Институт физики микроструктур РАН – филиал Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова Российской академии наук»

на правах рукописи

Пашенькин Игорь Юрьевич

Эффекты обменного и спин-орбитального взаимодействия в немагнитных прослойках ферромагнитных наноструктур

1.3.8. Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук

Сапожников Максим Викторович

Нижний Новгород – 2024

Оглавление

Оглавление2
Введение4
Глава 1. Туннельные магнитные контакты
1.1 Эффект туннельного магнетосопротивления 21
1.1.1 Модели Жюльера и Слончевского 22
1.1.2 Природа гигантского туннельного магниторезистивного эффекта в
структурах с барьером MgO 27
1.1.3 ТМР эффект в эпитаксиальных структурах с барьером MgO 29
1.1.4 ТМР эффект в текстурированных структурах CoFeB(001)/MgO(001)/
CoFeB(001), получаемых методом магнетронного распыления
1.2 Технология туннельных магнитных контактов в ИФМ РАН 34
1.2.1 Технологические основы изготовления магнитных наноструктур
1.2.2 ТМК с барьером Al ₂ O ₃ 43
1.2.3 ТМК с барьером MgO 48
Глава 2. Магнитоэлектрический эффект в ТМК
CoFeB/MgO/CoFeB53
2.1 Способы переключения состояния ячейки MRAM 53
2.2 Электрическое управление межслоевым взаимодействием в ТМК
CoFeB/MgO/CoFeB
Глава 3. Внешний эффект Холла в туннельных контактах68
3.1 Спин-орбитальные эффекты в магнитных наноструктурах
3.2 Внешний туннельный эффект Холла71
Глава 4. Обменное усиление магнитокалорического эффекта в
слоистых наноструктурах86
4.1 Магнитокалорический эффект 86
4.2 Теория обменного усиления магнитокалорического эффекта
4.3 Обменное усиление магнитокалорической эффективности в структурах
CoFe/NiCu/CoFeB

4.4 Обменное усиление магнитокалорической эффективности	прослойки Gd
между слоями Fe	
Заключение	
Список публикаций автора по теме диссертации	
Список литературы	114

Введение

Актуальность темы исследования

Исследования тонких магнитных пленок и слоистых наноструктур, проведенные за последние 50 лет, имеют огромное фундаментальное и прикладное значение. Интенсивное развитие технологии поспособствовало открытию большого количества новых физических эффектов обменной и спин-орбитальной природы, возникающих при объединении ферромагнетиков с антиферромагнитными, парамагнитными или немагнитными материалами в единой многослойной системе.

Открытие Альбертом Фертом и Петером Грюнбергом в 1988 году эффекта гигантского магнетосопротивления (ГМС) в сверхрешетках Fe/Cr [1,2], за что в 2007 году им была присуждена нобелевская премия, положило начало новому витку развития спинтроники. ГМС-структуры применяются в датчиках магнитного поля [3], головках считывания в жестких дисках [4], а также используются в качестве запоминающих ячеек магниторезистивной памяти с произвольным доступом (magnetic random access memory, MRAM) [5]. Эффект туннельного магнетосопротивления (ТМС), не получивший должного внимания на момент открытия в 1975 году Мишелем Жюльером в структурах Fe/GeO/Co [6] ввиду малой его величины – $MR = \frac{\Delta R}{R_{min}} \cdot 100 \% \approx 14 \%$ при температуре 4.2 К (ΔR – изменение сопротивления туннельного контакта при приложении внешнего магнитного поля, R_{min} — минимальное сопротивление туннельного контакта), однако, обладал колоссальным потенциалом. На сегодняшний день туннельные благодаря магниторезистивные структуры, гигантским значениям магниторезистивного эффекта в структурах с кристаллическим барьером MgO [7 -9] (*MR* > 200 % при комнатной температуре), являются одним из основных компонентов элементной базы спиновой электроники, включая MRAM [10] и датчики магнитного поля [11].

Эффекты ГМС и ТМС имеют обменную природу и обусловлены обменным расщеплением спиновых подзон в ферромагнетиках [12], которое приводит к относительному увеличению плотности состояний электронов со спиновым моментом, чаще всего сонаправленным с намагниченностью [13]. Большинство

- 4 -

магниторезистивных элементов имеют структуру типа «спиновый» клапан, состоящую из ферромагнитных слоев, разделенных немагнитными прослойками, способных под действием внешнего магнитного поля изменять взаимную ориентацию намагниченности [14, 15]. Как правило, намагниченность одного из ферромагнетиков «закрепляют» путем наведения в нем однонаправленной анизотропии. Это достигается за счет еще одного хорошо известного обменного эффекта – так называемого, обменного смещения (exchange bias) [16], возникающего в результате прямого обменного взаимодействия ферромагнетика с антиферромагнетиком.

Межслоевое обменное взаимодействие вида $E_{int} = -J_{int}(M_1 \cdot M_2)$, имеющее место в слоистых структурах типа FM/NM,PM,D/FM (FM – ферромагнетик, NM – немагнитный металл, РМ – парамагнетик (ферромагнетик при температуре выше его точки Кюри), D-диэлектрик), может быть достаточно сильным, чтобы определять основное магнитное состояние системы во внешних магнитных полях до нескольких килоэрстед. Как правило, обменное взаимодействие между ферромагнетиками, разделенными немагнитными металлическими или диэлектрическими слоями, осуществляется через электроны проводимости и имеет осциллирующую знакопеременную зависимость от толщины прослойки [17, 18]. FM/NM/FM РККИ Структуры c антиферромагнитным межслоевым взаимодействием, называемые синтетическими антиферромагнетиками (или ферримагнетиками) часто используют для усиления обменного сдвига и компенсации полей рассеяния в спин-вентильных магниторезистивных элементах [19, 20].

Интерес к изучению межслоевого обменного взаимодействия в структурах FM/D/FM обусловлен потенциальной возможностью управления его величиной с помощью электрического поля, что может стать основой для разработки энергоэффективной MRAM.

Межслоевое взаимодействие в структурах FM/PM/FM (PM – ферромагнетик при температуре выше его температуры Кюри) обусловлено наличием прямого обменного взаимодействия на границах PM и FM и зависит от магнитных корреляций в прослойке PM [21]. Поэтому есть прямая связь между величиной эффективного межслойного обмена и степенью упорядоченности (магнитной

- 5 -

энтропии) парамагнитной прослойки [22].

Обменное взаимодействие на границах с «сильными» ферромагнетиками (FM) может приводить к наведению в «слабом» ферромагнетике (PM) магнитного момента [23]. Под «слабым» и «сильным» ферромагнетиками подразумеваются ферромагнетики с различными T_c в том случае, если T_c «слабого» лежит в диапазоне температур, при которых ведется исследование, а T_c «сильного» выше этого диапазона. Результатом, так называемого, эффекта магнитной близости (возникновение магнитного момента в парамагнетике) может быть обменное усиление магнитокалорического эффекта в таких системах, теоретически предсказанное в [24, 25].

Комбинирование сверхтонких ферромагнитных слоев со слоями тяжелых металлов, а также оксидов позволило обнаружить новые спин-орбитальные эффекты. Так, наличие границы с материалом с большим спин-орбитальным взаимодействием (СОВ) может приводить к возникновению в ферромагнитной пленке поверхностной перпендикулярной магнитной анизотропии [26, 27]. Еще одним проявлением СОВ на интерфейсе ферромагнетика и тяжелого металла взаимодействие Дзялошинского-Мория [28], является приводящее к возникновению киральных неоднородных топологически защищенных распределений намагниченности. Одним из таких распределений является скирмион, который обладает большим потенциалом для использования В магнитной памяти и логике [28].

Спин-орбитальное рассеяние электронов проводимости, инжектируемых из ферромагнетика в тяжелый металл, приводит к возникновению, так называемого, обратного спинового эффекта Холла [29]. Прямой спиновый эффект Холла, возникающий при протекании тока по тяжелому металлу, приводит к инжекции спин-поляризованного тока из тяжелого металла в ферромагнетик и активно используется для переключения магнитного и, следовательно, резистивного состояния ячеек MRAM [30, 31].

Многослойные магнитные наноструктуры, содержащие немагнитные металлические или диэлектрические функциональные слои являются основными компонентами большинства приборов спиновой электроники, среди которых можно выделить датчики магнитного поля [11], магниторезистивную память [10],

- 6 -

генераторы излучения с частотами от сотен мегагерц [32] до единиц терагерц [33]. Стремительный прогресс двух последних десятилетий в разработке материалов и устройств на основе магнитных наноструктур делает спинтронику конкурентоспособной с полупроводниковой электроникой в ряде приложений. Помимо высокого быстродействия, низкого энергопотребления и долговечности приборы на основе магнитных наноструктур обладают выдающейся радиационной стойкостью ввиду относительно слабой чувствительности свойств ферромагнитных (металлических) слоев к наличию в них радиационных дефектов. Кроме того, способность ферромагнетиков сохранять свое состояние с течением времени дает магниторезистивной памяти существенное преимущество над полупроводниковой - энергонезависимость.

Степень разработанности темы исследования

Эффекты обменного и спин-орбитального взаимодействия в слоистых магнитных наноструктурах активно исследуются в течение нескольких последних десятилетий. Наиболее изученными и широко применяемыми в устройствах спиновой электроники обменными эффектами являются ГМС [34] и ТМС [7 – 11]. Прямое обменное взаимодействие, возникающее на границах ферромагнетиков с парамагнитными и антиферромагнитными материалами, приводит к известным эффектам магнитной близости, таким как обменное смещение [16] или индуцирование намагниченности в ферромагнетиках при температуре выше точки Кюри [23]. Большое количество работ посвящено исследованию межслоевого обменного взаимодействия в магнитных наноструктурах FM/D/FM и FM/NM/FM, например, [17, 18]. Подбор материалов и толщин прослоек позволяет управлять величиной и знаком эффективного обменного поля, что, в частности, используется для модификации магнитотранспортных свойств спин-вентильных магниторезистивных элементов на основе ГМС и ТМС [19, 20].

Среди наиболее ярких проявлений СОВ в магнитных наноструктурах можно выделить поверхностную перпендикулярную анизотропию [26, 27], а также взаимодействие Дзялошинского-Мория, приводящее к киральным топологически защищенным распределениям намагниченности [28]. В случае электронного

- 7 -

транспорта СОВ проявляется в возникновении прямого и обратного спинового эффекта Холла [29], нашедшего практическое применение в устройствах магниторезистивной памяти [30, 31] и спинтронных терагерцовых эмиттерах [33].

Развитие технологии изготовления туннельных магнитных контактов (ТМК) стимулировали поиск способов переключения их резистивного состояния. Существует целый ряд работ, в которых управление магнитным состоянием ячеек MRAM осуществляется путем электрического управления межслоевым обменным взаимодействием и СОВ. Наиболее изученным и широко применяемым на практике является эффект передачи спинового момента (spin-transfer torque (STT)), возникающий при протекании спин-поляризованного электрического тока через барьер ТМК [35, 36]. При этом знак действующего на свободный слой ТМК эффективного поля межслоевого обменного взаимодействия, вызванного этим током, зависит от его полярности и взаимной ориентации намагниченности ферромагнитных электродов. Величина плотности тока, необходимого для осуществления переключения состояния определяется величиной его спиновой поляризации, а также магнитной анизотропией и толщиной свободного слоя и составляет порядка 10⁶ А/см².

Широко исследован и на сегодняшний день активно внедряется способ переключения ячеек магнитной памяти за счет спинового эффекта Холла. Этот механизм, как и в случае STT-MRAM, основан на эффекте передачи спинового момента, однако в данном случае инжекция спин-поляризованного тока в свободный слой ТМК осуществляется путем пропускания электрического тока по тяжелому металлу, на котором формируется туннельная магниторезистивная структура [30, 31]. Оба описанных механизма управления магнитным состоянием ТМК объединяет общий недостаток – высокая плотность тока записи (10⁶ – 10⁷ А/см²), что обуславливает их низкую энергоэффективность и сдерживает процесс миниатюризации MRAM.

Поэтому одной из наиболее актуальных задач спиновой электроники на сегодняшний день является поиск способов переключения магнитного состояния наносистем с помощью электрического поля, а не тока (магнитоэлектрический эффект). Исследования магнитоэлектрических явлений в магнитных

- 8 -

наноструктурах в основном направлены на понижение энергии переключения элементов магнитной памяти и увеличение плотности записи информации.

Так, в работе [37] продемонстрировано изменение знака РККИ взаимодействия в структуре синтетического антиферромагнетика под действием тока относительно невысокой плотности (10⁵ A/cm²). Ряд работ посвящен управлению величиной обменного смещения в системах типа FM-oxide/FM/AFM за счет окислительновосстановительных реакций, протекающих под действием электрического поля [38 – 40]. Однако низкая скорость электрохимических процессов делает этот метод непригодным для практического использования. Известны работы, в которых наблюдается смена знака обменного сдвига тонких ферромагнитных пленок, помещенных на магнитоэлектрический антиферромагнетик Cr₂O₃ при одновременном приложении к нему электрического и магнитного поля [41, 42].

эффект зависимости поверхностной Широко изучен анизотропии от электрического (voltage control of magnetic anisotropy (VCMA)), поля обусловленный зарядовой аккумуляцией на границе диэлектрика и ферромагнетика [43 – 46]. Однако эта зависимость недостаточно сильная для одновременного обеспечения переключения состояния ТМК и термической стабильности ячеек памяти, которая определяется абсолютной величиной магнитной анизотропии. В ряде работ продемонстрировано изменение магнитокристаллической анизотропии ферромагнитных пленок с использованием явления магнитострикции в гибридных структурах сегнетоэлектрик/ферромагнетик [47-50].

Известно, что ферромагнитные слои ТМК связаны между собой обменным взаимодействием через барьерный слой [102]. Это взаимодействие осуществляется посредством туннелирующих электронов и осциллирующим образом зависит от толщины туннельного барьера, что экспериментально продемонстрировано в работе [18] для эпитаксиальной системы Fe(001)/MgO(001)/Fe(001). Приложение к барьеру электрического напряжения должно приводить к изменению формы потенциального барьера и, следовательно, его эффективной ширины. Пользуясь таким простым предположением, можно рассчитывать на изменение величины межслоевого обменного взаимодействия в таких системах под действием электрического поля, что может быть полезно для разработки энергоэффективной

- 9 -

магниторезистивной памяти. Однако вопрос о возможности электрического управления межслоевым обменным взаимодействием в ТМК изучен недостаточно.

Большое количество теоретических и экспериментальных работ посвящено изучению транспортных эффектов, обусловленных СОВ, а также механизмам спин-орбитального рассеяния в магнитных наноструктурах. СОВ отвечает за многие физические свойства и явления, которые являются предметом интенсивных исследований, включая топологические изоляторы [51], спиновый эффект Холла [29], анизотропное и туннельное анизотропное магнетосопротивление [52].

Известны работы, в которых при исследовании спинового эффекта Холла в пленках тяжелых металлов в качестве инжектора спин-поляризованного тока используется туннельный контакт с ферромагнитным электродом [53 – 57]. При этом возникновение поперечной разности потенциалов в нормальном металле объясняется спин-орбитальным рассеянием инжектированных электронов на атомарных полях материала холловского электрода. Существует ряд теоретических работ, в которых учитывается спин-орбитальное рассеяние внутри туннельного барьера. Так, в работах [29, 58], так называемый, туннельный эффект Холла рассчитывался в системе FM/D/NM с учетом нецентросимметричности прослойки (спин-орбитальное взаимодействие Рашбы и Дрессельхауса). Авторами работ [59, 60] было рассмотрено рассеяние на примесях в барьере.

Все перечисленные транспортные эффекты, так или иначе, обусловлены СОВ, вызванным атомарными или встроенными электрическим полями. Известно, что электрическое поле, которое может быть создано внутри диэлектрической прослойки туннельного магнитного контакта, может достигать 10⁹ В/м. Однако вопрос о возможных эффектах, обусловленных спин-орбитальным рассеянием электронов во внешнем электрическом поле, приложенном к диэлектрику, в достаточной степени не изучен. Авторами работы [61] теоретически вычислялся «аномальный» холловский ток в системе FM/D/FM с учетом индуцированного приложенным полем СОВ. Однако вопрос о зависимости эффекта от приложенной к системе разности потенциалов в работе не уточняется. Кроме того, предложенный в [61] механизм спин-орбитального рассеяния во внешнем электрическом поле экспериментально не исследован.

- 10 -

Большое число теоретических и экспериментальных работ посвящено изучению эффектов обменной магнитной близости, возникающих при контакте материалов с различным магнитным порядком [62]. Одно из проявлений данного эффекта заключается в наведении намагниченности в парамагнетике, граничащем с ферромагнетиком [23]. В работах [24, 25] было предложено использовать обменные поля для усиления магнитокалорической эффективности в слоистых системах FM/PM/FM. Прямое обменное взаимодействие на границах PM и FM будет приводить к подмагничиванию парамагнитной прослойки. Причем средний квадрат намагниченности, а, следовательно, и энтропия в ней будет зависеть от взаимной ориентации магнитных моментов ферромагнитных берегов, которая может переключаться в магнитных полях порядка сотни Эрстед. Такой подход может позволить достигать изменения энтропии, эквивалентного получаемому при приложении магнитного поля к парамагнетику около 10 кЭ. Однако, описанный эффект требует последовательного экспериментального исследования.

Цели и задачи диссертационной работы

Цель диссертационного исследования состояла в исследовании обменных и спин-орбитальных эффектов в немагнитных прослойках ферромагнитных наноструктур.

Основными задачами данной работы являлись:

— Исследование возможности управления межслоевым обменным взаимодействием через диэлектрическую прослойку с помощью электрического поля, приложенного к туннельному магнитному контакту CoFeB/MgO/CoFeB;

— Изучение процессов спин-орбитального взаимодействия электронов с сильным внешним электрическим полем, приложенным к барьеру туннельного контакта;

 Экспериментальное исследование усиления магнитокалорической эффективности в слоистых наноструктурах за счет эффекта обменной магнитной близости между парамагнетиком и окружающими его ферромагнетиками

- 11 -

Научная новизна

Впервые обнаружена зависимость межслоевого обменного взаимодействия в ТМК CoFeB/MgO/CoFeB/IrMn от приложенного к барьеру электрического поля. Эффект проявляется в сдвиге кривой намагничивания свободного слоя по магнитному полю на $\Delta H_{ex} \approx 6$ Э при приложении к ТМК напряжения величиной 1 В. Направление и величина поля сдвига соответствует изменению поверхностной плотности энергии межслоевого обменного взаимодействия $E_{ex} = -\int J dS$) на величину $\Delta J = M_f h_f \Delta H_{ex} \approx -1.8 \cdot 10^{-3}$ Эрг/см², где M_f и h_f — намагниченность насыщения и толщина свободного слоя соответственно. Продемонстрировано изменение магнитного состояния ТМК при приложении к нему коротких импульсов напряжения величиной 2 В длительностью 100 нс. При этом плотность тока, протекающего через контакт не превышает 10^4 А/см². Изменение проекции средней намагниченности свободного слоя ТМК на ось однонаправленной анизотропии закрепленного слоя составила около $\Delta M_x \approx M_s$.

Обнаружен новый эффект Холла в туннельных контактах CoFeB/MgO/NM (NM = Pt, Ta), обусловленный COB туннелирующих электронов с сильным внешним электрическим полем, приложенным к барьеру. Эффект проявляется в квадратичной зависимости поперечной разности потенциалов на NM-электродах от приложенного к барьеру и не зависит от материала NM-электрода.

Впервые экспериментально продемонстрирован эффект обменного усиления магнитокалорической эффективности прослоек «слабых» ферромагнетиков между слоями «сильных» ферромагнетиков в структурах Co₉₀Fe₁₀/Ni₇₂Cu₂/Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (в 7 раз) и Fe/Gd/Fe (в 5 – 7 раз) по сравнению с отдельными парамагнитными пленками.

Практическая значимость

В ходе выполнения работы разработана уникальная для РФ технология изготовления туннельных магнитных контактов CoFeB/MgO/CoFeB микронного и субмикронного латерального размера. В зависимости от геометрических параметров контакта реализуется квазиоднородное или вихревое распределение намагниченности свободного слоя. Обнаружена зависимость межслоевого

обменного взаимодействия от электрического поля, приложенного к туннельному барьеру MgO, а также показана возможность изменения магнитного состояния туннельных магнитных контактов CoFeB/MgO/CoFeB приложением к нему Полученные короткого импульса напряжения. результаты могут быть использованы для разработки энергоэффективной магниторезистивной памяти с произвольным доступом. Разработанная в ходе выполнения диссертационной работы оригинальная технология изготовления ТМК с вихревым распределением намагниченности свободного слоя защищена патентом и может быть использована для разработки высокочувствительных датчиков магнитного поля, а также источников и приемников электромагнитного излучения.

Обнаружен новый эффект, заключающийся в спин-орбитальном рассеянии электронов во внешнем электрическом поле, приложенном к барьеру туннельного контакта. Эффект проявляется в квадратичной зависимости поперечной разности потенциалов в NM-электроде, от напряжения, приложенного к туннельному контакту CoFeB/MgO/NM. Полученный результат интересен с фундаментальной точки зрения, также может быть использован для управления транспортными свойствами магнитных наноструктур.

Экспериментально продемонстрировано усиление магнитокалорического эффекта прослоек «слабых» ферромагнетиков NiCu и Gd, помещенных между «сильными» ферромагнетиками в многослойных наноструктурах CoFeB/NiCu/CoFe и CoSm/Fe/Gd/Fe/CoFeB. В первом случае магнитокалорическая эффективность прослойки Ni₇₂Cu₂₈толщиной 5 нм возрастает примерно в 7 раз по сравнению с отдельной пленкой Ni₆₇Cu₃₃. Магнитокалорическая эффективность прослойки Gd толщиной 3 нм в составе структуры CoSm/Fe/Gd/Fe/CoFeBувеличивается в 5 – 7 раз по сравнению с пленкой Gd толщиной 30 нм, полученной в схожих технологических условиях. Продемонстрированный принцип обменного усиления магнитокалорического эффекта может быть использован для дальнейшей разработки систем магнитного охлаждения, в том числе и на основе объемных гранулированных материалов, состоящих их ферромагнитных включений в парамагнитной матрице.

Методы и методология исследования

Многослойные магнитные наноструктуры изготавливались методом магнетронного распыления. Туннельные магнитные контакты микронного и субмикронного латерального размера изготавливались методами безмасочной оптической и электронной литографии соответственно. Магнитные свойства изготавливаемых структур исследовались методами оптической керровской магнитометрии, СКВИД-магнитометрии и вибрационной магнитометрии, а также методами спектроскопии ферромагнитного резонанса (ФМР) при различных температурах. Для проведения транспортных исследований туннельных магнитных контактов был разработан специальный стенд, включающий в себя столик с прижимными контактными зондами, оборудованными механической системой позиционирования, оптический микроскоп, источник-измеритель и электромагнит с источником тока. Измерительный процесс полностью автоматизирован с применением программного пакета LabVIEW.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Приложение электрического напряжения к туннельному магнитному контакту CoFeB/MgO/CoFeB позволяет управлять его магнитным состоянием за счет изменения межслоевого обменного взаимодействия через диэлектрическую прослойку.

2. В сильном электрическом поле (до 10⁷ В/см), приложенном к туннельному контакту CoFeB/MgO/немагнитный металл, возникает квадратичный по напряжению поперечный транспортный эффект – внешний туннельный эффект Холла, обусловленный спин-орбитальным взаимодействием туннелирующих электронов с внешним электрическим полем.

3. Эффект обменной магнитной близости на границах парамагнитного и ферромагнитных слоев в системах CoFeB/NiCu/CoFe и CoSm/Fe/Gd/Fe/CoFeB приводит к кратному возрастанию магнитокалорической эффективности прослоек по сравнению с отдельными пленками NiCu и Gd.

- 14 -

Личный вклад автора

— Основной вклад в разработку технологии и изготовление многослойных магнитных наноструктур, в том числе туннельных магнитных контактов и структур FM/PM/FM.

— Проведение основного объема транспортных и магнитооптических измерений исследуемых структур.

— Равнозначный вклад в проведение постростовых процессов для проведения транспортных измерений. Оптическая литография, ионное травление, термический отжиг проводились совместно с Гусевым Н. С. Электронная литография выполнялась Скороходовым Е. В.

— Равнозначный вклад в исследования магнитоэлектрического эффекта в контактах CoFeB/MgO/CoFeB. Постановка туннельных магнитных задачи осуществлялась совместно с Сапожниковым М. В. и Фраерманом А. А. Изготовление образцов - совместно с Гусевым. Н. С. Разработка стенда для проведения транспортных исследований И программы автоматизации измерительного процесса – Сапожников М. В.

— Равнозначный вклад в исследования эффектов Холла в туннельных контактах. Постановка задачи осуществлялась совместно с Сапожниковым М. В., Фраерманом А. А. и Караштиным Е. А. Изготовление образцов – совместно с Гусевым Н. С. Разработка программы автоматизации транспортных измерений – Сапожников М. В.

— Равнозначный вклад в экспериментальные исследования обменного усиления магнитокалорического эффекта в магнитных наноструктурах. Постановка задачи – совместно с Сапожниковым М. В., Фраерманом А. А., Полушкиным Н. И., Получение Изготовление структур осуществлялось автором. кривых намагничивания методом вибрационной магнитометрии проводились Кравцовым Е. А. (Институт физики металлов им. М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук, Екатеринбург, Россия).

- 15 -

Степень достоверности и апробация результатов

Работа выполнена на современном оборудовании. Научные положения и результаты диссертации не противоречат экспериментальным результатам и теоретическим моделям других научных групп. Полученные результаты опубликованы в реферируемых журналах. Результаты диссертационной работы докладывались на 11 российских и международных конференциях. В их число входят:

- XXIII, XXIV, XXVI, XXVII, XXVIIIМеждународные симпозиумы «Нанофизика и наноэлектроника», (Н.Новгород, 2019, 2020, 2022, 2023, 2024 гг.).
- XXIV и XXVМеждународная научная конференция «Новое в магнетизме и магнитных материалах» (Москва, 2021, 2024).
- V International Baltic Conference on Magnetism (August 20 August24 2023, Kaliningrad, Russia).
- VIII Euro-Asian Symposium «Trends in MAGnetism»: EASTMAG-2022 (August 22 2022 August 26 2022, Kazan, Russia).
- Samarkand International Symposium on Magnetism SISM-2023 (July 02 2023 July 06 2023, Samarkand, Uzbekistan)
- 8th International Conference on Superconductivity and Magnetism (May 04 2023 May 11 2023, Fethiye-Oludeniz, Turkey)

Публикации

Результаты работы опубликованы в оригинальных статьях в отечественных и зарубежных журналах, сборниках трудов и тезисов докладов на научных конференциях. Всего по материалам диссертации опубликовано 25 работ, из них 11 статей в реферируемых журналах. Полный список публикаций автора по теме диссертационной работы приведен в конце диссертации.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 125 страниц. Диссертация содержит 51 рисунок и 1 таблицу. Список литературы включает 140 наименований.

