Магнитные скирмионы в пленках с модулированной толщиной

М. В. Сапожников^{+*1}, О. В. Ермолаева⁺, Е. В. Скороходов⁺, Н. С. Гусев⁺, М. Н. Дроздов⁺

+Институт физики микроструктур РАН, 603950 Нижний Новгород, Россия

*Нижегородский гоударственный университет им. Н.И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 16 января 2018 г. После переработки 26 января 2018 г.

Экспериментально исследована возможность формирования решеток магнитных скирмионов в пленках с перпендикулярной магнитной анизотропией, латерально промодулированных по толщине. Образцы представляют собой регулярную прямоугольную решетку (период 300 нм) цилиндрических выступов (диаметр 150 нм), сформированных в многослойной пленке Co/Pt методами электронной литографии. Пространственная симметрия сигнала магнитно-силового микроскопа указывает на формирование магнитных скирмионов в процессе перемагничивания системы. Образующиеся скирмионы остаются устойчивыми в нулевом внешнем магнитном поле. Экспериментальные данные находятся в хорошем соответствии с результатами численного микромагнитного моделирования системы.

DOI: 10.7868/S0370274X18060073

Солитоные решения для распределения намагниченности, несущие топологический заряд, хорошо известны с конца 70-х годов [1, 2]. Впоследствии подобные магнитные конфигурации были экспериментально зафиксированы в хиральных магнетиках [3-5] и с тех пор известны под названием магнитных скирмионов [6]. Повышенный интерес к скирмионам связан с их необычными спин-электронными свойствами, такими как топологический эффект Холла [7–9], движение под действием электрических токов малой плотности [10, 11], скирмионный эффект Холла [12], необычные спин-волновые свойства [13]. Это позволяет надеяться, что в дальнейшем материалы, в которых реализуются магнитные скирмионные состояния могут быть использованы при создании интегральных твердотельных устройств, объединяющих в себе возможности одновременного хранения и обработки информации. Существенным недостатком хиральных магнетиков для их практического применения является то, что в них скирмионы обычно устойчивы в узкой области низких температур и внешних магнитных полей (см. табл. 1 из работы [14]). Это обусловлено тем, что в хиральных магнитных материалах скирмионы стабилизированы благодаря релятивистскому взаимодействию Дзялошинского-Мории (DMI) [15, 16], которое обычно слабо. Таким образом, остается актуальной задача по реализации топологически заряженных распределений намагниченности в традиционных проводящих магнитных

материалах, таких как пленки и сверхрешетки из чередующихся магнитных и немагнитных слоев (Со, Fe)/(Pt, Pd, Ru, Ir, Cu, Au), обладающих одноосной анизотропией [17], но в которых отсутствует DMI.

Один из путей достижения устойчивости скирмионов в таких магнитных материалах - наноструктурирование. В этом случае скирмион может быть застабилизирован, например, благодаря обменной связи пленки с перпендикулярной магнитной анизотропией и расположенной на ее поверхности цилиндрической магнитной наночастицей с вихревым распределением намагниченности [18]. В эксперименте такие системы показывают плотность скирмионов до 4 мкм⁻² [19]. Альтернативный способ – пространственная модуляция линейной плотности энергии доменной стенки в пленке с перпендикулярной анизотропией. В этом случае в пленке может образоваться область, являющаяся потенциальной ямой для магнитного скирмиона, что предотвращает его разрастание в лабиринтную доменную структуру. Локальное изменение плотности энергии доменной стенки может быть достигнуто либо путем локального изменения материальных параметров магнитного материала [20], либо путем модуляции толщины самой магнитной пленки [21]. Первая ситуация была экспериментально реализована в [22], достигнутая при этом плотность магнитных скирмионов составляет $100 \,\mathrm{mkm}^{-2}$.

В настоящей работе мы сообщаем об экспериментальном наблюдении магнитных скирмионов в многослойных пленках Co/Pt с перпендикулярной маг-

¹⁾e-mail: msap@ipmras.ru

нитной анизотропией латерально промодулированных по толщине.

