzywierzchni FeRh/MgO oraz posiada składową prostopadłą namagnesowania. Pomiary CEMS pokazały również, że przejściu do fazy FM towarzyszy niecałkowity zanik składowej AFM. Reszkowa faza AFM w nominalnie FM fazie stopu wraz ze zwiększaniem temperatury ulega bezpośrednio przejściu do fazy paramagnetycznej powyżej temperatury Néela.

Spis treści

Lista Publikacji Autora Rozprawy	9
1. Wstęp.....	10
2. Cel i koncepcja pracy	14
3. Metody eksperymentalne.....	15
4. Streszczenia artykułów tworzących rozprawę doktorską.....	18
4.1. Publikacja A	18
4.2. Publikacja B	21
4.3. Publikacja C	23
4.4. Publikacja D	25
5. Podsumowanie.....	28
Bibliografia.....	29
Oryginalne publikacje	32

Lista Publikacji Autora Rozprawy

Omawiana rozprawa doktorska ma formę zbioru następujących artykułów opublikowanych w czasopismach naukowych:

- A.** *Switching of Co Magnetization Driven by Antiferromagnetic-Ferromagnetic Phase Transition of FeRh Alloy in Co/FeRh Bilayers*
- P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, B. Matlak, K. Freindl, D. Wilgocka-Ślęzak, N. Spiridis, J. Korecki, T. Ślęzak
- PHYSICAL REVIEW APPLIED 9, 034030 (2018)
- B.** *Spin - flop coupling induced large coercivity enhancement in Fe/FeRh/W(110) bilayers across ferromagnetic – antiferromagnetic phase transition of FeRh alloy*
- P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, A. Kozioł-Rachwał, J. Korecki, T. Ślęzak
- JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS 498 (2020) 166258
- C.** *Temperature controlled Fe/Au/FeRh spin valves*
- P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, A. Kozioł-Rachwał, D. Wilgocka-Ślęzak, J. Korecki, T. Ślęzak
- AIP ADVANCES 8, 101434 (2018)
- D.** *Perpendicular magnetic anisotropy and residual magnetic phases in gold-capped FeRh film on MgO(001)*
- P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, K. Freindl, N. Spiridis, D. Wilgocka-Ślęzak, A. Kozioł-Rachwał, J. Korecki, T. Ślęzak
- JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS 495 (2020) 165804

Komentarz do rozprawy doktorskiej

1. Wstęp

Właściwości magnetyczne układów o obniżonej wymiarowości budzą zainteresowanie wśród naukowców od ponad pięciu dekad. Zasadniczy wpływ na postęp w tej dziedzinie nauki miał rozwój techniki próżniowej, umożliwiającej preparatykę dobrze zdefiniowanych układów cienkowarstwowych w warunkach ultra wysokiej próżni (UHV – Ultra High Vacuum), oraz możliwość stosowania nowoczesnych technik analitycznych służących do charakterystyki *in-situ* preparowanych próbek. Specyficzne właściwości, takie jak możliwość kontrolowania anizotropii magnetycznej, decydującej o kierunku łatwym namagnesowania, oraz odkrycie takich zjawisk jak gigantyczny magnetoopór (GMR – Giant Magnetoresistance) [1,2] oraz tunelowa magnetorezystancja (TMR – Tunnel Magnetoresistance) [3,4] sprawiły, że cienkowarstwowe układy magnetyczne stały się interesujące nie tylko w zakresie badań podstawowych, ale przede wszystkim aplikacyjnych jako magnetyczne nośniki danych.

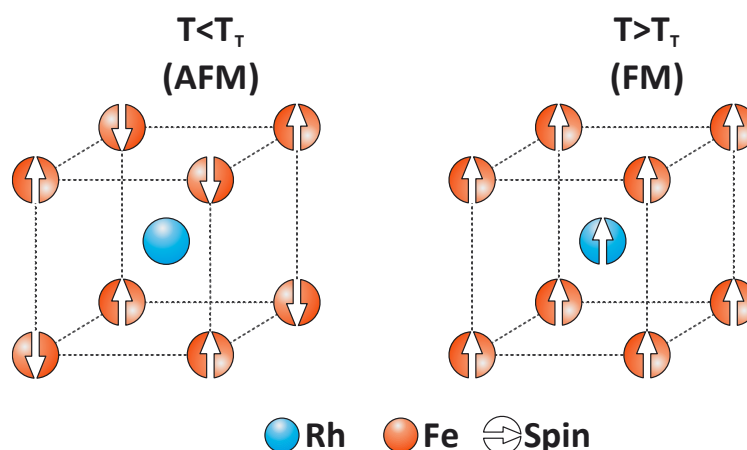
W układach magnetycznych o obniżonej wymiarowości dochodzi do złamania symetrii translacyjnej oraz redukcji liczby koordynacyjnej atomów znajdujących się na powierzchni próbki, co prowadzi do modyfikacji ich elektronowej struktury pasmowej, a tym samym właściwości magnetycznych. Dla układów cienkowarstwowych, gdzie udział powierzchni w stosunku do objętości materiału jest duży, efekt ten jest szczególnie zauważalny. Najbardziej wyjątkowym zjawiskiem występującym w nisko-wymiarowych układach jest modyfikacja ich anizotropii magnetycznej [5]. Można wyróżnić dwa główne źródła anizotropii: magnetyczne oddziaływania dipolowe oraz sprzężenie spin-orbita zachodzące pomiędzy orbitalnym a spinowym momentem pędu elektronu. Oddziaływanie dipolowe ma charakter dalekozasięgowy zależny od kształtu próbki. Anizotropia indukowana tym oddziaływaniem nazywana jest anizotropią kształtu i dla cienkich warstw jest szczególnie istotna, ponieważ w głównej mierze odpowiada za faworyzowanie osi łatwej namagnesowania leżącej w płaszczyźnie warstwy. Natomiast, oddziaływanie spin-orbita jest źródłem anizotropii magnetokrystalicznej, która najczęściej determinuje ustawienie osi łatwej namagnesowania próbki wzdłuż wyróżnionych kierunków krystalograficznych, odzwierciedlając symetrię kryształu. W cienkich warstwach, w atomach znajdujących się w pobliżu powierzchni o złamanej symetrii translacyjnej oddziaływanie spin-orbita ulega modyfikacji, będąc źródłem

dodatkowej składowej anizotropii, nazywanej anizotropią powierzchniową (lub anizotropią magnetokrystaliczną Néela) [6]. W przypadku grubych warstw, anizotropia ta ma znikomy udział we właściwościach magnetycznych ze względu na niewielki udział powierzchni w stosunku do objętości warstwy. Relacja ta może ulec zmianie w przypadku ultra cienkich warstw, gdzie przyczyną anizotropii powierzchniowej może dominować. Anizotropia ta najczęściej preferuje namagnesowanie próbki prostopadłe do jej powierzchni. Oddziaływanie spin-orbita może być również źródłem anizotropii magnetoelastycznej, jeżeli w układzie występują naprężenia lub defekty strukturalne związane z niedopasowaniem sieciowym pomiędzy poszczególnymi warstwami oraz podłożem.

Niskowymiarowe układy magnetyczne należą do grupy materiałów funkcjonalnych, które wyróżniają się specyficznymi właściwościami, ważnymi z punktu widzenia dalszego rozwoju technologii magnetycznego zapisu informacji. Ze względu na swoje nietypowe właściwości magnetyczne szczególnie interesującym materiałem jest stop FeRh. W stopie tym zachodzi temperaturowo wzbudzone przejście fazowe pierwszego rodzaju polegające na zmianie uporządkowania magnetycznego pomiędzy fazą antyferromagnetyczną (AFM), a ferromagnetyczną (FM). Przejście to zostało odkryte przez Fallota w 1938 roku [7,8]. Dla materiału litego przejście z fazy AFM do fazy FM zachodzi w trakcie ogrzewania próbki w temperaturze około 350 K [9,10]. Dalsze zwiększanie temperatury, powyżej wartości temperatury Curie, indukuje w stopie przejście fazowe drugiego rodzaju do fazy paramagnetycznej. Przejście magnetyczne AFM \leftrightarrow FM ma charakter histerezy co oznacza, że temperatura przejścia do fazy FM w trakcie ogrzewania próbki zachodzi dla temperatury wyższej niż przejście do fazy AFM w trakcie chłodzenia układu.