Содержание работы

В главе 1 обсуждаются особенности технологии изготовления многослойных магнитных наноструктур с немагнитными диэлектрическими и металлическими слоями, исследованных в рамках диссертационной работы.

Описаны основные способы формирования тонких пленок, в особенности, метод магнетронного распыления. Рассмотрены технологические аспекты создания топологического рисунка в функциональных слоях слоистых наноструктур, в частности описаны методы литографии и ионного травления.

Приведены теоретические основы туннельного магнетосопротивления, а также гигантского туннельного магниторезистивного эффекта в эпитаксиальных структурах Fe(001)/MgO(001)/Fe(001).

Особое внимание уделено технологии изготовления туннельных магнитных контактов с аморфным барьером Al₂O₃ и текстурированным барьером MgO (001), получаемых в ИФМ РАН. Описаны особенности получения различных типов распределения намагниченности в свободном слое туннельных магнитных контактов CoFeB/MgO/CoFeB.

2 посвящена описанию результатов проведенных исследований Глава возможности управления магнитным состоянием туннельных магнитных контактов СоFeB/MgO/СоFeB с помощью электрического поля за счет изменения межслоевого обменного взаимодействия ферромагнитных слоев через диэлектрическую прослойку при приложении к ней напряжения.

В разделе 2.1 приводится обзор известных способов переключения магнитного состояния ячеек магниторезистивной памяти с произвольным доступом.

Раздел 2.2 посвящен оригинальным экспериментальным результатам по управлению состоянием туннельных магнитных контактов CoFeB/MgO/CoFeB/

IrMn приложением к ним электрического напряжения. Показано, что приложение к барьеру разности потенциалов в 1 В приводит к сдвигу кривой гистерезиса свободного слоя структуры по магнитному полю на 6 – 10 Э, соответствующему возникновению или увеличению величины эффективного поля межслоевого обменного взаимодействия антиферромагнитного типа. Приложение к контакту коротких импульсов электрического напряжения величиной 2 В длительностью 100 нс приводит к изменению его магнитного и, соответственно, резистивного состояния. Оценка изменения проекции средней намагниченности свободного слоя на ось однонаправленной анизотропии в закрепленном слое составила $\Delta M_x = M_s$. При этом плотность тока импульса не превышает 10⁴ А/см².

В главе 3 обсуждается новый эффект, заключающийся в возникновении поперечной разности потенциалов в NM-электроде при протекании спинполяризованного электрического тока через туннельный контакт CoFeB/MgO/NM (NM = Pt, Ta). Особенностью обнаруженного эффекта, отличающей его от широко известного спинового эффекта Холла, является его квадратичная зависимость от напряжения, приложенного к TMK и независимость от материала берегов контакта. Поскольку исследованный эффект обусловлен спин-орбитальным рассеянием электронов во внешнем электрическом поле, приложенном к барьеру, мы назвали его внешним туннельным эффектом Холла.

В **разделе 3.1** обсуждаются различные проявления спин-орбитального взаимодействия, наблюдаемые в магнитных наноструктурах, в том числе спиновый и аномальный эффекты Холла.

В разделе 3.2 описаны результаты экспериментального исследования внешнего туннельного эффекта Холла в туннельных контактах CoFeB/MgO/NM (NM = Pt, Ta) в зависимости от приложенного к контактам электрического напряжения. Показано, что холловский сигнал в NM-электроде содержит нечетную и четную по электрическому полю компоненты. Зависимость четной части холловского сигнала по напряжению хорошо аппроксимируется параболой, а нечетная – линией. Линейная компонента содержит вклады от аномального и спинового эффектов Холла в металлических берегах туннельного контакта, а квадратичная обусловлена спин-орбитальным рассеянием во внешнем приложенном поле. Показано, что величина квадратичного холловского сигнала не зависит от материала NM-

- 18 -

электрода. Увеличение толщины последнего приводит к общему падению величины холловского сигнала в связи с эффектом шунтирования. По углу наклона зависимости нечетного сигнала от приложенного напряжения был оценен угол спинового эффекта Холла в Pt.

Продемонстрировано возникновение постоянной поперечной разности потенциалов в NM-электроде при подаче напряжения на туннельный контакт переменного напряжения с частотой 10 кГц. Величина холловского сигнала квадратично зависит от амплитуды напряжения на контакте.

Глава 4 посвящена экспериментальному исследованию эффекта обменного усиления магнитокалорической эффективности тонких прослоек «слабого» ферромагнетика между слоями «сильных» ферромагнетиков в многослойных наноструктурах типа FM/PM/FM.

В разделе 4.1 дается определение магнитокалорического эффекта и приводятся простейшие описывающие его термодинамические соотношения.

В разделе 4.2 обсуждается природа обменного усиления магнитокалорического эффекта.

В разделе 4.3 приводятся оригинальные результаты исследования магнитных и магнитокалорических свойств многослойных структур CoFeB(15)/Ni₇₂Cu₂₈(15)/ CoFe(20). Изменение энтропии ΔS системы определялось ПО кривым структур, полученным при различных намагничивания температурах С использованием соотношения Максвелла. Показано, что увеличение температуры приводит к уменьшению поля перемагничивания свободного слоя исследуемых структур, что соответствует падению величины эффективного поля межслоевого обменного взаимодействия ферромагнитных слоев через прослойку Ni₇₂Cu₂₈. Величина этого взаимодействия является показателем степени обменного подмагничивания «рефрижеранта». Показано, что изменение энтропии прослойки Ni₇₂Cu₂₈ толщиной 5 нм, которое происходит при смене взаимной ориентации намагниченности ферромагнетиков, в 50 раз превосходит магнитокалорический потенциал отдельной пленки Ni₆₈Cu₃₂ при приложении к ней магнитного поля величиной 30Э, что соответствует увеличению магнитокалорической эффективности $\Delta S / \Delta H$ прослойки Ni₇₂Cu₂₈ в 7 раз.

- 19 -

В разделе 4.4 приведены экспериментальные результаты по обменному усилению магнитокалорической эффективности $\Delta S / \Delta H$ Gd в многослойных структурах Ni₈₀Fe₂₀(10)/Gd(d)/Co₉₀Fe₁₀(7)/Ir₂₀Mn₈₀(15) и CoSm(30)/Fe(1)/Gd(d)/Fe(1)/ CoFeB(2). Исследование магнитных и магнитокалорических свойств проводилось по температурной зависимости кривых намагничивания, полученных на СКВИД магнетометре и вибрационном магнетометре, а также по магнитооптическим В $Ni_{80}Fe_{20}(10)/Gd(d)/Co_{90}Fe_{10}(7)/Ir_{20}Mn_{80}(15)$ кривым. структурах обменного усиления магнитокалорического эффекта не наблюдается в связи со слабой обменной связью на границе Ni₈₀Fe₂₀/Gd. В структурах CoSm(30)/Fe(1)/Gd(d)/Fe(1)/ CoFeB(2) наблюдается увеличение магнитокалорической эффективности $\Delta S/\Delta H$ прослоек Gd толщиной 2.5 и 3 нм в 5 –7 раз по сравнению с отдельной пленкой Gd толщиной 30 нм, полученной в схожих технологических условиях.

Таким образом, проведенные исследования подтверждают теоретически предсказанное обменное усиление магнитокалорического эффекта.

В заключении отражены основные выводы диссертационного исследования

Глава 1. Туннельные магнитные контакты

Настоящая глава посвящена особенностям технологии изготовления туннельных магнитных контактов (ТМК) с различными магнитными и транспортными свойствами.

В разделе 1.1 приводятся теоретические основы эффекта туннельного магнетосопротивления, объясняется природа, так называемого, гигантского туннельного магнетосопротивления, а также описаны известные в литературе технологические подходы к получению гигантского туннельного магниторезистивного эффекта.

В разделе 1.2 изложены основы технологии изготовления магнитных наноструктур, включая ТМК. Отражены особенности развитой в рамках диссертационного исследования технологии получения ТМК с аморфным барьером Al₂O₃ и кристаллическим барьером MgO с различными распределениями намагниченности свободного слоя.

1.1 Эффект туннельного магнетосопротивления

Туннельные магнитные контакты, состоящие из двух ферромагнитных слоев, разделенных туннельно-прозрачной прослойкой диэлектрика, проявляют сильную зависимость сопротивления протекающего через барьер тока от взаимной ориентации намагниченностей берегов (рис. 1.1). Это свойство, называемое туннельным магнетосопротивлением, делает ТМК востребованными в ряде действующих и потенциальных приложений спиновой электроники, таких как магниторезистивная память [10], датчики магнитного поля [11], источники и приемники СВЧ-излучения [32, 33, 64]. Различные типы устройств на основе ТМК предъявляют разные требования к его транспортным, а также статическим и динамическим магнитным свойствам. Поэтому прикладные исследования ТМК, интенсивно ведущиеся последние 30 лет, не теряют актуальности и на сегодняшний день.



Рисунок 1.1. Схема механизма туннельного магнетосопротивления в случае коллинеарной взаимной ориентации намагниченностей туннельного магнитного контакта. Рисунок взят в [10]

Обычно один из ферромагнитных слоев ТМК делают магнитомягким, т. е. способным относительно легко изменять намагниченность под действием внешнего магнитного поля. Второй ферромагнитный электрод обладает высокой магнитной анизотропией и называется закрепленным. Как правило, ТМК обладает меньшим сопротивлением, когда намагниченности ферромагнитных слоев сонаправлены. Туннельный магниторезистивный (ТМР) эффект принято вычислять как отношение разности сопротивлений при противоположно направленной $R_{\uparrow\downarrow}$ и сонаправленной $R_{\uparrow\uparrow}$ ориентациях намагниченности свободного и закрепленного слоев к сопротивлению сонаправленною состояния:

$$TMR = \frac{R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}}{R_{\uparrow\uparrow}} \cdot 100\%$$
(1.1)

1.1.1 Модели Жюльера и Слончевского

Как известно, в 3*d*-ферромагнетиках упорядочение магнитных моментов ионных остовов обусловлено прямым обменным взаимодействием локализованных электронов. Локальное обменное взаимодействие электронов проводимости с

локализованными магнитными моментами *d*-электронов приводит к обменному расщеплению спиновых подзон свободных электронов, то есть к их спиновой поляризации [12] (рис. 1.1). Такое взаимодействие может быть описано в рамках, так называемой, *s*-*d*-модели, предложенной Шубиным, Вонсовским и Зинером [63]. Эффективный гамильтониан *s*-*d*- взаимодействия имеет вид зеемановского слагаемого:

$$\widehat{H}_{s-d} = -J\boldsymbol{m}(\boldsymbol{r}) \cdot \widehat{\boldsymbol{\sigma}},\tag{1.2}$$

где J – константа, имеющая обменную природу и характеризующая эффективность *s*-*d*-взаимодействия (величину обменного расщепления), $m(r) = M(r)/M_0$ – единичный вектор, сонаправленный с намагниченностью M(r), M_0 – намагниченность насыщения, $\hat{\sigma}$ – оператор спина электрона.

Расщепление спиновых подзон приводит к различной плотности состояний электронов с различной проекцией спинового момента на ось, сонаправленную с намагниченностью среды. Степень спиновой поляризации электронов проводимости *P* на уровне Ферми можно записать следующим образом:

$$P_{\alpha} = \frac{[D_{\alpha\uparrow}(E_F) - D_{\alpha\downarrow}(E_F)]}{[D_{\alpha\uparrow}(E_F) + D_{\alpha\downarrow}(E_F)]}; \alpha = 1,2.$$
(1.3)

 P_{α} – спиновая поляризация α -го ферромагнитного электрода, $D_{\alpha\uparrow}(E_F)$ и $D_{\alpha\downarrow}(E_F)$ – плотности состояний на уровне Ферми электронов α -го электрода с положительной и отрицательной проекцией спина на ось, сонаправленную с намагниченностью. Для определенности назовем соответствующие спиновые подзоны основной (спиновый момент сонаправлен с намагниченностью) и неосновной (спиновый момент направлен против намагниченности). В немагнитном металле спиновая поляризация равна нулю. Если электроны проводимости в материале полностью поляризованы по спину, то |P| = 1. Спиновая поляризация 3*d*-переходных металлов, таких как Ni, Co, Fe, как правило, положительна и лежит в диапазоне 0.3 – 0.6 [13].

ТМР-эффект впервые был обнаружен в 1975 г. Мишелем Жюльером в системе Fe/GeO/Co и составлял 14 % при температуре 4.2 К [6] (рис. 1.2).



Рисунок 1.2. Зависимость туннельного магнетосопротивления от электрического напряжения, приложенного к туннельному контакту Fe/GeO/Co, полученная Жюльером [6].

Для полученного простую описания результата он предложил феноменологическую модель, согласно которой величина туннельного спиновой магнетосопротивления определяется поляризацией электронов проводимости ферромагнитных электродов. Если принять, что намагниченности берегов коллинеарны и туннелирование происходит с сохранением спина, то можно считать, что электроны с различными проекциями спинового момента (↑ или ↓) туннелируют независимо друг от друга и только в соответствующие спиновую подзону. Тогда вероятность туннелирования электрона с одной из произведению проекций спина пропорциональна плотностей состояний соответствующих спиновых подзон «слева» и «справа» от барьера:

$$T_{\uparrow(\downarrow)} \sim D_1(E_{F1})_{\uparrow(\downarrow)} D_2(E_{F2})_{\uparrow(\downarrow)}.$$

Если намагниченности ферромагнетиков сонаправлены, то вероятность туннелирования электрона можно записать следующим образом:

(1.4)

$$T_{\uparrow\uparrow} \sim D_{1\uparrow} D_{2\uparrow} + D_{1\downarrow} D_{2\downarrow}. \tag{1.5}$$

То есть электроны туннелируют из основной спиновой подзоны первого электрода в основную спиновую подзону второго. Если же намагниченности противоположно направлены, тогда вероятность туннелирования запишется так:

$$T_{\uparrow\downarrow} \sim D_{\uparrow\uparrow} D_{2\downarrow} + D_{\uparrow\downarrow} D_{2\uparrow}. \tag{1.6}$$

В данном случае электроны туннелирование происходит из основной спиновой подзоны в неосновную и наоборот.

ТМР эффект можно определить через проводимости ТМК при сонаправленной $(\sigma_{\uparrow\uparrow})$ и противоположно направленной $(\sigma_{\uparrow\downarrow})$ ориентациях намагниченности ферромагнитных электродов следующим образом:

$$TMR = \frac{\sigma_{\uparrow\uparrow} - \sigma_{\uparrow\downarrow}}{\sigma_{\uparrow\downarrow}}.$$
(1.7)

Также известно, что проводимость туннельного контакта пропорциональна вероятности туннелирования:

$$\sigma_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)} \sim T_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}. \tag{1.8}$$

Тогда, зная $T_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$, для ТМР эффекта можно записать следующее выражение [6]:

$$TMR = \frac{(D_{1\uparrow} - D_{1\downarrow})(D_{2\uparrow} - D_{2\downarrow})}{D_{1\uparrow} D_{2\downarrow} + D_{1\downarrow} D_{2\uparrow}} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2},$$
(1.9)

где P_1 и P_2 – спиновые поляризации электродов. Такое выражение для обычных 3-*d* ферромагнетиков ($P \approx 0.3 - 0.6$) дает максимальное значение TMP эффекта около 100%. Наибольшие экспериментально наблюдаемые значения TMP эффекта в системах с аморфным барьером Al₂O₃ и электродами CoFeB составляют около 70 % при комнатной температуре [65, 66], что несколько ниже оценок по модели Жульера для TMK с 3*d* металлами из-за наличия термических флуктуаций спина, а также влияния несовершенства интерфейсов TMK, которые данная модель не учитывает.

Модель Жюльера предсказывает величину магнетосопротивления, но не несет никакой информации о зависимости проводимости ТМК от угла между намагниченностями ферромагнитных слоев, а также от параметров потенциального барьера. В 1989 году Слончевский [67], пользуясь приближением свободных электронов, решил задачу о спин-зависимом туннелировании в системе, состоящей из двух одинаковых 3-*d* металлов с однородной намагниченностью, разделенных прямоугольным потенциальным барьером, И получил выражение ДЛЯ проводимости ТМК для произвольного угла между намагниченностями электродов: $\sigma = \sigma_0 [1 + P_{eff}^2 cos\theta],$ (1.10)

Здесь θ – угол между намагниченностями, а P_{eff} – эффективная спиновая поляризация электродов, которая зависит как от волновых векторов электронов в ферромагнетиках k_{\uparrow} и k_{\downarrow} , так и от абсолютной величины волнового вектора внутри барьера \varkappa :

$$P_{eff} = \frac{(k_{\uparrow} - k_{\downarrow})(\varkappa^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow})}{(k_{\uparrow} + k_{\downarrow})(\varkappa^2 + k_{\uparrow}k_{\downarrow})}.$$
(1.11)

Проводимость σ_0 дается выражением:

$$\sigma_0 = \frac{\varkappa}{\hbar w} \left(\frac{|e|\varkappa}{\pi} \frac{(\varkappa^2 + k_\uparrow k_\downarrow)(k_\uparrow + k_\downarrow)}{(\varkappa^2 + k_\downarrow^2)(\varkappa^2 + k_\uparrow^2)} \right)^2 e^{-\varkappa w}, \tag{1.12}$$

где *w* – ширина (толщина) потенциального барьера. В общем случае ферромагнитные электроды могут быть разными. Тогда проводимость ТМК запишется в виде:

$$\sigma = \sigma_0' [1 + P_{1eff} P_{2eff} cos\theta], \tag{1.13}$$

где P_{1eff} и P_{2eff} вычисляются по формуле (1.11), в которой нужно заменить k_{\uparrow} и k_{\downarrow} на $k_{1\uparrow(\downarrow)}$ и $k_{2\uparrow(\downarrow)}$. Выражение для ТМР эффекта тогда можно записать в форме, предложенной Жульером, в которой учтены параметры барьера:

$$TMR = \frac{2P_{1eff}P_{2eff}}{1 - P_{1eff}P_{2eff}}.$$
(1.14)

Предложенные модели хорошо подходят для описания ТМР эффекта в системах с аморфными барьерами, где нет необходимости учитывать конкретную зонную структуру барьера и материалов электродов, а также симметрию различных электронных состояний. Среди туннельных барьеров наибольшее распространение получил оксид алюминия, и, как уже было сказано ранее, максимальное значение ТМР эффекта в ТМК с 3-*d* металлами и аморфным Al₂O₃ не превышает 70% при комнатной температуре. Однако существует класс материалов, в которых электроны проводимости являются полностью поляризованными по спину (P = 1). Такие материалы называют полуметаллами, наиболее известными из которых являются CrO₂, Fe₃O₄ некоторые сплавы Гейслера, такие как Co₂MnSi, оксиды со структурой перовскита типа La_{1-x}Sr_xMnO₃. Простейшая модель Жюльера предсказывает для ТМК с такими материалами в качестве электродов гигантские значения TMP эффекта, поскольку, формуле (1.9),*P*, согласно при приближающейся к единице, ТМР стремится к бесконечности. И действительно, в структурах La_{1-x}Sr_xMnO₃/SrTiO₃/La_{1-x}Sr_xMnO₃ [68] и Co₂MnSi/AlO_x/Co₂MnSi [69] продемонстрировано туннельное магнетосопротивление величиной в несколько сотен % при низких температурах, однако при комнатной температуре высоких значений ТМР эффекта в таких системах не наблюдается ввиду уменьшения спиновой поляризации электродов из-за тепловых флуктуаций.

Использование в качестве туннельного барьера кристаллического MgO (001) в композиции с электродами из Со, Fe и их сплавов позволяет получать TMP эффект

в несколько сотен % при комнатной температуре. Он получил название гигантский ТМР эффект. Для описания данного явления необходима более сложная, чем модели Жюльера и Слончевского, теория, учитывающая конкретную зонную структуру барьера и материалов электродов.

1.1.2 Природа гигантского туннельного магниторезистивного эффекта в структурах с барьером MgO

Так называемый, гигантский ТМР эффект был теоретически предсказан в 2001 году независимо друг от друга двумя группами во главе с Биллом Батлером [70] и Джорджем Мэтоном [71]. С использованием первопринципных расчетов они показали, что в ТМК с барьером из кристаллического (001) MgO могут реализовываться значения ТМР эффекта более 1000 %. Такие большие значения объясняется реализацией, так называемого, когерентного туннелирования, которое возможного только в кристаллических барьерах.

Известно, что в 3-*d* ферромагнетиках, таких как Со, Fe и Ni, на уровне Ферми существует 4 типа электронных состояний с различной симметрией волновых функций. Это Δ_1 -состояния *s-p-d-* гибридизированных электронов со сферической симметрией, Δ_2 - и Δ_2 '-состояния, d- электронов, обладающие симметрией четвертого порядка, а также Δ_5 -состояния, соответствующие p-dгибридизированным электронам с симметрией волновых функций второго порядка. Авторы работ [70] и [71] рассмотрели эпитаксиальную систему Fe(001)/MgO(001)/ Fe(001), в которой Fe-электроды имели ОЦК-структуру. Выбор такой композиции материалов был обусловлен отличным согласованием параметров кристаллических решеток MgO(001) со структурой типа NaCl и OЦК-Fe(001) (рис. 1.3), и, как следствие, технологической возможностью получения такой эпитаксиальной структуры.



Рисунок 1.3. Согласование параметров решеток MgO(001) и ОЦК-Fe(001). а) – вид сверху, б) – поперечное сечение границы раздела. $a_{MgO} = 0.4211$ нм, $a_{Fe} = 0.2867$ нм. Рисунок взят из [72]

Как известно, основной вклад в туннельный ток вносят электроны с волновым вектором, перпендикулярным поверхности барьера. В системе Fe(001)/MgO(001)/ Fe(001) это направление [001]. Если рассмотреть закон дисперсии Fe и Co в направлении [001] (Г-Н) (рис. 1.4), то оказывается, что Δ_1 -состояния *s-p-d*-гибридизированных электронов полностью поляризованы по спину, поскольку одна из спиновых подзон ($\Delta_{1\downarrow}$) лежит выше уровня Ферми [72]. Для остальных типов электронных состояний это не выполняется.



Рисунок 1.4. Законы дисперсии Fe (а) и Co (б) в направлении [001] (Г-Н). Данные взяты из [72]

В общем случае, когда барьер имеет аморфную структуру, в туннелировании равновероятно участвуют электроны всех типов. В случае же кристаллического MgO(001), как показали авторы работы [70], подавляющий вклад в туннельный ток вносят именно Δ_1 -электроны. На рис. 1.5 показаны плотности Δ_1 , Δ_2 ' и Δ_5 -состояний в системе Fe(001)/MgO(001)/Fe(001), полученные из первопринципных расчетов, откуда видно, что Δ_1 -состояния электронов имеют меньший коэффициент затухания в барьере по сравнению с остальными типами электронов.



Рисунок 1.5. Плотности Δ₁, Δ₂' и Δ₅-состояний в системе Fe(001)/MgO(001)/Fe(001). Рисунок взят из [72].

Таким образом, преобладающее туннелирование Δ_1 - электронных состояний, обладающих сферической симметрией волновых функций, а также их полная спиновая поляризация в случае, когда волновой вектор параллелен оси [001], обуславливают столь высокие значения предсказываемого ТМР эффекта.

1.1.3 ТМР эффект в эпитаксиальных структурах с барьером MgO

С момента предсказания гигантского ТМР эффекта было несколько попыток пронаблюдать его экспериментально в эпитаксиальных структурах Fe(001)/MgO(001)/Fe(001) [73 – 75]. Первые относительно высокие значения магнетосопротивления были получены в работе [74] и составили около 30%, что меньше, чем величины, получаемые в структурах с барьером AlO_x. Проблема

первых экспериментов состояла в том, что интерфейсы Fe/MgO изготавливаемых структур получались частично окисленными. Как показали численные первопринципные расчеты, наличие одного монослоя оксида железа на границе Fe/MgO приводят к уменьшению TMP эффекта на порядок [76], поэтому качество интерфейсов Fe/MgO имеют немаловажное значение наряду с правильной кристаллической ориентацией слоев.

Первые результаты по экспериментальному наблюдению гигантского ТМР эффекта величиной 180 % при комнатной температуре были получены авторами работы [77] в монокристаллических ТМК Fe(001)/MgO(001)/Fe(001) (рис. 1.6 (а)), полученных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Чуть позднее, ТМР эффект в 410% при комнатной температуре был обнаружен в эпитаксиальной структуре Co(001)/MgO(001)/Co(001) [78] (рис. 1.6 (б)).



Рисунок 1.6. Кривые магнетосопротивления ТМК на основе эпитаксиальных слоев а) – Fe(001)/MgO(001)/Fe(001) [77] и б) – Co(001)/MgO(001)/Co(001) [78].

Несмотря на то, что в монокристаллических структурах наблюдается магнетосопротивление, достаточное для их применения в магнитной памяти и сенсорике существуют факторы, ограничивающие их практическое применение. Во-первых, эпитаксиальный рост требует специальной подложки MgO(001), что делает невозможной интеграцию таких ТМК в КМОП-технологию. Во-вторых, для приборных приложений нижний слой ТМК должен быть закрепленным. Достаточный обменный сдвиг можно получить только, используя структуру, так

называемого, синтетического антиферромагнетика (или ферримагнетика) (САФ), которая имеет структуру FM/NM/FM, закрепленного антиферромагнетиком. Как правило, в качестве антиферромагнетика используется сплав IrMn, а в качестве нормального металла в составе САФ – Ru. Проблема состоит в том, что на антиферромагнетике IrMn, которая, как правило, при росте приобретает структуру ГЦК(111), обладающую симметрией третьего порядка, невозможно сформировать ОЦК-Fe(001) с симметрией четвертого порядка [72].

1.1.4 ТМР эффект в текстурированных структурах CoFeB(001)/MgO(001)/ CoFeB(001), получаемых методом магнетронного распыления

Описанная выше проблема была решена использованием в качестве электродов аморфного сплава CoFeB ферромагнитных И переходом OT эпитаксиального роста к магнетронному распылению. Данный метод, к тому же, является существенно более дешевым и производительным по сравнению с молекулярно-лучевой эпитаксией.

Удачным стечением обстоятельств оказалось то, что выращиваемая на аморфном CoFeB слое пленка MgO приобретает кристаллическую осевую текстуру (001) уже при толщине менее 1 нм, тогда как при росте на других аморфных подслоях MgO не кристаллизуется при толщинах более 3 – 4 нм [79]. Причем уже при небольшом непреднамеренном повышении температуры либо при ростовом процессе, либо при пробподготовке для просвечивающей электронной микроскопии наблюдается полная кристаллизация слоя MgO [72]. Схема роста структуры CoFeB(аморф.)/MgO(001)/CoFeB(аморф.) приведена на рис. 1.7.