Исходные магнитные пленки, используемые для последующего создания наноструктурированных образцов, представляют собой многослойки из чередующихся слоев Со (0.5 нм) и Pt (1 нм), всего 5 периодов, нанесенные при помощи магнетронного напыления в атмосфере Ar (давление $4 \cdot 10^{-3}$ Top) на стеклянную подложку с буферными слоями Pt (10 нм) и Ta (10 нм). Верхний слой платины составляет $2.5 \div 3$ нм для защиты структуры от окисления. Скорость роста слоев составляет 0.125 нм/с для Co и 0.25 нм/с для Pt.

Исследование петель гистерезиса полученных пленок, проведенное методами Холловской магнитометрии и при помощи измерения магнитооптического эффекта Керра (МОЭК) в полярной геометрии, показало наличие у них перпендикулярной магнитной анизотропии. Форма петли гистерезиса близка к прямоугольной с полями коэрцитивности в пределах 15-20 мТ для разных образцов (рис. 1a). В остаточном состоянии пленки остаются однородно намагниченными, в размагниченном состоянии демонстрируют лабиринтную доменную структуру (рис. 1b). Соответствующие изображения были получены методами магнитно-силовой микроскопии (МСМ), высота сканирования зонда составляла 15 нм.



Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Петля гистерезиса исходной сверхрешетки Co/Pt. Крестики – полярный магнитооптический эффект Керра, сплошная линия – петля намагничивания, полученная численным моделированием. (b) – МСМ-изображение (2×2 мкм) лабиринтной доменной структуры исходной плоской многослойной структуры Co/Pt в размагниченном состоянии

Пленки Co/Pt послужили основой для изготовления наноструктур в виде двумерной периодической решетки цилиндрических выступов. Технология изготовления образцов следующая. Первоначально на поверхность Co/Pt пленки наносился позитивный резист ПMMA495 толщиной 150 нм. После этого в ме-

Письма в ЖЭТФ том 107 вып. 5–6 2018

стах будущих выступов было проведено экспонирование резиста в электронном микроскопе SUPRA-50VP с литографической приставкой RAITH (E = $= 10 \,\mathrm{k}\Im$ в, доза экспонирования $110 \,\mathrm{mK}_{\mathrm{J}}/\mathrm{cm}^{2}$). Затем резист проявлялся в растворе метоизобутанкетона (MIBK) в изопропиловом спирте в соотношении 1:3, и на поверхность проявленного резиста осаждалась пленка ванадия толщиной 10 нм (методом магнетронного напыления), после чего проводился процесс взрывной литографии в ультразвуковой ванне в ацетоне. Таким образом, на поверхности многослойной пленки Co/Pt формировалась маска в виде периодической прямоугольной решетки (период 300 нм) нанодисков ванадия диаметром 150 нм (рис. 2). Прецизионное травление не закрытых ванадием промежутков проводилось в установке вторичной ионной массспектрометрии (ВИМС) с непосредственным анализом в процессе травления, при этом стравливались три из пяти слоев Со.



Рис. 2. (а) – Изображение участка ванадиевой маски в электронном микроскопе. Размер скана 1.2 × 1.2 мкм. (b) – Схематичное изображение поперечного разреза многослойной пленки Co/Pt после наноструктурирования

Образец в целом представляет из себя холловский мостик, изготовленный методами фотолитографии. Перекрестие моста имеет размеры 150×150 мкм и представляет собой наноструктурированную пленку CoPt. Токовые и холловские контакты выполнены из платины толщиной 20 нм и имеют ширину 150 и 5 мкм соответственно. Достаточно большой размер образцов позволил измерить петлю намагничивания системы с использованием магнитооптических методов (измерение полярного эффекта Керра). При этом магнитооптические и холловские измерения проводились одновременно в одном проходе по магнитному полю. Характерный вид гистерезисных кривых представлен на рис. 3.

Наноструктурирование привело к тому, что коэрцитивность пленки выросла с 20 мТ до 30 мТ. Анализ магнитных конфигураций, возникающих в ходе перемагничивания осуществлялся методами МСМ, при этом измерения проводились в нулевом внешнем



Рис. 3. (Цветной онлайн) Петля гистерезиса эффекта Холла (сплошная линия) и магнитооптического эффекта Керра (звездочки) при намагничивании наноструктурированной многослойной пленки Co/Pt в поперечном магнитном поле. Изображения соответствующих магнитных конфигураций структуры полученные методом MCM обозначены как I-IV. Размер сканов МСМ 2μ м × 2μ м. I – система в однородном состоянии с намагниченностью перпендкулярно пленке, II-IV состояния последовательно реализующиеся в ходе перемагничивания структуры. (а) – Однородно намагниченная область пленки с намагниченностью против поля. (b) – Область, где пленка между выступами перемагнитилась, а сами выступы сохранили первоначальное направление намагниченности. (с) – Область, где и пленка, и выступ перемагнитились, и соответственно намагниченность однородна и ориентирована в направлении перемагничивающего поля

