

# ПЕРЕМАГНИЧИВАНИЕ ФЕРРОМАГНИТНЫХ ПЛЕНОК CoFeB И ГЕТЕРОСТРУКТУР CoFeB/Ta/CoFeB ПОД ДЕЙСТВИЕМ ПОЛЯ РАССЕЙЯНИЯ НАНОЧАСТИЦ Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

О. В. Коплак<sup>а</sup>, Е. И. Куницына<sup>а</sup>, Р. С. Аллаяров<sup>а</sup>,  
С. Манжен<sup>б\*</sup>, Н. В. Грановский<sup>с</sup>, Р. Б. Моргунов<sup>а,с\*\*</sup>

<sup>а</sup> Институт проблем химической физики Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

<sup>б</sup> Institut Jean Lamour, UMR 7198 CNRS, Université de Lorraine  
54601, France

<sup>с</sup> Первый Московский государственный медицинский университет им. И. М. Сеченова  
119991, Москва, Россия

Поступила в редакцию 6 апреля 2020 г.,  
после переработки 30 апреля 2020 г.  
Принята к публикации 1 мая 2020 г.

Экспериментально обнаружено перемагничивание гетероструктур MgO/CoFeB/Ta/CoFeB/MgO/Ta/GaAs и ультратонких пленок MgO/CoFeB/MgO/Ta/GaAs с перпендикулярной анизотропией под действием магнитного поля кластеров наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Магнитное поле рассеяния наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> увеличивает поле переключения намагниченности спиновых вентилей и монослойных платформ. Методами атомно-силовой и магнитно-силовой микроскопии получены зависимости размера области перемагничивания ферромагнитной платформы под наночастицами Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> от размера кластеров. Обнаружено превышение размеров области перемагничивания над размером кластера частиц, вызванное действием рассеивающего поля кластера наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. С помощью микромагнитного моделирования определены ориентации локальных намагниченностей в слоях CoFeB под кластерами наночастиц и диаметр перемагниченной области в зависимости от магнитного момента и размера кластера.

DOI: 10.31857/S0044451020100120

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время появилось большое число работ в области технологии магнитного маркирования и разделения биологических объектов на основе датчиков гигантского магнитосопротивления (GMR). Технология заключается в маркировке клеток или биомолекул магнитными частицами микро- и нанометрового размеров и в детектировании магнитных полей частиц датчиками GMR после их захвата биомолекулой [1–5]. Биосенсоры на основе датчиков GMR являются перспективными для чувствительной биомолекулярной идентификации. Они совместимы со стандартной технологией крем-

ниевых интегральных систем и подходят для интеграции в систему «лаборатория на кристалле». У GMR-технологий есть ряд преимуществ по сравнению с магнитным биодетектированием на основе сверхпроводящего квантового интерферометра (СКВИД) [6, 7]. Биосенсоры на основе GMR могут быть интегрированы в индивидуально адресную матрицу очень высокой плотности, подобную устройствам магнитной памяти с произвольным доступом (MRAM). Такая матрица сенсоров необходима для обнаружения и разделения нескольких типов магнитно-меченных биологических объектов [8, 9].

Имеется ряд нерешенных вопросов, связанных с локальным перемагничиванием платформ GMR под влиянием размагничивающего поля одиночной наночастицы. Отсутствуют экспериментальные работы по прямым измерениям перемагниченных областей поверхности пленки, однако детально разра-

\* S. Mangin

\*\* E-mail: morgunov2005@yandex.ru

ботаны теоретические подходы и методы моделирования областей неколлинеарной намагниченности нано- и микромасштабов [10, 11]. В нашей статье представлены как экспериментальные результаты измерения перемагненных областей тонкопленочных структур MgO/CoFeB/MgO/Ta/GaAs и MgO/CoFeB/Ta/CoFeB/MgO/Ta/GaAs с перпендикулярной магнитной анизотропией, так и их моделирование. Ранее нами было показано, что псевдоспиновые вентили MgO/CoFeB/Ta/CoFeB/MgO/Ta/GaAs обладают достаточно высоким магнитосопротивлением на уровне 50 % [12] и поэтому пригодны для использования в качестве GMR-платформ. В работе [13] было продемонстрировано изменение полей переключения этих платформ под действием кластеров наночастиц  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

В этой работе в качестве наночастиц мы использовали наночастицы Fe в оболочке Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> с обменным смещением петель гистерезиса. Такие частицы обладают температурной стабильностью намагниченности и фиксированной начальной намагниченностью [14, 15]. Наночастицы системы ядро/оболочка перспективны для применения в биологии из-за низкой химической активности оксидной оболочки и, следовательно, высокой биологической совместимости [16, 17].

Целями данной работы являются анализ локального перемагничивания тонкопленочных структур MgO/CoFeB/MgO/Ta/GaAs и MgO/CoFeB/Ta/CoFeB/MgO/Ta/GaAs с перпендикулярной магнитной анизотропией под действием дипольного магнитного поля рассеяния наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> и их кластеров, нанесенных на поверхность структур, а также моделирование областей перемагничивания одиночной пленки и двуслойной платформы.

## 2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА

В этом исследовании использовались образцы двух типов, проявляющих перпендикулярную магнитную анизотропию: однослойная гетероструктура MgO(2.5 нм)/CoFeB(0.8 нм)/MgO(2.5 нм)/Ta(5 нм) (платформа I) и двуслойная гетероструктура MgO(2.5 нм)/CoFeB(0.8 нм)/Ta(0.75 нм)/CoFeB(1.1 нм)/MgO(2.5 нм)/Ta(5 нм) (платформа II). Обе системы были выращены на подложке GaAs методом магнетронного распыления. Детали роста и данные о структурных и магнитных свойствах можно найти в работах [18, 19]. Образцы представляли собой пластины с размерами  $3 \times 4.5 \times 0.1$  мм<sup>3</sup>.

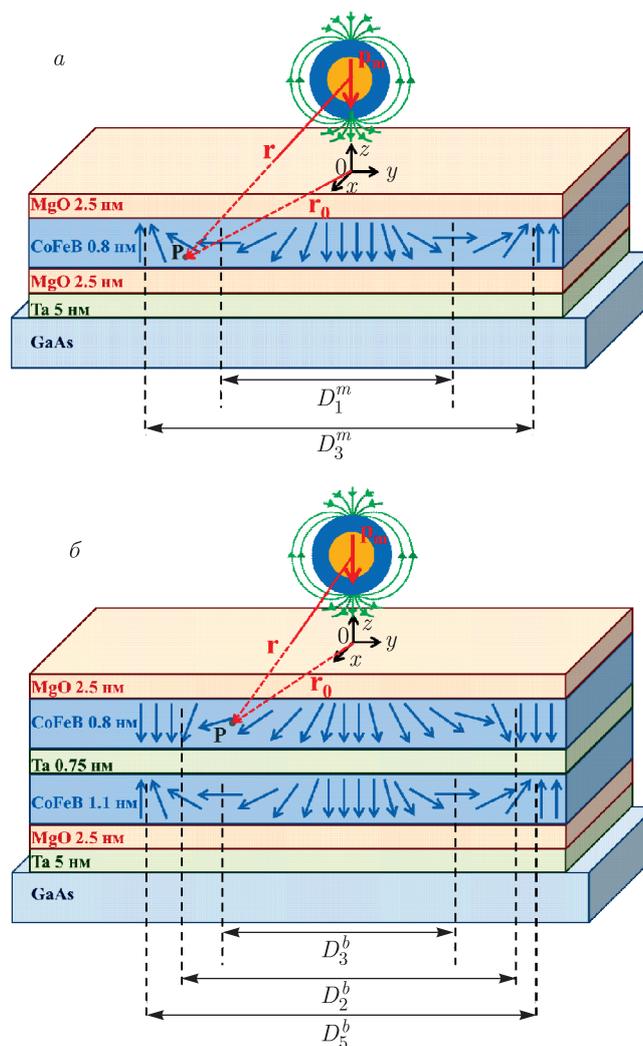


Рис. 1. Схемы платформы I CoFeB (а) и платформы II CoFeB/Ta/CoFeB (б) и одиночная наночастица Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Синими стрелками указаны направления намагниченности в ферромагнитных слоях CoFeB, находящихся под действием рассеивающего магнитного поля наночастицы