Рисунок 1.7. Схема ростового процесса структуры СоFeB(аморф.)/MgO(001)/CoFeB(аморф.). Рисунок взят из [72]

Для придания аморфным слоям CoFeB осевой текстуры ОЦК-CoFeB(100) выращенная структура подвергается термическому отжигу при температуре выше 250 °С, в процессе которого происходит кристаллизация аморфных слоев CoFeB от интерфейсов с текстурированным MgO(001), в результате чего формируется структура CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(001) (рис. 1.18 (a)). Правильность протекания процесса, так называемой, твердофазной эпитаксии сильно зависит от материалов подслоя и покровного слоя, граничащих с CoFeB. Например, если на аморфном CoFeB вырастить слой пермаллоя, который имеет текстурированную структуру ГЦК-NiFe(111), то при отжиге кристаллизация слоя аморфного CoFeB начнется именно от этого интерфейса, а не от границы с MgO, и CoFeB получит осевую текстуру ГЦК-СоFeB(111) [79]. Это связано с тем, что кристаллизация от границы с MgO начинается при большей температуре (рис. 1.8 (б)), чем от ГЦК-NiFe(111).



Рисунок 1.8. Схема процесса кристаллизации слоя аморфного CoFeB в процессе термического отжига. Рисунок взят из [72]

На рис. 1.9 приведены значения получаемого ТМР эффекта в структурах CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(100) с различными материалами покровных слоев [72].



Рисунок 1.9. Значения ТМР эффекта при комнатной температуре в структурах CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(100) с различными материалами покровных слоев. Рисунок взят из [72]

Максимальное значение ТМР эффекта на сегодняшний день составляет 600% при комнатной температуре и получено в ТМК CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(100), сформированных методом магнетронного распыления с последующим термическим отжигом [80]. Именно эта технология изготовления туннельных магнитных контактов получила распространение в коммерческих продуктах на их основе.

1.2 Технология туннельных магнитных контактов в ИФМ РАН

В ходе выполнения диссертационной работы были развиты технологические методы создания ТМР контактов, которые применялись для получения исследуемых образцов.

Накоплен достаточно большой опыт изготовления ТМК как с аморфным туннельным барьером Al₂O₃, так и с текстурированным MgO(001), с различной латеральной формой и размерами от нескольких микрометров до сотен нанометров. В зависимости от геометрии ТМК, а также его структуры получены различные распределения намагниченности свободного слоя и, соответственно кривые магнетосопротивления. Величина произведения сопротивления исследуемых контактов на их площадь варьируется в пределах 1 – 10³ кОм⋅мкм² в зависимости от толщины диэлектрического барьера.

1.2.1 Технологические основы изготовления магнитных наноструктур

Технология изготовления всех исследованных в диссертации магнитных была отработана непосредственно наноструктур В ходе выполнения диссертационной работы. Исследованные в работе эффекты И свойства наноструктур в большой степени определяются технологическими приемами их изготовления. В данном разделе дается обзор известных технологических методов и обсуждается их адаптация для изготовления исследуемых образцов. Особое внимание уделено особенностям формирования туннельных магнитных контактов с различными магнитными и транспортными свойствами как наиболее сложному объекту с технологической точки зрения.

- 34 -

Процесс изготовления тонкопленочных магнитных наноструктур, как правило, можно разделить на 2 стадии. Первая стадия – это нанесение структуры на подложку. Ростовому процессу в зависимости от конкретной задачи предшествует выбор материала подложек и их химическая, термическая и ионная подготовка. Вторая стадия – это постростовая обработка. Эта стадия может включать различные операции над сформированной тонкопленочной структурой с целью модификации ее физических свойств, такие как термический отжиг, ионное облучение и т. д. Для получения рисунка в сформированной пленке применяется литография с последующим жидкостным или сухим травлением. В зависимости от нужного латерального размера элементов применяются оптическая (1 - 2 мкм), ультрафиолетовая (0.5 - 0.8 мкм), рентгеновская (< 100 нм) или электронная (< 100 нм) литография.

Многослойные магнитные наноструктуры, как правило, представляют собой последовательность сформированных на подложке тонких металлических и диэлектрических слоев толщиной от единиц до десятков нм. Осаждение слоев с толщиной до нескольких монослоев требует чрезвычайно высокого вакуума для обеспечения однородности пленок и минимальной концентрации примесей. За последние несколько десятилетий в вакуумной технологии достигнут огромный прогресс, который стимулировал развитие микроэлектроники, в том числе спинтроники.

Наиболее распространенными методами формирования тонких металлических и диэлектрических пленок и многослойных наноструктур являются методы термического испарения и ионного распыления. Оба метода относятся к классу физического осаждения из газовой фазы (PVD). Испарение, как следует из названия, представляет собой удаление поверхностных атомов из мишени путем нагрева, при котором атомы материала приобретают кинетическую энергию, достаточную для отрыва от поверхности и движения до подложки. Нагрев испаряемого вещества может осуществляться пропусканием по нему (или по тиглю) электрического тока, электронным пучком (электронно-лучевое испарение) или лазерным лучом (лазерная абляция).

При ионном распылении атомы мишени выбиваются из нее путем бомбардировки материала ускоренными ионами. Существует несколько методов

- 35 -

ионного распыления, самым ранним среди которых является катодное распыление. При подаче постоянного напряжения между катодом и анодом (1 – 5 кВ), находящимися в разреженном газе при давлении порядка 0.1 Торр, возникает тлеющий разряд. Образующиеся при этом ионы ускоряются по направлению к катоду и вызывают распыление мишени. Нейтральные атомы, а также небольшие их группы (кластеры), выбитые из катода-мишени, осаждаются на подложке.

Дальнейшим развитием методов ионного распыления и наиболее совершенным из них стало магнетронное распыление [81]. Его ключевой особенностью стало использование магнитной системы, позволяющей локализовать плазму тлеющего разряда вблизи мишени, а также увеличить скорость распыления материала за счет увеличения плотности ионного тока. Кроме того, магнетронное распыление по сравнению с катодным характеризуется существенно меньшим напряжением поддержания разряда, что позволяет несколько снизить энергию бомбардирующих ионов и, следовательно, энергию осаждаемых атомов. Это достигается за счет использования скрещенного электрического и магнитного поля, позволяющего существенно увеличить эффективность ионизации атомов рабочего газа за счет циклоидальной траектории движения электронов (рис. 1.10). При этом плазма газового разряда локализуется вблизи мишени, где создается максимальная напряженность магнитного поля.



Рисунок 1.10. Траектории движения электрона и иона в скрещенных электрическом и магнитном полях. Рисунок взят из [81].
Магнетроны могут работать при давлении рабочего газа 0.5 – 30 мТорр, а скорость напыления может варьироваться в широких пределах и составлять от долей нанометров до десятков нанометров в секунду. Магнетронное распыление может быть использовано ДЛЯ осаждения как металлических, так И диэлектрических материалов. В первом случае используется газовый разряд на постоянном токе, во втором – высокочастотный (радиочастотный) газовый разряд. Дело в том, что при ионной бомбардировке диэлектрической мишени на ее поверхности может накапливаться положительный заряд, электрическое поле от которого может компенсировать внешнее приложенное напряжение, в результате чего плазма не инициируется. Этого накопления заряда можно избежать, подавая высокочастотное (ВЧ) напряжение между катодом и анодом. Обычно, в ВЧ магнетронном распылении, а также большинстве ВЧ ионных источников используются напряжение частотой 13,56 МГц.

Магнетронное распыление позволяет формировать различные соединения (оксиды, нитриды и т. д.) при распылении металлических мишеней в атмосфере смеси рабочего газа с добавлением реактива, например, кислорода или азота. Так называемое, реактивное магнетронное распыление может осуществляться как на переменном, так и на постоянном токе.

преимуществ, которыми обладает магнетронное Среди распыление ПО отношению к термическому испарению, можно выделить хорошую адгезию формируемых пленок, благодаря относительно высокой кинетической энергии осаждаемых атомов (2 – 30 эВ). Данный метод позволяет выращивать пленки тугоплавких материалов, а также многокомпонентных сплавов без существенного нарушения стехиометрии получаемых пленок (по отношению к составу распыляемой мишени). В отличие от термического испарения, при магнетронном распылении не происходит существенного разогрева подложки, что позволяет выращивать многослойные структуры с резкими интерфейсами, а также формировать пленки на подложках с низкой термической стойкостью.

Магнетронное распыление является наиболее универсальным методом формирования тонкопленочных структур, позволяющим получать сплошные металлические и диэлектрические слои толщиной 1 нм. Пленки, осажденные при комнатной температуре, характеризуются в основном поликристаллической

- 37 -

структурой с относительно небольшим размером зерна (от нескольких нм до десятков нм), который может существенно увеличиваться с ростом температуры подложки, часто в формируемых слоях наблюдается осевая текстура. Кроме того, в некоторых случаях возможен и эпитаксиальный рост [82].

Среди наиболее важных требований, предъявляемых к исследованным в диссертации наноструктурам, можно выделить сплошность тонких слоев и резкость интерфейсов между ними. Кроме того, все изготавливаемые структуры содержат тугоплавкие материалы и диэлектрические слои. Метод магнетронного распыления позволяет удовлетворить всем перечисленным требованиям, поэтому был использован для получения образцов.

Для модификации магнитных свойств, а также для организации электронного транспорта в магнитной наноструктуре или отдельных ее слоях необходимо сформировать некоторый рисунок. Это могут быть массивы микро - или наночастиц различной формы, полоски и т. д. Кроме того, разработка и изготовление приборов микроэлектроники требует формирования большого числа дополнительных функциональных слоев (изоляция, электрическая разводка) с заданной топологией.

Создание рисунка в тонкой пленке реализуется в два этапа. Первый этап – литография, в процессе которой на поверхности образца формируется маска из резиста, чаще всего представляющего собой некоторое полимерное соединение, изменяющее химические свойства в результате какого-либо воздействия (оптического, электронного, ионного). Второй этап может включать в себя травление структуры в резистивной маске (рис. 1.11, а) или напыление дополнительных функциональных слоев на структуру с маской с последующим ее удалением. Последний вариант называют «взрывной литографией» или lift-off (рис. 1.11, б).



Рисунок 1.11. Способы формирования рисунка в тонкопленочной структуре. а) – литография с последующим травлением в резистивной маске; б) – взрывная литография. Рисунок взят из [83].

Процесс литографии любого типа включает в себя несколько последовательных технологических операций, и начинается с подготовки поверхности подложки, себя включающей В обезжиривание органических растворителях, В гидромеханическую очистку (в некоторых случаях), отмывку в деионизованной воде и сушку. На очищенную обезжиренную подложку наносится слой резиста обычно методом центрифугирования. Затем выполняется сушка резиста, при которой из него удаляется растворитель и происходит сложный релаксационный процесс плотной упаковки молекул, уменьшающий внутренние напряжения и увеличивающий адгезию к поверхности подложки. Следующим и ключевым этапом литографического процесса является экспонирование резиста, заключающееся в локальном воздействии на него электромагнитного излучения (фотолитография), ультрафиолетового (УФ-литография) оптического или рентгеновского (рентгеновская литография) диапазона, а также потока электронов (электронная литография) или ионов (ионно-лучевая литография). Облучение может производиться через предварительно изготовленную маску, содержащую рисунок, который необходимо перенести в слой резиста (масочная литография) или путем сканирования поверхности сфокусированным лучом (безмасочная или сканирующая литография). В случае безмасочной литографии рисунок, который нужно сформировать в слое резиста, хранится в цифровом виде в памяти компьютера, управляющего движением литографического столика (в случае оптической литографии) или отклонением электронного пучка. При облучении происходит изменение химических свойств резистивного материала, а именно

растворимости его в специальных проявителях. Заключительный этап литографии – проявление, состоит в удалении после экспонирования ненужных участков резиста с подложки. В результате этого на поверхности остается защитный рельеф требуемой конфигурации. Последовательность выполнения отдельных операций всех методов литографии является практически одинаковой. Различие состоит только в способе воздействия на слой резистивного материала при выполнении операции экспонирования.

Для создания объектов с латеральными размерами от 1 мкм используется стандартная оптическая литография с длиной волны излучения 310 – 450 нм. Для научно-исследовательских работ наиболее подходящим методом является безмасочная (лазерная) оптическая литография. Ее основным достоинством перед проекционными и контактными методами является отсутствие необходимости фотошаблонов, предварительного изготовления ЧТО делает ee гибкой И универсальной при изготовлении мелких партий разнообразных по топологии образцов, что необходимо при проведении научных исследований. Минимально возможный размер элемента определяется точностью фокусировки лазерного луча, длиной волны излучения, а также свойствами используемых фоторезистов.

В соответствии с принципами локальности и послойности технологических обработок В процессе изготовления структур микросхем фотолитография В зависимости от количества формируемых проводится несколько раз, топологических слоев. Начиная со второй фотолитографии, необходима процедура совмещения фотошаблонов с уже имеющимся на подложке рисунком. Поэтому еще одним параметром, определяющим технологический уровень фотолитографии, является точность совмещения топологических слоев.

После формирования топологического рисунка из резиста методами литографии необходимо перенести его в функциональный слой структуры. Для этого методы которых наибольшее применяются различные травления, среди распространение в технологии микроэлектроники на сегодняшний день получили сухие или вакуумно-плазменные методы, отличающиеся ОТ жидкостных существенно более высокой разрешающей способностью и воспроизводимостью.

- 40 -

По механизму взаимодействия низкотемпературной плазмы с поверхностью обрабатываемого материала различают три основных вида вакуумно-плазменного травления (рис. 1.2) [84 – 86]: ионное, плазмохимическое и реактивно-ионное.

Ионное травление (ion etching) – это процесс, при котором поверхностные слои материалов удаляются только В результате физического распыления энергетическими ионами инертных газов. Если при обработке подложка расположена в зоне, где существует плазма разряда, такой процесс травления называют ионно-плазменным (sputter-etching). Если обрабатываемая пластина отделена от области плазмы, то травление называют ионно-лучевым (ion beam etching, ion beam milling). В результате взаимодействия ускоренного иона с атомом распыляемого материала возникает каскад упругих столкновений (рис. 1.12), результатом которого может стать передача поверхностному атому достаточной энергии и необходимого импульса нужной направленности (наружу из материала) для преодоления сил его связи на поверхности. Как правило, для ионного травления используются ионы тяжелых инертных газов, таких как Ar и Xe с энергиями от нескольких сотен до тысяч эВ. Ионно-лучевое травление является наиболее прецизионных способов одним ИЗ травления, позволяющих сформировать рисунок с минимальными линейными размерами без уходов относительно маски. Этим методом были получены элементы шириной порядка 20 - 30 нм на глубину до 50 - 60 нм [84]. Эти результаты обусловлены высочайшей направленностью ионного потока и отсутствием других травящих частиц, обладающих меньшей направленностью воздействия, за счет чего достигается сильная анизотропия травления. В то же время данный метод не обладает селективностью по отношению к маске и поэтому не позволяет разрешать размеры на большую глубину. При ионном травлении имеют место эффекты перепыления материала на стенки. Кроме того, при ионной обработке неизбежно возникает большое количество радиационных дефектов в приповерхностной области стенок и дна обрабатываемой области.



Рисунок 1.12. Схема каскада упругих столкновений атомов А в материале при ионной бомбардировке.

Плазмохимическое травление (ПХТ) заключается в удалении поверхностных слоев материала в результате химических реакций с химически активными частицами плазмы (свободные атомы, возбужденные молекулы, радикалы и, частично, низкоэнергетичные ионы с энергией в диапазоне 20 – 70 эВ) [84]. Характерно, что для всех процессов ПХТ проявляется ярко выраженный изотропный профиль травления. Благодаря химической природе, ПХТ характеризуется высокой селективностью, что очень полезно при травлении пленок большой толщины, состоящих из одного материала. Поскольку при ПХТ не происходит бомбардировка материала ионами, данный метод не приводит к образованию радиационных дефектов.

Ионно-химическое или реактивно-ионное травление (reactive ion etching) – это процесс, при котором поверхностные слои материала удаляются в результате как физического распыления энергетическими ионами, так и химических реакций между химически активными частицами и поверхностными атомами материала.

Схематически разновидности процессов вакуумно-плазменного травления отражены на рис. 1.13.



Рисунок 1.13. Схематическое изображение разновидностей вакуумноплазменного травления. Рисунок взят в [83]

При изготовлении исследуемых в диссертации туннельных контактов использовался метод ионно-лучевого травления ввиду необходимости удаления в одном процессе слоев материалов с различными химическими свойствами. Данный метод является универсальным и позволяет формировать топологический рисунок в сложных многослойных структурах. Кроме того, высокая анизотропия ионного травления обеспечивает высокое латеральное разрешение процесса.

1.2.2 ТМК с барьером Al₂O₃

ТМК с барьером из аморфного оксида алюминия интенсивно исследовались в период с 1995 по 2004 годы, за который ученым удалось достигнуть величины ТМР эффекта в 70 % при комнатной температуре [65, 66], что близко к пределу феноменологической модели, предложенной Жюльером [6]. ТМК с барьером Al₂O₃ использовались для разработки датчиков магнитного поля [87], магниторезистивной памяти [88], а также применялись в считывающих головках жестких дисков [89].

В ИФМ РАН была отработана технология изготовления ТМК на основе многослойных структур NiFe/Al₂O₃/CoFe/IrMn, демонстрирующих магнетосопротивление величиной 10 – 15 % при комнатной температуре [A1]. Для их адаптации для использования в датчиках магнитного поля было проведено

исследование зависимости вида кривых магнетосопротивления R(H) от аспектного соотношения ТМК прямоугольной формы с латеральными размерами 1.5 – 4 мкм, а также от взаимной ориентации внешнего магнитного поля и оси однонаправленной анизотропии, совпадающей с длинной стороной ТМК [A1].

Многослойные наноструктуры, состоящие из нижнего контактного слоя Ta(20)/ Pt(20)/Ta(20)/Pt(5)/Ta(5), магниточувствительного слоя NiFe(7)/Al₂O₃(d)/CoFe(7)/ IrMn(15) и покровного слоя Ta(5)/Pt(5) (толщины указаны в нанометрах) формировались методом высоковакуумного магнетронного распыления при комнатной температуре на установке ATC-2200 (AJA International. Inc., CША). Остаточное давление в напылительной камере не превышало 5×10^{-7} Topp, рабочее давление аргона в процессе напыления составляло 2×10^{-3} Topp. Диэлектрические слои Al₂O₃ получались методом реактивного высокочастотного магнетронного распыления металлической мишени Al в атмосфере смеси газов Ar и O₂. Толщина диэлектрика *d* для разных образцов варьировалась от 0.9 до 1.5 нм. Формирование всех слоев структуры производилось в одном технологическом процессе без нарушения вакуума. На рис. 1.14 в приведено изображение поперечного среза TMP-структуры, полученное на просвечивающем электронном микроскопе.



Рисунок 1.14. а) – схематическое изображение поперечного сечения двух соседних элементов в цепочке ТМК; б) – фотография двух элементов цепочки.

Изолятор – окись тантала, верхний контакт – золото; в) – светлопольное изображение поперечного сечения ТМР-структуры, полученное в просвечивающем электронном микроскопе [A1]. Контроль магнитных свойств полученных пленок осуществлялся методами оптической керровской магнитометрии в меридиональной конфигурации на длине волны 632 нм. На рис. 1.15 приведена кривая намагничивания одной из полученных структур. Формирование однонаправленной анизотропии ферромагнитного слоя CoFe осуществлялось без процедуры отжига. Для этого напыление антиферромагнитного слоя IrMn производилось в магнитном поле напряженностью 150 Э. При этом слой CoFe находился в магнитном состоянии однородного насыщения и диктовал направление намагниченности приграничных слоев антиферромагнетика за счет обменного взаимодействия. Соответственно после отключения поля слой CoFe оказывается запиннингованным на подслое IrMn.



Рисунок 1.15. Характерная кривая намагничивания ТМР-структур. Характерные поля перемагничивания свободного (F) и закрепленного (P) слоя, обозначены на рисунке как H_{F1}, H_{F2}, H_{P1}и H_{P2}[A1].

Методом безмасочной оптической литографии и ионно-лучевого травления в атмосфере аргона из полученных многослойных наноструктур формировались частицы прямоугольной формы с размерами 2 × 3 и 1.5 × 4 мкм. Прямоугольники имеют закругленные углы с радиусом закругления ~ 0.25 мкм, что обусловлено разрешением литографической установки. Для предотвращения статического пробоя при проведении транспортных измерений отдельные ТМК последовательно соединялись в цепочки по 50 штук мостиками из золота (рис. 1.14, (а), (б)).

Результаты измерения зависимости сопротивления цепочек ТМК от внешнего магнитного поля R(H) показали наличие ТМР-эффекта величиной 10–15% при комнатной температуре. При этом форма кривой R(H) завит от взаимных ориентаций оси однонаправленной анизотропии CoFe (и совпадающей с ней осью легкого намагничивания свободного слоя NiFe), длинной стороны прямоугольного ТМК и приложенного магнитного поля. Характерная форма кривых R(H) цепочек ТМК при намагничивании поперек (перпендикулярная геометрия) и вдоль оси (продольная геометрия) однонаправленной анизотропии приведена на рис. 1.16 и 1.17 соответственно. Форма кривой R(H) при перпендикулярном намагничивании свидетельствует о том, что ось легкого намагничивания слоя NiFe совпадает с осью однонаправленной анизотропии закрепленного слоя. При этом следует отметить, что форма ТМК не оказывает заметного влияния на кривую в этой геометрии.



Рисунок 1.16. Характерный вид R(H) цепочек ТМР-контактов во внешнем поле, направленном перпендикулярно оси однонаправленной анизотропии [A1].

Смена направления внешнего магнитного поля с перпендикулярного на продольное качественно изменяет форму зависимости R(H). На рис. 1.17 приведены соответствующие кривые R(H) цепочек ТМК различной геометрии. Цепочки отличались различным аспектным соотношением сторон прямоугольных ТМК, а также направлением длинной стороны относительно оси пиннинга. В этом случае зависимости R(H) имеют форму, близкую к прямоугольной (рис. 1.17), что соответствует перемагничиванию ферромагнитных слоев вдоль их легких осей.

Влияние формы областей ТМР-контактов и их ориентации относительно внешнего поля проявляется в изменение наклона петли, соответствующей перемагничиванию слоя CoFe, тогда как на петле NiFe форма TMP-контактов практически не сказывается. По-видимому, это связано с тем, что одноосная анизотропия слоя NiFe, возникающая в результате напыления структуры во внешнем магнитном поле, превалирует над анизотропией формы.



Рисунок 1.17. Зависимости R(H) цепочек с различной геометрией TMPконтактов. Латеральные размеры областей: а, б – 1.5×4 мкм; в, г – 2×4 мкм. Характерные поля перемагничивания свободного (F) и закрепленного слоя (P), обозначенные на рисунке как *HF*₁, *HF*₂, *HP*₁ и *HP*₂, соответствуют полям на рис.

1.22 [A1]

Полученные ТМК не проявляют максимально возможного магниторезистивного эффекта для структур с аморфным барьером Al₂O₃. Одним из путей увеличения магнетосопротивления является оптимизация ТМР структуры, в том числе ферромагнитных электродов с целью увеличения их спиновой поляризации. Это позволит увеличить ТМР эффект до 70 %, что является приемлемым значением для разработки высокочувствительных датчиков магнитного поля, но недостаточно для применения в магниторезистивной памяти, для которой требуется ТМР эффект не менее 200 %. Такие значения магнетосопротивления могут быть получены в ТМК на основе структур CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(001) с текстурированными слоями, формируемыми методом магнетронного распыления.

1.2.3 ТМК с барьером MgO

ТМК CoFeB(001)/MgO(001)/CoFeB(001) интенсивно исследуются, начиная с 2005 года [7] и на сегодняшний день составляют основу большинства устройств, основанных на эффекте магнетосопротивления, среди которых можно выделить датчики магнитного поля [11] и магниторезистивную память с произвольным доступом [10], в том числе уже выпускаемую на коммерческой основе.

В 2020 году в ИФМ РАН была отработана технология изготовления многослойных ТМР структур CoFeB/MgO/CoFeB [A2] и ТМК на их основе, проявляющих ТМР эффект величиной 200 % при комнатной температуре [A3]. В ходе решения различных задач изготавливались ТМК с микронными и субмикронными латеральными размерами, квазиоднородным и вихревым распределением намагниченности свободного слоя.

Типовая структура ТМК с квазиоднородным распределением намагниченности свободного слоя состоит из нижнего контактного слоя Ta(20)/Pt(10)/Ta(20), магниточувствительного слоя IrMn(10)/CoFeB(4)/MgO(1.5)/CoFeB(2.5)И покровного слоя Ta(3)/Pt(10). Структуры выращивались на подложках Si/SiO₂ методом магнетронного распыления при комнатной температуре. Остаточное давление в ростовой камере не превышало 3×10^{-7} Торр. Туннельный барьер MgO формировался методом высокочастотного магнетронного распыления стехиометрической мишени MgO в атмосфере чистого аргона при рабочем давлении 1.5×10^{-3} Торр. Металлические слои распылялись при постоянном токе при рабочем давлении 2×10^{-3} Торр. Перед проведением ростового процесса подложки подвергались ионной обработке в высокочастотной аргоновой плазме.

Для формирования ТМК микронного и субмикронного латерального размера применялись соответственно безмасочная оптическая и электронно-лучевая литография с последующим ионно-лучевым травлением в атмосфере аргона. После проведения всех операций электрической изоляции и металлизации ТМК готовые чипы подвергались термическому отжигу в вакууме при температуре 330 °C в течение 2 часов, после которого наблюдалось увеличение ТМР эффекта с 10 – 15% до 100 – 200 % (рис. 1.18). Одновременно с этим происходит уменьшение обменного сдвига закрепленного слоя ТМК, вероятно, обусловленное диффузией

- 48 -

атомов Mn из антиферромагнитного слоя IrMn и нарушением качества границы CoFeB/IrMn.

Увеличение магнетосопротивления при отжиге связано с рекристаллизацией аморфных слоев CoFeB от интерфейса с текстурированным барьером MgO[001], который, в свою очередь, навязывает ферромагнитным слоям кристаллографическую ориентацию [001]. Сам слой MgO изначально приобретает кристаллическую структуру, ориентированную в направлении [001], при напылении на слой аморфного CoFeB. Наличие кристаллической текстуры слоев MgO [001] и CoFeB [001] является обязательным условием для наблюдения гигантского ТМР эффекта в данной системе.



Рисунок 1.18. Кривые магнетосопротивления цепочки ТМК CoFeB/MgO/CoFeB:(a) – до и (б) – после термического отжига, измеренные при напряжении 50 мВ в расчете на один контакт [А3]

При решении различных задач, связанных с исследованием статических и динамических транспортных свойств ТМК, предъявлялись различные требования к форме кривых R(H) а также к распределению намагниченности в свободном слое. Для разработки магниторезистивной памяти необходимым требованием, предъявляемым к ТМК, является бистабильность, остаточная намагниченность, близкая к единице, а также малый латеральный размер контакта. Для удовлетворения всем этим требованиям была отработана технология изготовления ТМК субмикронного латерального размера c применением электронной литографии [А4]. При переходе от микронных латеральных размеров к нескольким сотням нм форма кривой R(H) претерпевает существенные изменения. На рис. 1.19 приведены кривые R(H) одиночных ТМК с размерами 2×4 мкм и 200×300 нм, магнитного поля, построенные В диапазонах В которых происходит свободных перемагничивание только слоев исследуемых структур, а намагниченность закрепленного слоя не меняется.