поле после намагничивания системы до промежуточных значений внешнего поля, меньших, чем поле насыщения. Соответствующие конфигурации показаны на рис. 3. В остаточном состоянии (I) виден слабый МСМ-контраст. Его наличие связано с тем, что даже в однородно намагниченной системе неров-

ность поверхности приводит к появлению неоднородных полей рассеяния, которые фиксируются МСМ. При приложении внешнего поля первоначально наблюдается перемагничивание пленки между выступами, при этом МСМ-изображение становится более контрастным. Одновременно наблюдается перемагничивание небольшой части выступов. Причиной этого является видимо то, что флуктуации коэрцитивности в исходной пленке, достаточно велики. При этом в системе одновременно наблюдаются три возможных конфигурации: однородно исходно намагниченные области (А, на рис. 3), однородно перемагниченные области (С), и области, где перемагниченная пленка окружает выступ, намагниченный в противоположном исходном направлении (В). Областей, где перемагниченный выступ окружен пленкой в исходном состоянии не наблюдается. Радиальная симметрия МСМ-контраста конфигурации (В), когда выступ и окружающая пленка намагничены противоположно, указывает на формирование мягкого цилиндрического магнитного домена, который топологически идентичен магнитному скирмиону [14]. Соответственно, в процессе перемагничивания образца наблюдается формирование участков плотной скирмионной решетки, что было предсказано ранее в работе [20].

По мере увеличения внешнего магнитного поля (рис. 3, III) площадь, занимаемая состоянием (А), падает, в то время как площадь, занимаемая решеткой скирмионов (В), растет. Одновременно увеличивается и число перемагниченных выступов (С). Наконец, в некотором магнитном поле (рис. 3, IV) неперемагниченные участки (А) исчезают, и в системе реализуется неплотная решетка скирмионов, соответствующая существованию как перемагниченных, так и неперемагниченных выступов на фоне перемагниченной пленки. При дальнейшем увеличении поля все выступы перемагничиваются и образец опять переходит в однородно намагниченное состояние.

Микромагнитное моделирование системы было проведено с использованием открытого программного кода OOMMF [23]. Этот код основан на численном решении системы уравнений Ландау–Лифшица– Гильберта для намагниченности системы. Геометрия моделируемой системы следующая: квадратный участок магнитной пленки размером 900 × 900 нм содержит 9 элементарных ячеек квадратной решетки выступов. При моделировании используются периодические граничные условия в плоскости, для того чтобы симулировать периодическую решетку большого размера. Период решетки 300 нм, диаметр выступов 150 нм. Толщина пленки между выступами 3 нм, в области выступа – 7.5 нм. Таким образом геометрические параметры модели соответствуют экспериментальным образцам. Шаг численной сетки составлял $2.5 \times 2.5 \times 1.5$ нм, что меньше характерной толшины доменной стенки. Намагниченность насыщения и константа обмена выбраны равными $M_s = 2 \cdot 10^5 \, \text{A/m},$ $A = 2.5 \cdot 10^{-13} \, \text{Дж/м}$, что соответствует сделанным ранее экспериментальным оценкам этих величин в пленках Co/Pt [23], и считаются однородными по толщине. При этом величина константы анизотропии в моделировании была неоднородна по толщине и составляла $K_1 = 3.22 \cdot 10^4 \, \text{Дж}/\text{м}^3$ для нижнего слоя толщиной 1.5 нм и $K_2 = 2.58 \cdot 10^4 \, \text{Дж}/\text{м}^3$ для остальных слоев 6 нм толщины. Кроме того, в систему была добавлена малая анизотропия $K_r = 0.02 \cdot K_1$ со случайным направлением осей. Практически не меняя энергии системы, эта добавка достаточна, чтобы инициализировать начальную неустойчивость плоской пленки в поле, противоположном намагниченности, кроме того, она соответствует поликристаллической структуре экспериментальных образцов, полученных методом магнетронного напыления. Рассчитанные кривые перемагничивания системы приведены на рис. 1а и рис. 4а соответственно для плоской пленки исходной толщиной 7.5 нм и для наноструктуры на ее основе.