Rysunek 1 przedstawia konfigurację spinową atomów komórki elementarnej stopu FeRh w temperaturze poniżej oraz powyżej temperatury przejścia (T_T). Komórka elementarna stopu ma strukturę B2, chlorku-cezu o stałej sieci 3.0 Å, w której atomy Fe znajdują się w narożach komórki, natomiast atom Rh centruje ją przestrzennie. W niskiej temperaturze stop jest antyferromagnetyczny, a jego uporządkowanie spinów odpowiada antyferromagnetykowi drugiego rodzaju, nazywanego również antyferromagnetykiem typu G, gdzie ferromagnetycznie sprzężone ze sobą momenty magnetyczne atomów Fe leżą w płaszczyźnie (111) komórki elementarnej tworząc kolejne antyferromagnetycznie sprzężone ze sobą podwarstwy ułożone wzdłuż kierunku [111]. W stanie AFM atomy Fe posiadają moment magnetyczny wynoszący około $3 \mu_B$, podczas gdy dla atomów Rh jest on równy $0 \mu_B$. W podniesionej temperaturze, w fazie FM momenty magnetyczne atomów Fe nie zmieniają

znacząco swojej wartości w przeciwieństwie do atomów Rh, których moment wzrasta do wartości około $1 \mu_B$ [11,12]. Przejściu AFM \leftrightarrow FM towarzyszy również zmiana objętości komórki elementarnej o około 1% [13,14], obniżenie rezystancji [10], duża zmiana entropii [9,15–17] oraz efekt magnetokaloryczny [18]. Przejście AFM \leftrightarrow FM zachodzące w stopie FeRh jest izostrukturalne, co oznacza, że w trakcie zmiany uporządkowania magnetycznego pomiędzy fazą AFM oraz FM stop zachowuje strukturę kubiczną B2.



Rys. 1: Konfiguracja spinowa komórki elementarnej o strukturze B2 stopu FeRh dla fazy AFM oraz FM.

Ze względu na binarny charakter stopu $Fe_{1-x}Rh_x$, stechiometria tego związku jest czynnikiem decydującym o właściwościach zarówno strukturalnych jak i magnetycznych. Dla koncentracji atomów Rh wynoszącej w przybliżeniu $x > 0.6$ stop zmienia swoją strukturę atomową z regularnej przestrzennie centrowanej B2 na centrowaną powierzchniowo, która jest fazą magnetycznie nieuporządkowaną – paramagnetyczną. Dla niższej koncentracji atomów Rh ($x < 0.6$) stop wykazuje uporządkowanie magnetyczne oraz silną zależność wartości momentu magnetycznego od koncentracji atomów Rh [12,19]. Koncentracja stopu dla którego występuje przejście AFM \leftrightarrow FM zawiera się w stosunkowo wąskim przedziale koncentracji Rh od około 0.5 do 0.6 [20]. W zakresie tym, wraz ze zmianą koncentracji, zmianie ulega również temperatura przejścia AFM \leftrightarrow FM, której wartość przesuwa się w stronę niższych temperatur wraz z malejącą koncentracją atomów Rh [19,21]. Temperatura przejścia oraz szerokość jej termicznej histerezy zależy również od zastosowanej po procesie preparatyki procedury wygrzewania warstwy [22]. Dla $x < 0.5$ magnetyczne przejście fazowe nie występuje, a stop jest ferromagnetyczny w całym zakresie temperatury aż do temperatury Curie.

Liczne prace pokazały, że właściwości magnetyczne przejścia AFM \leftrightarrow FM zachodzącego w stopie FeRh nie zależą wyłącznie od jego stechiometrii. Przejście magnetyczne

może być wzbudzane poprzez zastosowanie odpowiednio dużego zewnętrznego pola magnetycznego, które efektywnie obniża temperaturę T_T , a jej wartość spada liniowo wraz z rosnącą wartością indukcji zewnętrznego pola magnetycznego z prędkością około $-8 K/T$ [23]. Temperatura przejścia wykazuje również silną zależność od grubości próbki oraz naprężeń występujących w warstwie stopu [24]. Obniżanie grubości warstwy prowadzi do przesuwania T_T w stronę niższych temperatur, podczas gdy naprężenia rozciągające i ściskające powodują odpowiednio obniżenie oraz wzrost wartości temperatury T_T [25]. Dodatkowa anizotropia magnetoelastyczna indukowana w naprężonych układach może być również źródłem anizotropii prostopadłej lub płaszczyznowej w zależności od wielkości naprężeń, zależnych od zastosowanego podłoża [26–28].

Możliwość sterowania właściwościami magnetycznymi przejścia AFM \leftrightarrow FM w stopie FeRh sprawia, że jest to obiecujący materiał pod względem aplikacyjnym. Szczególnie interesujące jest wykorzystanie układów dwuwarstwowych typu FM/FeRh w termicznie wspomaganym zapisie informacji (HAMR – Heat Assisted Magnetic Recording), gdzie warstwa ferromagnetyka znajduje się w bezpośrednim kontakcie z warstwą stopu [29,30]. Metoda ta, polega na chwilowym, lokalnym podgrzaniu twardych magnetycznie komórek pamięci do temperatury powyżej przejścia AFM \leftrightarrow FM zachodzącego w podwarstwie stopu w celu obniżenia ich pola koercji do wartości umożliwiającej przemagnesowanie (zapisanie informacji) przez konwencjonalną głowicę dysku twardego. Lokalne podgrzanie komórki pamięci może być realizowane przez użycie ultra szybkiego lasera [31]. Przełączenie pomiędzy stanami AFM oraz FM może być również indukowane polem elektrycznym w układach preparowanych na piezoelektrycznych podłożach BaTiO₃ co może stanowić alternatywę dla metody HAMR ze względu na mniej energochłonny proces zapisu [32]. Stop FeRh może być również użyty jako antyferromagnetyczna komórka pamięci wykorzystująca zjawisko anizotropowej magnetorezystancji (AMR - Anisotropic Magnetoresistance). W takim układzie kierunek spinów antyferromagnetyka może być przełączany poprzez proces chłodzenia w zewnętrznym polu magnetycznym po wcześniejszym zagrzaniu do temperatury odpowiadającej FM fazie stopu FeRh [33].

2. Cel i koncepcja pracy

Celem przeprowadzonych badań, było wykorzystanie właściwości stopu FeRh, polegającej na możliwości zmiany uporządkowania magnetycznego pomiędzy fazą ferromagnetyczną, a antyferromagnetyczną do sterowania właściwościami magnetycznymi epitaksjalnych układów wielowarstwowych, gdzie jedną z podwarstw stanowił stop FeRh.

W celu realizacji badań wytworzono układy dwuwarstwowe FM/FeRh składające się z warstwy bazowej stopu FeRh naniesionej na podłoże W o orientacji (110) oraz warstwy Fe lub Co. W takich układach, gdzie warstwy stopu i ferromagnetyka są w bezpośrednim kontakcie, należy oczekiwać że przejściu AFM \leftrightarrow FM towarzyszy istotna modyfikacja anizotropii magnetycznej całego układu. Celem badań było również wytworzenie trójwarstwowej temperaturowo sterowanej struktury typu zaworu spinowego na podłożu MgO(001) składającej się z warstw Fe oraz FeRh odseparowanych od siebie niemagnetyczną warstwą Au. W ramach pracy zweryfikowano również eksperymentalnie teoretyczne doniesienia na temat niejednorodność magnetycznych i strukturalnych w nominalnie AFM oraz FM fazie stopu w układzie Au/FeRh na podłożu MgO(001).

3. Metody eksperymentalne

Prezentowane w niniejszej pracy cienkowarstwowe układy magnetyczne zostały wytworzone oraz scharakteryzowane pod kątem właściwości magnetycznych oraz strukturalnych w laboratorium Nanostruktur Powierzchniowych w katedrze Fizyki Ciała Stałego Wydziału Fizyki i Informatyki Stosowanej Akademii Górniczo - Hutniczej im. Stanisława Staszica w Krakowie. Część badań metodą CEMS (dotyczy publikacji D) została wykonana w grupie Nanostruktur Powierzchniowych Instytutu Katalizy i Fizykochemii Powierzchni im. Jerzego Habera Polskiej Akademii Nauk w Krakowie.

Ultra cienkie warstwy były nanoszone na podłoża monokrystaliczne przy użyciu metody epitaksji z wiązki molekularnej (MBE – Molecular Beam Epitaxy) w warunkach ultra wysokiej próżni, gdzie wybrany materiał podgrzany do odpowiednio wysokiej temperatury ulega parowaniu lub sublimacji, a powstałe w ten sposób pary molekuł resublimują na podłożu tworząc cienką warstwę. Materiały takie jak Co, Au, ^{56}Fe , oraz izotop ^{57}Fe nanoszone były w trakcie procesu preparatyki z grzanego oporowo tygla wykonanego z tlenku berylu. Dla materiałów wysokotopliwych, takich jak Rh, wykorzystano wydajniejszą technikę grzania materiału poprzez bombardowanie elektronowe (EBV – Electron Beam Evaporator). Ilość naparowywanego materiału była w precyzyjny sposób kontrolowana poprzez użycie wag kwarcowych. Warstwy stopu FeRh były preparowane metodą kodepozycji, polegającej na jednoczesnym nanoszeniu warstw Fe oraz Rh z dwóch niezależnych od siebie źródeł. Taka metoda umożliwia nanoszenie warstw stopów binarnych o praktycznie dowolnej stechiometrii.