Наночастицы Fe, покрытые оксидной оболочкой Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, были получены путем разложения предварительно приготовленного комплекса олеата железа при высокой температуре в сквалене. Согласно литературным данным [20], наночастицы Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> являются суперпарамагнитными при комнатной температуре с намагниченностью насыщения  $M_S = 101$  А·м/кг при  $T = 5$  К,  $M_S = 95$  А·м/кг при  $T = 300$  К и константой магнитной анизотропии  $K_{eff} = 1.6 \cdot 10^5$  Дж/м<sup>3</sup> при  $T = 5$  К. Типичная толщина оксидной оболочки составляет около 3 нм. При  $T = 5$  К коэрцитивная сила наночастиц равна  $H_C = 440$  Э.

Частицы растворялись в циклогексане и разделялись в ультразвуковой ванне. На поверхность платформы помещалась жидкость (около 0.1 мл), содержащая кластеры наночастиц. В качестве платформ использовались поверхности кремниевой пластины (в качестве контрольного образца), а также ферромагнитные платформы I или II (рис. 1). После высыхания поверхности обеспечивалась относительно надежная адгезия частицы к поверхности образца, которая позволяла крепить образец в СКВИД-магнитометр без потери частиц. Полевые и температурные зависимости магнитного момента образцов были получены на магнитометре SQUID MPMS 5XL Quantum Design при температурах 2–300 К. Внешнее магнитное поле в магнитометре было направлено перпендикулярно плоскости пленки вдоль оси  $z$  (рис. 1).

Морфология поверхности и распределение градиента магнитных сил на поверхности образцов исследовались методами соответственно атомно-силовой (АСМ) и магнитно-силовой микроскопии (МСМ). Изображения магнитного рельефа в исследуемых образцах были получены на атомно-силовом микроскопе Aura Integra (NT MDT) в отсутствие магнитного поля. Использовался стандартный кремниевый кантилевер серии MFM\_LM, покрытый тонкой пленкой CoCr с коэрцитивной силой около 400 Э. Режим сканирования во всех экспериментах был полуконтактный («tapping-lift»). Силовая константа и резонансная частота кантилевера были равны соответственно 5 Н/м и 63 кГц. На первом проходе кантилевер работал в полуконтактном режиме при постоянной амплитуде и определял физические размеры частицы с точностью до радиуса Ван дер Ваальса, т.е. расстояние между кантилевером и зондом было близко к амплитуде колебаний кантилевера. На втором проходе зонд был отведен от поверхности платформы на расстояние  $h = 50$  нм и измерял значение сдвига фазы при постоянной амплитуде, прямо пропорциональное градиенту магнитной дипольной силы между частицей и зондом. Для получения профиля частицы в режимах АСМ и МСМ в одних и тех же единицах (чтобы впоследствии можно было сравнивать размеры соответствующих профилей) было проведено калибровочное измерение, в котором размер частицы в режиме АСМ (в нм) был привязан к фазовому контрасту в этом же режиме (в градусах). В результате был получен переходный коэффициент, который был выбран так, чтобы в отсутствие магнитной подложки АСМ- и МСМ-размеры фазовых контрастов, выраженные в

градусах, совпадали. Такой подход применим, если рабочий участок амплитудно-частотной и фазово-частотной характеристики системы зонд–образец не меняет наклона в экспериментах. Это условие было специально проверено в отдельной серии опытов.

Размер магнитного изображения оказывается понятием условным, зависящим от расстояния между кантилевером и частицей [21, 22]. Чем ближе кантилевер к частице, тем больше область, в которой чувствительности прибора хватает для обнаружения градиента силы, и тем больше МСМ-изображение частицы. Поэтому в наших экспериментах величина этого расстояния 50 нм была подобрана так, чтобы размер частицы МСМ на кремниевой подложке совпадал с ее размером АСМ (см. методику в [23]). Это было удобно, потому что любые изменения в намагниченности системы пленка–частица будут при такой настройке восприниматься как отклонение от нулевого уровня, задаваемого частицей, не взаимодействующей с подложкой.

В работах [21, 22] показано, что контраст магнитно-силового изображения для низкокоэрцитивных ферромагнитных и суперпарамагнитных наночастиц может зависеть от перемагничивания частицы полем кантилевера (зонда). Это существенно усложняет анализ и интерпретацию измерения МСМ. Чтобы минимизировать этот эффект, мы подбирали зонд с низким магнитным моментом накопника. Разумеется, это не позволяло полностью исключить влияния перемагничивания частицы на ее размеры при измерениях МСМ, однако мы полагали, что этот эффект был одинаковым в опытах с кремниевой и магнитной платформами. Постоянство параметров настройки силового микроскопа в контрольных опытах на кремнии и опытах на магнитных платформах давало возможность расценивать отклонения МСМ-профиля от контрольного значения как свидетельство перемагничивания области пленки вокруг частицы.

Измерения МСМ проводились в нулевом магнитном поле. Дополнительное магнитное поле  $H^*$ , которое могло бы стабилизировать магнитный момент частицы [21], при измерениях МСМ не применялось, поскольку размер частиц, используемых в измерениях, превышал 100 нм. При таких размерах потенциальный барьер перемагничивания для этой группы частиц был выше энергии дипольного взаимодействия частицы с зондом, и вклад перемагничивания в профиль МСМ ожидался небольшим и всегда одинаковым.

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Гистерезисы магнитного момента наночастиц, нанесенных на кремниевую платформу, были записаны при температурах 300 К, 100 К и 2 К (рис. 2). При температуре 2 К мы наблюдаем смещение петли гистерезиса  $H_b$ . Сдвиг гистерезиса связан с наличием обменного взаимодействия на границе раздела ферро/ферритмагнетик (ядро/оболочка) [24]. Направление обменного смещения для такой системы является отрицательным, потому что при охлаждении системы от температуры, большей температуры Нееля оксида железа, ориентация спинов в ферромагнетике Fe вблизи интерфейса фиксируется обменным взаимодействием с ферритмагнетиком  $Fe_3O_4$  в направлении, противоположном намагниченности ферромагнетика.

Полевая зависимость магнитного момента исходных наночастиц представляет собой классический вариант суперпарамагнитного массива магнитных моментов, который описывается в литературе с помощью функции Ланжевена. В изотропном трехмерном случае предполагается, что все направления одинаково вероятны (вставка на рис. 2) [25]:

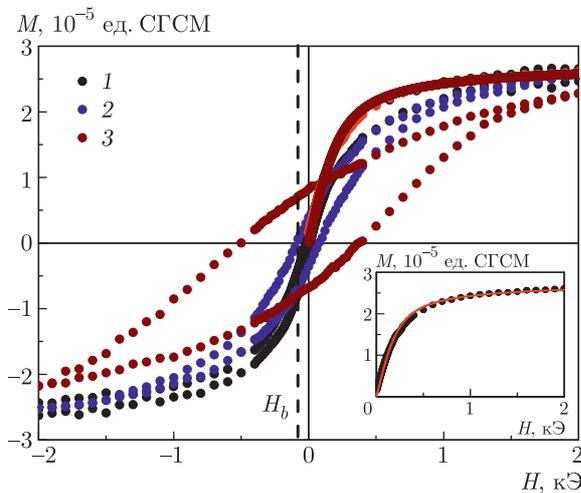
$$M(H) = M_S^{SPM} [\text{cth}(x) + (x)^{-1}] + C^{PM} H, \quad (1)$$