Рисунок 1.19. Участки кривых магнетосопротивления, отвечающие процессу перемагничивания свободного слоя одиночного ТМК с латеральными размерами: а) 2×4 мкм; б) 200×400 нм [A4]

Если для ТМК с размерами 2×4 мкм диапазон магнитного поля, при котором происходит переключение резистивного состояния, близок к ширине кривой магнетосопротивления и составляет около 30 – 50 Э для разных образцов, то для ТМК субмикронного латерального размера характерно резкое переключение. Дело в том, что перемагничивание свободного слоя ТМК микронных размеров

происходит через ряд неоднородных состояний, а в субмикронных ТМК реализуются два устойчивых однодоменных состояния, переключение между которыми происходит путем когерентного вращения намагниченности.

В ИФМ разработана оригинальная технология получения вихревых ТМК на основе CoFeB/MgO/CoFeBc композитным свободным слоем CoFeB^T (7)/CoFeB^A(40), где индексы «Т» и «А» означают «текстурированный» и «аморфный» [A4, A5]. Такая структура свободного слоя, с одной стороны, позволяет добиться высоких значений магнетосопротивления, с другой вихревого _ распределения намагниченности в свободном слое при условии соблюдения необходимой для Ha 1.20 этого латеральной геометрии. рис. приведены кривые магнетосопротивления цепочки из 5 круглых ТМК диаметром около 700 нм со $IrMn(10)/CoFeB^{T}(4)/MgO(1-1.5)/CoFeB^{T}(7)/CoFeB^{A}(40).$ Технология структурой изготовления подробно описана в [АЗ, А4].



Рисунок 1.20. а), б) – изображение вихревого ТМК, полученное в растровом электронном микроскопе; в), г) – кривые магнетосопротивления цепочки из 5 последовательно соединенных вихревых ТМК диаметром около 700 нм в различных диапазонах внешнего магнитного поля [А5].

Полученные ТМК имеют характерную для вихревого распределения намагниченности кривую гистерезиса с узкой перемычкой в нулевом поле [1] (рис. 2, в). Необходимо особо подчеркнуть, что если диапазон изменения магнитного поля меньше, чем критическое поле выхода магнитного вихря из свободного слоя, то кривая ТМР эффекта имеет линейный безгистерезисный вид (рис. 2, г).

В настоящее время можно выделить три основных направления развития спинтроники, в которых применение вихревых ТМР контактов видится особенно перспективным. Во-первых, это разработка высокочувствительных ТМР датчиков магнитного поля [90, 91], для которых необходима линейная и безгистерезисная зависимость R(H). Второе направление разработки практического применения вихревых ТМР контактов — это создание так называемых спин-трансферных наноосцилляторов, являющихся компактными источниками СВЧ излучения [32, 92 – 94]. Принцип их работы заключается в возбуждении гиротропных автоколебаний магнитного вихря в свободном слое с частотой несколько сотен мегагерц при протекании постоянного тока через туннельный контакт. Обратный эффект, а именно возникновение постоянного тока при приложении к вихревому ТМР контакту переменного СВЧ напряжения получил название спин-трансферного диодного эффекта. Предполагается, что он может быть успешно использован для извлечения энергии ИЗ присутствующих в технологическом окружении неравновесных переменных электрических полей [64]. Этот так называемый «электромагнитный харвестинг» может быть осуществлен при входящей мощности порядка 1 мкВт и ниже [95].

Глава 2. Магнитоэлектрический эффект в ТМК СоFeB/MgO/CoFeB

Одной из наиболее актуальных практически значимых задач спиновой электроники является управление магнитным состоянием наносистем электрическим полем (магнитоэлектрический эффект), т. е. без протекания токов больших плотностей. Основной целью исследования магнитоэлектрических эффектов в многослойных магнитных наноструктурах является повышение энергоэффективности магниторезистивной памяти с произвольным доступом и плотности записи информации.

Настоящая глава посвящена результатам исследования нового обнаруженного эффекта, заключающегося в зависимости межслоевого обменного взаимодействия от величины электрического поля, приложенного к туннельному магнитному контакту CoFeB/MgO/CoFeB. Приводятся результаты исследования зависимости магнитного поля переключения свободного слоя TMK от напряжения, приложенного к туннельному барьеру. Описаны эксперименты по переключению резистивного состояния TMK короткими импульсами напряжения. Полученные результаты опубликованы в работах [А3, А6].

2.1 Способы переключения состояния ячейки MRAM

Элемент MRAM представляет собой ТМК, который в отсутствие внешнего магнитного поля может находиться в двух стабильных логических состояниях, условно называемых «0» и «1», соответствующих двум уровням электрического сопротивления. Резистивное состояние ТМК определятся взаимной ориентацией намагниченности свободного и закрепленного слоев, поэтому для переключения логического состояния элемента памяти необходимо изменить магнитное состояние системы.

Наиболее изученным и используемым в коммерчески доступных продуктах способом переключения состояния ячеек магниторезистивной памяти является пропускание электрического тока. В ранних версиях MRAM перемагничивание свободного слоя ТМК осуществлялось магнитным полем от взаимно перпендикулярных токовых шин записи (toggle MRAM) [88]. Для снижения порогового тока переключения и обеспечения высокой термической стабильности ячеек памяти, данный способ может сопровождаться локальным разогревом ТМК путем пропускания тока непосредственно через выбранный контакт (thermal assisted MRAM или TAS-MRAM) [96].

Более современным и эффективным способом переключения состояния ячеек MRAM, заменивших toggle-MRAM и TAS-MRAM и промышленно выпускаемых на сегодняшний день, является использование эффекта передачи спинового момента (spin-transfer torque) свободному слою TMK от закрепленного при пропускании спин-поляризованного электрического тока через барьер (STT-MRAM) [35, 36]. Инжекция спин-поляризованного тока в свободный слой TMK может осуществляться при протекании электрического тока через дополнительный слой тяжелого металла за счет спинового эффекта Холла (spin-orbit torque MRAM или SOT-MRAM) [30, 31].

Все описанные выше методы переключения имеют свои достоинства и недостатки, подробно описанные в [97, 98]. Но общей их проблемой является необходимость пропускания тока высокой плотности (10⁷ A/cm² и выше), что обуславливает проблемы, связанные с высоким энергопотреблением и масштабированием.

Одним из возможных вариантов решения проблемы энергоэффективности MRAM – это использование эффекта электрического управления магнитной анизотропией (VCMA, Voltage Control of Magnetic Anisotropy) [43 – 46]. Зависимость поверхностной магнитной анизотропии от напряжения, приложенного к ТМК, обусловлена зарядовой аккумуляцией на границе ферромагнетика с туннельным барьером, изменением зонной структуры и спин-орбитального взаимодействия в тонком слое ферромагнетика. Переключение становится возможным, когда в результате приложения напряжения в свободном слое структуры реализуется переход от перпендикулярной анизотропии к анизотропии типа легкая плоскость. Тогда, если существует небольшое постоянное магнитное поле в плоскости, намагниченность начнет прецессировать вокруг этого поля. Для осуществления переключения импульс напряжения необходимо выключить на первом полупериоде прецессии (несколько сотен пикосекунд). Явным

- 54 -

преимуществом VCMA-MRAM является малый ток переключения, не превышающий 2×10^5 A/cm², однако описанный метод переключения предъявляет жесткие требования к форме и длительности импульсов напряжения. Кроме того, слабая зависимость поверхностной магнитной анизотропии от электрического напряжения приводит к необходимости формирования свободного слоя со слабой перпендикулярной анизотропией, что сказывается на термической стабильности VCMA-MRAM.

Эффект управляемой анизотропии также используют в качестве ассистирующего при перемагничивании спин-поляризованным током [99], однако, барьер переключения снижается только в одном из направлений (например, из «0» в «1»).

Известны попытки объединить механизмы SOT и VCMA в рамках одного устройства [100]. Такое решение позволяет несколько снизить порог переключения SOT-ячейки за счет изменения анизотропии свободного слоя TMK.

2.2 Электрическое управление межслоевым взаимодействием в ТМК СоFeB/MgO/CoFeB

Альтернативный возможный способ переключения магнитного состояния ТМК заключается в управлении межслоевым обменным взаимодействием между магнитными слоями системы электрическим полем. Один из возможных механизмов такого управления продемонстрирован в работе [101] для структур CoFeB/GdO_x/CoFeB, в которых изменение межслоевого взаимодействия между приложении ферромагнитными при электродами напряжения К барьеру обусловлено движением кислородных вакансий внутри нестехиометрического GdO_x. Авторами продемонстрировано обратимое переключение свободного и закрепленного слоев ТМК, однако идея не получила распространения ввиду малых значений магнетосопротивления в таких структурах (всего 14 %).

Еще один механизм переключения предложен в работе [37], где авторами продемонстрировано изменение знака межслоевого обменного взаимодействия между феромагнитными слоями САФ-структуры FePd/Ru/FePd, входящей в состав ТМК, при протекании через нее тока с плотностью ~ 10⁵ A/cm², что на порядок

меньше по сравнению с устройствами на основе STT-эффекта. При этом наблюдается изменение ориентации слоев САФ-структуры и резистивного состояния ТМК.

B работе [А3] нами была экспериментально исследована зависимость межслоевого обменного взаимодействия между свободным и закрепленным ферромагнитными через туннельный барьер MgO ТМК слоями В СоFeB/MgO/CoFeB от приложенного к туннельному барьеру электрического напряжения. Идея состоит в том, что при приложении к туннельному промежутку электрического поля профиль потенциального барьера и, следовательно, его эффективная ширина изменяются, что может приводить к изменению межслоевого обменного взаимодействия.

Действительно, в эпитаксиальных системах Fe/MgO/Fe, как показано в работе [18], константа межслоевого обменного взаимодействия сильно зависит от толщины туннельного барьера MgO и изменяется в диапазоне от $+ 5 \times 10^{-3}$ эрг/см² до $- 4 \times 10^{-2}$ эрг/см², проходя через ноль при толщине MgO около 0.8 нм (рис. 2.1). Похожее поведение наблюдается в структурах Co/MgO/Co [102].



Рисунок 2.1. Зависимость межслоевого обменного взаимодействия от толщины туннельного барьера в эпитаксиальных ТМК Fe(001)/MgO(001)/Fe(001). Рисунок взят из [18]

Исследуемые многослойные наноструктуры, состоящие из подслоя Та(20)/ Pt(10)/Ta(20), магниточувствительного слоя CoFeB(2)/MgO(1.5-2.5)/CoFeB(4)/ IrMn(10) и покровного слоя Ta(3)/Pt(10) (толщины указаны в нм) были выращены магнетронного методом высоковакуумного распыления при комнатной температуре на подложках Si/SiO₂. Подробное описание технологии приведено в разделе 1.4.2. Слой IrMn служит для наведения однонаправленной анизотропии в закрепленном слое. Ростовой процесс происходит во внешнем магнитном поле величиной 150 Э, поэтому закрепленный слой ТМК непосредственно после напыления уже обладает обменным сдвигом, величиной около 500 Э. Из сформированных многослойных структур методами оптической безмасочной литографии и ионно-лучевого травления изготавливались частицы эллиптической формы с латеральными размерами 2×3 мкм². Во избежание статического пробоя и удобства транспортных измерений отдельные ТМК последовательно для соединялись в цепочки по 50 элементов. Тем не менее, литографический шаблон предусматривал возможность индивидуального доступа к некоторым элементам цепочек (рис. 2.2, а). Заключительным этапом изготовления образцов был термический отжиг готовых чипов при температуре 330 °C в вакууме течение 2 часов во внешнем магнитном поле величиной около 4 кЭ, в результате которого магнетосопротивление ТМК увеличивалось с 10 - 20 % до 100 - 200 %.



Рисунок 2.2. а) – оптическая фотография участка цепочки ТМК; б) – изображение участка цепочки, полученное в растровом электронном микроскопе; в) – схема поперечного сечения ТМК со слоями электрической изоляции и контактной разводки; г) – изображение поперечного среза ТМК, полученное в просвечивающем электронном микроскопе [А6]

Для исследования зависимости межслоевого обменного взаимодействия в исследуемых структурах от электрического поля измерялись кривые магнетосопротивления при различных напряжениях, приложенных к барьеру ТМК. Необходимо что исследования зависимости обменного отметить, для взаимодействия от приложенного напряжения туннельный барьер должен удовлетворять двум противоречивым требованиям. С одной стороны, его толщина должна быть достаточно мала, чтобы эффект зависимости межслоевого обменного взаимодействия между ферромагнитными электродами от приложенного напряжения был заметен. С другой стороны, сопротивление структуры должно быть достаточно высоким для предупреждения возникновения тепловых эффектов при протекании сильного тока при приложении напряжения. В ходе проведения исследования было установлено, что оба эти требования наилучшим образом удовлетворяются при толщине туннельного барьера MgO tb ~ 2 нм. При этом сопротивление ТМК составляет 3.4 кОм, что соответствует величине произведения сопротивления контакта на его площадь $R \cdot A \approx 20 \text{ кОм} \cdot \text{мкм}^2$. Здесь и далее за сопротивление ТМК принимается его сопротивление в низкорезистивном состоянии при сонаправленной взаимной ориентации намагниченности свободного и закрепленного слоев. Толщина свободного слоя делалась как можно более тонкой (~2 нм) повышения эффективного межслоевого обменного для поля взаимодействия, поскольку оно является поверхностным.

Увеличение приложенного к ТМК напряжения с 50 мВ до 1 В на один элемент (что соответствует электрическому полю $\approx 10^9$ В/м) приводило к двум основным эффектам. Первый эффект заключается в падении величины ТМР эффекта (рис. 2.3, а). Данное явление хорошо многократно наблюдалось в ряде работ [7, 75, 103, 104] и связано с возникновением возможности (или увеличением вероятности) туннелирования электронов ИЗ основной спиновой подзоны одного ферромагнитного электрода в неосновную подзону другого при достаточно больших значениях напряжения, приложенного к барьеру [72], что схематично показано на рис. 2.4 для систем Fe(Co)[001]/MgO[001]/Fe(Co)[001].



Рисунок 2.3. Кривые магнетосопротивления цепочек ТМК, полученные в диапазоне магнитного поля, в котором происходит перемагничивание свободного слоя. Черная, синяя, зеленая и красная кривые соответствуют напряжению 0.05, 0.2, 0.8 и 1 В на 1 ТМК. а) – кривые магнетосопротивления образца с сопротивлением

3.4 кОм на контакт; б) – те же кривые, нормированные на единицу; в) и г) – нормированные кривые магнетосопротивления образцов с сопротивлением 10 кОм и 200 Ом на контакт соответственно [А3, А6]

Для понимания эффекта уменьшения магнетосопротивления при больших ТМК Fe(Co)(001)/MgO(001)/Fe(Co)(001) напряжениях рассмотрим с противоположно направленной взаимной ориентацией намагниченностей ферромагнитных слоев. Если положить, что туннелирование происходит без переворота спина, то при малом напряжении, приложенном к контакту, для проникновения в противоположный электрод электрону кроме туннельного барьера необходимо преодолеть еще один потенциальный барьер высотой eV_B eV, где V_B – разница энергий между дном неосновной спиновой подзоны и уровнем Ферми, а V – внешнее напряжение (рис. 2.4 а). Ширина этого барьера равна толщине ферромагнитного слоя, в направлении которого идет процесс туннелирования. Когда величина $V \ge V_B$ (рис. 2.4, б), электроны туннелируют в

неосновную спиновую подзону противоположного электрода и сопротивление ТМК уменьшается.



Рисунок 2.4. Процесс туннелирования ∆₁-электронов в ТМК Fe(Co)[001]/MgO[001]/ Fe(Co)[001] при противоположно направленной взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев при V < V_B (a) (туннелирование невозможно) и V ≥ V_B (б) (туннелирование возможно в неосновную спиновую подзону) [72]. DOS – плотность состояний

Второй эффект заключается в смещении кривой намагничивания свободного слоя по магнитному полю на 6 Э (рис. 2.3, б) для цепочки с сопротивлением 3.4 кОм на контакт. При увеличении толщины MgO и, соответственно, сопротивления TMK величина этого смещения уменьшается (рис. 2.5). Так, в образце ссопротивлением 10 кОм на контакт ($t_b \sim 2.2$ нм), сдвиг кривой гистерезиса свободного слоя составляет 3 Э при напряжении 1 В на контакт (рис. 2.3 в). Важно отметить, что величина и направление наблюдаемого смещения не зависит от полярности приложенного напряжения.

Для удобства определения величины смещения кривые магнетосопротивления были отнормированы на максимальную величину ТМР эффекта по формуле $TMP_{HopM}(H) = (R(H) - R_{min})/(R_{max} - R_{min})$, где R_{min} и R_{max} — минимальное и максимальное сопротивление контакта при заданном напряжении.

Механизм возникновения сдвига кривой гистерезиса свободного слоя назависимости *R*(*H*) при приложении напряжения к ТМК состоит в изменении межслоевого обменного взаимодействия между ферромагнитными электродами через туннельную прослойку. Исходно при малом приложенном напряжении (50 мВ на контакт) положение кривой гистерезиса свободного слоя на *R*(*H*) свидетельствует о наличии небольшого антиферромагнитного взаимодействия с

- 60 -

закрепленным слоем, которое, вероятнее всего, имеет магнитостатическую природу. Судя по зависимости константы межслоевого обменного взаимодействия от толщины MgO (рис. 2.1) эффективное обменное поле должно быть очень мало для образца с сопротивлением 3.4 кОм на контакт (толщине порядка MgO ~ 2нм). Появление дополнительного антиферромагнитного сдвига при приложении напряжения свидетельствует о возникновении антиферромагнитного межслоевого обменного взаимодействия с закрепленным слоем, обусловленного изменением формы и уменьшением эффективной толщины потенциального барьера. Следует отметить, что плотность тока, протекающего через ТМК, имеет порядок 10³ A/см² (при напряжении 1 В).

Важным является обоснование того факта, что наблюдаемый эффект связан с изменением обменного взаимодействия. Действительно, эффект не может быть связан с VCMA, поскольку изменение величины эффективной магнитной анизотропии должно приводить к изменению ширины и наклона кривой намагничивания. Кроме того, знак изменения анизотропии при VCMA зависит от знака приложенного напряжения. В наших экспериментах наблюдается сдвиг кривой, не зависящий от полярности напряжения, приложенного к барьеру TMK.



Рисунок 2.5. Черные круги: зависимость поля сдвига кривой магнетосопротивления образцов при приложении напряжения величиной 1 В на контакт; окружности – максимальное увеличение температуры ТМК при приложении к нему напряжения величиной 1 В [А6]

Возможным униполярным эффектом, оказывающим влияние на форму кривой магнетосопротивления, может быть термический разогрев. Плотность выделяемой мощности при протекании электрического тока через ТМК можно оценить как $P = jV \sim 10^3$ BT/cm² = 10^{-2} мВт·мкм⁻². Характерные температурные коэффициенты в TMK [105] лежат в диапазоне 1–50 K/(мВт·мкм⁻²). Используя максимальный коэффициент 50 K/(мВт мкм⁻²), связывающий возможную температуру разогрева TMK и выделяемую на нем электрическую мощность, и зная сопротивление турнельного контакта, можно оценить изменение температуры TMK при приложении к нему напряжения 1 В (рис 2.5). Как показывают оценки, для наших образцов с сопротивлением R > 3 кОм эффектами разогрева можно пренебречь, т. к. изменение температуры составит менее 2 °C. Кроме того, повышение температуры образца должно приводить к сужению кривой намагничивания, а не к ее сдвигу. Такой эффект разогрева наблюдается в TMK с низким сопротивлением (200 Ом на контакт) (рис. 2.3, г), в которых ввиду большой плотности протекающего тока и выделяемой мощности изменение температуры 40° (рис 2.5).

Другой возможный эффект связан с перераспределением тока, протекающего через барьер. Форма кривых R(H) исследуемых ТМК свидетельствует о том, что перемагничивание свободного происходит слоя постепенно через последовательность неоднородных состояний. Итак, в одном и том же ТМК существуют области с разными значениями сопротивления в зависимости от локальной взаимной ориентации намагниченностей в неоднородно намагниченном свободном слое и однородном закрепленном слое. Это приводит к неоднородному распределению тока по площади ТМК, что может привести к несоответствию положения кривых намагничивания M(H) и магнетосопротивления R(H) и их формы. Особенно заметным это расхождение будет в ТМК с высоким значением ТМР эффекта. Приложение напряжения снижает величину ТМР эффекта и, следовательно, уменьшает отношение сопротивлений высокоомных и низкоомных областей ТМК, поэтому влияние перераспределение тока по площади ТМК на форму *R*(*H*) становится менее существенным. В связи с этим форма и положение кривых гистерезиса как свободного, так и закрепленного слоя на R(H) будут зависеть от величины ТМР эффекта и, соответственно, от приложенного напряжения.

- 62 -

Чтобы исключить эффекты разогрева и перераспределения тока, которые могут иметь место при проведении транспортных измерений при постоянном токе, было проведено исследование влияния коротких импульсов напряжения на магнитное состояние ТМК. Измерения проводились согласно следующему протоколу. Сначала снималась кривая R(H) при малом приложенном постоянном напряжении (50 мВ на контакт). Затем процесс перемагничивания останавливался в точке по магнитному полю, близкой к полю переключения ТМК в высокорезистивное состояние (H = 19 Э). После этого без изменения величины внешнего магнитного импульс поля К ТМК прикладывался напряжения величиной 1.5 - 2 Bдлительностью 100 нс. Затем менялось направление развертки по магнитному полю и при малом напряжении продолжалось измерение R(H) (рис. 2.6). Приложение импульса напряжение приводило к резкому скачку сопротивления ТМК, что свидетельствует об изменении магнитного состояния свободного слоя. Если же развертка продолжалась без импульса, то сопротивление не изменялось (синяя линия на рис. 2.6). Поскольку до и после импульса измерения проводились при одном и том же малом напряжении влияние эффекта уменьшения магнетосопротивления, как в случае с измерениями на постоянном токе при большом напряжении (рис. 2.3) исключается.



Рисунок 2.6. Изменение сопротивления ТМК с *R* = 3.4 кОм после подачи импульса напряжения длительностью 100 нс. Синяя линия соответствует петле гистерезиса свободного слоя без импульса напряжения, оранжевая – после импульса величиной

1.5 В, красная – после импульса величиной 2 В [А6].

Приложение импульса напряжения 1.5 В к ТМК приводит к увеличению его сопротивления на 30 % от его изменения, связанного с магнетосопротивлением (оранжевая линия на рис. 2.5): $\Delta R = 0.3 \cdot \Delta R_{TMR}$, где $\Delta R_{TMR} = TMR \cdot R_{\uparrow\uparrow}$. Изменение сопротивления после приложения импульса напряжения величиной 2 В составило $0.5 \cdot \Delta R_{TMR}$ (красная линия на рис. 2.6). Соответствующее изменение эффективного поля межслоевого обменного взаимодействия – около 10 Э. Наиболее важным фактом является то, что после окончания импульса напряжения ТМК остается в новом резистивном и, соответственно, в новом магнитном состоянии. То есть произошло устойчивое изменение ориентации средней намагниченности свободного слоя. Изменение сопротивления может быть выражено через намагниченности слоев следующим образом:

$$\Delta R \sim \int \vec{M}_{RL} \vec{M}_{FL} dS \sim \langle M_{FL} \rangle_x, \tag{2.1}$$

где *M_{RL}* и *M_{FL}* – намагниченности закрепленного и свободного слоев соответственно, а *х* – ось в направлении намагниченности закрепленного слоя, которая предполагается однородной и не изменяется в процессе измерений. Поэтому форма кривой гистерезиса свободного слоя на R(H) повторяет форму кривой намагничивания свободного слоя. Величину изменения проекции его намагниченности на ось х после приложения импульса напряжения 2 В можно оценить как $\Delta M_x = M_s$. Исследованные ТМК не позволяют прикладывать к ним напряжение более 2 В для осуществления полного переключения ИЗ низкорезистивного состояния в высокорезистивное ($\Delta M_x = 2M_s$), поскольку при этом наблюдается электрический пробой туннельного барьера. Тем не менее, сам факт изменения магнитного состояния ТМК под действием импульса электрического напряжения можно считать надежно зафиксированным. Плотность электрического тока в импульсе не превышает 10⁴ А/см². Этой величины явно недостаточно для проявления эффектов передачи спинового момента или термического разогрева.

Эффект изменения магнитного состояния ТМК после приложения короткого импульса напряжения находится в хорошем согласии с результатами проведенных исследований по наблюдению сдвига кривой намагничивания свободного слоя при изменении постоянного напряжения с 50 мВ до 1 В. Возможно, изменение латеральной геометрии или толщины слоев ТМК позволит добиться 100% переключения его резистивного состояния. Это может произойти, если сдвиг кривой магнетосопротивления станет, по крайней мере, больше ширины фронта перемагничивания свободного слоя, которая составляет 30 – 50 Э. Переключение $2 \times 3 \text{ MKM}^2$ ТМК с размерами осуществляется исследованных через последовательность метастабильных неоднородных состояний, поэтому кривая перемагничивания «затянута» по магнитному полю более чем на 30 Э, что превышает поле сдвига. Тем не менее, эффект изменения резистивного состояния даже на 50 % от магнетосопротивления достаточен для того, чтобы закодировать логическое состояние и пригоден для возможного практического применения в магниторезистивной памяти.

Хотя исследованные ТМК не оптимизированы для использования в качестве ячейки MRAM, тем не менее, мы рассчитали для них фактор термической стабильности, который является критически важным параметром магниторезистивной памяти, определяющим время хранения данных. Для ТМК с анизотропией типа «легкая плоскость» его можно оценить следующим образом: Δ = $M_s H_c V/2k_B T$, где $M_s \approx 1000$ Гс, $H_c \approx 40$ Э, и V – соответственно намагниченность насыщения свободного слоя, его коэрцитивность и объем. Поскольку в нашем случае перемагничивание происходит через последовательность неоднородных состояний, эта формула дает оценку «сверху». Для оценки «снизу» за H_c следует принять ширину ступеней на кривой перемагничивания (≈ 5 Э), а M_s заменить на изменение значения намагниченности на скачке ($\approx 0,1 M_s$) (см. рис. 2.6). С учетом этого значение коэффициента термической стабильности нашего ТМК составляет примерно 90. В соответствии с данными, приведенными в [106] (таблица I), этого значения достаточно для стабильной работы памяти объемом 1 Гб.