Układy cienkowarstwowe omawiane w niniejszej pracy były preparowane na podłożach W(110) oraz MgO(001). Mając na uwadze wąski przedział odpowiedniej stechiometrii stopu $\text{Fe}_{1-x}\text{Rh}_x$ wykazującego przejście AFM \leftrightarrow FM, nominalna koncentracja atomów Rh w preparowanych warstwach stopu została ustalona na poziomie około 54%. Depozycja warstw stopu na podłożu MgO(001) odbywała się w podniesionej temperaturze wynoszącej 670 K. W przypadku podłoża W(110) w trakcie wzrostu warstwy utrzymywano temperaturę pokojową. Po procesie preparatyki warstwa stopu FeRh wymagała wygrzewania w wysokiej temperaturze w celu uporządkowania struktury atomowej do pożądanej struktury kubicznej B2. Typowe osiągnięte prędkości nanoszenia warstw sięgały około pojedynczej warstwy atomowej (ML – Monolayer) na jedną minutę przy ciśnieniu w komorze preparacyjnej na poziomie $5 \cdot 10^{-10}$ mbar. Aparatura próżniowa, wyposażona w układ MBE z wieloma źródłami materiałów oraz systemem przesuwnych przysłon umożliwiała preparatykę układów o zróżnicowanej

wielowarstwowej strukturze w tym warstw klinowych, czyli o grubościach zmieniających się w sposób ciągły w zakresie od jednej do kilkudziesięciu warstw atomowych. Uporządkowanie struktury atomowej rosnących warstw było kontrolowane na każdym etapie preparatyki za pomocą metody dyfrakcji elektronów niskoenergetycznych (LEED – Low Energy Electron Diffraction).

Pomiary właściwości magnetycznych próbek zostały wykonane przy użyciu metody magnetoptycznego efektu Kerra (MOKE – Magneto-optical Kerr Effect). Efekt ten polega na niewielkim obrocie płaszczyzny polaryzacji liniowo spolaryzowanego światła w momencie odbicia od powierzchni namagnesowanego materiału. Wartość tego kąta obrotu nazywana jest skręceniem lub rotacją Kerra i jest proporcjonalna do namagnesowania badanego materiału. W badaniach zastosowano dwie podstawowe geometrie pomiarów MOKE: podłużną (LMOKE – Longitudinal MOKE) gdzie wektor namagnesowania leży wzdłuż powierzchni próbki i jest równoległy do płaszczyzny padania światła, oraz polarną (PMOKE – Polar MOKE), gdzie wektor namagnesowania jest prostopadły do powierzchni próbki. Wysoka czułość metody, która pozwala na badanie magnetycznych warstw o grubościach pojedynczej warstwy atomowej uzyskano dzięki technice detekcji fazoczułej, poprzez zastosowanie wzmacniacza typu *lock-in* oraz fotoelastycznego modulatora (PEM – Photo Elastic Modulator) o częstotliwości modulacji wynoszącej $f = 50$ kHz. W trakcie pomiarów rejestrowano drugą harmoniczną ($2f$) sygnału z detektora, której wielkość jest proporcjonalna do wartości rotacji Kerra i namagnesowania. Podstawy działania metody MOKE zostały szeroko opisane zarówno w literaturze [34,35], jak i rozprawach doktorskich [36].

Ze względu na szczególne właściwości badanych próbek kluczowa była możliwość pomiarów właściwości magnetycznych w szerokim zakresie temperatur. W trakcie pomiarów *in-situ* grzanie oraz chłodzenie próbek realizowane jest poprzez zastosowanie nośnika wyposażonego w grzałkę oporową oraz kontakt termiczny typu zimny palec. Natomiast do pomiarów *ex-situ* zastosowano przepływowy kriostat umożliwiający pomiary w zakresie temperatury od 80 K do 360 K. Stosowane układy pomiarowe umożliwiają dodatkowo zmianę orientacji zewnętrznego pola magnetycznego realizowaną poprzez obrót próbki w płaszczyźnie warstwy.

W trakcie badań wykorzystywano również technikę Spektroskopii Mössbauerowskiej Elektronów Konwersji (CEMS – Conversion Electron Mössbauer Spectroscopy). Metoda ta ma charakter lokalny i polega na pomiarze oddziaływań nadsubtelnych, będących efektem oddziaływań jądrowych poziomów energetycznych z lokalną strukturą elektronową atomu.

Metoda ta pozwala na badanie zarówno magnetycznych jak i strukturalnych właściwości próbek. Niewątpliwą zaletą stosowania metody spektroskopii Mössbauerowskiej jest jej izotopowa czułość na wybrane pierwiastki Mössbauerowskie. W metodzie tej wykorzystuje się zjawisko bezdrzutowej rezonansowej absorpcji promieniowania γ zachodzącej w jądrach izotopów Mössbauerowskich. Dla jąder ^{57}Fe rezonansowe wzbudzenia występują dla promieniowania γ o energii 14.4 keV. Deekscytacja tak wzbudzonego jądra atomowego do stanu podstawowego może odbywać się na drodze emisji kwantu promieniowania γ , lub w procesie konwersji wewnętrznej prowadzącej do emisji elektronu z powłoki K (o energii 7.3 keV) wraz z towarzyszącymi elektronami Augera. Emisja elektronu konwersji jest najbardziej prawdopodobnym procesem relaksacji wzbudzonego jądra i wynosi 81%. Dla układów cienkowarstwowych, gdzie wymagana jest duża czułość powierzchniowa metody oraz niski próg detekcji (poniżej 1 ML), do obserwacji efektu Mössbauera wykorzystywane są elektrony konwersji.

Pomiary CEMS mogły być przeprowadzane w szerokim zakresie temperatur przy użyciu układu pomiarowego pracującego w warunkach UHV. Układ składał się ze źródła promieniowania gamma $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ o aktywności 100 mCi oraz kanalikowego powielacza elektronowego służącego do rejestracji elektronów pochodzących z badanej próbki. Stosowany układ pomiarowy umożliwiał rejestrację widm Mössbauerowskich w geometrii normalnej, gdzie kierunek padania promieniowania γ jest prostopadły do powierzchni próbki, oraz geometrii niskokątowej, gdzie kąt pomiędzy kierunkiem propagacji promieniowania γ oraz powierzchnią próbki wynosi 15° . Stosunek intensywności drugiej do trzeciej linii ($R_{2/3}$) zarejestrowanego widma Mössbauerowskiego określa kierunek magnetycznego pola nadsubtelnego, które jest zorientowane antyrównoległe do lokalnych momentów magnetycznych. Stosowanie obydwu geometrii wraz z możliwością obrotu próbki w jej płaszczyźnie pozwala na dokładne określenie anizotropii magnetycznej w badanych układach $^{57}\text{FeRh}$ zarówno w fazie FM jak i AFM.

Do analizy zmierzonych widm Mössbauerowskich użyto komercyjnego programu Recoil [37] umożliwiającego analizę widm w oparciu o model rozkładu wartości parametrów nadsubtelnych (HFD – Hyperfine Field Distribution).

4. Streszczenia artykułów tworzących rozprawę doktorską

W niniejszym rozdziale zamieszczone zostały streszczenia oryginalnych publikacji będących głównym przedmiotem rozprawy doktorskiej. Przyjęta chronologia prezentowanych streszczeń została dobrana w sposób spójny tematycznie. Pierwsze dwa artykuły dotyczą układów dwuwarstwowych Co/FeRh oraz Fe/FeRh preparowanych na podłożu W(110). Trzecia praca przedstawia wyniki badań właściwości magnetycznych struktury typu zaworu spinowego Fe/Au/FeRh/MgO(001). Ostatnia, czwarta publikacja dotyczy właściwości magnetycznych pojedynczej warstwy stopu FeRh naniesionej na podłożu MgO(001) przykrytej cienką warstwą Au.

4.1. Publikacja A

„Switching of Co Magnetization Driven by Antiferromagnetic-Ferromagnetic Phase Transition of FeRh Alloy in Co/FeRh Bilayers”

PHYSICAL REVIEW APPLIED 9, 034030 (2018)

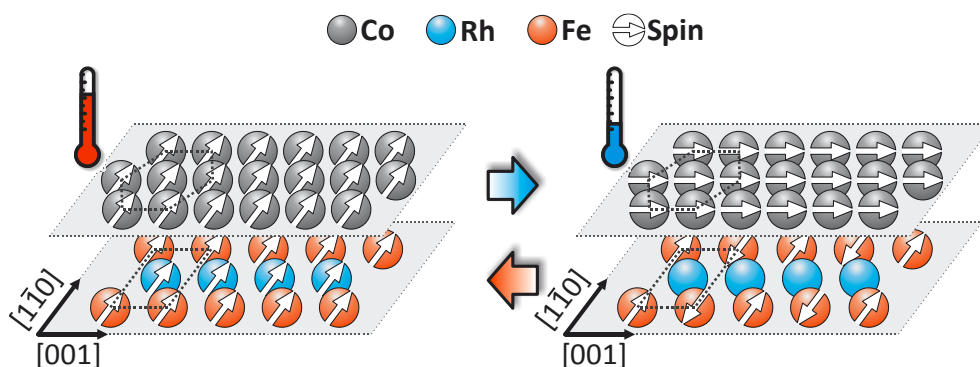
P. Drózd, M. Ślęzak, K. Matlak, B. Matlak, K. Freindl, D. Wilgocka-Ślęzak, N. Spiridis, J. Korecki, T. Ślęzak

Możliwość kontrolowania kierunku spinów w magnetycznych układach cienkowarstwowych decyduje o ich potencjalnym zastosowaniu w spintronice. W ultra-cienkich warstwach magnetycznych zmiana kierunku namagnesowania próbki może odbywać się w procesie reorientacji spinowej (SRT – Spin Reorientation Transition) polegającej na przełączeniu osi łatwej namagnesowania pomiędzy dwoma kierunkami [38–40].