где  $x = (\mu_0 m H) / (k_B T)$ ,  $\mu_0$  — магнитная проницаемость вакуума,  $M_S^{SPM}$  — средняя проекция намагни-

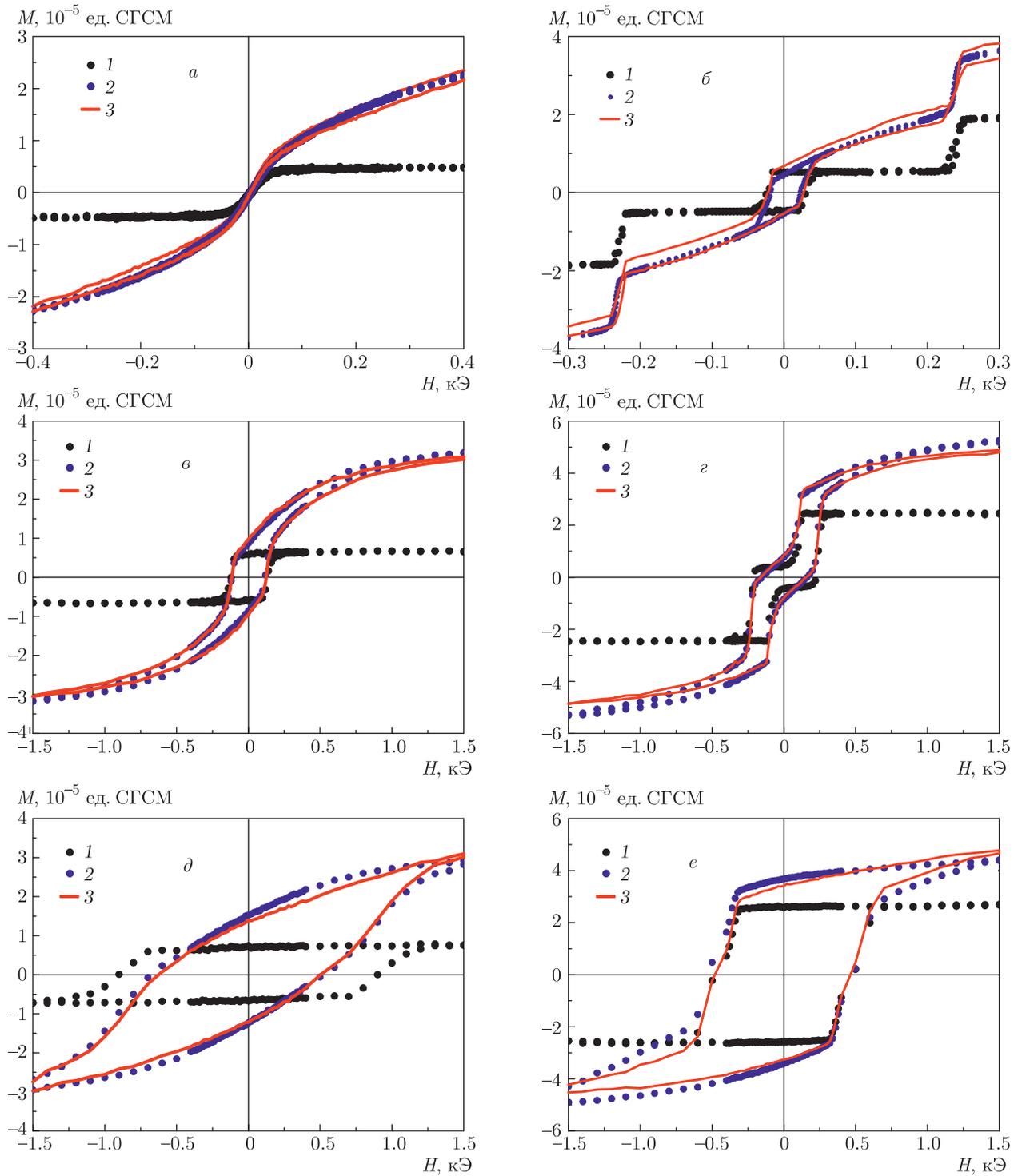
ченности на направление внешнего поля,  $m$  — средний магнитный момент одной наночастицы,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура,  $C^{PM}$  — парамагнитная восприимчивость подложки Si с примесями. Из аппроксимации полевой зависимости  $M(H)$  уравнением (1) был определен средний магнитный момент одной частицы  $m = 2.87 \cdot 10^{-16}$  А · м<sup>2</sup> (см. сплошную линию на вставке на рис. 2).

Полевые зависимости магнитных моментов  $M(H)$  платформы CoFeB и платформы CoFeB/Ta/CoFeB (черные символы на рис. 3) были записаны в СКВИД-магнитометре при трех температурах, 300 К, 100 К и 2 К, сначала до осаждения частиц. Затем в тех же условиях были измерены полевые зависимости платформы I и платформы II с наночастицами (синие символы на рис. 3). На рис. 3 видны четыре горизонтальных уровня магнитного момента в структуре CoFeB/Ta/CoFeB, которые отвечают четырем магнитным состояниям с разным взаимным направлением магнитных моментов слоев CoFeB. Переключение между этими состояниями определяется соотношением между энергиями межслойного обменного взаимодействия, анизотропии и энергией Зеемана каждого слоя. Эти энергии были ранее определены из температурных зависимостей параметров магнитного гистерезиса в тех же образцах [18, 26]. В отличие от монослоя CoFeB, обладающего двумя стабильными магнитными состояниями, в псевдоспиновом вентиле имеются два стабильных «параллельных» состояния ( $P^+$ ,  $P^-$ ) и два «антипараллельных» ( $AP^+$  и  $AP^-$ ) состояния. Они соответствуют четырем горизонтальным фрагментам зависимостей  $M(H)$ . Состояние  $P^+$  соответствует параллельным намагничиваниям толстого и тонкого слоев вдоль внешнего магнитного поля ( $\uparrow\uparrow$ ), состояние  $P^-$  соответствует обоим слоям, намагниченным против поля ( $\downarrow\downarrow$ ), а два состояния  $AP^+$  и  $AP^-$  соответствуют взаимно противоположным направлениям магнитных моментов слоев ( $\uparrow\downarrow$ ) и ( $\downarrow\uparrow$ ).

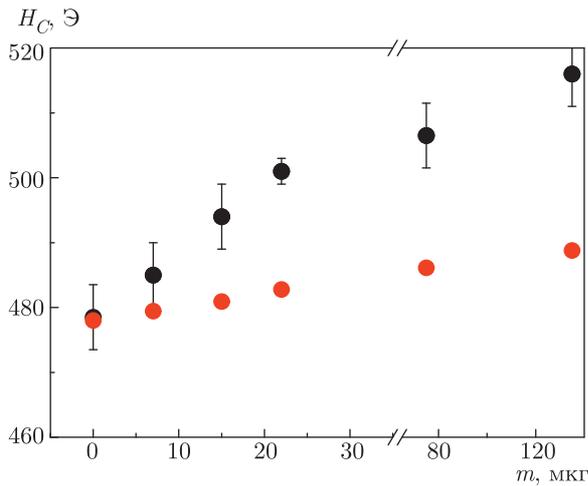
При аддитивном вкладе в полевую зависимость  $M(H)$  от невзаимодействующих частиц и платформ CoFeB и CoFeB/Ta/CoFeB получаются зависимости, показанные на рис. 3 сплошными красными линиями. При температурах 300 К наблюдалось различие экспериментально измеренной и аддитивно подобранной зависимостей. Гистерезисы показывают, что магнитные моменты в четырех стабильных состояниях ( $P^+$ ,  $AP^+$ ,  $AP^-$ ,  $P^-$ ) нисходящей и восходящей ветвей гистерезиса совпадают, в отличие от случая аддитивного вклада частиц и платформ в магнитный момент (рис. 3б). Отклонение экспе-