Недостатком наблюдаемого эффекта для применения в MRAM является его независимость от полярности напряжения. Для преодоления этой проблемы была предложена архитектура двойного TMK (рис. 2.7), в котором между туннельными барьерами расположен свободный слой FL, а намагниченности закрепленных слоев RL1 и RL2 сверху и снизу структуры направлены навстречу друг другу. В представленной схеме логические «0» и «1» соответствуют высокому и низкому сопротивлению на нижнем барьере. Запись «1» осуществляется путем подачи импульса напряжения на нижний контакт, а запись «0» – путем подачи импульса

напряжения на верхний контакт. Кроме того, предложенная схема дает еще два важных преимущества. Во-первых, из-за симметрии структуры центр петли перемагничивания свободного слоя сместится в нулевое магнитное поле, и для функционирования ячейки не придется прикладывать внешнее смещающее магнитное поле. Во-вторых, в случае, когда слой CoFeB окружен с обеих сторон слоями MgO, при проведении отжига диффузия атомов бора из сплава CoFeB оказывается затрудненной, и в результате он будет иметь меньший средний размер кристаллита, что скажется на его коэрцитивности, которая в таких системах может быть уменьшена до 5 Э [107]. Таким образом, ширина кривой гистерезиса свободного слоя оказывается меньше, чем изменение эффективного обменного поля, наблюдаемое при приложении импульса напряжения. В этих условиях в предлагаемой схеме двойного ТМК может быть реализовано полное биполярное переключение резистивного состояния. Проблема такой системы кроется в технологической сложности организации электрического контакта к свободному слою ТМК.



Рисунок 2.7. Схема ячейки памяти на основе двухбарьерного ТМК с биполярным переключением состояния за счет эффекта электрического управления межслоевым обменным взаимодействием [А6]

Таким образом, предложен новый метод управления магнитным состоянием ТМК путем приложения электрического поля. Метод основан на наблюдаемом и изученном эффекте зависимости межслоевого обменного взаимодействия между ферромагнитными электродами ТМК от приложенного к барьеру электрического поля. Приложение к контакту коротких импульсов электрического напряжения приводит к изменению его сопротивления на 50% от величины магнетосопротивления. При этом плотность тока импульса достаточно мала и составляет всего 10⁴ A/cm². Обнаруженный эффект может быть использован для создания энергоэффективной MRAM.

Глава 3. Внешний туннельный эффект Холла

В настоящей главе обсуждаются различные проявления спин-орбитального наблюдаемые взаимолействия. В магнитных наноструктурах. Приводятся экспериментальные результаты исследования нового эффекта, заключающегося в холловской разности возникновении потенциалов при протекании спинполяризованного электрического тока через туннельный контакт CoFeB/MgO/NM (NM = Pt, Ta). Особенностью обнаруженного эффекта, отличающей его от широко известных аномального и спинового эффектов Холла спин-орбитальной природы, является его квадратичная зависимость от напряжения, приложенного к ТМК. наблюдаемого спин-орбитальном Природа явления состоит В рассеянии туннелирующих электронов во внешнем электрическом поле, индуцируемом приложенным к барьеру электрическим напряжением. Полученные результаты опубликованы в [А7, А8].

3.1 Спин-орбитальные эффекты в магнитных наноструктурах

Спин-орбитальное взаимодействие (СОВ), являющееся релятивистской поправкой к взаимодействию частицы с электрическим полем, характеризуется гамильтонианом:

$$\widehat{H}_{SO} = \lambda(\boldsymbol{\sigma} \cdot [\boldsymbol{E} \times \boldsymbol{p}]), \tag{3.1}$$

который объединяет электрическое поле E, спин частицы σ и ее импульс p. В вакууме константа СОВ $\lambda = \frac{e\hbar}{2m_0^2c^2}$. Несмотря на то, что это релятивистское взаимодействие, связанные с ним эффекты проявляются в значительной степени, особенно в твердых телах, где спин-орбитальное взаимодействие усиливается на множитель порядка m_0c^2/E_G (~ 10⁶), где $E_G \approx 1$ эВ – ширина запрещенной зоны [108, 109], а m_0 – масса покоя электрона. Известные спин-орбитальные эффекты в твердых телах вызываются движением электронов в электрическом поле атомных ядер, поэтому СОВ увеличивается с ростом атомного номера и наибольших значений достигает в тяжелых металлах, таких как Pt, Ta, W and Bi. СОВ может затрагивать как локализованные электроны, так и электроны проводимости. В первом случае это приводит к известным явлениям магнитной анизотропии. Это

обусловленная объемная магнитокристаллическая анизотропия, может быть асимметрией пространственного распределения электронной плотности В кристалле или же поверхностная, связанная, например, с наличием контакта с тяжелым металлом или же просто перестройкой электронных орбиталей атомов на поверхности. В случае электронного транспорта СОВ проявляется в возникновении аномального и спинового эффектов Холла (СЭХ) [29], а также анизотропного магнетосопротивления [52]. СЭХ формально принято разделять на прямой и обратный. В случае прямого по материалу с большим СОВ пропускают электрический ток. Поскольку электроны проводимости с противоположными проекциями спинового момента рассеиваются на атомных потенциалах В направлениях, возникает поперечный противоположных спиновый ток, приводящий к аккумуляции неравновесной концентрации электронов с различной проекцией спина на границах образца (рис. 3.1, а). Этот эффект был теоретически предсказан Дьяконовым и Перелем в 1974 году [110, 111], а в 2004 году [112] был обнаружен экспериментально.



Рисунок 3.1. Возникновение поперечного спинового тока в результате спинорбитального рассеяния при протекании а) – неполяризованного по спину тока и б) – спин-поляризованного тока.

Если электрический ток, протекающий в тяжелом металле, не поляризован по спину, поперечной разности потенциалов при этом не возникает (рис. 3.1.а). Для детектирования прямого СЭХ необходимо привести одну из границ образца в контакт с ферромагнетиком. Тогда термализация неравновесного спина приобретет направленный характер, и возникнет поперечный электрический ток, который приведет к появлению холловского напряжения.

Обратный СЭХ заключается возникновении поперечной разности В потенциалов протекании спин-поляризованного при спинового (или электрического) тока по материалу с большим СОВ. Частным случаем обратного спинового эффекта Холла является аномальный эффект Холла (АЭХ) (рис. 3.1 б), который, на самом деле, представляет собой СЭХ в среде, где поляризация электрического тока возникает естественным образом из-за обменного расщепления.

Инжекция спин-поляризованного тока может осуществляться из ферромагнетика, находящегося в непосредственном контакте с тяжелым металлом [29, 113] или же отделенного от него туннельным барьером [53 – 57]. На рис. 3.2 приведена схема измерения обратного СЭХ в платиновом береге туннельного контакта [56].



Рисунок 3.2. а) – схема измерения обратного спинового эффекта Холла в туннельных контактах CoFeB/MgO/Pt; б) – характерная зависимость Холловского напряжения от магнитного поля. Рисунки взяты из [56]

Прямой и обратный СЭХ в настоящее время являются основой нового быстро развивающегося раздела физики конденсированного состояния – спинорбитроники [114]. Возможность взаимного преобразования электрического и спинового токов открывает широкие перспективы создания энергоэффективных логических и запоминающих устройств для обработки информации [114 – 118].

3.2 Внешний туннельный эффект Холла

В переходных металлах, таких как Со или Fe, которые используются в качестве инжекторов спин-поляризованного тока, степень спиновой поляризации электронов составляет около 60% [13]. Использование туннельного магнитного контакта CoFeB/MgO в качестве инжектора позволяет увеличить спиновую поляризацию почти до 100% [119]. СЭХ в таких системах с туннельным барьером был хорошо изучен [53 – 57].

Однако спин-орбитальные эффекты в подобных системах могут возникать и в самом туннельном зазоре. Есть несколько теоретических работ, посвященных изучению процессов спин-орбитального рассеяния в барьере туннельного контакта. В работах [29, 58 – 60] описаны механизмы возникновения поперечных транспортных эффектов, связанных с рассеянием на магнитных примесях в барьере и электрическом поле на границе раздела. Во всех приведенных выше примерах электрическое поле, вызывающее СОВ в соответствии с (3.1), является внутренним атомным полем.

Однако, поскольку электрическое поле, которое можно приложить к диэлектрической прослойке может достигать 10⁹ В/м, возникает вопрос о возможных спин-орбитальных эффектах при взаимодействии туннелирующих электронов с этим приложенным полем. В работе [61] авторы теоретически рассмотрели проблему СОВ с внешним полем, приложенным к туннельному барьеру, и показали возможность возникновения в системе поперечного (холловского) тока. Ниже мы будем называть эффект Холла, вызванный любым механизмом СОВ в туннельном зазоре, туннельным эффектом Холла (ТЭХ).

Для наглядной иллюстрации механизма возникновения эффекта Холла, возникающего в результате спин-орбитального рассеяния туннелирующих электронов в электрическом поле внутри барьера туннельного контакта, рассмотрим структуру FM/D/NM (рис. 3.3), к которой приложено электрическое напряжение и учтем, что электроны, налетающие на барьер, имеют в том числе ненулевую продольную компоненту импульса **(B** плоскости барьера И перпендикулярно спиновому моменту).

- 71 -



Рисунок 3.3. Схема возникновения холловского тока при спин-орбитальном рассеянии туннелирующих электронов в электрическом поле внутри барьера

Из гамильтониана СОВ (3.1) прямо следует, что наличие сильного электрического поля внутри туннельного промежутка приводит к тому, что эффективный потенциальный барьер для электронов с различной продольной компонентой импульса неодинаков, откуда следует различная вероятность их туннелирования. Если туннельный ток поляризован по спину, то электроны, протуннелировавшие через барьер, в среднем имеют ненулевую продольную компоненту импульса. Это приводит к возникновению холловского тока в нормальном электроде, который существует в приповерхностной области с толщиной, не превышающей длины релаксации импульса, которая составляет несколько нм [120].

В диссертационной работе экспериментально исследован туннельный эффект Холла в структурах CoFeB/MgO/NM (NM = Pt, Ta) в зависимости от приложенного к контакту напряжения. Идея состоит в том, что сильное электрическое поле внутри барьера будет приводить к возникновению холловской разности потенциалов в нормальном электроде, квадратичной по напряжению, приложенному к туннельному контакту. С учетом линейных вкладов по полю E, связанных с аномальным и спиновым эффектами Холла, феноменологическое выражение для поперечного холловского поля можно записать как:

$$E_{Hall} = \alpha[\mathbf{j} \times \mathbf{M}] + \beta[\mathbf{n} \times \mathbf{M}](\mathbf{j} \cdot \mathbf{E})$$
(3.2)

Здесь M – намагниченность, E – приложенное электрическое поле, $j = \sigma E$ – транспортный ток, α и β – феноменологические константы, n – нормаль к границе
раздела между слоями структуры. Первое слагаемое в (3.2) описывает линейный вклад от СЭХ, АЭХ, а также внутреннего ТЭХ, обусловленного возможной асимметрией туннельного барьера. Все эти вклады в холловское напряжение возникают в результате СОВ туннелирующих электронов с внутренними атомарными полями и зависят только от величины протекающего транспортного электрического тока, пропорционального приложенному полю в соответствии с законом Ома: $V_{Hall} \sim j \sim E$. Второе слагаемое в (3.2) квадратично по внешнему электрическому полю, поскольку оно входит в выражение для V_{Hall} не только через транспортный ток, но и напрямую (V_{Hall} ~ jE ~ E²). Формально второй член выглядит так, как будто взаимодействие транспортного тока с внешним электрическим полем приводит к поперечному току. Одной из очевидных возможных физических причин возможного нелинейного эффекта является спинорбитальное рассеяние туннелирующих электронов на внешнем поле. Действительно, величина поля в туннельном зазоре может достигать 10⁹ В/м, что приближается к величине внутренних атомных полей и может приводить к появлению поперечного тока в системе. Чтобы отличить этот эффект от других линейных эффектов Холла в системе, которые вызываются внутренними электрическими полями атомов, в дальнейшем будем называть этот эффект внешним ТЭХ, поскольку он вызывается внешним электрическим полем. Выражение (2) может также содержать члены более высоких порядков по M, а также члены, содержащие пространственные производные от М, которые также пропорциональны произведению тока и внешнего поля. Они будут соответствовать другим микроскопическим механизмам, но в любом случае это будут эффекты, связанные с СОВ туннелирующих электронов (*j*) и сильным электрическим полем в барьере (Е). Подробное обсуждение возможных специфических микроскопических механизмов спин-орбитального рассеяния в туннельном барьере выходит за рамки диссертационной работы и должно стать результатом дальнейших исследований. Независимо от конкретного микроскопического механизма, важной очевидной особенностью внешнего ТЭХ должна быть его квадратичная зависимость от приложенного электрического поля.

Исследованные структуры Ta(20)/CoFeB(10)/MgO(1.5)/Pt(t) и Ta(20)/CoFeB(10)/MgO(1.5)/Ta(2) (толщины указаны в нм, t = 1, 2, 10 нм) были выращены

на подложках Si/SiO₂/Si₃N₄ методом высоковакуумного магнетронного распыления при комнатной температуре. Остаточное давление в ростовой камере не превышало 10⁻⁷ Торр. Для измерения туннельного эффекта Холла верхним слоям Pt(Ta) и MgO с помощью оптической литографии и ионно-лучевого придавалась Т-образная форма микронного латерального размера, как показано на рис. 3.3. Площадь верхнего NM-электрода составляет около 60 мкм². Нижний электрод CoFeB имеет 20 × 1000 мкм². размер Напыление прямоугольную форму И структуры производилось во внешнем магнитном поле, направленном плоскости структуры $(\approx 200 \text{ })$, что приводило к наведению в ферромагнитном электроде анизотропии с осью легкого намагничивания, ориентированной вдоль его длинной стороны. *R*:*А* туннельного контакта составляла около 15 кОм×мкм². Для увеличения поляризации туннелирующих электронов, образцы подвергались спиновой термическому отжигу в вакууме при температуре 330 °С в течение 2 часов. В ТМК СоFeB/MgO/CoFeB, изготавливаемых нами по аналогичной технологии, эта процедура приводит к увеличению ТМР эффекта с 10% до 200%. Это соответствует увеличению спиновой поляризации тока в структуре с 30 до 70% в соответствии с феноменологической формулой Жюльера [6]. Возрастание магнетосопротивления связано с кристаллизацией изначально аморфного CoFeB в текстуру ОЦК (001) от границы с MgO (001) [79]. Наличие такой кристаллической структуры необходимо для наблюдения гигантского ТМР эффекта [72]. Высокая степень спиновой поляризации туннелирующих электронов в структуре CoFeB/MgO/NM важна, от нее зависит величина всех наблюдаемых эффектов Холла.





Толщина слоя Pt составляла 1, 2 и 10 нм для разных образцов. Как уже отмечалось выше, холловский ток в NM электроде, связанный со спинорбитальным взаимодействием туннелирующих электронов с внешним электрическим полем, приложенным к диэлектрической прослойке, существует в тонкой приграничной с барьером области, толщиной несколько нм (длина релаксации импульса). Ток, вызванный обратным спиновым эффектом Холла, индуцируется в NM на толщине, соответствующей длине спиновой релаксации в этом материале, которая, обычно больше длины релаксации импульса и, согласно литературным данным [121], варьируется в диапазоне от 1 до 10 нм. Далее будет показано, что эта длина для Pt, согласно нашим измерениям, составляет от 2 до 10 нм. Следовательно, верхний NM-электрод должен быть ультратонким, чтобы исключить эффект шунтирования и тем самым увеличить отношение сигнал/шум.

Транспортные измерения проводились в геометрии обратного СЭХ. Постоянное напряжение прикладывалось к контактам 1 и 2 ($V_{bias} = V_{12}$), а холловская разность потенциалов измерялась между контактами 3 и 4 (V_{34}) в зависимости от внешнего магнитного поля в плоскости образца, как показано на рис. 3.3. При этом

намагниченность ферромагнитного электрода направлена вдоль легкой оси, заданной при напылении структуры и может переключаться внешним магнитным полем *H* (рис. 3.3). Эффект Холла измеряется путем пропускания электрического тока из ферромагнитного инжектора CoFeB через туннельный контакт в нормальный металл Pt или Ta или в обратном направлении. При этом спиновая поляризация протекающего тока соответствует направлению намагниченности слоя CoFeB.

Исходный измеряемый сигнал V_{34} содержит как холловское напряжение, так и дополнительный вклад от магнетосопротивления, связанный с асимметрией геометрической формы образца (рис. 3.4). Холловский сигнал линейным образом пропорционален намагниченности и поэтому нечетным образом зависит от внешнего магнитного поля, тогда как вклад от магнетосопротивления должен быть четным. Здесь и в дальнейшем за холловский сигнал будем принимать нечетную часть V_{34} по внешнему магнитному полю, а все последующие обсуждения четности и нечетности холловского напряжения будут касаться его зависимости от электрического поля, приложенного к контакту.



Рисунок 3.4. а) – исходная зависимость сигнала V₃₄ от внешнего магнитного поля при V₁₂ = 3 B; б) – нечетный по магнитному полю холловский вклад в измеряемый сигнал.

Измерения холловского сигнала проводились при различных значениях и обеих полярностях постоянного напряжения, прикладываемого к туннельному барьеру. На рис. 3.5 (а, б) показаны типичные кривые холловского гистерезиса. Толщина

верхнего Рt-электрода в данном случае составляет 1 нм. Исходные сигналы содержат вклады как туннельного эффекта Холла, так и аномального и обратного спинового эффекта Холла. При абсолютных значениях напряжения, подаваемого на туннельный контакт, 0.5 В и выше, изменение его полярности не приводит к изменению знака измеряемого эффекта, однако амплитуда сигнала изменяется.



Рисунок 3.5. Типичные зависимости холловского напряжения от магнитного поля для положительного (а) и отрицательного (б) напряжения V_{bias} = ± 2 B,
приложенного к туннельному барьеру. Толщина верхнего Pt-электрода составляет 1 нм. (в) – сумма (круги) и разность (треугольники) кривых (а) и (b), которые соответствуют четной и нечетной частям исходного холловского сигнала по электрическому полю соответственно. Приведенные графики являются результатом усреднения 70 проведенных измерений.

Таким образом, сигнал можно разделить на нечетную по электрическому полю (V_{bias}) часть, которая зависит от полярности протекающего тока, и четную часть,

которая не зависит от полярности приложенного напряжения, а зависит только от его абсолютной величины:

$$V_{Hall}^{odd} = \{V_{Hall}(H, +V_{bias}) - V_{Hall}(H, -V_{bias})\}/2$$

$$V_{Hall}^{even} = \{V_{Hall}(H, +V_{bias}) + V_{Hall}(H, -V_{bias})\}/2$$
(3.3)

Зависимости обеих этих частей холловского сигнала от магнитного поля приведены на рис. 3.5 (в).

На рис. 3.6 показаны холловские кривые $V_{Hall}(H)$ при различных значениях напряжения V_{bias} , приложенного к туннельному контакту. Фактическая разность потенциалов на барьере на самом деле ниже значений V_{bias} , указанных на графиках, поскольку сопротивление питающих электродов составляет примерно две трети от общего сопротивления R_{12} . Это установлено путем измерения сопротивления туннельных контактов после их электрического пробоя. Можно видеть, что четная часть холловского сигнала растет нелинейно с увеличением приложенного электрического поля (рис. 3.6, а), чего не наблюдается для нечетной части (рис. 3.6, б). Данные для линейного сигнала по электрическому полю приведены только для $V_{bias} \leq 2$ В. Это связано с тем, что по мере увеличения V_{bias} величина нечетного вклада становится малой на фоне нелинейной части, и, как следствие, отношение сигнал/шум для нее уменьшается, что видно на рис. 3.6 (б). Для каждого образца измерения проводились с постепенным увеличением V_{bias} до тех пор, пока не происходит электрический пробой (4 – 5 В для разных образцов).



Рисунок 3.6. Четная (а) и нечетная (б) части холловского сигнала по электрическому полю для различных значений приложенного напряжения. Толщина верхнего Pt-электрода составляет 1 нм. Приведенные кривые являются результатом усреднения 50 – 150 проведенных измерений [A7, A8].

Также были проведены контрольные измерения холловского сигнала в магнитном поле величиной 150 Э, направленном вдоль контактов 3 и 4. В такой геометрии намагниченность ферромагнитного инжектора и сонаправленная с ней спиновая поляризация электронов, туннелирующих через барьер в немагнитный электрод, параллельны линии, соединяющей холловские электроды (3 и 4). В этом случае холловский ток должен быть направлен перпендикулярно этой линии, а разность потенциалов на электродах 3 и 4 должна быть равна нулю, что и было подтверждено проведенными измерениями. Наличие небольшого $V_{Hall} = 1$ мкВ при $V_{bias} = 4$ В может объясняться несовершенством геометрии образца и схемы измерения.

Зависимость амплитуды четной части холловского сигнала от V_{bias} , измеренная в нулевом магнитном поле, аппроксимируется параболой (рис. 3.7). Зависимость нечетной части холловского сигнала от приложенного напряжения хорошо описывается линейной функцией и соответствует аномальному и обратному спиновому эффектам Холла. Таким образом:

$$V_{Hall} = V_{Hall}^{odd} + V_{Hall}^{even} = \alpha V_{bias} + \beta V_{bias}^2, \tag{3.4}$$

где α и β – константы, определяемые из нашего эксперимента. Квадратичная часть представляет собой искомое проявление спин-орбитального эффекта, связанного с сильным внешним электрическим полем, приложенным к туннельному барьеру. Нечетная часть включает остальные возможные эффекты Холла, линейные по приложенному напряжению, такие как аномальный эффект Холла в магнитном электроде или обратный спиновый эффект Холла в Рt-электроде. Очевидно, что они должны менять знак при смене направления протекания электрического тока. Наблюдаемый четный нелинейный эффект не может быть объяснен возможной нелинейностью вольт-амперной характеристики (BAX) системы, поскольку он не меняет знак при изменении знака напряжения, прикладываемого к туннельному контакту (рис. 3.5). Если бы наблюдаемый нелинейный эффект был связан с нелинейностью BAX, что холловская разность потенциалов должна была бы поменять знак при смене полярности электрического поля и поскольку была бы пропорциональна не E^2 , а $E \cdot |E|$.

Стоит отметить, что в результате джоулева разогрева при протекании тока через туннельный контакт может возникать температурный градиент. Связанный с ним возможный дополнительный электрический ток $j_{\Delta T} \sim \Delta T \sim E^2$ (ΔT – разница температур по разные стороны барьера) может приводить к нелинейности холловского напряжения. Однако $j_{\Delta T}$ пренебрежимо мал по сравнению с транспортным током, поскольку $k_B \Delta T << eV_{bias} \sim 1$ эВ. Поэтому четные эффекты, обусловленные температурным градиентом, должны быть существенно меньше линейных эффектов от транспортного тока. В наших же экспериментах квадратичный вклад в холловский сигнал значительно превышает линейный и, следовательно, не может объясняться температурным градиентом.



Рисунок 3.7. Зависимость напряжения четной (правая сторона) и нечетной (левая сторона) частей исходного холловского сигнала в образце с Рt-электродом толщиной 1 нм от электрического поля, измеренного в нулевом магнитном поле.
Четная часть хорошо аппроксимируется параболой, а нечетная часть – линией. На вставке – зависимость четного холловского сигнала от квадрата приложенного напряжения, аппроксимированная линией.

Феноменологические коэффициенты α и β определялись с использованием значений Холловского напряжения, полученного при магнитном поле насыщения CoFeB, при котором он намагничен однородно, аналогичная квадратичная зависимость реализуется и при измерении в нулевом магнитном поле с некоторой остаточной намагниченностью инжектора (близкой к намагниченности насыщения). Как и предполагалось, увеличение толщины Pt-электрода приводит к уменьшению величины холловского сигнала, и, в частности, его четной составляющей (рис. 3.8). Данные для постоянных α и β приведены в таблице I. Хотя значения коэффициентов и заметно уменьшаются с увеличением толщины Pt, общий характер зависимости (3.4) сохраняется.

Толщина, нм	α	β (V ⁻¹)
Pt(1)	$(6.5 \pm 0.3) \cdot 10^{-8}$	$(3.4 \pm 0.07) \cdot 10^{-7}$
Pt(2)	$(8 \pm 1) \cdot 10^{-8}$	$(2.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-7}$
Pt(10)	(0.6 ± 1) · 10 ⁻⁸	$(0.3 \pm 0.04) \cdot 10^{-7}$
Ta(2)	$(-3 \pm 3) \cdot 10^{-8}$	$(2.5 \pm 0.12) \cdot 10^{-7}$

Таблица I. Феноменологические константы



Рисунок 3.8. Зависимость четной части холловского сигнала от напряжения при нулевом внешнем магнитном поле. Очевидно, что кривые для образцов с верхними электродами 2 нм Pt и 2 нм Ta практически совпадают [A7].

Измерения образца с верхним Та-электродом толщиной 2 нм показали наличие аналогичного нелинейного эффекта Холла. Кроме того, его величина (характеризуемая значением коэффициента β) практически такая же, как и в образце с Pt-электродом той же толщины (таблица I). Коэффициент α при этом оказывается в три раза меньше и имеет другой знак. Константа СОВ в Та на порядок меньше, чем в Pt [31], а поскольку квадратичный эффект при изменении материала верхнего электрода практически не изменился, он не может быть обусловлен спин-холловским рассеянием на верхнем NM-электроде. По коэффициенту алинейной части V_{Hall} можно оценить угол спинового эффекта Холла в исследуемой системе. Для оценки его значения в Pt-электроде предположим, что толщина слоя Pt t = 1 нм намного меньше длины спиновой релаксации, которая, согласно нашим измерениям, составляет несколько нанометров (нечетный холловский сигнал немного меньше при t = 2 нм, чем при t =1 нм, и все еще наблюдается при t = 10 нм). Затем, используя определение угла Холла и простые геометрические соотношения, получаем:

$$\theta_{SH} = \frac{1}{P_S} \frac{j_{Hall}^{linear}}{j_{bias}} = \frac{1}{P_S} \frac{RS}{\rho\omega} \alpha \approx 0.007, \qquad (3.5)$$

где R – сопротивление туннельного контакта (R = 1 кОм), ρ – удельное сопротивление Pt-электрода ($\rho = 1.07 \times 10^{-7}$ Ом·м), ω – расстояние между электродами 3 и 4 ($\omega = 8$ мкм), S – площадь туннельного контакта (S = 60 мкм²), P_s – спиновая поляризация туннельного тока ($P_s \approx 70\%$ по данным характерного измеряемого TMP эффекта в TMK CoFeB/MgO/CoFeB). Согласно литературным данным, значение угла спинового эффекта Холла в Pt колеблется от 0.0067 до 0.027 и даже больше [121, 123, 124]. Таким образом, оценка угла Холла, полученная для нашего образца, соответствует литературным данным по порядку величины.

Также, используя полученные экспериментальные данные, можно оценить константу СОВ λ . В приближении малой туннельной прозрачности барьера получаем простую оценку для λ [121]:

$$\lambda \sim \frac{j_{Hall}}{j_{bias}} \frac{Lv_f}{2P_s V_{bias}} \sim 2 \times 10^{-5} \frac{A \cdot c^2}{\kappa r},\tag{3.6}$$

где L – толщина туннельного барьера, v_f – скорость Ферми, которая дает тот же результат, что и расчет [58], по порядку величины. Полученная оценка константы СОВ намного больше, чем эта постоянная в вакууме [108, 109], как и было указано ранее.