При выбранных параметрах системы перемагничивание плоской пленки протекает следующим образом. Система остается в остаточном однородно намагниченном состоянии вплоть до $\mu_0 H = 16$ мT, затем возникает зародыш перемагниченой фазы, из которого развивается лабиринтная доменная структура. При увеличении внешнего магнитного поля лабиринтная структура плавно перестраивается, при этом средняя намагниченность системы возрастает. Этот процесс продолжается вплоть до $\mu_0 H = 29$ мT, когда лабиринтная доменная структура становится неустойчивой и происходит полное перемагничивание.

При перемагничивании наноструктурированной пленки в поле $\mu_0 H = 32$ мT в промежутке между выступами возникает зародыш перемагниченной фазы, который затем разрастается на всю пленку за исключением самих выступов, которые сохраняют свою намагниченность неизменной. В результате формируется квадратная решетка магнитных скирмионов, запиннингованных на выступах. Скирмионы остаются устойчивыми как при "выключении" внешнего поля, так и при его увеличении до 38 мT, что приводит к появлению ступеньки на кривой намагничивания (см. рис. 4). Дальнейшее увеличение внешнего поля



Рис. 4. (Цветной онлайн) Кривая намагничивания наноструктурированной многослойной пленки Co/Pt в поперечном магнитном поле измеренная экспериментально (крестики) и рассчитанная методами микромагнитного моделирования (сплошная линия). (а) – Распределения намагниченности в скирмионе запиннингованном на выступе в пленке, показан магнитный момент $1/(18 \times 18)$ части от числа ячеек численной сетки. (b) и (c) – Рассчитанный на основе результатов микромагнитного моделирования сигнал МСМ от выступа магнитной пленки при наличии скирмионного распределения намагниченности (b) и в случае исходного однородного распределения намагниченности (c) (сравни с (b) и (c) на рис. 3)

нитных скирмионов, система переходит в полностью перемагниченное состояние в поле 41 мТл. Отличие экспериментальной кривой намагничивания от смоделированной, по-видимому, связано с разбросом материальных и геометрических параметров в экспериментальном образце, что приводит к размытию ступенек и резких краев гистерезисной петли.

Расчет конфигурации магнитного скирмиона (рис. 4b) был выполнен на одной элементарной ячейке системы размером 300×300 нм, что позволило уменьшить шаг численной сетки до 1 нм при сохранении времени счета. При этом на кривой перемагничивания исчезла тонкая структура мелких ступенек, связанная с магнитостатическим взаимодействием между скирмионами, но в целом форма кривой гистерезиса сохранилась.

Почему необходимо считать анизотропию неоднородной по толщине? При использовании в моделировании однородной константы анизотропии решетка выступов демонстрирует меньшую величину коэрцитивности по сравнению с плоской пленкой исходной толщины, что противоречит экспериментальным данным (в эксперименте наблюдается увеличение коэрцитивности после наноструктурирования). Уменьшение коэрцитивности наноструктурированной пленки, имеющей однородную анизотропию, связано с ее геометрической неоднородностью, которая обуславливает наличие неоднородных полей рассеяния. Это повышает неустойчивость наноструктурированной системы при перемагничивании. Напротив, в том случае, если нижний слой многослойной структуры обладает большей анизотропией, возможно возрастание коэрцитивности при наноструктурировании, так как стравливание верхних слоев пленки приводит к увеличению средней анизотропии системы. При этом, хотя средняя перпендикулярная анизотропия стравленных участков пленки $(2.9 \cdot 10^4 \, \text{Дж/м}^3)$ становится больше, чем анизотропия в области выступов $(2.7 \cdot 10^4 \, \text{Дж/м}^3)$, неоднородный характер распределения намагниченности в системе [20] приводит к тому, что сначала перемагничивается пленка между выступами и лишь затем сами выступы. Такое поведение системы наблюдается как в эксперименте, так и при моделировании.

Неоднородность анизотропии по толщине в экспериментальных образцах может быть связана с тем, что нижний слой Со лежит на толстой пленке Pt, в то время как последующие слои Со лежат на тонких прослойках Pt.