Artykuł przedstawia wyniki badań właściwości magnetycznych dwuwarstwy Co/FeRh/W(110), gdzie klinowa warstwa Co o grubościach zmieniających się od 0 do 20 Å została naniesiona na warstwę stopu FeRh o grubości 100 Å. Warstwy były deponowane na powierzchnię podłoża W o orientacji (110). Badania właściwości magnetycznych zostały przeprowadzone *in-situ* w szerokim zakresie temperatur przy użyciu metody LMOKE.

Systematyczne badania pokazały, że w układzie Co/FeRh dla grubości warstwy Co $d_{Co} > 8 \text{ \AA}$ wraz z zachodzącym w stopie przejściem między fazą FM, a AFM oś łatwa namagnesowania warstwy Co przełącza się pomiędzy dwoma prostopadłymi do siebie kierunkami leżącymi w płaszczyźnie próbki, odpowiadającymi kierunkom $[1\bar{1}0]$ oraz $[001]$

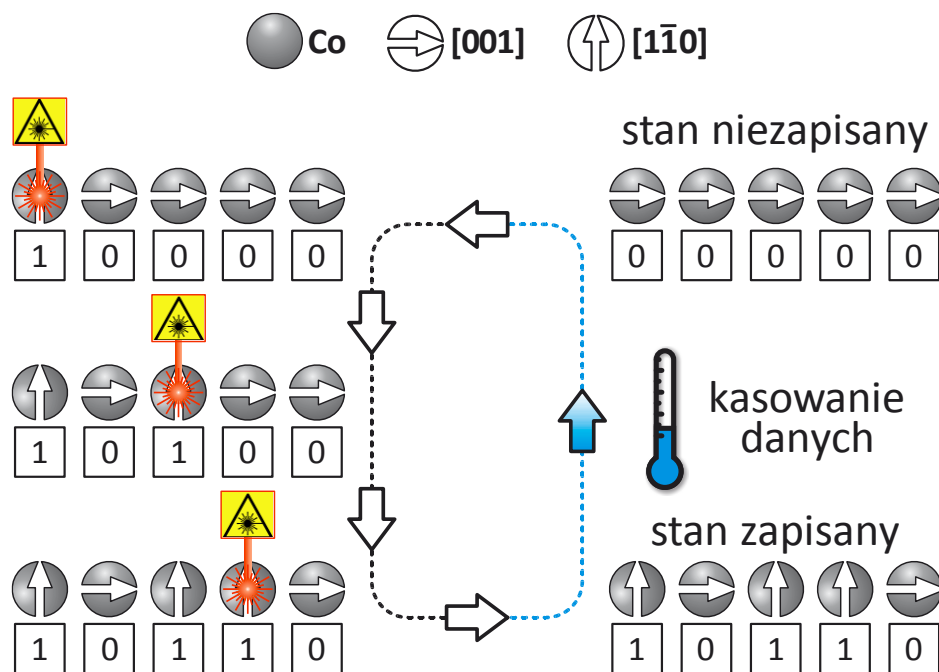
podłoża W(110). Źródłem obserwowanego zjawiska SRT jest zmieniający się charakter sprzężenia magnetycznego pomiędzy warstwą Co, a warstwą stopu FeRh wraz z zachodzącym przejściem AFM \leftrightarrow FM. Dla stanu ferromagnetycznego stopu sprzężenie magnetyczne pomiędzy warstwami preferuje kolinearne ustawienie spinów wzdłuż kierunku $[1\bar{1}0]$. Dla antyferromagnetycznej fazy stopu pomiędzy warstwami Co i FeRh zachodzi magnetyczne oddziaływanie wymienne typu *spin-flop*, gdzie momenty magnetyczne w warstwie Co ulegają frustracji, ze względu na sąsiedztwo spinowo skompensowanej powierzchni stopu, skutkiem czego kierunek łatwy namagnesowania zostaje ustawiony wzdłuż kierunku $[001]$, który jest kierunkiem prostopadłym do kierunków spinów antyferromagnetyka [41,42]. Konfiguracja struktury spinowej dwuwarstwy Co/FeRh dla fazy FM (temperatura wysoka) oraz AFM (temperatura niska) jest przedstawiona schematycznie na Rys. 2.



Rys. 2: Konfiguracja struktury spinowej dwuwarstwy Co (13 Å) /FeRh / W(110) dla fazy FM i AFM stopu FeRh, przedstawiona odpowiednio na lewej i prawej grafice.

Opisana reorientacja spinowa zachodząca w warstwie Co wykazuje taką samą temperaturową histerezę co przejście AFM \leftrightarrow FM, co pozwala na termiczne przełączanie oraz stabilizację (w obrębie szerokości histerezy przejścia) namagnesowania warstwy Co pomiędzy dwoma wybranymi, obróconymi o 90° względem siebie, kierunkami. Przełączanie osi łatwej namagnesowania odbywa się bez konieczności użycia zewnętrznego pola magnetycznego, lecz tylko poprzez zmianę temperatury. Układ Co/FeRh/W(110), ze względu na swoje właściwości magnetyczne, może zostać zaimplementowany jako magnetyczny nośnik pamięci, w którym namagnesowanie warstwy Co skierowane wzdłuż kierunku $[001]$ oraz $[1\bar{1}0]$ reprezentuje odpowiednio dwa stany logiczne o wartościach „0” oraz „1”. Termiczna histereza procesu SRT zachodzącego w warstwie Co pozwala na stabilizację obydwóch kierunków namagnesowania w temperaturze bliskiej pokojowej w zależności od uprzedniego termicznego stanu próbki. Na

Rys. 3 przedstawiono koncepcję zapisu informacji w komórkach pamięci o strukturze Co/FeRh/W(110). Stan niezapisany, oznaczony jako sekwencja bitów o wyzerowanych wartościach, odpowiada warstwie Co ze spinami ustawionymi wzdłuż kierunku [001] (AFM stan stopu FeRh). Zapis informacji, czyli obrót kierunku łatwego namagnesowania Co na kierunek $[1\bar{1}0]$ odbywa się poprzez chwilowe zwiększenie temperatury do wartości odpowiadającej FM fazie stopu FeRh. Proces zapisu może być realizowany lokalnie w wybranych komórkach pamięci przy użyciu ultra-szybkiego lasera [31]. Kasowanie zapisanej sekwencji bitów następuje globalnie poprzez jednokrotne schłodzenie całego układu do temperatury odpowiadającej AFM fazie stopu. Odczyt pamięci może być realizowany przez głowicę dysku wykorzystującą zjawisko magnetorezystancji lub optycznie poprzez wykorzystanie magnetooptycznego efektu Kerra.



Rys. 3: Koncepcja zapisu danych realizowana w komórkach pamięci o strukturze Co/FeRh/W(110).

W warstwie Co o grubości $d_{Co} < 8 \text{ \AA}$ przyczynę anizotropii powierzchniowej, bez względu na magnetyczną fazę stopu, faworyzuje oś łatwą namagnesowania wzdłuż kierunku $[1\bar{1}0]$ dominując nad anizotropią indukowaną oddziaływaniem typu spin-flop, skutkiem czego reorientacja spinowa w tym zakresie grubości nie zachodzi.

Dodatkowo, pomiary temperaturowego profilu przejścia AFM \leftrightarrow FM zachodzącego w układzie Co/FeRh pokazały, że temperatura przejścia dwuwarstwy jest przesunięta w stronę

niższych temperatur o około 10 K w stosunku do temperatury przejścia wyznaczonej dla nieprzykrytej warstwy stopu FeRh o tej samej grubości ($T_T = 302$ K).