Квадратичная зависимость холловской разности потенциалов от приложенного к контакту электрического напряжения туннельному должна приводить К выпрямлению Для переменного сигнала. подтверждения выдвинутого предположения было проведено измерение постоянного напряжения на холловских контактах при переменном с частотой 10 кГц приложенном напряжении к туннельному барьеру в зависимости от внешнего магнитного поля. Усреднение холловского сигнала на каждом шаге по магнитному полю происходило в течение 0.5 с, что соответствует 5000 периодам переменного напряжения. На рис. 3.9 приведены кривые $V_{Hall}(H)$, полученные при различных амплитудах V_{bias} . Следует отметить, что получаемые кривые являются исходным сигналом и не подвергаются математической обработке. Устранение нечетных вкладов в холловский сигнал происходит естественным образом за счет знакопеременности прикладываемого напряжения.



Рисунок 3.9. Кривые холловского сигнала при различной амплитуде переменного напряжения, приложенного к туннельному контакту

Зависимость холловской разности потенциалов от амплитуды переменного напряжения, приложенного к туннельному контакту, также хорошо аппроксимируется параболой (рис. 3.10).



Рисунок 3.10. Зависимость амплитуды холловского сигнала от амплитуды переменного напряжения на туннельном контакте. На вставке – зависимость холловского сигнала от квадрата переменного напряжения

Таким образом, в рамках диссертационной работы был исследован поперечный транспортный эффект, возникающий при туннелировании спин-поляризованных электронов в системе CoFeB/MgO/(Pt, Ta). Впервые экспериментально обнаружен новый эффект Холла, обусловленный СОВ туннелирующих электронов с сильным внешним электрическим полем, приложенным к барьеру. Внешний туннельный эффект Холла на NM-электродах квадратично зависит от постоянного напряжения, приложенного к барьеру. Это означает, что можно контролировать и манипулировать спин-орбитальным рассеянием спин-поляризованных электронов в барьере с помощью напряжения.

Глава 4. Обменное усиление магнитокалорического эффекта в слоистых наноструктурах

Глава посвящена представлению экспериментальных результатов исследований усиления магнитокалорической эффективности ферромагнитных наноструктур за счет эффекта магнитной близости. В разделе 4.1 дается определение магнитокалорического эффекта и приводятся простейшие описывающие его термодинамические соотношения. В разделе 4.2 обсуждается теоретически предсказанное авторами работ [24, 25] обменное усиление магнитокалорического эффекта. В разделах 4.3 и 4.4 приводятся оригинальные результаты исследования магнитных и магнитокалорических свойств многослойных систем типа FM/PM/FM, опубликованные в [А9, А10 и А11]

4.1 Магнитокалорический эффект

Магнитокалорический эффект заключается в изменении температуры (T) магнитного материала при изменении внешнего магнитного поля (H). В основе эффекта лежит изменение магнитной энтропии при намагничивании или размагничивании образца. Если это происходит в адиабатических условиях, то есть без изменения суммарной энтропии (S), то эти процессы сопровождаются изменением температуры магнетика [125]:

$$dS = \left(\frac{\partial S}{\partial T}\right)_{H} dT + \left(\frac{\partial S}{\partial H}\right)_{T} dH = 0, \tag{4.1}$$

$$\frac{dT}{dH} = -\frac{\left(\frac{\partial S}{\partial H}\right)_T}{\left(\frac{\partial S}{\partial T}\right)_H} = -\frac{T}{c} \left(\frac{\partial S}{\partial H}\right)_T,\tag{4.2}$$

где C – полная теплоемкость, которая в общем случае содержит вклады от решеточной и электронной подсистем. Однако вблизи комнатной температуры теплоемкостью электронов проводимости можно пренебречь. Более того, при температурах выше температуры Дебая (для Gd она составляет около 100 K) ее можно считать постоянной $C_0 = 3Nk_B/V$ (закон Дюлонга-Пти).

Выражение (4.2) получено в предположении, что время взаимодействия магнитной подсистемы с кристаллической решеткой и электронами проводимости

меньше времени намагничивания или размагничивания (изменения магнитного поля). Характерное время релаксации намагниченности можно оценить, воспользовавшись уравнением Ландау-Лифшица, описывающим прецессию и затухание намагниченности во внешнем магнитном поле: $\frac{\partial M}{\partial t} = -\gamma_g [M \times H_{eff}] + \alpha_0 M_0 \left[M \times \frac{\partial M}{\partial T}\right]$, где γ_g – гиромагнитное отношение, $\alpha_0 \approx 10^{-2}$ – параметр диссипации, M_0 – намагниченность насыщения, H_{eff} – эффективное магнитное поле. Из этого уравнения следует, что характерное время затухания прецессии определяется выражением $t_r \sim \frac{1}{\gamma_{g\alpha_0 M_0}}$. Учитывая, что $\gamma_g M_0$ имеет порядок 10^{10} с⁻¹, $t_r \sim 10^{-8}$ с. С другой стороны, для выполнения условия адиабатичности (4.1) необходимо, чтобы время изменения магнитного поля было существенно меньше характерного времени теплообмена магнетика с окружающей средой.

Соотношение Максвелла, связывающее изотермическое изменение энтропии магнитного материала под действием внешнего магнитного поля и изменение его намагниченности (M)c изменением температуры позволяет изучать магнитокалорический эффект ПО температурной зависимости кривых намагничивания [126]:

$$\left(\frac{\partial S}{\partial H}\right)_T = -\frac{\partial^2 F}{\partial H \partial T} = -\frac{\partial^2 F}{\partial T \partial H} = \left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_H.$$
(4.3)

Таким образом, выражение для изотермического изменения энтропии (ΔS):

$$\Delta S = \int \frac{\partial M(H,T)}{\partial T} dH \tag{4.4}$$

Величину ΔS называют магнитокалорическим потенциалом системы. Изменение температуры материала связано с изменением энтропии простым соотношением $\Delta T = -\frac{T}{c}\Delta S.$

Рассмотрим изменение энтропии при намагничивании парамагнетика. При величине магнитного поля, существенно меньшей поля насыщения изменение намагниченности происходит в соответствии с законом Кюри $M = \chi H$, где $\chi = 2c_K/T$ – восприимчивость парамагнетика, c_K – константа Кюри. Пользуясь соотношением (4.3), получим выражение для ΔS при увеличении внешнего магнитного поля от нуля до H:

$$\Delta S = -\frac{c_K H^2}{2T^2} = -M^2/2c_K. \tag{4.5}$$

Изменение энтропии максимально при намагничивании парамагнетика до насыщения $M = m_s$, которое достигается в магнитном поле $\mu H \ge kT$, μ – магнитный момент на атом, k – постоянная Больцмана. Если для низких температур ($T \sim 1 \text{ K}$) поле насыщения порядка 10 кЭ, то насыщение парамагнетика при комнатной температуре требует приложения гигантского поля ~ 3·10⁶ Э. Ситуация несколько меняется при переходе от парамагнетика к ферромагнетику. При этом восприимчивость вблизи температуры Кюри (T_c) возрастает, подчиняясь закону Кюри-Вейсса $\chi = c_K/(T-T_c)$. Это приводит к уменьшению поля насыщения, которое, тем не менее, остается очень большим (~ 10⁵ Э). Последнее обстоятельство связано с необходимостью намагничивания образца до насыщения в парапроцессе. Максимальное значение изменения энтропии достигается при $T = T_c$ и также описывается формулой вида (3) с заменой $M \to M(T = T_c, H)$ [127]. Из этого следует, что большим магнитокалорическим эффектом обладают материалы с высоким значением магнитного момента на атом, к которым относится гадолиний и сплавы на его основе [128]. Но и для этих материалов максимальные значения эффективности охлаждения dT/dH не превышают 1 К/кЭ (рис. 4.1). Рекордные значения магнитокалорического эффекта могут достигаться в некоторых сплавах Гейслера вблизи магнитоструктурного мартенситного перехода. Однако ввиду необратимых микроструктурных изменений высокая магнитокалорическая эффективность наблюдается всего на нескольких циклах.



Рисунок 4.1. а) – изотермическое изменение энтропии в зависимости от изменения магнитного поля для DyCo₂, Gd₅(Si₂Ge₂), La(Fe_{11.44}Si_{1.56}), La(Fe_{11.375}Al_{1.625}), Gd, (La_{0,7}Ca_{0,3})MnO₃ и MnAs. б) – адиабатический рост температуры в зависимости от изменения магнитного поля для DyCo₂, Gd₅(Si₂Ge₂), La(Fe_{11.44}Si_{1.56}), Gd и MnAs. Рисунок взят в [128].

Таким образом, необходимость использования больших магнитных полей (см., например, [129, 130]) и относительно низкая эффективность охлаждения сдерживает разработку и применение магнитных холодильников, работа которых основана на магнитокалорическом эффекте. Также это касается и возможностей применения МКЭ в устройствах микро-(нано)электроники, а также микро-(нано)электромеханических системах [131 – 133] и биомедицине [134]. Такие приложения требуют охлаждения/нагрева микроскопически малого объема, что может быть реализовано с тонкопленочным магнитокалорическим материалом.

4.2 Теория обменного усиления магнитокалорического эффекта

Авторами работы [24] предложен новый подход к повышению эффективности магнитного охлаждения, основанный на использовании эффекта магнитной близости «слабого» ферромагнетика (PM) с «сильными» ферромагнетиками (FM) в тонкопленочных наноструктурах FM₁/PM/FM₂ (рис. 4.2). Под «слабым» и «сильным» ферромагнетиками подразумеваются ферромагнетики с различными *T_c*

в том случае, если T_c «слабого» лежит в диапазоне температур, при которых ведется исследование, а T_c «сильного» выше этого диапазона. Вследствие наличия обменного взаимодействия на границах РМ и FM, средняя намагниченность РМ прослойки будет зависеть от взаимной ориентации намагниченности FM берегов, которой можно управлять приложением относительно небольшого внешнего магнитного поля порядка 100 Э. Эффективность такого способа изменения намагниченности (энтропии) «слабого» ферромагнетика возрастает с уменьшением его толщины, и $\Delta S / \Delta H$ при этом может достигать гигантских значений [24, 25, 135].



Рисунок 4.2. Схематическое изображение распределения намагниченности в парамагнитной прослойке, расположенной между двумя ферромагнетиками при сонаправленной и противоположно направленной ориентации магнитных моментов ферромагнетиков

В теоретической работе [25] была рассмотрена система, состоящая из слоя гадолиния, заключенная между двумя слоями железа. Намагниченность одного из слоев полагается закрепленной, а второго – свободной, т. е. может переключаться под действием небольшого магнитного поля. Расчеты по теории Ландау и теории молекулярного поля показали, что средний модуль намагниченности гадолиния при сонаправленной и противоположно направленной конфигурациях намагниченности слоев железа существенно различается (рис. 4.3, а, б).



Рисунок 4.3.Распределение намагниченности при *T* = *T_c* прослойки Gd между слоями Fe при различных значениях ее толщины в случае сонаправленной (а) и противоположно направленной (б) взаимной ориентации ферромагнитных берегов; в) – зависимость изменения магнитной энтропии Gd при смене конфигурации намагниченности слоев Fe от температуры для различных толщин прослойки Gd. Сплошными линиями изображены расчеты на основе теории Ландау, точками – на основе теории среднего поля. Рисунок взят из [25]

Предсказанное в [25] изменение энтропии на единицу объема гадолиния при смене взаимной ориентации намагниченности слоев железа достигает 10^5 эрг/см³·К (рис. 4.3, в). Для сравнения в объемном гадолинии это изменение во внешнем поле 10 кЭ составляет $2.4 \cdot 10^5$ эрг/(см³·К). Но если намагничивание свободного слоя железа будет происходить в полях несколько сотен эрстед, то это будет означать увеличение магнитокалорической эффективности $\Delta S / \Delta H$ более чем на порядок.

В работе [A8] в рамках феноменологической теории Ландау были проведены аналогичные расчеты для прослойки Ni₆₇Cu₃₃, помещенной между слоями Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (свободного и закрепленного) (рис. 4.4). Максимальное изменение энтропии на единицу объема Ni₆₇Cu₃₃ при перемагничивании одного из ферромагнитных берегов CoFeB составило около 4.5×10³ эрг/см³К, что вдвое меньше магнитокалорического потенциала объемного сплава Ni₆₇Cu₃₃ [136] при внешнем поле 10 кЭ. Учитывая, что изменение взаимной ориентации ферромагнитных берегов будет происходить в поле около 100 Э, получаем потенциальный выигрыш в $\Delta S / \Delta H$ примерно в 50 раз.



Рисунок 4.4. а) – распределение намагниченности при *T* = *T*_c прослойки NiCu, помещенной между слоями CoFeB при различных значениях ее толщины в случае сонаправленной и противоположно направленной взаимной ориентации ферромагнитных берегов; б) – зависимость изменения магнитной энтропии NiCu при смене конфигурации намагниченности слоев CoFeB от температуры для различных толщин прослойки Gd (сплошные линии). Точки с пунктирной линией – магнитокалорический потенциал объемного сплава Ni₆₇Cu₃₃[136].

Таким образом, теоретические расчеты, проведенные работах [24, 25], прогнозируют существенное увеличение магнитокалорической эффективности в FM/PM/FM слоистых структурах «слабого» за счет подмагничивания ферромагнетика (РМ) обменным полем, действующим на него со стороны «сильных» ферромагнетиков (FM). Предполагается, что, так называемое, обменное усиление МКЭ позволит значительно уменьшить внешние магнитные поля, необходимые получения величины магнитокалорического потенциала для рефрижеранта, достаточной для практических применений.

4.3 Обменное усиление магнитокалорической эффективности в структурах СоFe/NiCu/CoFeB

Для экспериментального проверки предсказанного в работах [24, 25] обменного усиления магнитокалорического эффекта в ферромагнитных наноструктурах типа FM/PM/FM были проведены исследования магнитные и магнитокалорические свойства прослойки Ni₇₂Cu₂₈, помещенной между слоями CoFe и CoFeB. Исследуемые структуры Si//Co₉₀Fe₁₀(20)/Ni₇₂Cu₂₈(*d*)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(15)/TiO (толщины указаны в нм) были выращены методом высоковакуумного магнетронного распыления при комнатной температуре. Остаточное давление в ростовой камере не превышало 3·10⁻⁷ Торр. Слои Со₉₀Fe₁₀ и Со₄₀Fe₄₀B₂₀ напылялись из сплавных мишеней указанного состава, а прослойка Ni₇₂Cu₂₈ формировалась одновременным распылением мишеней Ni и Cu. Слои «сильных» ферромагнетиков Со₉₀Fe₁₀ и Со₄₀Fe₄₀B₂₀ в структуре выполняют функции закрепленного и свободного слоев соответственно. Сплав Со₄₀Fe₄₀B₂₀, будучи аморфным, обладает малой (до 10 Э) тогла как сплав C090Fe10 является относительно коэрцитивностью, «магнитожестким».

Магнитные и магнитокалорические свойства изготовленных структур были исследованы методом магнитооптического эффекта Керра. Кривые магнитооптического вращения были получены при различных температурах в диапазоне от 294 до 365 К в магнитном поле, приложенном в плоскости образца. Магнитокалорический потенциал прослойки Ni₇₂Cu₂₈ оценивался с использованием соотношения Максвелла (4.4).

На рис. 4.5 приведены кривые магнитооптического вращения, полученные для образцов с толщиной прослойки $Ni_{72}Cu_{28} d = 5$ нм (а) и d = 20 нм (б). Видно, что при комнатной температуре перемагничивание свободного и закрепленного слоев структуры происходят практически в одних и тех же магнитных полях, что обусловлено наличием между ними межслоевого обменного взаимодействия через прослойку. При увеличении температуры магнитооптические кривые приобретают ступенчатый характер, соответствующий поочередному перемагничиванию свободного и закрепленного слоев с ростом величины внешнего магнитного поля.



Рисунок 4.5. Кривые магнитооптического вращения структур CoFe(20)/Ni₇₂Cu₂₈(d)/ CoFeB(15) при d = 5 нм (а) и d = 20 нм (б), полученные при различных температурах [A9].

В контексте нашего исследования важно отметить, что поле переключения H_{sw} намагниченности магнитомягкого ферромагнитного слоя CoFeB увеличивается с уменьшением Т, что означает увеличение межслоевого обменного взаимодействия с магнитожестким слоем через прослойку. Производная *H_{sw}* по *T* напрямую связана с магнитокалорической эффективностью системы. Это можно понять в рамках феноменологической модели межслоевого обмена между двумя ферромагнитными слоями, имеющими разные поля переключения в приложенном магнитном поле *H*. Если намагниченность закрепленного слоя не изменяется, то эффективную свободную энергию этой системы в расчете на единицу площади пленки можно записать как $F_{eff} = -JM_fM_p - M_fHh_f$, где M_f и M_p – вектора намагниченности свободного И закрепленного ферромагнетиков соответственно, которые сонаправлены при $H < H_{sw}$ и противоположно направлены при $H > H_{sw}$. h_f – толщина свободного слоя. В таком виде первое слагаемое отражает межслоевой обмен J, который зависит от T. Можно ожидать, что зависимость J(T) будет особенно сильной при $T \rightarrow T_c$. Если принять, что намагниченность свободного слоя является ступенчатой функцией H, т.е. $M = M_t \theta (H - J M_p / h_f)$, то магнитная энтропия резко меняется при $H = H_{sw} = JM_p/h_f$. Поле переключения H_{sw} при отсутствии гистерезиса кривой намагничивания свободного слоя представляет собой эффективное поле межслоевого обменного взаимодействия. При этом изменение энтропии на единицу площади $\Delta S = 2M_p M_f \partial J / \partial T$ [22], или, учитывая, что $H_{sw} = J M_p / h_f$, $\Delta S = 2M_f h_f \frac{\partial H_{sw}(T)}{\partial T}$, а на единицу объема спейсера $-\Delta S_v = \frac{2M_f h_f}{d} \frac{\partial H_{sw}(T)}{\partial T}$, где d – толщина слоя РМ.

Полагая, что намагниченность свободного слоя много больше намагниченности прослойки, её магнитокалорический потенциал можно вычислить с использованием соотношения Максвелла [22]:

$$\Delta S_{\nu} = \frac{h_f}{d} \int_{H_{\uparrow\uparrow}}^{H_{\uparrow\downarrow}} \left(\frac{dM}{dT}\right) dH \qquad ,$$

(4.6)

где $H_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$ – пределы интегрирования, которые соответствуют первой и второй точкам перегиба кривой намагничивания CoFeB. Значения ΔS были получены приближенно путем интегрирования разности намагниченностей структуры при различных температурах по магнитному полю в диапазоне, в котором происходит переключение свободного слоя:

$$\Delta S_{\nu} \approx \frac{h_f}{d} \int_{H_{\uparrow\uparrow}}^{H_{\uparrow\downarrow}} \left(\frac{[M(T_i - M(T_{i+1})]}{T_i - T_{i+1}} \right) dH, \tag{4.7}$$

где i = 1, 2, 3 и T_i — температуры от $T_1 = 365$ К до $T_4 = 294$ К. На каждом температурном интервале $T_i - T_{i+1}$ полученное значение $\Delta S(T_i)$ приписывалось среднему значению температуры в этом интервале, $(T_i + T_{i+1})/2$. При расчетах намагниченность насыщения СоFeB предполагалась равной $4\pi M_f = 16.5$ кГс [137].

На рис. 4.6 приведены зависимости ΔS от T для образца с толщиной прослойки Ni₇₂Cu₂₈ равной 5 нм. Также показаны результаты измерения ДS для образцов Ni₈₀Fe₂₀(10)/Ni₆₇Cu₃₃/(3)Co₉₀Fe₁₀/(25)Ir₂₀Mn₈₀, полученные в [22]. Из рис. 4.6 видно, что ΔS является немонотонной функцией T и имеет максимум в точке T_c , которая смещается в сторону более высоких температур с увеличением содержания Ni в прослойке. Мы видим, что, например, в системе Co₉₀Fe₁₀(20)/Ni₇₂Cu₂₈(5)/ Со₄₀Fe₄₀B₂₀(15) максимальный магнитокалорический потенциал составляет $\Delta S \approx 3.3 \cdot 10^3 \text{ эрг/(см}^3 \cdot \text{K})$ при $T = T_C$. Соответствующее значение магнитокалорической эффективности $\Delta S / \Delta H \approx 16.5$ эрг/(см³·K·Э). На том же графике мы показываем значения ΔS в теоретическом пределе, который задается уравнением (5), а также температурную зависимость магнитокалорического потенциала отдельной пленки Ni₆₇Cu₃₃ в области полей от H = 0 Э до H = 30 Э, полученную экстраполяцией данных из работы [21] в область малых Н. Величина ΔS в пике составила около 70 эрг/(см³·К), а $\Delta S/\Delta H \approx 2.33$ эрг/(см³·К·Э). Хотя

магнитокалорический потенциал многослойной системы значительно выше, чем у отдельной пленки Ni₆₇Cu₃₃ при приложении *H* величиной 30 Э, она все же существенно (≈ 30 раз) меньше теоретического предела ΔS , определяемого уравнением (4.5).



Рисунок 4.6. Экспериментальные зависимости *ДS(T)* для многослойных систем S1 (Ni₈₀Fe₂₀(10)/Ni₆₇Cu₃₃/(3)/Co₉₀Fe₁₀/(25)/Ir₂₀Mn₈₀) [22] и S2 (Co₉₀Fe₁₀(20)/Ni₇₂Cu₂₈(5)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(15)) [A9]. Приведены значения *ДS* в теоретическом пределе, определяемом уравнением (4.5), и для отдельной пленки

Ni₆₇Cu₃₃ в диапазоне полей 0 – 30 Э. Зависимость $\Delta S(T)$ для отдельной пленки Ni₆₇Cu₃₃ была найдена путем экстраполяции данных, полученных из работы [136].

Таким образом, экспериментально установлена возможность обменного усиления магнитокалорической эффективности за счет эффекта магнитной близости слоя рефрижеранта Ni₇₂Cu₂₈ с «сильными» феромагнетиками. Величина $\Delta S/\Delta H$ прослойки Ni₇₂Cu₂₈ между слоями CoFe и CoFeB выросла примерно в 7 раз по сравнению с отдельной пленкой Ni₆₇Cu₃₃. Однако, малая величина намагниченности насыщения сплавов NiCu и, соответственно, невысокий магнитокалорический потенциал не позволяют им конкурировать с материалами, обладающими высоким магнитным моментом на атом.

4.4 Обменное усиление магнитокалорической эффективности прослойки Gd между слоями Fe

Известно, что наибольший МКЭ наблюдается в ферромагнетиках вблизи T_c, обладающих высокими значениями намагниченности насыщения. В этой связи наиболее известным магнитокалорическим материалом является гадолиний (Gd) [128], который в объемной форме имеет $m_s = 2020 \,\Gamma c$. Для сравнения, в сплаве Ni₆₇Cu₃₃ эта величина составляет всего 200 Гс [22]. Температура Кюри Gd близка к комнатной ($T_C = 294$ K), что также делает Gd хорошим кандидатом для применения в магнитном охлаждении. Однако проблема необходимости приложения сильных магнитных полей остается нерешенной. В работе [25] было теоретически предсказано обменное усиление магнитокалорической эффективности тонких прослоек Gd (~3 нм), помещенных между слоями Fe, более чем на порядок величины. Это обстоятельство послужило толчком проведению к экспериментального исследования магнитокалорических свойств пленочных структур FM/Gd/FM.

В работе [A10] было проведено исследование МКЭ в многослойной структурах $Ni_{80}Fe_{20}(10)/Gd(d)/Co_{90}Fe_{10}(7)/Ir_{20}Mn_{80}(15)$ (толщины указаны в нм), выращенных методом магнетронного распыления при технологических условиях, аналогичных описанным в разделе 4.3. Слой $Ni_{80}Fe_{20}(10)$ является магнитомягким и должен перемагничиваться в относительно небольшом внешнем магнитном поле, а структура $Co_{90}Fe_{10}(7)/Ir_{20}Mn_{80}(15)$ обладает однонаправленной магнитной анизотропией и выполняет функцию закрепленного слоя. Толщина прослойки Gd варьировалась от 20 до 5 нм.

Магнитные свойства многослойных структур были исследованы методом магнитометрии с использованием СКВИД магнетометра Cryogenic S700XR. Характерные кривые намагничивания структур имеют ступенчатый характер (рис. 4.7). Сначала в малом магнитном поле порядка 10 Э происходит переключение магнитомягкого слоя NiFe, а затем в поле около 200 Э переключается закрепленный слой.

Температурные зависимости кривых намагничивания структур с толщиной прослойки Gd 5 нм показали практически полное отсутствие зависимости поля

- 97 -

переключения свободного слоя от температуры (рис. 4.7, а) при $T \ge 100$ K, что может указывать на слабое обменное взаимодействие на границе NiFe и Gd. При температурах ниже 100 K наблюдается сдвиг кривой намагничивания свободного слоя, соответствующий возникновению ферромагнитного межслоевого обменного взаимодействия с закрепленным слоем CoFe через прослойку Gd (рис. 4.7, б).



Рисунок 4.7. а) – кривые намагничивания структуры Ni₈₀Fe₂₀(10)/Gd(5)/Co₉₀Fe₁₀(7)/Ir₂₀Mn₈₀(15) при различных температурах; б) – кривые намагничивания свободного слоя NiFe [A10].

Температурная зависимость ΔS , полученная с использованием соотношения Максвелла (6) в диапазоне магнитных полей, соответствующих переключению свободного слоя приведена на рис. 4.8.



Рисунок 4.8. Температурная зависимость *ДS* для структуры Ni₈₀Fe₂₀(10)/Gd(5)/Co₉₀Fe₁₀(7)/Ir₂₀Mn₈₀(15) [A10]

В наблюдается исследуемых структурах не существенного усиления магнитокалорической эффективности. Возможно, это связано со слабым обменным взаимодействием между прослойкой Gd и ферромагнитными берегами, в частности с NiFe. Для обеспечения эффективного подмагничивания прослойки необходимо подобрать материалы «сильных» ферромагнетиков, на границах с которыми обменное взаимодействие будет достаточно сильным. Также, стоит обратить особое внимание к самому процессу формирования слоя Gd, поскольку распыленные атомы Gd обладают большой способностью захватывать молекулы остаточной атмосферы. В связи с этим процесс роста пленок Gd требователен к величине остаточного давления в ростовой камере.

С учетом опыта предыдущих исследований был изготовлен новый тип структур со следующим составом: Cr(50)/CoSm(30)/Fe(1)/Gd(2.5-5)/Fe(1)/CoFeB(2)/Ta(5). Образцы выращивались на кремниевых подложках методом магнетронного распыления при базовом давлении $5 \cdot 10^{-8}$ Topp, то есть остаточный вакуум был улучшен почти на порядок по сравнению с предыдущими экспериментами. Слой Cr(50)/CoSm(30) является магнитожестким и выполняет функцию закрепленного слоя. Сплав CoFeB имеет аморфную структуру и обладает малой коэрцитивностью. Тонкие слои Fe на границах с прослойкой рефрижеранта необходимы для обеспечения сильного обменного взаимодействия (40 эрг/см²) [138] с «сильными» ферромагнетиками.

Магнитные и магнитокалорические свойства приготовленных образцов исследовались детектированием магнитного момента *m* образца на вибрационном магнетометре Lake Shore Cryotronics, Inc. при температурах в диапазоне 170 – 320 К, а также методом керровской магнитометрии в диапазоне температур от 300 до 380 К. Из полученных зависимостей *m*(*H*) с помощью термодинамического соотношения Максвелла определялось изменение магнитной энтропии системы (магнитокалорический потенциал).