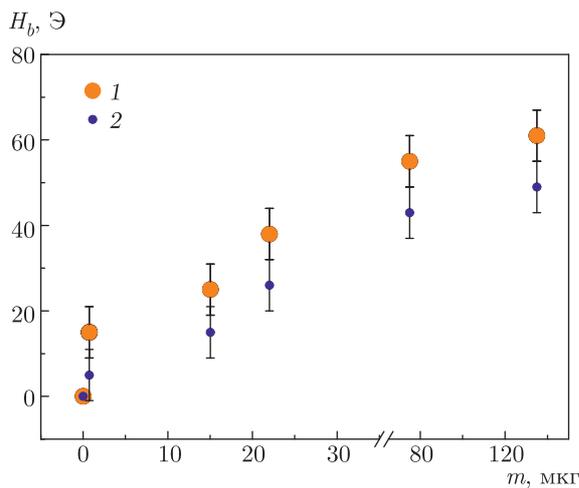
**Рис. 2.** (В цвете онлайн) Гистерезисы магнитного момента наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> при температурах 300 К (1), 100 К (2) и 2 К (3). На вставке показана полевая зависимость намагниченности наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> при температуре 300 К и ее аппроксимация функцией Ланжевена (сплошная красная линия). Вертикальной штриховой линией показан центр петли гистерезиса при  $T = 2$  К



**Рис. 3.** (В цвете онлайн) Гистерезисы магнитного момента образцов CoFeB (*a, в, д*) и CoFeB/Ta/CoFeB (*б, г, е*) с нанесенными на поверхность наночастицами Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, при температурах 300 К (*a, б*), 100 К (*в, г*) и 2 К (*д, е*). Черными символами показаны гистерезисы для платформ без наночастиц на поверхности. Сплошными линиями показаны суммы гистерезисов, измеренных по-отдельности для наночастиц на кремнии и для платформ



**Рис. 4.** (В цвете онлайн) Зависимость поля переключения между состояниями платформы  $H_C$  от массы наночастиц, помещенных на поверхность платформы II (CoFeB/Ta/CoFeB), при  $T = 2$  К (черные символы). Красные символы — расчетное значение поля переключения  $H_C$  при аддитивном вкладе наночастиц



**Рис. 5.** Зависимость поля смещения  $H_b$  от массы наночастиц, помещенных на поверхность образца CoFeB/Ta/CoFeB, при  $T = 2$  К (1) и расчетное значение поля смещения  $H_b$  при аддитивном вкладе наночастиц (2)

риментальных данных от аддитивной зависимости наблюдается и при температуре 2 К (рис. 3д и 3е).

Для исследования изменений петли гистерезиса структуры CoFeB/Ta/CoFeB под действием наночастиц гистерезисы были записаны при разной массе наночастиц на поверхности платформы. С увеличением массы наночастиц на поверхности платформы II наблюдалось увеличение поля переключения  $H_C$  между состояниями AP<sup>+</sup> и P<sup>-</sup> (рис. 4) и поля смеще-

ния  $H_b$  (рис. 5) при температуре 2 К. Значения поля переключения, полученные из сложения вкладов от наночастиц и ферромагнитной подложки, лежат ниже экспериментальной зависимости для платформы с частицами. Вклады наночастиц на кремниевой подложке и ненагруженной наночастицами платформы были определены в отдельных измерениях. Следовательно, наблюдаемые температурные зависимости коэрцитивной силы частиц и обменного смещения невозможно объяснить аддитивным сложением магнитных моментов этих систем. Это свидетельствует о влиянии магнитного дипольного взаимодействия частицы с платформой на величину поля переключения между состояниями AP<sup>+</sup> и P<sup>-</sup>. Поле переключения между состояниями спинового вентиля определяется межслойным обменным взаимодействием, магнитной анизотропией и энергией Зеемана двух слоев. Поскольку имеет место локальное перемагничивание пленки под кластером наночастиц, очевидно, в результате диполь-дипольного взаимодействия частицы и пленки изменяется энергия Зеемана.

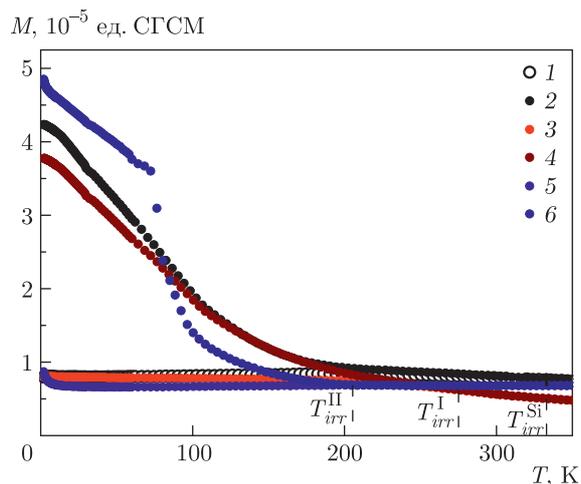
Мы наблюдали увеличение поля смещения  $H_b$  петли гистерезиса на экспериментальной зависимости и уменьшение намагниченности насыщения образцов при добавлении частиц на поверхность платформ. Подобные эффекты были описаны и обсуждены ранее [13] в опытах с частицами  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Поле смещения  $H_b$  (рис. 5) является характеристикой частиц и определяется долей спинов на границе раздела между оксидной оболочкой и ядром наночастицы [15, 27]. В системе частица-пленка можно было бы ожидать наведенного магнитно-дипольного смещения петли гистерезиса ферромагнитной пленки под действием наночастиц на ее поверхности. Однако сравнение поля смещения  $H_b$ , полученного из сложения вкладов от независимо измеренных наночастиц и ферромагнитной подложки, с экспериментальными данными для платформы с нанесенными на нее частицами, показало, что различия между зависимостями  $H_b(m)$  находятся в пределах погрешности (рис. 5). Следовательно, зависимость поля смещения от массы нанесенных частиц объясняется тривиальным эффектом усреднения аддитивных вкладов от петли гистерезиса платформы без смещения и петли гистерезиса самих частиц.

Еще одним методом изучения суперпарамагнитных наночастиц является исследование температуры блокировки  $T_B$ , ниже которой термоактивированное вращение моментов частиц «замораживается». Определение  $T_B$  проводится путем сравнения двух температурных зависимостей магнитного мо-

мента  $M(T)$ , записанных при нагревании образца в двух вариантах: 1) после предварительного охлаждения в приложенном магнитном поле 1 Тл (режим FC, Field Cooling) и 2) после предварительного охлаждения в нулевом внешнем магнитном поле (режим ZFC, Zero Field Cooling). Обе температурные зависимости обычно измеряются в небольшом магнитном поле по сравнению с полем охлаждения. Мы использовали измерительное поле 30 Э.

Система наночастиц с распределением по размерам может быть охарактеризована минимальной и максимальной температурами блокировки намагниченности (соответственно  $T_B$  и  $T_{irr}$ ). Принято называть температуру максимума ZFC-зависимости температурой блокировки  $T_B$ , а температуру, где кривые FC и ZFC сливаются, температурой необратимости  $T_{irr}$ . Физический смысл этих параметров хорошо известен. В условиях ZFC-измерения магнитный момент каждой частицы при низкой температуре ориентируется вдоль направления, которое минимизирует общую энергию магнитной анизотропии и зеемановской энергии частицы. При повышении температуры тепловые флуктуации позволяют магнитным моментам вращаться в направлении приложенного поля. Это приводит к увеличению суммарного магнитного момента до максимального значения при температуре  $T_B$ . По мере дальнейшего повышения температуры термические флуктуации начинают конкурировать с ориентирующим эффектом приложенного поля, что уменьшает суммарный магнитный момент. Эта конкуренция определяет температуру блокировки  $T_B$  (для частиц малых размеров). В условиях FC-измерения магнитные моменты «замораживаются» при низкой температуре, но они заранее ориентированы вдоль направления внешнего поля. Поэтому суммарная намагниченность лишь уменьшается в результате термических флуктуаций при нагреве. Кривые FC и ZFC сливаются выше температуры необратимости  $T_{irr}$ , когда все магнитные моменты частиц получают возможность вращаться под действием термических флуктуаций, больших чем потенциальный барьер, разделяющий разные ориентации намагниченности. Выше температуры  $T_{irr}$  все частицы в системе являются суперпарамагнитными. Таким образом,  $T_{irr}$  представляет собой температуру блокировки наиболее крупных частиц в системе.