4.2. Publikacja B

“Spin - flop coupling induced large coercivity enhancement in Fe/FeRh/W(110) bilayers across ferromagnetic – antiferromagnetic phase transition of FeRh alloy”

JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS 498 (2020) 166258

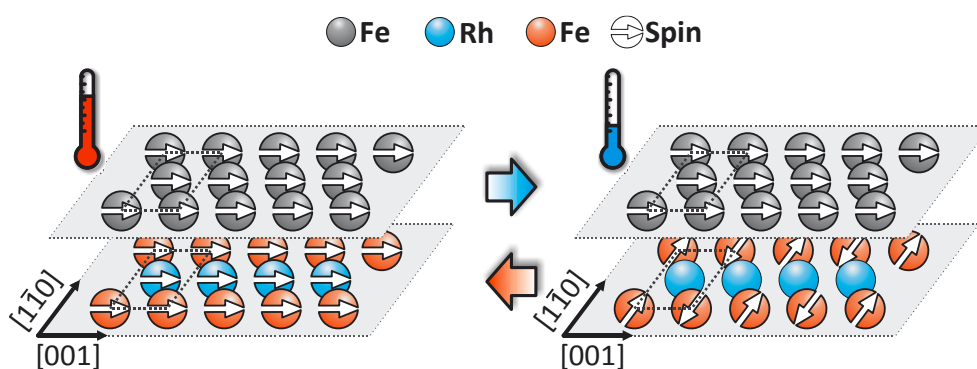
P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, A. Koziół-Rachwał, J. Korecki, T. Ślęzak

Temperaturowo wzbudzana modulacja wartości pola koercji jest pożądanym efektem z punktu widzenia metody termicznie wspomaganego zapisu informacji HAMR [29]. Interesujące rezultaty badań zostały przedstawione dla układów FePt/FeRh, w których przejściu stopu FeRh do fazy FM towarzyszy gwałtowna redukcja pola koercji [30,43]. Podobne efekty zostały również zaobserwowane w układzie Fe naniesione na lity stop FeRh [44], oraz Fe/FeRh i CoFe/FeRh na podłożach MgO, Al₂O₃ i Ge [21,45,46].

Opisywany artykuł przedstawia wyniki badań właściwości magnetycznych układów dwuwarstwowych Fe/FeRh na podłożu W(110). Naniesione warstwy stopu FeRh o grubościach 100 Å oraz 50 Å zostały następnie przykryte warstwą Fe o grubości 10 Å. Do badań właściwości magnetycznych wykorzystano metodę LMOKE *in-situ*. W celu zbadania struktury spinowej warstwy stopu ⁵⁷FeRh wykorzystano układ pomiarowy CEMS *in-situ* w geometrii niskokątowej pozwalającej na określenie kierunków lokalnych momentów magnetycznych atomów Fe w płaszczyźnie próbki zarówno w AFM jak i FM fazie stopu.

Pomiary metodą LMOKE pokazały, że w układzie Fe/FeRh warstwa Fe wykazuje jednoosiową anizotropię magnetyczną z osią łatwą namagnesowania wzdłuż kierunku [001] dla obydwóch rozpatrywanych grubości stopu, zarówno w fazie AFM jak i FM stopu. Zaobserwowano również duży wzrost wartości pola koercji dla pętli histerezy magnetycznej zmierzonej po schłodzeniu próbki w temperaturze odpowiadającej AFM fazie stopu. Dla dwuwarstwy Fe/FeRh (100 Å) wartość pola koercji w trakcie chłodzenia zmienia się o blisko rząd wielkości pomiędzy wartościami około 110 Oe i 950 Oe, odpowiadającymi FM i AFM fazie stopu. Dla układu Fe/FeRh (50 Å) zakres obserwowanych zmian koercji był mniejszy i wynosił od około 300 Oe do około 950 Oe.

Systematyczne pomiary pętli histerezy magnetycznych w funkcji temperatury pokazały, że obserwowane zmiany wartości pola koercji w dwuwarstwach Fe/FeRh są całkowicie skorelowane z przejściem AFM \leftrightarrow FM zachodzącym w podwarstwie stopowej. Gwałtowne zmiany pola koercji zachodzą w tych samych zakresach temperatur co magnetyczne przejście fazowe obserwowane w stopie. W pracy pokazano, że temperaturowa zależność wartości pola koercji może być kontrolowana poprzez zmianę grubości podwarstwy FeRh, gdzie wraz z jej obniżaniem, temperatura przejścia AFM \leftrightarrow FM przesuwa się w stronę niższych wartości, a histereza termiczna ulega poszerzeniu. Dodatkowo pokazano, że temperatura magnetycznego przejścia fazowego dla układu dwuwarstwowego Fe/FeRh jest przesunięta w stronę niższych temperatur w stosunku do nieprzykrytych, pojedynczych warstw stopu o tych samym grubościach, podobnie jak w układzie Co/FeRh opisywanym w podrozdziale 4.1 [47].



Rys. 4: Konfiguracja struktury spinowej dwuwarstwy Fe/FeRh (100 Å) / W(110) dla fazy FM i AFM stopu FeRh, przedstawiona odpowiednio na lewej i prawej grafice.

Jako mechanizm odpowiedzialny za wzrost pola koercji w AFM fazie układu Fe/FeRh ponownie zaproponowano ortogonalne sprzężenie wymienne typu *spin-flop*. Biorąc pod uwagę, że oś łatwa ferromagnetycznej warstwy Fe leżąca wzdłuż kierunku [001] nie ulega zmianie w całym zakresie badanych temperatur (w przeciwieństwie do układu Co/FeRh [47]), zjawisko *spin-flop* musi polegać na reorientacji spinowej w warstwie stopu FeRh pomiędzy kierunkami [001] oraz $[1\bar{1}0]$, odpowiadającymi FM oraz AFM fazie stopu. Oddziaływanie typu *spin-flop* jest źródłem dodatkowej jednoosiowej anizotropii odpowiedzialnej za wzrost pola koercji w układzie Fe/FeRh w AFM fazie stopu. Na Rys. 4 została przedstawiona schematycznie struktura spinowa dwuwarstwy Fe/FeRh w FM oraz AFM fazie stopu.

Zaproponowany powyżej mechanizm został zweryfikowany eksperymentalnie poprzez zastosowanie metody spektroskopii Mössbauerowskiej. Widma CEMS zarejestrowane zostały dla dwuwarstwy $^{56}\text{Fe}/^{57}\text{FeRh}$ (100 Å) w temperaturze odpowiadającej fazie FM oraz AFM

stopu. Zmieniające się stosunki intensywności linii $R_{2/3}$ na zarejestrowanych widmach Mössbauerowskich potwierdziły reorientację kierunku magnetycznego pola nadsubtelnego pomiędzy kierunkiem [001] w fazie FM stopu, a kierunkiem $[1\bar{1}0]$ w fazie AFM.

4.3. Publikacja C

“*Temperature controlled Fe/Au/FeRh spin valves*”

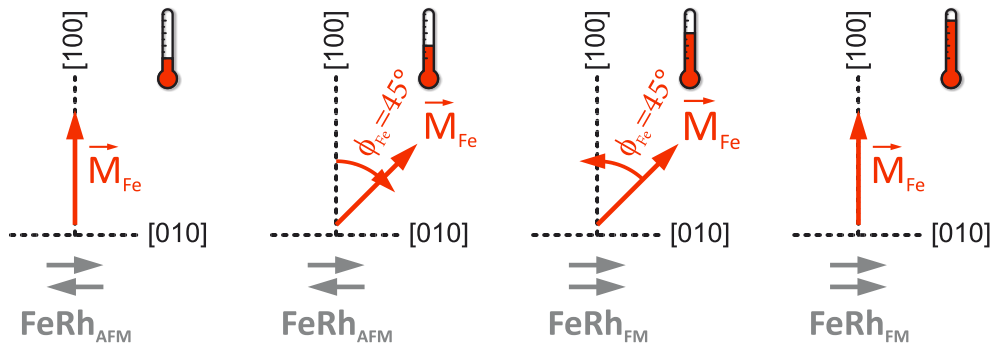
AIP ADVANCES 8, 101434 (2018)

P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, A. Kozioł-Rachwał, D. Wilgocka-Ślęzak, J. Korecki,
T. Ślęzak

W pracy zaprezentowano wyniki badań właściwości magnetycznych temperaturowo sterowanego epitaksjalnego zaworu spinowego o strukturze trójwarstwowej Fe/Au/FeRh naniesionej na podłoże MgO o orientacji (001). Układ składał się z warstwy stopu FeRh o grubości 200 Å oraz Fe o grubości 50 Å, które zostały od siebie oddzielone klinową warstwą Au o grubości d_{Au} zmieniającą się w zakresie od 4 Å do 40 Å. Pomiar dyfrakcyjne LEED ukazały, że sieć atomowa uporządkowanej warstwy stopu FeRh o strukturze B2 jest obrócona względem głównych kierunków krystalograficznych podłoża MgO o 45°. Takie same relacje kątowe zachodzą pomiędzy sieciami warstw FeRh i Au oraz Fe i Au.

Wyniki badań LMOKE *in-situ* pokazały, że struktura magnetyczna zaworu spinowego Fe/Au/FeRh może być termicznie kontrolowana poprzez zachodzące w stopie przejście AFM↔FM. Pośrednie oddziaływanie wymienne zachodzące pomiędzy warstwami Fe i FeRh pozwala na kontrolowanie ich względnego kierunku namagnesowania poprzez zmianę grubości d_{Au} oraz następujące w stopie przejście AFM↔FM.