Сначала были получены кривые магнитооптического вращения исследуемых структур при различных температурах в диапазоне 300 до 380 К (рис. 4.9). Они, как и ожидалось, имеют ступенчатый характер. На первом этапе (при сравнительно слабом магнитном поле H_1) переключается намагниченность Fe(1)/CoFeB(2), а на втором (в относительно сильных полях $H_2 \sim 1000$ Э) – намагниченность CoSm(30).

- 99 -

В процессе перемагничивания свободного слоя происходит перераспределение намагниченности в прослойке, обменно-связанной с «сильными» ферромагнетиками, и, следовательно, изменение магнитной энтропии в ней.



Рисунок 4.9. Кривые магнитооптического вращения структуры с толщиной прослойки Gd 3 нм, полученные при различных температурах: а) – полная магнитооптическая кривая; б) – нормированная кривая гистерезиса свободного слоя.

Как можно видеть из рисунка. 4.9 (а) поля переключения ферромагнитных слоев, как свободного, так и закрепленного, проявляют сильную температурную чувствительность. Уменьшение поля перемагничивания CoSm(30) с ростом температуры связано с уменьшением его коэрцитивности. Такое поведение наблюдается и для отдельных пленок CoSm. Кривые магнитного гистерезиса свободного слоя Fe/CoFeB (рис. 4.9, б), полученные в диапазоне магнитных полей, в котором не происходит переключение CoSm, смещены по магнитному полю, что обусловлено наличием межслоевого обменного взаимодействия «сильных» ферромагнетиков через прослойку Gd. Величина этого обменного сдвига растет с понижением температуры и является индикатором степени «подмагниченности» рефрижеранта. По температурной зависимости эффективного слоя поля обменного взаимодействия Hex межслоевого можно определить магнитокалорический потенциал прослойки, феноменологическим пользуясь выражением:

$$\Delta S = 2M_f M_p \frac{dJ(T)}{dT} = -2M_f \frac{h_f}{d} \frac{dH_{ex}}{dT},\tag{4.8}$$

где M_f и M_p – намагниченности свободного и закрепленного слоев соответственно, J(T) – константа межслоевого обменного взаимодействия между ферромагнитными слоями, h_f и d – толщины свободного слоя и парамагнитной прослойки соответственно.

Также Δ*S* можно вычислить с использованием соотношения Максвелла. Однако в обоих случаях нужно точно знать величину намагниченности свободного слоя, которая была определена из данных магнитометрии.

На рис. 4.10 приведены кривые намагничивания структуры с толщиной прослойки Gd 3 нм, полученные на вибрационном магнетометре в диапазоне температур 170 – 320 К. Также были проведены магнитометрические измерения образцов с толщинами Gd 2.5 нм и 5 нм (кривые их намагниченности не приводятся). В правой части рис. 4.10 приведен участок кривой намагничивания, на котором происходит переключение свободного слоя. Магнитное поле переключения CoSm всем диапазоне температур было достаточно велико для того, чтобы могло реализоваться состояние с противоположно направленной намагниченностью ферромагнетиков, и при этом свободный слой был намагничен практически до насыщения.



Рисунок 4.10. Кривые намагничивания структуры с толщиной прослойки Gd 3 нм, полученные при различных температурах на вибрационном магнетометре [A11].

По полученным кривым с использованием формулы (6) была получена температурная зависимость $\Delta S(T)$ при смене взаимной ориентации намагниченности «сильных» ферромагнетиков. Пределы интегрирования

выбирались по характерным изломам на кривых перемагничивания свободного слоя (рис. 4.11, а). Ширина этого диапазона сильно увеличивается с уменьшением температуры (рис. 4.11, б). Вероятно, это является следствием неоднородности межслоевого обменного взаимодействия по площади образца из-за неоднородности толщины Gd.



Рисунок 4.11. а) – определение пределов интегрирования для расчета Δ*S*; б) – температурная зависимость диапазона магнитного поля, в котором происходит переключение свободного слоя структуры с толщиной Gd 3 нм.

На рис. 4.12 приведены температурные зависимости магнитокалорического потенциала ΔS и магнитокалорической эффективности $\Delta S / \Delta H$ для исследуемых многослойных структур с толщинами прослоек Gd 2.5, 3 и 5 нм, рассчитанные по кривым намагничивания, полученным методами магнитометрии, а также по магнитооптического вращения использованием кривым с значения намагниченности насыщения свободного определенной слоя, ИЗ магнитометрических измерений.



Рисунок 4.12. Температурные зависимости магнитокалорического потенциала ΔS (a) и эффективности $\Delta S/\Delta H$ (b) в структурах FM/Gd/FM. Значения ΔS показаны для образцов с толщиной прослойки 5 и 3 и 2.5нм, тогда как $\Delta S/\Delta H$ приводится для образцов с прослойкой Gd толщиной 3 и 2.5нм (A11) и сравнивается с той же величиной в отдельном более толстом (толщиной 30 нм) слое Gd [139].

В структуре с 5 нм прослойкой Gd магнитокалорический эффект практически отсутствует. Это объясняется тем, что поле перемагничивания свободного слоя слабо зависит от температуры, что обусловлено малой величиной межслоевого обменного взаимодействия между ферромагнитными слоями во всем исследуемом температурном диапазоне. Это может быть связано с тем, что корреляционная длина Gd меньше 5 нм, поэтому магнитные моменты на противоположных границах прослойки не «чувствуют» друг друга.

Максимальное полученное значение изменения энтропии составило 2.3·10⁴ эрг/см³К для структуры с толщиной Gd 2.5 нм. При увеличении толщины слоя Gd до 5 нм изменение энтропии практически отсутствует. Более важной с характеристикой прикладной точки зрения является магнитокалорическая эффективность, максимальные значения которой для наших структур с толщинами прослойки Gd 2.5 и 3 нм наблюдаются при температуре 305 К и лежат в диапазоне 25 - 33 эрг/см³К·Э, что в 5 – 7 раз больше, чем для отдельного слоя Gd толщиной 30 нм, полученного при схожих технологических условиях [139]. Это означает, что теоретически предсказанное обменное усиление магнитокалорического эффекта в трехслойных системах с прослойкой Gd действительно (косвенно) подтверждается Однако эксперименте. объема следует отметить, что ввиду малого B

«рефрижеранта» в исследуемой тонкопленочной системе, непосредственных измерений изменения температуры системы не проводилось, а магнитокалорический потенциал оценивался по магнитометрическим данным с использованием соотношения Максвелла.

Тем не менее, опираясь на полученные в диссертационной работе и статьях [А9] и [A10] результаты, такие измерения были выполнены в другой научной группе [140]. Для этого авторы методом магнетронного распыления вырастили многослойную структуру NiFe(6)/Fe₇₀Cr₃₀(4)/NiFe(4)/ IrMn(10) на тонкой мембране SiN, на которой предварительно был сформирован слой терморезистивного материала TiO, а также изолирующий слой SiO₂, и подведены электрические контакты (рис. 4.13). Изменение температуры определялось по изменению сопротивления терморезистора при приложении к образцу переменного магнитного поля.



Рисунок 4.13. (a) – фотография и (b) – схема исследованных образцов. Рисунок взят из [140]

На рис. 4.14 приведена зависимость изменения температуры образцов многослойных структурур NiFe(6)/Fe₇₀Cr₃₀(4)/NiFe(4)/IrMn(10), а также отдельных 50 нм пленок Fe₇₀Cr₃₀ от амплитуды приложенного переменного магнитного поля. Рисунок наглядно демонстрирует существенное увеличение магнитокалорической эффективности структуры. При приложении магнитного поля величиной 150 Э изменение температуры образца с многослойной структурой оказывается в 4.5 раза больше, чем в образце с 50 нм пленкой Fe₇₀Cr₃₀.



Рисунок 4.14. Зависимость изменения температуры образца с многослойной структурой NiFe(6)/Fe₇₀Cr₃₀(4)/NiFe(4)/IrMn(10) (обозначен mA) и образца с пленкой Fe₇₀Cr₃₀(50) (обозначен mC), выращенных на мембранах SiN.

Заключение

Основные результаты работы заключаются в следующем:

1. Отработана технология изготовления ТМК СоFeB/MgO/CoFeB микронного и субмикронного латерального размера, демонстрирующие ТМР эффект величиной 200 % при комнатной температуре. В зависимости от геометрических параметров ТМК и структуры свободного слоя в нем реализуется квазиоднородное или вихревое распределение намагниченности.

2. Обнаружен эффект, заключающийся в сдвиге по магнитному полю на 6 – 10 Э кривой намагничивания свободного слоя ТМК СоFeB/MgO/CoFeB при приложении к нему электрического напряжения величиной 1 В. Наблюдаемое явление может быть обусловлено изменением межслоевого взаимодействия между ферромагнитными слоями структуры через туннельный барьер, связанным с зависимостью его формы и эффективной ширины от приложенного к нему электрического поля. При приложении к ТМК импульса напряжения величиной 2 В длительностью 100 нс происходит изменение его резистивного состояния на 50 % от амплитуды магнетосопротивления, что соответствует изменению проекции средней намагниченности свободного слоя на ось однонаправленной анизотропии на величину, равную его намагниченности насыщения. При этом плотность тока, протекающего через контакт, не превышает 10⁴ А/см², что на 2-3 порядка ниже, чем при перемагничивании за счет STT-эффекта.

3. Обнаружен новый эффект, заключающийся в квадратичной зависимости поперечной разности потенциалов в NM-электроде, от напряжения, приложенного к туннельному контакту CoFeB/MgO/NM (NM = Ta, Pt). Квадратичный вклад в сигнал обусловлен спин-орбитальным рассеянием туннелирующих электронов во внешнем электрическом поле, приложенном к барьеру туннельного контакта, и не зависит от материала берегов контакта. Сопутствующие аномальный и спиновый эффекты линейны по приложенному напряжению и имеют на порядок меньшую величину. Приложение к туннельному контакту переменного напряжения приводит возникновению постоянного холловского сигнала, величина которого К квадратично зависит от амплитуды этого напряжения.

4. Экспериментально продемонстрировано усиление магнитокалорического эффекта прослоек «слабых» ферромагнетиков NiCu и Gd, помещенных между «сильными» ферромагнетиками в многослойных наноструктурах типа FM/PM/FM. Магнитокалорическая эффективность прослойки Ni₇₂Cu₂₈ в структуре CoFeB(15)/ Ni₇₂Cu₂₈(15)/CoFe(20) составила $\Delta S/H \approx 3.3 \cdot 10^3$ эрг/(см³·К), что, по оценкам, примерно в 50 раз больше, чем изменение энтропии $\Delta S \approx 70$ эрг/(см³·K) отдельной ней пленки Ni₆₈Cu₃₂ при приложении к магнитного поля 30Э. Магнитокалорическая эффективность $\Delta S/\Delta H$ прослойки Ni₇₂Cu₂₈ при этом выросла примерно в 7 раз. Магнитокалорическая эффективность слоя Gd, помещенного между слоями Fe в структурах CoSm(30)/Fe(1)/Gd(2.5, 3)/Fe(1)/CoFeB(2) лежит в диапазоне 25 - 33 эрг/(см³·K·Э), что в 5 – 7 раз больше, чем для отдельного слоя Gd толщиной 30 нм, полученного при схожих технологических условиях. Таким образом, проведенные исследования подтверждают теоретически предсказанное обменное усиление магнитокалорического эффекта.

Автор выражает искреннюю благодарность своему научному руководителю Сапожникову Максиму Викторовичу за переданные знания и опыт, неоценимую помощь в постановке и решении задач работы, а также внимательный анализ текста диссертации и важные замечания.

Автор глубоко признателен соавторам А. А. Фраерману, Н. С. Гусеву, В. В. Рогову, Е. А. Караштину, Е. В. Скороходову, Н. И. Полушкину, М. А. Кузнецову, И. А. Федотову, А. Н. Орловой, Д. А. Татарскому, Е. А. Кравцову и М. Н. Волочаеву за плодотворную совместную работу.

Автор благодарен А. Ю. Аладышкину за критическое изучение рукописи и ценные замечания.

Автор искренне благодарит свою супругу Викторию Пашенькину и своих родителей за мотивацию и поддержку во время работы над диссертацией.
Список публикаций автора по теме диссертации

Статьи в журналах из перечня ВАК

А1. Пашенькин, И. Ю. Туннельные магниторезистивные элементы для датчиков магнитного поля / И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, Н. С. Гусев, В. В. Рогов, Д. А. Татарский, А. А. Фраерман // Журнал технической физики. — 2019. — т. 89, вып. 11. — С. 1732–1735.

A2. Saito, Y. Terahertz Emission Spectroscopy of Exchange-Biased Spintronic Heterostructures: Single- and Double-Pump Techniques / Y. Saito, F. N. Kholid, E. Karashtin, I. Pashenkin, R. V. Mikhaylovskiy // Phys. Rev. Appl. — 2023. — Vol. 19, no. 6. — P. 064040.

АЗ. Пашенькин, И. Ю. Магнитоэлектрический эффект в туннельных магниторезистивных контактах CoFeB/MgO/CoFeB / И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, Н. С. Гусев, В. В. Рогов, Д. А. Татарский, А. А. Фраерман, М. Н. Волочаев // Письма в ЖЭТФ. — 2020. — т. 111, вып. 12, С. 815.

A4. Fedotov, I. A. Creation of Submicrometer Magnetoresistive Tunnel Junction CoFeB/MgO/CoFeB Using an HSQ/PMMA Resistive Mask / I. A. Fedotov, I. Yu. Pashen'kin, E. V. Skorokhodov, N. S. Gusev // Phys. Met. Metall. — 2024. — Vol. 125, no. 2. — P. 124–128.

А5. Пашенькин, И. Ю. Вихревые туннельные магнитные контакты с композитным свободным слоем / И. Ю. Пашенькин, Е. В.Скороходов, М. В. Сапожников и др. // Журнал технической физики. — 2023. — т. 93, вып. 11. — С. 1616–1621.

A6. Pashen'kin, I. Yu. Magnetization Reversal of Magnetic Tunnel Junctions by Low-Current Pulses / I. Yu.Pashen'kin, N. S. Gusev, D. A. Tatarskiy, M.V. Sapozhnikov // IEEE Trans. Electron Devices. — 2024. — Vol. 71, no. 4. —P. 2755–2759.

A7. Pashenkin, I. Yu. Extrinsic tunnel Hall effect in MgO-based tunnel junctions / I.
Yu. Pashenkin, M. V. Sapozhnikov, N. S. Gusev, E. A. Karashtin, A. A. Fraerman //
Phys. Rev. B. — 2022. — Vol. 106, no. 22. — P. L220408.

А8. Караштин, Е. А. Эффект Холла в туннельных магнитных контактах / Е. А.

Караштин, Н. С. Гусев, И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, А. А. Фраерман // ЖЭТФ. – 2023. – т. 163, вып. 1. – С. 5–13.

A9. Kuznetsov, M. A. Magnetocaloric effect in exchange-coupled strong/weak/strong ferromagnet stacks / M. A. Kuznetsov, I. Y. Pashenkin, N. I. Polushkin, M. V. Sapozhnikov, A. A. Fraerman // J. Appl. Phys. — 2020. — Vol. 127, no. 18.

A10. Polushkin, N. I. Magnetic and magnetocaloric properties of Py/Gd/CoFe/IrMn stacks / N. I. Polushkin, I. Y. Pashenkin, E. Fadeev, E. Lähderanta, A.A. Fraerman.// J. Magn. Magn. Mater. — 2019. — Vol. 491. — P. 165601.

А11. Пашенькин, И. Ю. Увеличение магнитокалорической эффективности прослойки Gd между сильными ферромагнетиками / И. Ю. Пашенькин, Н. И. Полушкин, М. В. Сапожников, Е. С. Демидов, Е. А. Кравцов, А. А. Фраерман // Физика твердого тела. — 2022. — т 64, вып. 10. — С. 1357 – 1364.

Публикации в трудах конференций

В1. Н. С. Гусев, В. В. Рогов, И. Ю. Пашенькин, Д. А. Татарский, М. В. Сапожников, А. А. Фраерман / Туннельные магнитные контакты с пиннингом на антиферромагнитном подслое // Материалы XXIV Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 10–13 марта 2020 г.) в 2 т. Том 1, 2020, С. 128–129.

В2. И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, Н. С. Гусев, В. В. Рогов, Д. А. Татарский, А. А. Фраерман, М. Н. Волочаев / Магнитоэлектрический эффект в туннельных магниторезистивных контактах на основе слоев CoFeB/MgO/CoFeB // Материалы XXIV Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 10–13 марта 2020 г.) в 2 т. Том 1, 2020, С. 251–252.

ВЗ. М. А. Кузнецов, И. Ю. Пашенькин, Н. И. Полушкин, М. В. Сапожников, А. А. Фраерман / Усиление магнитокалорического эффекта в многослойных структурах парамагнетик/ ферромагнетик // Материалы XXIV Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 10–13 марта 2020 г.) в 2 т. Том 1, 2020, С. 219–220.

В4. И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, Н. С. Гусев, В. В. Рогов, Д. А. Татарский, А. А. Фраерман, М. Н. Волочаев / Магнитоэлектрический эффект в

туннельных магниторезистивных контактах на основе слоев CoFeB/MgO/CoFeB // Сборник трудов XXIV Международной научной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах» (Москва, 1 – 8 июля 2021 года), 2021, С. 919–922.

В5. И. Ю. Пашенькин, М. А. Кузнецов, Н. И. Полушкин, М. В. Сапожников, Е. С. Демидов, Е. А. Кравцов, А. А. Фраерман / Увеличение магнитокалорической эффективности ультратонкой прослойки Gd между сильными ферромагнетиками // Материалы XXVI Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 14 – 17 марта 2022 г.) в 2 т. Том 1, 2022, С. 327–328.

В6. И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, Е. В. Скороходов, Н. С. Гусев, Д. А. Татарский, А. А. Фраерман / Влияние механизма перемагничивания на магнитоэлектрический эффект в туннельных магниторезистивных контактах CoFeB/MgO // Материалы XXVI Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 14 – 17 марта 2022 г.) в 2 т. Том 1, 2022, С. 332–333.

В7. М. В. Сапожников, И. Ю. Пашенькин, Н. С. Гусев, А. А. Фраерман / Эффект Холла в туннельных контактах // Материалы XXVI Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 14 – 17 марта 2022 г.) в 2 т. Том 1, 2022, С. 346–347.

B8. E. A. Karashtin, N. S. Gusev, I. Yu. Pashen'kin, M. V. Sapozhnikov, A. A. Fraerman / Tunneling Hall effect: Theory and experiment // Book of abstracts of VIII Euro-Asian Symposium «Trends in MAGnetism»: EASTMAG-2022 (Казань). Vol. 1, 2022, P. 22.

B9. M. V. Sapozhnikov, I. Yu. Pashen'kin, N. S. Gusev, E. A. Karashtin, A. A. Fraerman / Extrinsic tunnel hall effect in MgO-based tunnel junctions // Book of Abstracts of Samarkand International Symposium on Magnetism (2 – 6 July 2023, Samarkand), 2023, P. 143.

В10. И. Ю. Пашенькин, М. В. Сапожников, Е. В. Скороходов, Н. С. Гусев, А. А. Фраерман / Вихревые туннельные магниторезистивные контакты CoFeB/MgO/ CoFeB // Материалы XXVII Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 13 – 16 марта 2023 г.) в 2 т. Том 1, 2023, С. 271–272.

B11. E. A. Karashtin, N. S. Gusev, I. Yu. Pashen'kin, M. V. Sapozhnikov, A. A. Fraerman / Tunneling Hall effect: Theory and experiment // Book of abstracts of THE 8th INTERNATIONAL CONFERENCE on SUPERCONDUCTIVITY and MAGNETISM (Ölüdeniz-Fethiye, TÜRKİYE, May 04-11 2023), 2023, P. 83.

B12. I. Pashenkin, N. Polushkin, A. Fraerman, M. Sapozhnikov, E. Kravtsov / Exchange enhancement of the magnetocaloric effect in ferromagnetic nanostructures // Book of abstracts of V International Baltic Conference on Magnetism 2023 (Kaliningrad, Aug 20 – 24 2023), 2023, P. 46.

В13. И. Ю. Пашенькин, Н. И. Полушкин, А. А. Фраерман, М. В. Сапожников, Е. Обменное A. Кравцов / усиление магнитокалорического эффекта В ферромагнитных наноструктурах // Материалы XXVIII Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 11 – 15 марта 2024 г.) в 2 т. Том 1, 2024, С. 332–333.

В14. И. Ю. Пашенькин, Е. В. Скороходов, М. В. Сапожников, А. А. Фраерман, И. А. Федотов, Г. А. Кичин, К. А. Звездин / Статические и динамические свойства вихревых наноконтактов // Материалы XXVIII Международного симпозиума «Нанофизика и наноэлектроника» (Нижний Новгород, 11 – 15 марта 2024 г.) в 2 т. Том 1, 2024, С. 359–360.

Список литературы

Baibich, M. N. Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices
 / M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert [et al.] // Phys. Rev. Lett. — 1988. — Vol. 61, no.
 21. — P. 2472–2475.

2. Binasch, G. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange / G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, W. Zinn // Phys. Rev. B. — 1989. — Vol. 39, no. 7. — P. 4828–4830 (R).

3. Daughton, J. Magnetic field sensors using GMR multilayer / J. Daughton, J. Brown,
E. Chen [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 1994. — Vol. 30, no. 6. — P. 4608–4610.

4. Tsang, C. Design, fabrication and testing of spin-valve read heads for high density recording / C. Tsang, R. E. Fontana, T. Lin [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 1994. —Vol. 30, no. 6. — P. 3801–3806.

5. Tehrani, S. Progress and outlook for MRAM technology / S. Tehrani, J. M. Slaughter, E. Chen [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 1999. — Vol. 35, no. 5. — P. 2814–2819.

6. Julliere, M. Tunneling between ferromagnetic films / M. Julliere // Phys. Lett. A. — 1975. — Vol. 54, no. 3. — P. 225–226.

7. Djayaprawira, D. D. 230% room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions / D. D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2005. — Vol. 86, no. 9.

8. Wang, W. G. Understanding tunneling magnetoresistance during thermal annealing in MgO-based junctions with CoFeB electrodes / W. G. Wang, C. Ni, G. X. Miao [et al.] // Phys. Rev. B. — 2010. — Vol. 81, no. 14. — P. 144406.

9. Kodzuka, M. Effects of boron composition on tunneling magnetoresistance ratio and microstructure of CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valve magnetic tunnel junctions / M. Kodzuka, T. Ohkubo, K. Hono [et al.] // J. Appl. Phys. — 2012. — Vol. 111, no. 4.

Apalkov, D. Magnetoresistive Random Access Memory / D. Apalkov, B. Dieny, J.
 M. Slaughter // Proc. IEEE. — 2016. — Vol. 104, no. 10. — P. 1796–1830.

11. Freitas, P. P. Spintronic Sensors / P. P. Freitas, R. Ferreira, S. Cardoso // Proc. IEEE. — 2016. — Vol. 104, no. 10. — P. 1894–1918.

12. Bagayoko, D. Band structure of bcc cobalt / D. Bagayoko, A. Ziegler, J. Callaway // Phys. Rev. B. — 1983. — Vol. 27, no. 12. — P. 7046–7049.

 Meservey, R. Spin-polarized electron tunneling / R. Meservey, P. M. Tedrow // Phys. Rep. — 1994. — Vol. 238, no. 4. — P. 173–243.

14. Dieny, B. Spin-valve effect in soft ferromagnetic sandwiches / B. Dieny, V. S. Speriosu, B. A. Gurney [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. — 1991. — Vol. 93. — P. 101–104.

15. Sato, M. Spin-valve-like properties and annealing effect in ferromagnetic tunnel junctions / M. Sato, K. Kobayashi // IEEE Trans. Magn. — 1997. — Vol. 33, no. 5. — P. 3553–3555.

17. Parkin, S. S. P. Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d, and 5d transition metals / S. S. P. Parkin // Phys. Rev. Lett. — 1991. — Vol. 67, no. 25. — P. 3598–3601.

18. Katayama, T. Interlayer exchange coupling in Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions / T. Katayama, S. Yuasa, J. Velev [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2006. — Vol. 89, no. 11.

19. Gallagher, W. J. Development of the magnetic tunnel junction MRAM at IBM: From firstjunctions to a 16-Mb MRAM demonstrator chip / W. J. Gallagher, S. S. P. Parkin // IBM J. Res. Dev. — 2006. — Vol. 50, no. 1. — P. 5–23.

20. Lee, Y. M. Giant tunnel magnetoresistance and high annealing stability in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions with synthetic pinned layer / Y. M. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2006. — Vol. 89, no. 4.

21. Kravets, A. F. Synthetic ferrimagnets with thermomagnetic switching / A. F. Kravets, Yu. I. Dzhezherya, A. I. Tovstolytkin [et al.] // Phys. Rev. B. — 2014. — Vol. 90, no. 10. — P. 104427.

22. Vdovichev, S. N. High magnetocaloric efficiency of a NiFe/NiCu/CoFe/MnIr multilayer in a small magnetic field / S. N. Vdovichev, N. I. Polushkin, I. D. Rodionov [et al.] // Phys. Rev. B. — 2018. — Vol. 98, no. 1. — P. 014428.

23. Schwenk, D. Ferromagnetic multilayers: Statics and dynamics / D. Schwenk, F. Fishman, F. Schwabl // Phys. Rev. B. — 1988. — Vol. 38, no. 16. — P. 11618–11638.

24. Fraerman, A. A. Magnetocaloric effect in ferromagnet/paramagnet multilayer structures / A. A. Fraerman, I. A. Shereshevskii // JETP Lett. — 2015. — Vol. 101, no. 9. — P. 618–621.

25. Kuznetsov, M. A. Magnetocaloric Effect in Nanosystems Based on Ferromagnets with Different Curie Temperatures / M. A. Kuznetsov, A. B. Drovosekov, A. A. Fraerman // J.Exp. Theor.Phys. — 2021. — Vol. 132, no. 1. — P. 79–93.

26. Johnson, M. T. Magnetic anisotropy in metallic multilayers / M. T. Johnson, P. J.
H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, J. J. de Vries // Rep. Prog. Phys. — 1996. —Vol. 59, no. 11. — P. 1409.

27. Dieny, B. Perpendicular magnetic anisotropy at transition metal/oxide interfaces and applications / B. Dieny, M. Chshiev // Rev. Mod. Phys. — 2017. — Vol. 89, no. 2. — P. 025008.

28. Jiang, W. Skyrmions in magnetic multilayers / W. Jiang, G. Chen, K. Liu [et al.] // Phys. Rep. — 2017. — Vol. 704. — P. 1–49.

29. Sinova, J. Spin Hall effects / J. Sinova, Sergio O. Valenzuela, J. Wunderlich [et al.] // Rev. Mod. Phys. — 2015. — Vol. 87, no. 4. — P. 1213–1260.