На рис. 6 показано сравнение кривых FC и ZFC для частиц на платформе Si, платформе I и платформе II. Поскольку максимумы на зависимостях FC и ZFC были плавными и не позволяли аккуратно определить их положение и соответствующее зна-



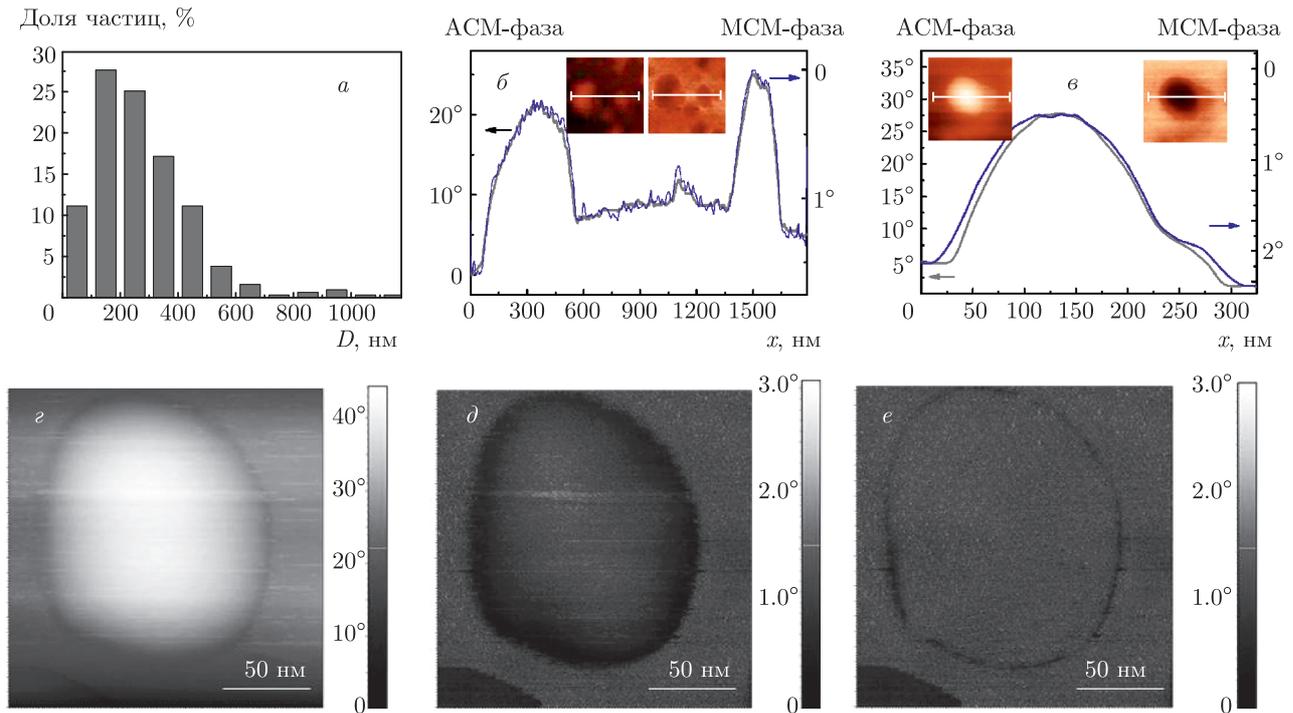
**Рис. 6.** Температурные зависимости магнитного момента наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> на Si (1 и 2), наночастиц на платформе CoFeB (3 и 4) и наночастиц на платформе CoFeB/Ta/CoFeB (5 и 6), предварительно охлажденных без магнитного поля (1, 3, 5) и охлажденных в магнитном поле  $H = 1000$  Э (2, 4, 6). Измерительное поле 30 Э. Штрихами показаны температуры необратимости наночастиц на Si и на ферромагнитных платформах I и II

чение  $T_B$ , далее будем обсуждать только величину  $T_{irr}$ . Видна значительная разница между кривыми ZFC и FC ниже  $T = 200$  К. Кривые ZFC показывают сходное поведение до и после помещения частиц на ферромагнитную платформу. Кривые FC отличаются друг от друга для всех трех случаев частиц на немагнитной кремниевой подложке и на магнитных платформах. Критическая температура  $T_{irr}$  для частиц на кремнии равна  $T_{irr}^{Si} = 340$  К, для частиц на платформе I —  $T_{irr}^I = 290$  К и для частиц на платформе II —  $T_{irr}^{II} = 210$  К.

Изменение температуры  $T_{irr}$  при смене «немагнитной» платформы Si на ферромагнитную платформу I или II связано с изменением суммарной энергии системы частица–платформа за счет добавления дипольного магнитного взаимодействия.

Для определения локальной намагниченности платформы их свойства исследовались с помощью атомно-силовой микроскопии. По этим данным была построена гистограмма распределения частиц по размерам (рис. 7a). Средний размер частиц составляет 140 нм и отвечает не отдельным частицам, а их кластерам.

Атомно-силовое и магнитно-силовое изображения наблюдались в одной и той же области поверхности. Изображения поверхности с наночастицами обрабатывались с помощью программного обеспече-



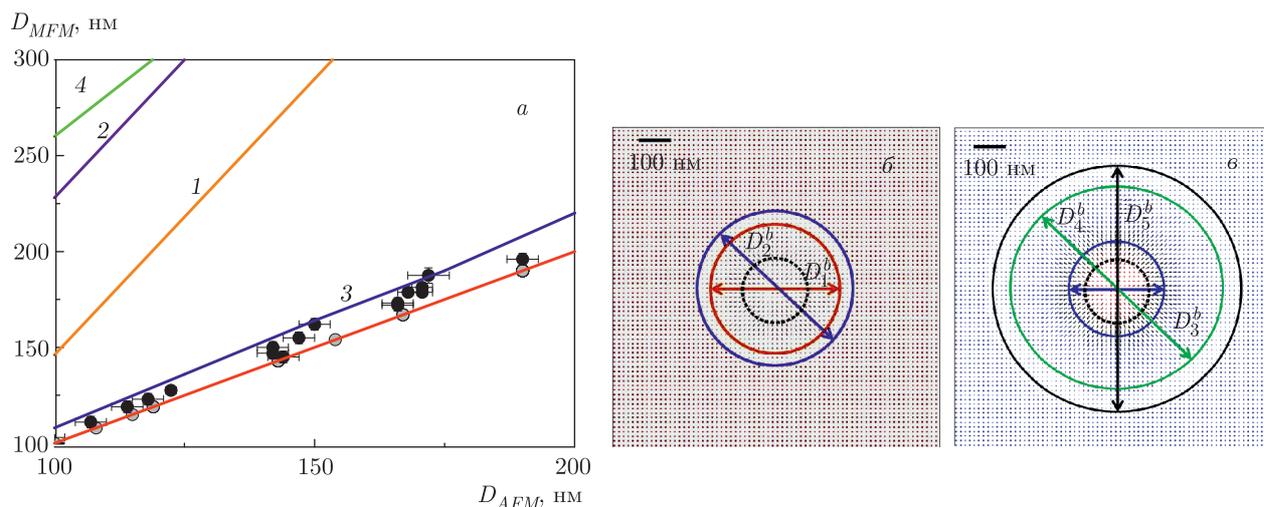
**Рис. 7.** (В цвете онлайн) Гистограмма распределения по размерам частиц  $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4$  (*a*). Профили фазовых контрастов, записанные в режимах АСМ и МСМ для частиц  $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ , нанесенных на поверхность Si (*б*) и  $\text{CoFeB}/\text{Ta}/\text{CoFeB}$  (*в*). На вставках показаны соответствующие изображения частиц  $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ , записанные в режиме МСМ. Изображения одной и той же частицы  $\text{Fe}/\text{Fe}_3\text{O}_4$  на одной и той же платформе  $\text{CoFeB}/\text{Ta}/\text{CoFeB}$ , записанные в режимах АСМ (*г*), МСМ (*д*) и их разницы (*е*)