На рис. 4а представлено смоделированное распределение намагниченности в магнитном скирмионе, застабилизированном на выступе. Полученные распределения были использованы для расчета величины $\partial^2 H_z/\partial z^2$, которая обуславливает сигнал измеряемый в процессе сканирования образца магнитно-силовым микроскопом [24]. Приведенные на рис. 4 распределения $\partial^2 H_z/\partial z^2$ рассчитаны для высоты, равной высоте сканирования МСМ и соответствуют изображениям, получаемым в ходе МСМ-сканирования. Видно, что скирмионное распределение намагниченности дает контраст аналогичный контрасту изображения на рис. 3b полученному экспериментально.

Исследования были поддержаны грантами РФФИ #18-02-00247 и #18-02-00827. При выполнении работы использовалось оборудование ЦКП "Физика и технология микро- и наноструктур".

- А.С. Ковалев, А.М. Косевич, К.В. Маслов, Письма в ЖЭТФ **30**, 321 (1979).
- S. Muhlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Boni, Science 323, 915 (2009).
- X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura, Nature (London) 465, 901 (2010).
- S. Heinze, K. von Bergmann, M. Menze, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer, and S. Blugel, Nat. Phys. 7, 713 (2011).
- U. K. Rössler, A. N. Bogdanov, and C. Pfleiderer, Nature 442, 797 (2006).
- Y. Onose, N. Takeshita, C. Terakura, H. Takagi, and Y. Tokura, Phys. Rev. B 72, 224431 (2005).
- A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz, A. Rosch, R. Ritz, P.G. Niklowitz, and P. Boni, Phys. Rev. Lett. 102, 186602 (2009).
- M. Lee, W. Kang, Y. Onose, Y. Tokura, and N. P. Ong, Phys. Rev. Lett. **102**, 186601 (2009).
- T. Schulz, R. Ritz, A. Bauer, M. Halder, M. Wagner, C. Franz, C. Pfleiderer, K. Everschor, M. Garst, and A. Rosch, Nature Phys. 8, 301 (2012).
- X. Z. Yu, N. Kanazawa, W. Z. Zhang, T. Nagai, T. Hara, K. Kimoto, Y. Matsui, Y. Onose, and Y. Tokura, Nat. Commun. 3, 988 (2012).
- J. Zang, M. Mostovoy, J. H. Han, and N. Nagaosa, Phys. Rev. Lett. **107**, 136804 (2011).
- 13. D.N. Aristov, S.S. Kravchenko, and A.O. Sorokin, Pis'ma v ZhETF **102**, 511 (2015).
- N. Nagaosa and Y. Tokura, Nat. Nanotech. 8, 899 (2013).
- A. Bogdanov and A. Hubert, J. Magn. Magn. Mater. 138, 255 (1994).
- A. Bogdanov and A. Hubert, J. Magn. Magn. Mater. 195, 182 (1999).
- M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries, Rep. Prog. Phys. 59, 1409 (1996).
- L. Sun, R. X. Cao, B. F. Miao, Z. Feng, B. You, D. Wu, W. Zhang, An. Hu, and H. F. Ding, Phys. Rev. Lett. 110, 167201 (2013).
- A. A. Fraerman, O. L. Ermolaeva, E. V. Skorohodov, N. S. Gusev, V. L. Mironov, S. N. Vdovichev, and E. S. Demidov, J. Magn. Magn. Mater. **393**, 452 (2015).
- M. V. Sapozhnikov and O. L. Ermolaeva, Phys. Rev. B 91, 024418 (2015).
- M. V. Sapozhnikov, J. Magn. Magn. Mater. **396**, 338 (2015).
- M. V. Sapozhnikov, S. N. Vdovichev, O. L. Ermolaeva, N. S. Gusev, A. A. Fraerman, S. A. Gusev, and Yu. V. Petrov, Appl. Phys. Lett. **109**, 042406 (2016).
- M. J. Donahue and D. G. Porter, OOMMF User's Guide Version 1.0, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (1999).
- 24. J. Lohau, S. Kirsch, A. Carl, G. Dumpich, and E. F. Wassermann, J. Appl. Phys. 86, 3410 (1999).

И. Е. Дзялошинский, Б. А. Иванов, Письма в ЖЭТФ 29, 592 (1979).