Systematyczne pomiary magnetycznych pętli LMOKE zmierzonych dla różnych grubości przekładki Au d_{Au} pokazały, że w temperaturze odpowiadającej AFM fazie stopu o łatwa namagnesowania warstwy Fe jest ustawiona równolegle do kierunku [100] podłoża MgO leżącego w płaszczyźnie (001) próbki w całym zakresie grubości klina Au. Anizotropia faworyzująca namagnesowanie warstwy Fe wzdłuż kierunku [100] może być indukowana oddziaływaniem *spin-flop* z warstwą stopu FeRh, w której momenty magnetyczne ustawione są wzdłuż kierunku [010]. W fazie FM stopu względne namagnesowanie warstw Fe i FeRh zmienia się niemonotonicznie wraz z rosnącą grubością klina pomiędzy kolinearnym wzdłuż kierunku [100], a niekolinearnym występującym w okolicy $d_{Au} = 24$ Å.



Rys. 5: Termiczna ewolucja płaszczyznowej reorientacji spinowej w warstwie Fe wraz z zachodzącym przejściem $AFM \leftrightarrow FM$ w stopie FeRh dla grubości $d_{Au} = 24 \text{ \AA}$. Zaznaczone kierunki krystalograficzne odpowiadają kierunkom w płaszczyźnie (001) podłoża MgO.

Analiza zmierzonych pętli histerezy magnetycznych w obszarze niekolinearnego sprzężenia pokazała, że wraz ze zwiększaniem temperatury próbki dochodzi do dwukrotnej zmiany kierunku łatwego namagnesowania warstwy Fe. Przebiega ona pomiędzy kierunkami [100], a [110] w temperaturze bliskiej przejścia $AFM \leftrightarrow FM$ oraz kierunkami [110], a [100] dla wyższych temperatur, wraz z narastającą ilością fazy FM. Termiczna ewolucja płaszczyznowej reorientacji spinowej zachodzącej w warstwie Fe została przedstawiona schematycznie na Rys. 5 Reorientacja odbywa w trakcie ogrzewania układu poprzez osłabianie anizotropii indukowanej oddziaływaniem *spin-flop*, wraz ze zbliżaniem się do temperatury przejścia $AFM \leftrightarrow FM$, oraz dominację własnej anizotropii magnetycznej warstwy Fe faworyzującej oś łatwą namagnesowania równoległą do kierunku [110] podłoża MgO (odpowiadającą kierunkowi łatwemu warstwy Fe w układzie Fe/MgO(001) [48]). Dalsze zwiększanie temperatury i towarzyszące temu magnetyczne przejście fazowe w podwarstwie FeRh do fazy FM prowadzi do ortogonalnego sprzężenia pomiędzy warstwami FeRh i Fe, którego mechanizm może być związany z powstawaniem magnetycznych pól dipolowych indukowanych na międzywierzchniach warstw magnetycznych o dużej chropowatości [49,50]. W wyniku tego oddziaływania dochodzi do ponownego ustawienia osi łatwej namagnesowania warstwy Fe wzdłuż kierunku [100], podczas gdy momenty magnetyczne w ferromagnetycznej warstwie stopu FeRh ustawione są wzdłuż kierunku [010].

4.4. Publikacja D

„Perpendicular magnetic anisotropy and residual magnetic phases in gold-capped FeRh film on MgO(001)”

JOURNAL OF MAGNETISM AND MAGNETIC MATERIALS 495 (2020) 165804

P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, K. Freindl, N. Spiridis, D. Wilgocka-Ślęzak, A. Kozioł-Rachwał, J. Korecki, T. Ślęzak

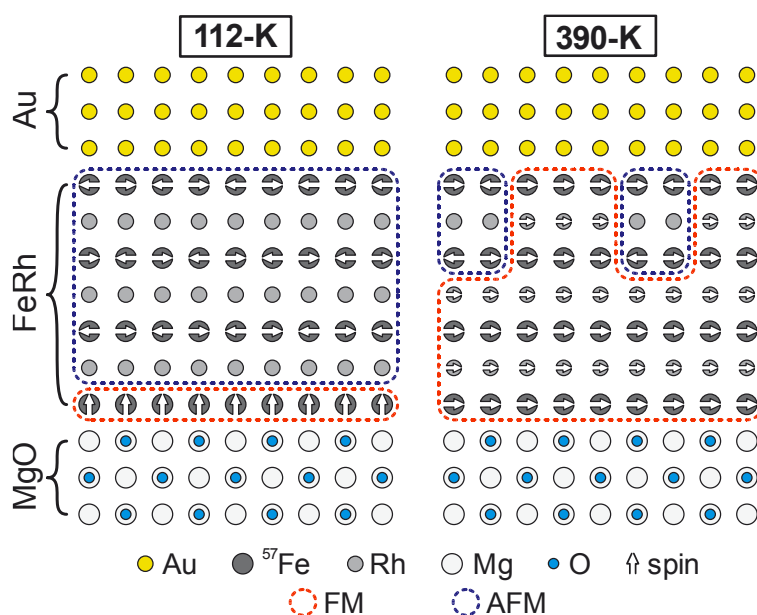
Liczne prace naukowe pokazują, że dla warstw stopu FeRh naniesionych na podłoża MgO zachodzące przejście AFM \leftrightarrow FM w trakcie obniżania temperatury nie jest kompletne i obecna jest resztkowa faza FM w nominalnie AFM fazie stopu. Dla układów FeRh/MgO resztkowa faza FM występuje przy powierzchni próbki [51], w przeciwieństwie do układów MgO/FeRh/MgO, gdzie FM faza występuje na międzywierzchni MgO/FeRh [52]. Prace teoretyczne przewidują istnienie niskotemperaturowej resztkowej fazy FM, wykazującej prostopadłą anizotropię magnetyczną (PMA – perpendicular magnetic anisotropy) [53,54].

W pracy D przedstawiono eksperymentalne wyniki badań właściwości magnetycznych układu Au/FeRh/MgO(001). W badanych próbkach warstwy stopu FeRh o grubościach 100 Å oraz 200 Å, zostały naniesione na podłożu MgO o orientacji (001) a następnie przykryte warstwą Au o grubości 30 Å. Do badań właściwości magnetycznych zastosowano metody MOKE oraz CEMS.

Wyniki przeprowadzonych pomiarów LMOKE oraz PMOKE dla układu Au/(100 Å)FeRh pokazały, że zachodzące w trakcie obniżania temperatury próbki przejście od fazy FM do AFM nie jest kompletne. Zaobserwowana resztkowa faza FM wykazuje prostopadłą anizotropię magnetyczną, widoczną w postaci otwartych pętli histerezy zmierzonych w zakresie temperatur 80-220K w geometrii polarnej MOKE o maksymalnej wartości remanencji około 50%. Ilość stopu wykazująca składową prostopadłą namagnesowania można oszacować na około 1-2 ML stopu FeRh. Systematyczne pomiary pokazały, że składowa prostopadła namagnesowania jest obecna gdy ilość całkowitej fazy FM stopu wynosi poniżej 50%, zarówno w trakcie chłodzenia jak i grzania układu, co (biorąc pod uwagę termiczną histerezę przejścia AFM \leftrightarrow FM) sprawia, że obserwowane zmiany wielkości prostopadłej składowej również wykazują charakter histerezowy. Dla ilości fazy FM powyżej 50% anizotropia kształtu w warstwie stopu zaczyna dominować preferując namagnesowanie warstwy w płaszczyźnie. Podobne pomiary MOKE zostały przeprowadzone dla układu

o grubości podwarstwy FeRh wynoszącej 200 Å. Pomiary pokazały, że przejście AFM↔FM jest przesunięte w stronę wyższych temperatur w stosunku do 100 Å FeRh o około 140 K.

Pomiary widm CEMS dla układu Au/FeRh(100 Å) zarejestrowane w wybranych temperaturach pozwoliły na obserwację temperaturowej ewolucji struktury spinowej w warstwie stopu. Analiza oraz interpretacja zmierzonych widm Mössbauerowskich jest zgodna z pomiarami MOKE. Obserwowana jest resztkowa faza FM w nominalnie AFM fazie stopu posiadająca prostopadłą składową namagnesowania o udziale około 3.5% w całym zmierzonym widmie Mössbauerowskim. W trakcie ogrzewania próbki i przechodzenia stopu do fazy FM obserwowane jest stopniowe ubywanie AFM składowej widma, połączone z jednoczesnym narastaniem składowej FM. Zgodnie z pomiarami MOKE oraz CEMS, dalsze zwiększanie temperatury (powyżej temperatury przejścia) nie powoduje dalszego narastania ilości FM składowej stopu co oznacza, że proces przejścia do fazy FM jest zakończony. Pomimo tego, w widmach CEMS wciąż obserwowana jest pewna ilość (17%) składowej widmowej związanej z resztkową fazą AFM, która w trakcie dalszego zwiększania temperatury przechodzi bezpośrednio do stanu paramagnetycznego, nie biorąc udziału w przejściu AFM↔FM.



Rys. 6: Struktura spinowa układu Au/FeRh(100 Å)/MgO(001) przedstawiona schematycznie dla temperatur odpowiadających fazie nominalnie AFM (112 K) oraz FM (390 K). Liniami przerywanymi zaznaczono obszary fazy FM oraz AFM.