ния Gwyddion. Секунные профили вдоль оси  $x$  были получены для отдельного кластера наночастиц в одной и той же точке изображений для АСМ- и МСМ-измерений (рис. 7*б* и 7*в*). При этом выбиралась отдельно лежащая частица, чтобы можно было точнее определить ее границы. Профили строились в одних осях, и границы частицы отмечались для двух типов измерений (соответственно  $D_{AFM}$  и  $D_{MFM}$ ). Для частиц на поверхности Si мы наблюдаем совпадение результатов АСМ- и МСМ-микроскопии на рис. 7*б*. При нанесении же наночастиц на поверхность синтетического антиферромагнетика  $\text{CoFeB}/\text{Ta}/\text{CoFeB}$  мы наблюдаем различие фазовых контрастов АСМ- и МСМ-изображений (рис. 7*в*). Изображения АСМ и МСМ были получены на одном и том же участке платформы  $\text{CoFeB}/\text{Ta}/\text{CoFeB}$ . Профиль для МСМ оказывается шире, чем для АСМ. Аналогичные данные были получены для ультратонкой пленки  $\text{CoFeB}$ . Это может быть связано с переманчиванием ферромагнетика под действием поля рассеяния кластера наночастицы.

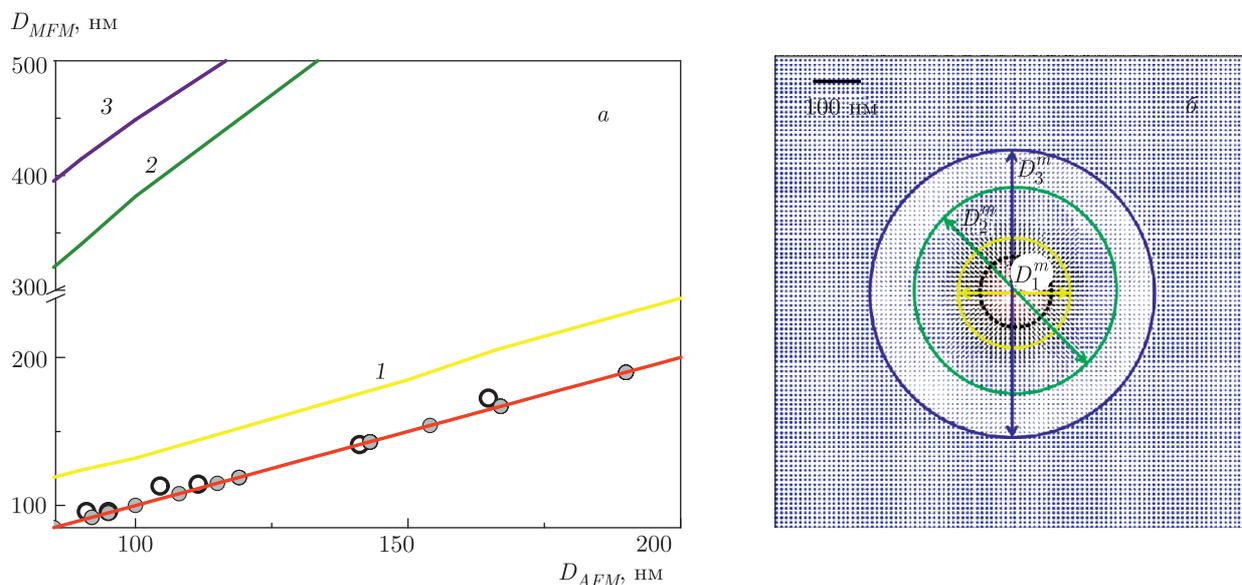
По результатам определения размеров частиц на основании АСМ- и МСМ-измерений строился график зависимости  $D_{AFM}$  от  $D_{MFM}$  (см. рис. 8*а* и 9*а*). Экспериментальные точки, отвечающие частицам на кремнии, ложатся на прямую  $x = y$  (красная линия). Эта линия играет роль линии отчета, отклонение от которой нужно интерпретировать как превышение размеров области переманчивания на пленке от размеров кластера частиц. Экспериментальные точки для кластеров наночастиц на платформе II (рис. 8*а*) и платформе I (рис. 9*а*) лежат выше этой оси ( $D_{MFM} > D_{AFM}$ ) и соответствуют переманченной области платформы под частицей и вне ее размеров.

#### 4. МОДЕЛИРОВАНИЕ

В этом разделе мы предлагаем модель для описания переманчивания платформ под действием кластеров наночастиц и вводим некоторые упрощения. Введем систему координат с началом в точке 0, соответствующей проекции центра частицы на плос-



**Рис. 8.** (В цвете онлайн) Экспериментальные зависимости диаметров МСМ от АСМ для частиц  $Fe/Fe_3O_4$  на кремниевой подложке (серые символы) и на платформе II (черные символы). Красная сплошная линия — теоретическая зависимость размера  $D_{AFM}$  от диаметра частицы  $D_{MFM}$  на кремниевой платформе. Линии 1, 2, 3, 4 соответствуют теоретическим зависимостям на магнитной платформе II для областей с диаметрами  $D_1^b, D_2^b, D_3^b, D_4^b$  (a). Распределение намагниченности верхнего (б) и нижнего (e) слоев платформы II, находящейся под действием магнитного поля рассеяния частицы диаметром 200 нм. Пунктирная линия соответствует проекции реального размера частицы на плоскость образца



**Рис. 9.** (В цвете онлайн) a) Зависимости диаметров МСМ от АСМ для наночастиц на кремниевой подложке (серые символы) и на платформе I (светлые символы). Красная линия — теоретическая зависимость размера  $D_{MFM}$  от диаметра частицы  $D_{AFM}$  на кремниевой подложке. Линии 1, 2 и 3 соответствуют теоретическим зависимостям областей перемагничивания с диаметрами  $D_1^m, D_2^m$  и  $D_3^m$ . б) Распределение намагниченности слоя CoFeB платформы I, находящейся под действием магнитного поля частицы  $Fe/Fe_3O_4$  диаметром 250 нм. Пунктирная линия соответствует проекции реального размера частицы на плоскость образца

кость платформы (рис. 1). Было выбрано приближение, в котором наночастица представляет собой однородно намагниченный шар, намагниченность которого направлена против оси  $z$  (см. рис. 1). Мы рассматриваем кластер близко расположенных частиц, как шар с диаметром, равным геометрическому размеру кластера, определенным в АСМ-методе. Поле однородно намагниченного шара описывали формулой точечного диполя

$$\mathbf{H}(\mathbf{p}_m, \mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi} \left[ \frac{3(\mathbf{p}_m, \mathbf{r})\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|^5} - \frac{\mathbf{p}_m}{|\mathbf{r}|^3} \right], \quad (2)$$