30. Kazemi, M. All-Spin-Orbit Switching of Perpendicular Magnetization / M. Kazemi,
G. E. Rowlands, S. Shi [et al.] // IEEE Trans. Electron Devices. — 2016. — Vol. 63, no.
11. — P. 4499–4505.

31. Oboril, F. Evaluation of Hybrid Memory Technologies Using SOT-MRAM for On-Chip Cache Hierarchy / F. Oboril, R. Bishnoi, M. Ebrahimi, M. B. Tahoori // IEEE Trans. Comput. Aided Des. Integr. Circuits Syst. — 2015. —Vol. 34, no. 3. — P. 367– 380.

32. Dussaux, A. Large microwave generation from current-driven magnetic vortex oscillators in magnetic tunnel junctions / A. Dussaux, B. Georges, J. Grollier [et al.] // Nat. Commun. — 2010. — Vol. 1, no. 8. — P. 1–6.

33. Seifert, T. Efficient metallic spintronic emitters of ultrabroadband terahertz radiation / T. Seifert, S. Jaiswal, U. Martens [et al.] // Nat. Photonics. — 2016. — Vol. 10. — P. 483 – 488.

34. Dieny, B. Giant magnetoresistance in spin-valve multilayers / B. Dieny // J. Magn.
Magn. Mater. — 1994. — Vol. 136, no. 3. — P. 335–359.

35. Huai, Y. Spin-transfer torque MRAM (STT-MRAM): Challenges and prospects /
Y. Huai // AAPPS Bulletin. — 2008. — Vol. 18. – P. 33.

36. Khvalkovskiy, A. V. Basic principles of STT-MRAM cell operation in memory arrays / A. V. Khvalkovskiy, D. Apalkov, S. Watts [et al.] // J. Phys. D: Appl. Phys. — 2013. — Vol. 46, no. 7. — P. 074001.

37. Zhang, D. Bipolar Electric-Field Switching of Perpendicular Magnetic Tunnel Junctions through Voltage-Controlled Exchange Coupling / D. Zhang, M. Bapna, W. Jiang [et al.] // Nano Lett. — 2022. — Vol. 22, no. 2. — P. 622–629.

38. Zehner, J. Nonvolatile Electric Control of Exchange Bias by a Redox Transformation of the Ferromagnetic Layer / J. Zehner, R. Huhnstock, S. Oswald [et al.] // Adv. Electron. Mater. — 2019. — Vol. 5, no. 6. — P. 1900296.

39. Zehner, J. Magnetoionic control of perpendicular exchange bias / J. Zehner, D. Wolf, M. U. Hasan [et al.] // Phys. Rev. Mater. — 2021. — Vol. 5, no. 6. — P. L061401.

40. Li, Q. Electrical control of exchange bias via oxygen migration across CoO-ZnO nanocomposite barrier / Q. Li, S. S. Yan, J. Xu [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2016. — Vol.109, no. 25.

41. Ashida, T. Isothermal electric switching of magnetization in Cr₂O₃/Co thin film system / T. Ashida, M. Oida, N. Shimomura [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2015. — Vol. 106, no. 13.

42. Toyoki, K. Magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/ α -Cr₂O₃/Pt stacked films / K. Toyoki, Y. Shiratsuchi, A. Kobane [et al.] //Appl. Phys. Lett. — 2015. — Vol. 106, no. 16.

43. Barsukov, I. Field-dependent perpendicular magnetic anisotropy in CoFeB thin films / I. Barsukov, Yu Fu, A. M. Gon calves [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2014. — Vol. 105, no. 15.

44. Alzate, J. G. Temperature dependence of the voltage-controlled perpendicular anisotropy in nanoscale MgO/CoFeB/Ta magnetic tunnel junctions / J. G. Alzate, P. Khalili Amiri, G. Yu [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2014. — Vol. 104, no. 11.

45. Alzate, J. G. Voltage-induced switching of nanoscale magnetic tunnel junctions / J.
G. Alzate, P. Khalili Amiri, P. Upadhyaya [et al.] // 2012 International Electron Devices Meeting San Francisco, CA, USA. — 2012. – P. 29.5.1–29.5.4.

46. Wang, S. Comparative Evaluation of Spin-Transfer-Torque and Magnetoelectric Random Access Memory / S. Wang, H. Lee, F. Ebrahimi [et al.] // IEEE J. Emerging Sel. Top. Circuits Syst. — 2016. — Vol. 6, no. 2. — P. 134–145.

47. Peng, B. Deterministic Switching of Perpendicular Magnetic Anisotropy by Voltage Control of Spin Reorientation Transition in (Co/Pt)₃/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃–PbTiO₃ Multiferroic Heterostructures / B. Peng, Z. Zhou, T. Nan [et al.] // ACS Nano. —2017. — Vol. 11, no. 4. — P. 4337–4345.

48. Thiele, C. Influence of strain on the magnetization and magnetoelectric effect in La_{0.7}*A*_{0.3}MnO₃/PMN–PT(001) (*A*=Sr,Ca) / C. Thiele, K. D⁻orr, O. Bilani [et al.] // Phys. Rev. B. — 2007. — Vol. 75, no. 5. — P. 054408.

49. Leufke, P. M. In situ magnetometry studies of magnetoelectric LSMO/PZT heterostructures / P. M. Leufke, R. Kruk, R. A. Brand, H. Hahn // Phys. Rev. B. — 2013.
— Vol. 87, no. 9. — P. 094416.

50. Gusev, N. S. The Magnetoelectric Effect in Ferroelectric/Ferromagnetic Film Hybrid Systems with Easy-Plane and Easy-Axis Anisotropy / N. S. Gusev, M. V. Sapozhnikov, O. G. Udalov [et al.] // Tech. Phys. — 2020. — Vol. 65, no. 11. — P. 1832–1836.

51. Hasan, M. Z. Colloquium: Topological insulators / M. Z. Hasan, C. L. Kane // Rev. Mod. Phys. — 2010. — Vol. 82, no. 4. — P. 3045–3067.

52. Zhao, C.-J. Research progress in anisotropic magnetoresistance / C.-J. Zhao, L. Ding, J.-S. HuangFu [et al.] // Rare Met. — 2013. — Vol. 32, no. 3. —P. 213–224.

53. Liu, L. Spin Hall effect tunnelling spectroscopy / L. Liu, C.-T. Chen, J. Z. Sun // Nat. Phys. — 2014. — Vol. 10. — P. 561–566.

54. Liu, L. Spin-polarized tunneling study of spin-momentum locking in topological insulators / L. Liu, A. Richardella, I. Garate [et al.] // Phys. Rev. B. — 2015. —Vol. 91, no. 23. — P. 235437.

55. Fang, C. Determination of spin relaxation times in heavy metals via secondharmonic spin injection magnetoresistance / C. Fang, C. H. Wan, B. S. Yang [et al.] // Phys. Rev. B. — 2017. — Vol. 96, no. 13. — P. 134421.

56. Nakagawara, K. Temperature-dependent spin Hall effect tunneling spectroscopy in platinum / K. Nakagawara, S. Kasai, J. Ryu [et al.] // Appl. Phys.Lett. — 2019. — Vol. 115, no. 16.

57. G'otte, M. Determination of Out-of-Plane Spin Polarization of Topological Surface States by Spin Hall Effect Tunneling Spectroscopy / M. G'otte, T. Dahm //Phys. Status Solidi B. — 2021. — Vol. 258, no. 1. — P. 2000032.

58. Tarasenko, S. A. In-Plane Electric Current Is Induced by Tunneling of Spin-Polarized Carriers / S. A. Tarasenko, V. I. Perel', I. N. Yassievich // Phys. Rev. Lett. — 2004. — Vol. 93, no. 5. — P. 056601.

59. Vedyayev, A. Spontaneous Anomalous and Spin Hall Effects Due to Spin-Orbit Scattering of Evanescent Wave Functions in Magnetic Tunnel Junctions / A. Vedyayev, N. Ryzhanova, N. Strelkov, B. Dieny // Phys. Rev. Lett. — 2013. — Vol. 110, no. 24. — P. 247204.

60. Vedyayev, A. Influence of spin-orbit interaction within the insulating barrier on the electron transport in magnetic tunnel junctions / A. Vedyayev, N. Ryzhanova, N. Strelkov [et al.] // Phys. Rev. B. — 2017. — Vol. 95, no. 6. — P. 064420.

61. Vedyayev, A. V. Anomalous and spin Hall effects in a magnetic tunnel junction with Rashba spin-orbit coupling / A. V. Vedyayev, M. S. Titova, N. V. Ryzhanova [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2013. — Vol. 103, no. 3.

62. Manna, P. K. Two interface effects: Exchange bias and magnetic proximity / P. K. Manna, S. M. Yusuf // Phys. Rep. — 2014. — Vol. 535, no. 2. — P. 61–99.

63. Вонсовский, С. В. Ферромагнетизм / С. В. Вонсовский, Я. С. Шур. – М.; Л.: ОГИЗ. Гос. изд-во технико-теорет. лит., 1948. – 816 с. – Имен. указ.: с. 807–810. – Предм. указ.: с. 811–816.

64. Jenkins, A. S. Spin-torque resonant expulsion of the vortex core for an efficient radiofrequency detection scheme / A. S. Jenkins, R. Lebrun, E. Grimaldi [et al.] // Nat. Nanotechnol. — 2016. — Vol. 11. — P. 360–364.

65. Wang, D. 70% TMR at room temperature for SDT sandwich junctions with CoFeB as free and reference Layers / D. Wang, C. Nordman, J. M. Daughton [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 2004. — Vol. 40, no. 4. — P. 2269–2271.

66. Gao, L. Increased Tunneling Magnetoresistance Using Normally bcc CoFe Alloy Electrodes Made Amorphous without Glass Forming Additives / L. Gao, X. Jiang, S.-H. Yang [et al.] // Phys. Rev. Lett. — 2009. — Vol. 102, no. 24. — P. 247205.

67. Slonczewski, J. C. Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier / J. C. Slonczewski // Phys. Rev. B. — 1989. — Vol. 39, no. 10. — P. 6995–7002.

68. Bowen, M. Nearly total spin polarization in La_{2/3}Sr_{1/3}MnO from tunneling experiments / M. Bowen, M. Bibes, A. Barth el emy [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2003.
— Vol. 82, no. 2. — P. 233–235.

69. Sakuraba, Y. Giant tunneling magnetoresistance in Co₂MnSi/Al-O/Co₂MnSi magnetic tunnel junctions / Y. Sakuraba, M. Hattori, M. Oogane [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2006. — Vol. 88, no. 19.

70. Butler, W. H. Spin-dependent tunneling conductance of Fe|MgO|Fe sandwiches /
W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, J. M. MacLaren // Phys. Rev. B. — 2001.
—Vol. 63, no. 5. — P. 054416.

71. Mathon, J. Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction / J. Mathon, A. Umerski // Phys. Rev. B. — 2001. — Vol. 63, no. 22. — P. 220403.

72. Yuasa, S. Giant tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO(001) barrier / S. Yuasa, D. D. Djayaprawira // J. Phys. D: Appl. Phys. — 2007. — Vol. 40, no. 21. — P. R337.

73. Wulfhekel, W. Single-crystal magnetotunnel junctions / W. Wulfhekel, M. Klaua,
D. Ullmann [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2001. — Vol. 78, no. 4. — P. 509–511.

74. Bowen, M. Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001) / M. Bowen, V. Cros, F. Petroff [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2001. —Vol. 79, no. 11. — P. 1655–1657.

75. Faure-Vincent, J. High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/Fe tunnel junctions / J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2003.
—Vol. 82, no. 25. — P. 4507–4509.

76. Zhang, X.-G. Effects of the iron-oxide layer in Fe-FeO-MgO-Fe tunneling junctions / X.-G. Zhang, W. H. Butler, A. Bandyopadhyay // Phys. Rev. B. — 2003. — Vol. 68, no. 9. — P. 092402.

77. Yuasa, S. Giant Room-Temperature Magnetoresistance in Single-Crystal Fe/MgO/Fe Magnetic Tunnel Junctions / S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima [et al.] // Nat. Mater. — 2005. — Vol. 3. — P. 868–871

78. Yuasa, S. Giant tunneling magnetoresistance up to 410% at room temperature in fully epitaxial Co/MgO/Co magnetic tunnel junctions with bcc Co(001) electrodes / S. Yuasa, A. Fukushima, H. Kubota [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2006. —Vol. 89, no. 4.

79. Yuasa, S. Characterization of growth and crystallization processes in CoFeB/MgO/ CoFeB magnetic tunnel junction structure by reflective high-energy electron diffraction / S. Yuasa, Y. Suzuki, T. Katayama, K. Ando //Appl. Phys. Lett. — 2005. — Vol. 87, no. 24.

80. Ikeda, S. Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature / S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2008. — Vol. 93, no. 8.

81. Шешин, Е.П. Вакуумные технологии / Шешин Е.П. – Интеллект, Москва – 2009.

82. Jiang, H. Epitaxial growth of Cu on Si by magnetron sputtering / H. Jiang, T. J. Klemmer, J. A. Barnard, E. A. Payzant // J. Vac. Sci. Technol., A. — 1998. — Vol. 16, no. 6. — P. 3376–3383.

83. Rodrigues, A. F. Optimization of the etching parameters of the ion millingsystem
Nordiko 3600: Diminish of redeposition on micro-devices // Instituto Superior Técnico
2007.

84. Галперин, В.А. Процессы плазменного травления в микро-и нанотехнологиях
/ В.А. Галперин, Е.В. Данилкин, А.И. Мочалов – «Лаборатория знаний», Москва. –
2010. – 283 с.

85. Flamm, D.L. Basic chemistry and mechanism of plasma etching / Flamm D.L.// JVST(B) – 1983. – Vol.1. – P.23-30.

86. Mogab, C.J. Anisotropic plasma etching of polysilicon/ Mogab C.J., Levinstein // JVST(B) – 1983. – Vol.17. – P.721-730.

87. Knudde, S. AlO_x barrier growth in magnetic tunnel junctions for sensor applications / S. Knudde, G. Farinha, D. C. Leitao [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. — 2016. — Vol. 412. — P. 181–184.

88. Engel, B. N. A 4-Mb toggle MRAM based on a novel bit and switching method / B.
N. Engel, J. Akerman, B. Butcher [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 2005. — Vol. 41, no. 1.
— P. 132–136.

89. Freitas, P. P. Spin dependent tunnel junctions for memory and read-head applications / P. P. Freitas, S. Cardoso, R. Sousa [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 2000.
— Vol. 36, no. 5. — P. 2796–2801.

90. He, G. Nonhysteretic Vortex Magnetic Tunnel Junction Sensor with High Dynamic Reserve / G. He, Y. Zhang, G. Xiao // Phys. Rev. Appl. — 2020. —Vol. 14, no. 3. — P. 034051.

91. Endo, M. Control of sensitivity in vortex-type magnetic tunnel junction magnetometer sensors by the pinned layer geometry / M. Endo, M. Al-Mahdawi, M. Oogane, Y. Ando // J. Phys. D: Appl. Phys. — 2022. — Vol. 55, no. 19. —P. 195001.

92. Dussaux, A. Large amplitude spin torque vortex oscillations at zero external field using a perpendicular spin polarizer / A. Dussaux, E. Grimaldi, B. Rache Salles [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2014. — Vol. 105, no. 2.

93. Lebrun, R. Mutual synchronization of spin torque nano-oscillators through a longrange and tunable electrical coupling scheme / R. Lebrun, S. Tsunegi, P. Bortolotti [et al.] // Nat. Commun. — 2017. — Vol. 8, no. 15825. — P. 1–7.

94. Jenkins, A. S. Digital and analogue modulation and demodulation scheme using vortex-based spin torque nano-oscillators / A. S. Jenkins, L. San Emeterio Alvarez, P. P. Freitas, R. Ferreira // Sci. Rep. — 2020. — Vol. 10, no. 11181. — P. 1–7.

95. Fang, B. Experimental Demonstration of Spintronic Broadband Microwave Detectors and Their Capability for Powering Nanodevices / B. Fang, M. Carpentieri, S. Louis[et al.] // Phys. Rev. Appl. — 2019. — Vol. 11, no. 1. — P. 014022.

96. Prejbeanu, I. L. Thermally assisted switching in exchange-biased storage layer magnetic tunnel junctions / I. L. Prejbeanu, W. Kula, K. Ounadjela [et al.] // IEEE Trans. Magn. —2004. — Vol. 40, no. 4. — P. 2625–2627.

97. Andrawis, R. Design and Comparative Analysis of Spintronic Memories Basedon Current and Voltage Driven Switching / R. Andrawis, A. Jaiswal,K. Roy // IEEE Trans. Electron Devices. — 2018. — Vol. 65, no. 7. — P. 2682–2693.

98. Joshi, V. K. From MTJ Device to Hybrid CMOS/MTJ Circuits: A Review /V. K. Joshi, P. Barla, S. Bhat, B. K. Kaushik // IEEE Access. — 2020. — Vol. 8. — P. 194105–194146.

99. Wang, W.-G. Electric-field-assisted switching in magnetic tunnel junctions / W.-G. Wang, M. Li, S. Hageman, C. L. Chien // Nat. Mater. — 2012. — Vol. 11. — P. 64–68.

100. Wu, Y. C. Voltage-Gate-Assisted Spin-Orbit-Torque Magnetic Random-Access Memory for High-Density and Low-Power Embedded Applications / Y. C. Wu, K. Garello, W. Kim [et al.] // Phys. Rev. Appl. — 2021. — Vol. 15, no. 6. — P. 064015.

101. Newhouse-Illige, T. Voltage-controlled interlayer coupling in perpendicularly magnetized magnetic tunnel junctions / T. Newhouse-Illige, Y. Liu, M. Xu [et al.] // Nat. Commun. — 2017. — Vol. 8, no. 15232. — P. 1–7.

102. Nistor, L. E. Oscillatory interlayer exchange coupling in MgO tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy / L. E. Nistor, B. Rodmacq, S. Auffret [et al.] // Phys. Rev. B. — 2010. — Vol. 81, no. 22. — P. 220407.

103. Shu, M.-F. The magnetoresistance ratio of an MTJ device and the influence of ramping DC bias voltage rate measured by conducting atomic force microscope / M.-Fo. Shu, A. Canizo-Cabrera, C.-C. Hsu [et al.] // J. Magn. Magn. Mater. —2006. — Vol. 304, no. 1. — P. e294–e296.

104. Liu, H. Manipulation of magnetization switching and tunnel magnetoresistance viatemperature and voltage control / H. Liu, R. Wang, P. Guo [et al.] // Sci.Rep. — 2015.
— Vol. 5, no. 18269. — P. 1–8.

105. Sousa, R. C. Tunneling hot spots and heating in magnetic tunnel junctions / R. C.
Sousa, I. L. Prejbeanu, D. Stanescu [et al.] // J. Appl. Phys. — 2004. — Vol. 95, no. 11.
— P. 6783–6785.

106. Chen, E. Advances and Future Prospects of Spin-Transfer Torque Random Access Memory / E. Chen, D. Apalkov, Z. Diao [et al.] // IEEE Trans. Magn. — 2010. — Vol. 46, no. 6. — P. 1873–1878.

107. Fuji, Y. Highly sensitive spintronic strain-gauge sensor based on a MgO magnetic tunnel junction with an amorphous CoFeB sensing layer / Y. Fuji, S. Kaji, M. Hara [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2018. — Vol. 112, no. 6.

108. Rashba, E. I. Spin–orbit coupling and spin transport / E. I. Rashba // Physica E. – 2006. – Vol. 34, no. 1. – P. 31–35.

109. Petersen, L. A simple tight-binding model of spin-orbit splitting of sp-derived surface states / L. Petersen, P. Hedeg ard // Surf. Sci. — 2000. — Vol. 459, no. 1. — P. 49–56.

110. Dyakonov, M. I. Possibility of orientating electron spins with current / M. I. Dyakonov, V. I. Perel // JETP Lett. – 1971. – Vol. 13, P. 467.

111. Dyakonov, M. I. Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors
/ M. I. Dyakonov, V. I. Perel // Phys. Lett. A. — 1971. — Vol. 35, no. 6. — P. 459–460.

112. Kato, Y. K. Observation of the Spin Hall Effect in Semiconductors / Y. K. Kato,
R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom // Science. — 2004. — Vol. 306, no. 5703.
— P. 1910–1913.

113. Groen, I. Disentangling Spin, Anomalous, and Planar Hall Effects in Ferromagnet Heavy-Metal Nanostructures / I. Groen, V. T. Pham, N. Leo [et al.] // Phys. Rev. Appl. - 2021. - Vol. 15, no. 4. - P. 044010.

114. Liu, L. Spin-Torque Switching with the Giant Spin Hall Effect of Tantalum / L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li [et al.] // Science. — 2012. — Vol. 336, no. 6081. — P. 555–558.

115. Kuschel T., Reiss G. Charges ride the spin wave //Nature nanotechnology. – 2015.
– Vol. 10. – no. 1. – P. 22-24.

116. Manchon, A. Current-induced spin-orbit torques in ferromagnetic and antiferromagnetic systems / A. Manchon, J. [°]Zelezn[']y, I. M. Miron [et al.] // Rev. Mod. Phys. — 2019. — Vol. 91, no. 3. — P. 035004.

117. Manipatruni, S. Scalable energy-efficient magnetoelectric spin–orbit logic / S.
Manipatruni, D. E. Nikonov, C.-C. Lin // Nature. – 2019. – Vol. 565. – no. 7737. – P. 35-42.

118. Dowben, P. A. Magneto-electric antiferromagnetic spin-orbit logic devices / P. A. Dowben, D. E. Nikonov, A. Marshall, Ch. Binek // Appl. Phys. Lett. — 2020. — Vol. 116, no. 8.

119. Zhang, X.-G. Large magnetoresistance in bcc Co/MgO/Co and FeCo/MgO/FeCo tunnel junctions / X.-G. Zhang, W. H. Butler // Phys. Rev. B. — 2004. — Vol. 70, no. 17. — P. 172407.

120. Gall, D. Electron mean free path in elemental metals / D. Gall // J. Appl. Phys. — 2016. — Vol. 119, no. 8.

121. Vlaminck, V. Dependence of spin-pumping spin Hall effect measurements on layer thicknesses and stacking order / V. Vlaminck, J. E. Pearson, S. D. Bader, A. Hoffmann // Phys. Rev. B. — 2013. — Vol. 88, no. 6. — P. 064414.

122. Bull, C. Spintronic terahertz emitters: Status and prospects from a materials perspective / C. Bull, S. M. Hewett, R. Ji [et al.] // APL Mater. — 2021. — Vol. 9, no. 9.

123. Mosendz, O. Detection and quantification of inverse spin Hall effect from spin pumping in permalloy/normal metal bilayers / O. Mosendz, V. Vlaminck, J. E. Pearson [et al.] // Phys. Rev. B. — 2010. — Vol. 82, no. 21. — P. 214403.

124. Mosendz, O. Quantifying Spin Hall Angles from Spin Pumping: Experiments and Theory / O. Mosendz, J. E. Pearson, F. Y. Fradin [et al.] // Phys. Rev. Lett. — 2010. — Vol. 104, no. 4. — P. 046601.

125. Tishin, A. The magnetocaloric effect and its applications / A. Tishin, Y. I. Spichkin // Magnetocaloric Effect and its Applications. IOP Publishing Ltd., Bristol, Philadelphia — 2016.475 p.

126. Pecharsky, V. K. Magnetocaloric effect from indirect measurements: Magnetization and heat capacity / V. K. Pecharsky, K. A. Gschneidner // J. Appl. Phys. — 1999. — Vol. 86, no. 1. — P. 565–575.

127. Oesterreicher, H. Magnetic cooling near Curie temperatures above 300 K / H. Oesterreicher, F. T. Parker // J. Appl. Phys. — 1984. — Vol. 55, no. 12. — P. 4334–4338.

128. Gschneidner, K. A. Recent developments in magnetocaloric materials / K. A. Gschneidner, V. K. Pecharsky, A. O. Tsokol // Rep. Prog. Phys. — 2005. — Vol. 68, no.
6. — P. 1479.

129. Родионов, И. Д. Магнитокалорический эффект в сплаве Гейслера Ni₅₀Mn₃₅In₁₅ в слабых и сильных полях/ И. Д. Родионов, Ю. С. Кошкидько, Я. Цвик и др. // Письма в ЖЭТФ. – 2015. – Т. 101. – №. 6. – С. 419-423.

130. Belov, K. N. Magnetocaloric effect in rare-earth iron garnets / K.P. Belov, E.V. Talalaeva, L. A. Chernikova [et al.] //Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters. – 1969. – T. 9.–C. 416.

131. Dudek, M. R. Magnetocaloric materials with ultra-small magnetic nanoparticles working at room temperature. / M. R. Dudek, K. K. Dudek, W. Wolak [et al.] // Sci. Rep. - 2019. - Vol. 9, no. 1. - P. 17607.

132. Phan, M. H. Collapse of charge ordering and enhancement of magnetocaloric effect in nanocrystalline La_{0.35}Pr_{0.275}Ca_{0.375}MnO₃ / M. H. Phan, S. Chandra, N. S. Bingham [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2010. — Vol. 97, no. 24.

133. Lampen-Kelley, P. Tablelike magnetocaloric effect and enhanced refrigerant capacity in EuO_{1- δ} thin films / P. Lampen-Kelley, R. Madhogaria, N. S. Bingham [et al.] // Phys. Rev. Mater. — 2021. — Vol. 5, no. 9. — P. 094404.

134. Tishin, A. M. A review and new perspectives for the magnetocaloric effect: New materials and local heating and cooling inside the human body / A. M. Tishin, Y. I. Spichkin, V. I. Zverev, P. W. Egolf // Int. J. Refrig. — 2016. — Vol. 68. — P. 177–186.

135. Fraerman, A. A. Exchange Enhancement of the Magnetocaloric Effect in Ferromagnetic Nanostructures (Brief Review) / A. A. Fraerman // JETP Lett. — 2021. — Vol. 113, no. 5. — P. 356–363.

136. Michalski, S. Isothermal entropy changes in nanocomposite Co:Ni67Cu33 / S. Michalski, R. Skomski, X.-Zh. Li [et al.] // J. Appl. Phys. — 2012. — Vol. 111, no. 7.

137. Liu, X. Ferromagnetic resonance and damping properties of CoFeB thin films as free layers in MgO-based magnetic tunnel junctions / X.Liu, W.Zhang, M. J. Carter, G. Xiao // J. Appl. Phys. — 2011. — Vol. 110, no. 3.

138. Haskel, D. Enhanced Interfacial Magnetic Coupling of Gd/Fe Multilayers / D. Haskel, G. Srajer, J. C. Lang [et al.] // Phys. Rev. Lett. — 2001. — Vol. 87, no. 20. — P. 207201.

139. Miller, C. W. Magnetocaloric effect in nanoscale thin films and heterostructures / C. W. Miller, D. D. Belyea, B.J. Kirby // J. Vac. Sci. Technol., A. — 2014. — Vol. 32, no.4.

140. Kulyk, M. Magnetocaloric effect in multilayers studied by membrane-based calorimetry / M. Kulyk, M. Persson, D. Polishchuk, V. Korenivski // J. Phys. D: Appl. Phys. — 2022. — Vol. 56. — P. 025002.