Analiza widma Mössbauerowskiego zmierzonego dla układu Au/FeRh (200 Å) w nominalnie AFM fazie stopu FeRh (podobnie jak dla układu Au/FeRh (100 Å)) wskazała na obecność reszkowej fazy FM o prostopadłej składowej magnetycznej. Jednocześnie, w pomiarach PMOKE nie wykazano istnienia prostopadłej składowej namagnesowania warstwy FeRh (ze względu na nieczułość metody MOKE na obszary warstwy FeRh „zagrzebane” głęboko pod powierzchnią próbki) co potwierdza, że reszkowa faza FM stopu FeRh znajduje się w bezpośredniej bliskości międzywierzchni FeRh/MgO. Na Rys. 6 przedstawiono schematycznie strukturę spinową układu Au/FeRh(100 Å)/MgO(001) dla temperatur odpowiadających nominalnie fazie FM oraz AFM. Istnienie reszkowej fazy AFM może być związane z występującymi naprężeniami ściskającymi zlokalizowanym na międzywierzchni Au/FeRh, których źródłem jest niedopasowanie sieciowe pomiędzy warstwami Au oraz FeRh. Występujące naprężenia mogą stabilizować fazę AFM stopu, która wraz ze wzrostem temperatury ulega bezpośrednio przejściu do fazy paramagnetycznej powyżej temperatury Néela nie biorąc udziału w przejściu AFM↔FM [55].

5. Podsumowanie

W trakcie badań wytworzono oraz scharakteryzowano pod kątem właściwości magnetycznych układy cienkowarstwowe, w których jedną z podwarstw stanowił stop FeRh. Do sterowania właściwościami magnetycznymi nanostruktur wykorzystano właściwości stopu FeRh, polegające na temperaturowo wzbudzonym magnetycznym przejściu fazowym pomiędzy fazą ferromagnetyczną, a antyferromagnetyczną.

W układzie Co/FeRh/W(110) pokazano, że w warstwie Co dochodzi do reorientacji spinowej indukowanej temperaturowym przejściem AFM \leftrightarrow FM zachodzącym w sąsiadującej warstwie stopu FeRh. Przełączenie osi łatwej namagnesowania warstwy Co jest wywoływane wyłącznie temperaturowo, a jej źródłem jest towarzysząca przejściu AFM \leftrightarrow FM zmiana charakteru oddziaływania magnetycznego pomiędzy warstwą Co, a stopem FeRh. Reorientacja spinowa w warstwie Co ma charakter histerezowy co pozwala to na termiczne przełączanie oraz stabilizację wybranego kierunku namagnesowania warstwy Co.

W układzie Fe/FeRh/W(110) zaobserwowano znaczny wzrost pola koercji podczas zachodzącego w stopie przejścia z fazy FM do AFM. Pomiary MOKE oraz bezpośrednie pomiary struktury spinowej metodą CEMS pokazały, że źródłem dodatkowej jednoosiowej anizotropii odpowiedzialnej za wzrost wartości pola koercji w warstwie Fe w AFM fazie stopu jest oddziaływanie wymienne typu *spin-flop*.

W układzie zaworu spinowego Fe/Au/FeRh/MgO(001) pokazano, że implementacja stopu FeRh jako jednej z podwarstw pozwala na temperaturowe kontrolowanie względnego kierunku namagnesowania pomiędzy warstwami Fe oraz FeRh w zależności od stanu magnetycznego stopu oraz grubości separującej warstwy złota. W obszarze niekolinearnego sprzężenia, że wraz ze zwiększaniem temperatury próbki dochodzi do dwukrotnej zmiany kierunku łatwego namagnesowania warstwy Fe.

W układach Au/FeRh/MgO(001) pokazano, że przejście magnetyczne zachodzące w stopie pomiędzy fazą FM, a AFM w trakcie chłodzenia próbki nie jest kompletne, a występująca resztkowa faza FM zlokalizowana na międzywierzchni FeRh/MgO posiada składową prostopadłą namagnesowania. Dodatkowo, w temperaturze powyżej przejścia AFM \leftrightarrow FM wciąż obserwowana jest pewna ilość resztkowej fazy AFM, która w trakcie dalszego zwiększania temperatury przechodzi bezpośrednio do magnetycznie nieuporządkowanej fazy stopu, nie biorąc udziału w przejściu AFM \leftrightarrow FM.

Bibliografia

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [2] G. Binasch, P. Gruunberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, *Enhanced Magnetoresistance in Layered Magnetic Structures with Antiferromagnetic Interlayer Exchange*, Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [3] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. Yang, *Giant Tunneling Magnetoresistance at Room Temperature with MgO(100) Tunnel Barriers*, Nat. Mater. **3**, 862 (2004).
- [4] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, *Giant Room-Temperature Magnetoresistance in Single-Crystal Fe/MgO/Fe Magnetic Tunnel Junctions*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004).
- [5] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. a Den Broeder, and J. J. De Vries, *Magnetic Anisotropy in Metallic Multilayers*, Reports Prog. Phys. **59**, 1409 (1999).
- [6] L. Néel, *ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE SUPERFICIELLE ET SURSTRUCTURES D'ORIENTATION*, LE J. Phys. LE RADIUM **15**, 225 (1954).
- [7] M. Fallot and R. Hocart, *Sur L'apparition Du Ferromagnétisme Par Élévation de Température Dans Des Alliages de Fer et de Rhodium*, Rev. Sci. **77**, 498 (1939).
- [8] M. Fallot, *Les Alliages Du Fer Avec Les Métaux de La Famille Du Platine*, Ann. Phys. **10**, 291 (1938).
- [9] J. S. Kouvel, *Unusual Nature of the Abrupt Magnetic Transition in FeRh and Its Pseudobinary Variants*, J. Appl. Phys. **37**, 1257 (1966).
- [10] J. S. Kouvel and C. C. Hartelius, *Anomalous Magnetic Moments and Transformations in the Ordered Alloy FeRh*, J. Appl. Phys. **33**, 1343 (1962).
- [11] G. Shirane, C. W. Chen, P. A. Flinn, and R. Nathans, *Hyperfine Fields and Magnetic Moments in the Fe-Rh System*, J. Appl. Phys. **34**, 1044 (1963).
- [12] G. Shirane and R. Nathans, *Magnetic Moments and Unpaired Spin Densities in the Fe-Rh Alloys*, Phys. Rev. **134**, A1547 (1964).
- [13] A. I. Zakharov, A. M. Kadomtseva, R. Z. Levitin, and E. G. Ponyatovskii, *Magnetic and Magnetoelastic Properties of a Metamagnetic Iron-Rhodium Alloy*, Sov. Phys. JETP **19**, 1348 (1964).
- [14] M. R. Ibarra and P. A. Algarabel, *Giant Volume Magnetostriction in the FeRh Alloy*, Phys. Rev. B **50**, 4196 (1994).
- [15] M. P. Annaorazov, S. A. Nikitin, A. L. Tyurin, K. A. Asatryan, and A. K. Dovletov, *Anomalous High Entropy Change in FeRh Alloy*, J. Appl. Phys. **79**, 1689 (1996).
- [16] P. Tu, A. J. Heeger, J. S. Kouvel, and J. B. Comly, *Mechanism for the First Order Magnetic Transition in the FeRh System*, J. Appl. Phys. **40**, 1368 (1969).
- [17] W. He, H. Huang, and X. Ma, *First-Principles Calculations on Elastic and Entropy Properties in FeRh Alloys*, Mater. Lett. **195**, 156 (2017).
- [18] E. Stern-Taulats, A. Planes, P. Lloveras, M. Barrio, J. L. Tamarit, S. Pramanick, S. Majumdar, C. Frontera, and L. Mañosa, *Barocaloric and Magnetocaloric Effects in Fe₄₉Rh₅₁*, Phys. Rev. B **89**, 214105 (2014).
- [19] P. E. M. Hofer and P. E. Cucka, *Magnetic Properties of Rh-Rich FeRh Alloy*, J. Phys. Chem. **27**, 1552 (1966).
- [20] G. Shirane, C. W. Chen, P. A. Flinn, and R. Nathans, *Mossbauer Study of Hyperfine Fields and Isomer Shifts in the Fe-Rh Alloys*, Phys. Rev. **131**, 183 (1963).
- [21] S. Yamada, K. Tanikawa, J. Hirayama, T. Kanashima, T. Taniyama, and K. Hamaya,