где  $\mathbf{r}$  — вектор, направленный из центра частицы в рассматриваемую точку  $P$  на платформе,  $\mathbf{p}_m$  — магнитный момент наночастицы (для примера на рис. 1б точка взята в верхнем слое CoFeV). Обозначим  $R_{part}$  — радиус частицы,  $h_{add}$  — добавочная высота поднятия наночастицы над поверхностью платформы (складывается из толщины покровного слоя MgO и высоты органической прослойки циклогексана, отделяющей частицу от платформы, для упрощения положим последнюю равной нулю). Пусть  $\mathbf{r}_0 = (x, y, z)$  — радиус вектор рассматриваемой точки  $P$  на платформе,  $\mathbf{r}_{part} = (x_{part}, y_{part}, z_{part})$  — координаты центра кластера в системе координат. Тогда радиус-вектор, направленный из центра частицы в точку  $P$ , имеет координаты  $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_{part} = (x - x_{part}, y - y_{part}, z - z_{part})$ . Магнитный момент частицы имеет координаты  $\mathbf{p}_m = (0, 0, -m)$ , где  $m$  — модуль магнитного момента. Получаем, что скалярное произведение  $\mathbf{p}_m$  и  $\mathbf{r}$  равно:

$$(\mathbf{p}_m \cdot \mathbf{r}) = -m(z - z_{part}). \quad (3)$$

Подставляя (3) в (2), учитывая координатную запись для момента  $\mathbf{p}_m$  и центра частицы  $\mathbf{r}_{part}$ , мы можем получить выражения для проекций поля частицы на координатные оси:

$$\begin{aligned} H_x(\mathbf{r}, \mathbf{p}_m, x, z, R_{part}, h_{add}) &= \\ &= \frac{-3}{4\pi|\mathbf{r}|^5} m(z - (R_{part} + h_{add})) x, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} H_y(\mathbf{r}, \mathbf{p}_m, y, z, R_{part}, h_{add}) &= \\ &= \frac{-3}{4\pi|\mathbf{r}|^5} m(z - (R_{part} + h_{add})) y, \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} H_z(\mathbf{r}, \mathbf{p}_m, z, R_{part}, h_{add}) &= \\ &= \frac{-m}{4\pi|r|^5} (3(z - (R_{part} + h_{add}))^2 - r^2). \end{aligned} \quad (6)$$

Локальная энергия площадки единичной площади платформы  $\Pi$  в рамках теории макроспина может быть задана как сумма энергий анизотропии  $E_{anis}$ , Зеемана  $E_{Zeeem}$  и межслойной обменной энергии  $E_{af}$ . Величины этих энергий принято записывать в виде [19]:

$$\begin{aligned} E_{anis}(\theta_t, K_{st}, \theta_b, K_{sb}) &= \\ &= -K_{st} \cos(\theta_t)^2 - K_{sb} \cos(\theta_b)^2, \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} E_{Zeeem}(t_t, H, \theta_t, \theta_b, M_{st}M_{sb}) &= \\ &= -\mu_0 H(t_t M_{st} \cos(\theta_t) + t_b M_{sb} \cos(\theta_b)), \end{aligned} \quad (8)$$

$$E_{af}(J_{af}, \theta_t, \theta_b) = -J_{af} \cos(\theta_t - \theta_b), \quad (9)$$

где  $K_{st}$  и  $K_{sb}$  — константы поверхностной магнитной анизотропии верхнего и нижнего слоев платформы  $\Pi$ ,  $J_{af}$  — константа межслойного обмена,  $M_{st}$ ,  $M_{sb}$  и  $t_t$ ,  $t_b$  — намагниченности насыщения и толщины верхнего и нижнего слоев соответственно,  $\theta_t$  и  $\theta_b$  — углы между векторами намагниченностей верхнего  $\mathbf{M}_t$  и нижнего  $\mathbf{M}_b$  слоев и плоскостью платформы  $\Pi$ .

Микромагнитное моделирование перемагничивания платформ под действием магнитных частиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> проводилось с помощью пакета ООММФ (Object Oriented Micromagnetic Framework) [28]. Код программы реализован на основе решения системы дифференциальных уравнений Ландау–Лифшица–Гильберта для спиновой релаксации с использованием быстрого преобразования Фурье для вычисления магнитостатического (размагничивающего) поля. Горизонтальные размеры платформы задавались как 1000 × 1000 нм<sup>2</sup>. Это было сделано с целью ускорения времени вычислений. Такое допущение не искажает картину перемагничивания, так как частицы и перемагниченные участки укладываются в указанный диапазон. Поля размагничивания для наших платформ мы не учитываем, поскольку они локализованы на краю пластины. Для моделирования использовались элементарные ячейки 5 нм × 5 нм × 0.4 нм, значительно меньшие минимального размера, разрешаемого силовой микроскопией.

Рассмотрим сначала двухслойную гетероструктуру CoFeV/Ta/CoFeV. Начальная конфигурация платформы соответствует антиферромагнитному взаимодействию слоев CoFeV — состоянию AP<sup>+</sup> (рис. 1б). Параметры для моделирования:  $J_{af} = -10^{-2}$  эрг/см<sup>2</sup>,  $K_{st} = 2.5 \cdot 10^{-3}$  эрг/см<sup>2</sup>,  $K_{sb} = 4 \cdot 10^{-3}$  эрг/см<sup>2</sup>,  $M_{st} = 952$  ед. СГСМ/см<sup>3</sup>,  $M_{sb} = 1040$  ед. СГСМ/см<sup>3</sup> взяты из работы [18]. При помощи пакета микромагнитного моделирования

ООММФ построено распределение намагниченности верхнего и нижнего слоев платформы под действием наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Для верхнего слоя платформы определим области разного диаметра (рис. 1б и 8б):  $D_1^b$  — диаметр круга, граница которого соответствует области, где вектор намагниченности начинает отклоняться от направления, перпендикулярного плоскости слоя;  $D_2^b$  — диаметр круга, за пределами которого перемагничивание верхнего слоя отсутствует.

Для нижнего слоя платформы II введем три области перемагничивания (рис. 1б и 8в):  $D_3^b$  — диаметр круга, граница которого соответствует началу области, где вектор намагниченности становится параллельным плоскости слоя (намагниченность в плоскости); области нижнего слоя  $D_4^b$  и  $D_5^b$  — аналогичны областям  $D_1^b$  и  $D_2^b$  для верхнего слоя, но намагниченность направлена вдоль оси  $z$ .

При помощи пакета микромагнитного моделирования ООММФ построены распределения намагниченности верхнего и нижнего слоев платформы под действием частиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> разного радиуса. Построенные распределения намагниченности для частиц разного радиуса позволяют измерить введенные расстояния. Результаты численного расчета зависимостей  $D_i^b(D_{AFM})$  представлены на рис. 8а сплошными линиями (номера линий определяются индексами соответствующих областей перемагничивания). Из анализа видно, что зависимость 3 (соответствует диаметру  $D_3^b$ ) проходит через экспериментальные значения  $D_{MFM}(D_{AFM})$ , а кривые 1, 2, 4 (соответственно области  $D_1^b$ ,  $D_2^b$ ,  $D_4^b$ ) лежат выше экспериментальных данных. Можно сделать вывод, что при МСМ-микроскопии платформы II с нанесенными на нее частицами Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> мы видим область диаметром  $D_3^b$ , на границе которой намагниченность укладывается в плоскость пленки.

Несовпадение размеров АСМ- и МСМ-изображений наночастиц на ферромагнитной платформе может быть также продемонстрировано путем вычитания указанных изображений друг из друга (рис. 7е). Разница демонстрирует замкнутую область вокруг кластера наночастиц с инверсной намагниченностью.