- Low-Temperature B2 Ordering and Magnetic Properties of Fe_{100-x}Rh_x Films on Bcc Alloys*, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys. **92**, 094416 (2015).
- [22] S. Inoue, N. N. Phuoc, J. Cao, N. T. Nam, H. Y. Y. Ko, and T. Suzuki, *Structural and Magneto-Optical Properties of FeRh Thin Films*, J. Appl. Phys. **103**, 07B312 (2008).
- [23] S. Maat, J. Thiele, and E. E. Fullerton, *Temperature and Field Hysteresis of the Antiferromagnetic-to-Ferromagnetic Phase Transition in Epitaxial FeRh Films*, Phys. Rev. B **72**, 214432 (2005).
- [24] T. A. Ostler, C. Barton, T. Thomson, and G. Hrkac, *Modeling the Thickness Dependence of the Magnetic Phase Transition Temperature in Thin FeRh Films*, Phys. Rev. B **95**, 64415 (2017).
- [25] A. Ceballos, Z. Chen, O. Schneider, C. Bordel, L. W. Wang, and F. Hellman, *Effect of Strain and Thickness on the Transition Temperature of Epitaxial FeRh Thin-Films*, Appl. Phys. Lett. **111**, (2017).
- [26] C. Bordel, J. Juraszek, D. W. Cooke, C. Baldasseroni, S. Mankovsky, and J. Minar, *Fe Spin Reorientation across the Metamagnetic Transition in Strained FeRh Thin Films*, Phys. Rev. Lett. **109**, 117201 (2012).
- [27] H. Kumar, D. R. Cornejo, S. L. Morelhao, S. Kycia, I. M. Montellano, N. R. Alvarez, G. Alejanro, and A. Butera, *Strain Effects on the Magnetic Order of Epitaxial FeRh Thin Films*, J. Appl. Phys. **124**, 85306 (2018).
- [28] G. Zheng, S. Ke, M. Miao, J. Kim, R. Ramesh, and N. Kioussis, *Epitaxial Strain Controlled Magnetocrystalline Anisotropy in Ultrathin FeRh/MgO Bilayers*, AIP Adv. **7**, 55914 (2017).
- [29] M. H. Kryder, E. C. Gage, T. W. Mcdaniel, W. a. Challener, R. E. Rottmayer, G. Ju, Y. T. Hsia, and M. F. Erden, *Heat Assisted Magnetic Recording*, Proc. IEEE **96**, 1810 (2008).
- [30] J.-U. Thiele, S. Maat, and E. E. Fullerton, *FeRh/FePt Exchange Spring Films for Thermally Assisted Magnetic Recording Media*, Appl. Phys. Lett. **82**, 2859 (2003).
- [31] J. Ganping, J. Hohlfeld, B. Bergman, R. J. M. van de Veerdonk, O. N. Mryasov, J.-Y. Kim, G. Ju, X. Wu, D. Weller, and B. Koopmans, *Ultrafast Generation of Ferromagnetic Order via a Laser-Induced Phase Transformation in FeRh Thin Films*, Phys. Rev. Lett. **93**, 197403 (2004).
- [32] R. O. Cherifi, V. Ivanovskaya, L. C. Phillips, A. Zobelli, I. C. Infante, E. Jacquet, V. Garcia, S. Fusil, P. R. Briddon, N. Guiblin, A. Mougín, A. A. Ünal, F. Kronast, S. Valencia, B. Dkhil, A. Barthélémy, and M. Bibes, *Electric-Field Control of Magnetic Order above Room Temperature*, Nat. Mater. **13**, 345 (2014).
- [33] X. Marti, I. Fina, C. Frontera, J. Liu, P. Wadley, Q. He, R. J. Paull, J. D. Clarkson, J. Kudrnovský, I. Turek, J. Kuneš, D. Yi, J. Chu, C. T. Nelson, L. You, E. Arenholz, S. Salahuddin, J. Fontcuberta, T. Jungwirth, and R. Ramesh, *Room-Temperature Antiferromagnetic Memory Resistor*, Nat. Mater. **13**, 367 (2014).
- [34] S. Polisetty, J. Scheffler, S. Sahoo, Y. Wang, T. Mukherjee, X. He, and C. Binek, *Optimization of Magneto-Optical Kerr Setup: Analyzing Experimental Assemblies Using Jones Matrix Formalism*, Rev. Sci. Instrum. **79**, (2008).
- [35] P. M. Oppeneer, *Magneto-Optical Kerr Spectra Chapt. 3*, Handb. Magn. Mater. **13**, 229 (2001).
- [36] K. Matlak, *Badanie Magnetycznych Przejść Fazowych Z Zastosowaniem Obrazowania Magnetoptycznego Oraz Jądrowego Rezonansowego Rozpraszania Promieniowania Synchrotronowego*, 2013.
- [37] K. Lagarec, *Recoil 1.05 Mössbauer Analysis Software for Windows*, © 1998, (2002).
- [38] P. J. Jensen and K. H. Bennemann, *Magnetic Structure of Films: Dependence on Anisotropy and Atomic Morphology*, Surf. Sci. Rep. **61**, 129 (2006).

- [39] H. P. Oepen, M. Speckmann, Y. Millev, and J. Kirschner, *Unified Approach to Thickness-Driven Magnetic Reorientation Transitions*, Phys. Rev. B **55**, 2752 (1997).
- [40] S. Hope, E. Gu, B. Choi, and J. A. C. Bland, *Spin Engineering in Ultrathin Cu/Co/Cu (110)*, Phys. Rev. Lett. **80**, 1750 (1998).
- [41] T. Schulthess and W. Butler, *Consequences of Spin-Flop Coupling in Exchange Biased Films*, Phys. Rev. Lett. **81**, 4516 (1998).
- [42] T. J. Moran, J. Nogués, D. Lederman, I. K. Schuller, D. Lederman, and I. K. Schuller, *Perpendicular Coupling at Fe – FeF₂ Interfaces*, Appl. Phys. Lett. **72**, 617 (1998).
- [43] N. T. Nam, W. Lu, and T. Suzuki, *Exchange Bias of Ferromagnetic/antiferromagnetic in FePt/FeRh Bilayers*, J. Appl. Phys. **105**, 07D708 (2009).
- [44] V. Kuncser, W. Keune, B. Sahoo, E. Duman, M. Acet, F. Radu, M. Valeanu, O. Crisan, and G. Filoti, *Magnetic Interactions and Spin Configuration in FeRh and Fe/FeRh Systems*, J. Magn. Magn. Mater. **272–276**, 348 (2004).
- [45] I. Suzuki, Y. Hamasaki, M. Itoh, and T. Taniyama, *Controllable Exchange Bias in Fe/metamagnetic FeRh Bilayers*, Appl. Phys. Lett. **105**, 172401 (2014).
- [46] S. Yamada, K. Tanikawa, J. Hirayama, T. Kanashima, T. Taniyama, and K. Hamaya, *Exchange Coupling in Metallic Multilayers with a Top FeRh Layer*, AIP Adv. **6**, 056115 (2016).
- [47] P. Drózdź, M. Ślęzak, K. Matlak, B. Matlak, K. Freindl, D. Wilgocka-Ślęzak, N. Spiridis, J. Korecki, and T. Ślęzak, *Switching of Co Magnetization Driven by Antiferromagnetic-Ferromagnetic Phase Transition of FeRh Alloy in Co/FeRh Bilayers*, Phys. Rev. Appl. **9**, 034030 (2018).
- [48] J. L. Costa-Krämer, J. L. Menéndez, A. Cebollada, F. Briones, D. García, and A. Hernando, *Magnetization Reversal Asymmetry in Fe/MgO(001) Thin Films*, J. Magn. Magn. Mater. **210**, 341 (2000).
- [49] S. O. Demokritov, *Biquadratic Interlayer Coupling in Layered Magnetic Systems*, J. Phys. D. Appl. Phys. **31**, 925 (1998).
- [50] S. O. Demokritov, E. Tsymbal, P. Grunberg, and W. Zinn, *Magnetic-Dipole Mechanism for Biquadratic Interlayer Coupling*, Phys. Rev. B **49**, 720 (1994).
- [51] F. Pressacco, V. Uhlř, M. Gatti, A. Bendounan, E. E. Fullerton, and F. Sirotti, *Stable Room-Temperature Ferromagnetic Phase at the FeRh(100) Surface*, Sci. Rep. **6**, 22383 (2016).
- [52] R. Fan, C. J. Kinane, T. R. Charlton, R. Dorner, M. Ali, M. A. De Vries, R. M. D. Brydson, C. H. Marrows, B. J. Hickey, D. A. Arena, B. K. Tanner, G. Nisbet, and S. Langridge, *Ferromagnetism at the Interfaces of Antiferromagnetic FeRh Epilayers*, Phys. Rev. B **82**, 184418 (2010).
- [53] D. Odkhuu, *Interfacial Magnetic-Phase Transition Mediated Large Perpendicular Magnetic Anisotropy in FeRh/MgO by a Heavy Transition-Metal Capping*, Sci. Rep. **8**, 6900 (2018).
- [54] D. Odkhuu, *Magnetization Reversal of Giant Perpendicular Magnetic Anisotropy at the Magnetic-Phase Transition in FeRh Films on MgO*, Phys. Rev. B **93**, 64412 (2016).
- [55] J. Kim, R. Ramesh, and N. Kioussis, *Revealing the Hidden Structural Phases of FeRh*, Phys. Rev. B **94**, 180407(R) (2016).

Oryginalne publikacje