Рассмотрим теперь однослойную пленку CoFeB (эскиз на рис. 1а). Начальная конфигурация платформы соответствует направлению намагниченности слоя CoFeB в направлении оси  $z$ . В качестве констант поверхностной анизотропии  $K_s$ , внутрислойного обмена  $J_{ex}$  и намагниченности насыщения  $M_s$  взяты значения для верхнего слоя платформы II. Как и в случае с двухслойной структурой, введем

диаметры характерных областей с заданной ориентацией намагниченности на границе (рис. 1а и 9б):  $D_1^m$  — диаметр круга, граница которого соответствует началу внешней области, где намагниченность укладывается в плоскость;  $D_2^m$  — диаметр круга, граница которого соответствует области, где вектор намагниченности начинает отклоняться от направления, перпендикулярного плоскости слоя;  $D_3^m$  — диаметр круга, за пределами которого перемагничивание верхнего слоя под влиянием частицы не наблюдается.

Построенные распределения намагниченности для кластеров наночастиц разного радиуса позволяют построить зависимость  $D_{MFM}(D_{AFM})$  в разных приближениях. Поскольку заранее не известно, какую именно область мы наблюдаем с помощью магнитного силового микроскопа, мы построили зависимости всех трех перечисленных выше диаметров  $D_i^m$  от диаметра частицы, равного диаметру  $D_{AFM}$ . Это позволило выбрать из теоретических зависимостей ту, которая ближе к экспериментальным данным, и таким образом определить, границу какой области обнаруживает магнитный силовой микроскоп.

Результаты численного расчета представлены на рис. 9а сплошными линиями (номера линий определяются индексами соответствующих областей перемагничивания). Из анализа видно, что линия 1 (отвечает диаметру  $D_1^m$ ) больше соответствует экспериментальным результатам, чем другие зависимости. Из этого можно сделать вывод, что при МСМ-микроскопии платформы I с нанесенными на нее частицами Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> мы видим область, на границе которой намагниченность укладывается в плоскость.

Отклонение экспериментальных результатов от результатов моделирования может объясняться несколькими факторами. Мы рассматриваем кластеры как одну частицу. Мы не учитываем, что высота поднятия частицы над поверхностью ферромагнитного слоя может быть больше толщины слоя MgO, в случае если под частицей остались следы растворителя (циклогексана), который может разделять платформу и частицу. Не рассматривается перемагничивание частиц и платформ сканирующей иглой кантилевера, этот вопрос подробно обсуждался в статье [10]. Несмотря на многочисленные упрощения модели, она показывает, что превышение размеров магнитного изображения на ферромагнитной пленке над размером частицы на ее поверхности вполне ожидаемо и может соответствовать областям нескольких типов.

## 5. ВЫВОДЫ

1. Экспериментально обнаружено различие размеров фазовых контрастов АСМ и МСМ, индуцированных на поверхности пленки CoFeB ее магнитным дипольным взаимодействием с частицами Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Вычитание соответствующих фазовых контрастов АСМ и МСМ позволило выявить локальную область, намагниченность которой была изменена магнитным полем рассеяния одиночной ферромагнитной частицы. Превышение магнитного изображения частицы над ее реальным размером прямо пропорционально размеру частицы и может быть обнаружено для больших (более 100 нм) кластеров наночастиц.

2. Осаждение частиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> на пленку CoFeB и бислоем CoFeB/Ta/CoFeB приводит к увеличению поля переключения намагниченности пленки и бислоя, а также к уменьшению температуры блокировки частиц. Это происходит за счет изменения магнитного дипольного взаимодействия между пленкой и частицей.

3. Построено распределение намагниченности бислоевой гетероструктуры CoFeB/Ta/CoFeB и ультратонкой пленки CoFeB под действием рассеивающего поля кластера наночастиц Fe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> при помощи программного пакета ООММФ. Теоретическая зависимость размера магнитного изображения на пленке от размера частицы хорошо согласуется с экспериментальной. Область, наблюдаемая магнитно-силовой микроскопией, соответствует кругу, на границе которого намагниченность укладывается в плоскость пленки.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке гранта Президента Российской Федерации для государственной поддержки ведущих научных школ (грант № 2644.2020.2). Работа выполнена в рамках программы Top 5-100.

## ЛИТЕРАТУРА

1. D. L. Graham, H. Ferreira, J. Bernardo et al., *J. Appl. Phys.* **91**, 7786 (2002).
2. H. A. Ferreira, D. L. Graham, P. P. Freitas et al., *J. Appl. Phys.* **93**, 7281 (2003).
3. J. Schotter, P. B. Kamp, A. Becker et al., *IEEE Trans. Magn.* **38**, 3365 (2002).
4. J. C. Rife, M. M. Miller, P. E. Sheehan et al., *Sens. Actuators A Phys.* **107**, 209 (2003).
5. G. Li, S. X. Wang, and S. Sun, *IEEE Trans. Magn.* **40**, 3000 (2004).
6. K. Enpuku, T. Minotani, T. Gima et al., *J. Appl. Phys. Part 2 (Lett.)* **38**, L1102 (1999).
7. Y. R. Chemla, H. L. Crossman, Y. Poon et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **97**, 14268 (2000).
8. R. L. Edelstein, C. R. Tamanaha, P. E. Sheehan et al., *Biosens. Bioelectron.* **14**, 805 (2000).
9. M. M. Miller, P. E. Sheehan, R. L. Edelstein et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **225**, 138 (2001).
10. V. L. Mironov, A. A. Fraerman, B. A. Gribkov et al., *Phys. Met. Metallogr.* **110**, 708 (2010).
11. V. L. Mironov, O. L. Ermolaeva, S. A. Gusev et al., *Phys. Rev. B* **81**, 094436 (2010).
12. R. Morgunov, G. L'vova, A. Talantsev et al., *Appl. Phys. Lett.* **110**, 212403 (2017).
13. O. Koplak, O. Haziahmatova, L. Litvinova et al., *Superlatt. Microstr.* **121**, 23 (2018).
14. V. Skumryev, S. Stoyanov, Y. Zhang et al., *Nature* **423**, 850 (2003).
15. Q. K. Ong, X.-M. Lin, and A. Wei, *J. Phys. Chem. C: Nanomater Interfaces* **115**(6), 2665 (2011).
16. D. Chen, Q. Tang, X. Li et al., *Int. J. Nanomedicine.* **7**, 4973 (2012).
17. S. Demirer, A. C. Okurb, and S. Kizilel, *J. Mater. Chem. B* **3**, 7831 (2015).
18. O. Koplak, A. Talantsev, Y. Lu et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **433**, 91 (2017).
19. T. Fache, H. S. Tarazona, J. Liu et al., *Phys. Rev. B* **98**, 064410 (2018).
20. J. Salado, M. Insausti, L. Lezama et al., *Chem. Mater.* **23**, 2879 (2011).
21. V. L. Mironov, D. S. Nikitushkin, C. Bins, A. B. Shubin, and P. A. Zhdan, *IEEE Trans. on Magn.* **43**, 3961 (2007).
22. V. L. Mironov, B. A. Gribkov, D. S. Nikitushkin, S. A. Gusev, S. V. Gaponov, A. B. Shubin, P. A. Zhdan, and C. Binns, *IEEE Trans. on Magn.* **44**, 2296 (2008).
23. S. Sievers, K.-F. Braun, D. Eberbeck, S. Gustafsson, E. Olsson, H. W. Schumacher, and U. Siegner, *Small* **8**(17), 2675 (2012).
24. M.-H. Phan, J. Alonso, H. Khurshid et al., *Nanomaterials.* **6**(11), 221 (2016).

25. D. C. Jiles, *Introduction to Magnetism and Magnetic Materials*, 2nd ed. Chapman & Hall, London (1998), p. 227.
26. A. Talantsev, Y. Lu, T. Fache et al., *J. Phys.: Condens. Matter.* **30**, 135804 (2018).
27. Q. K. Ong, A. Wei, and X.-M. Lin, *Phys. Rev. B* **80**, 134418 (2009).
28. M. J. Donahue and D. G. Porter, Interagency Report NISTIR 6376, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD. (1999).