На правах рукописи

Steill

Пашенькин Игорь Юрьевич

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

Специальность 1.3.8 – «Физика конденсированного состояния»

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Нижний Новгород – 2024

Работа выполнена в Институте физики микроструктур РАН – филиале Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова Российской академии наук» (ИФМ РАН), Нижний Новгород.

- Научный руководитель: Сапожников Максим Викторович, доктор физико-математических наук, заведующий отделом магнитных наноструктур (8150), Институт физики микроструктур РАН
- Официальные оппоненты: Миляев Михаил Анатольевич, доктор физикоматематических наук, главный научный сотрудник, заведующий лабораторией квантовой наноспинтроники, ФГБУН Институт физики металлов имени М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук (ИФМ УрО РАН)

Пятаков Александр Павлович, доктор физикоматематических наук, профессор кафедры физики колебаний физического факультета, Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова

Ведущая организация: Национальный исследовательский университет «Московский институт электронной техники».

Защита состоится 27 февраля 2025 г. в 14 часов на заседании диссертационного совета Д 24.1.238.02 при Федеральном исследовательском центре «Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова» Российской академии наук по адресу: 603087, Нижегородская область, Кстовский район, д. Афонино, ул. Академическая, д. 7, ауд. 237.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физики микроструктур РАН и на сайте <u>http://www.ipmras.ru/UserFiles/Diss/2024/pashenkin-igor-yurevich/Diss_PashenkinIU.pdf</u>

Автореферат разослан _____ января 2025 г.

Ученый секретарь диссертационного совета доктор физико-математических наук, профессор РАН

Д. Ю. Водолазов

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования

Интенсивное развитие технологии в течение последних 50 лет поспособствовало открытию большого количества новых эффектов обменной и спинорбитальной природы, возникающих при объединении ферромагнетиков с антиферромагнитными, парамагнитными или немагнитными материалами в единой многослойной структуре.

Открытие А. Фертом и П. Грюнбергом в 1988 году эффекта гигантского магнетосопротивления (ГМС) в сверхрешетках Fe/Cr [1, 2], положило начало новому витку развития спинтроники. Эффект туннельного магнетосопротивления (ТМС), не получивший должного внимания на момент открытия в 1975 году М. Жюльером в структурах Fe/GeO/Co [3], на сегодняшний день является основой элементной базы спиновой электроники, благодаря гигантским значениям эффекта ТМС (*MR* > 200 % при комнатной температуре) [4].

Эффекты ГМС и ТМС обусловлены обменным расщеплением спиновых подзон в ферромагнетиках, приводящим к спиновой поляризации электронов проводимости. Большинство магниторезистивных элементов имеют структуру типа «спиновый» клапан, состоящую из двух ферромагнитных слоев, разделенных немагнитными прослойками. Как правило, поле перемагничивания одного из ферромагнетиков (закрепленного) намеренно увеличивают за счет прямого обменного взаимодействия с дополнительным слоем антиферромагнетика.

Межслоевое обменное взаимодействие вида $E_{int} = -J_{int}(M_1 \cdot M_2)$, имеющее место в слоистых структурах типа FM/NM,D/FM (FM – ферромагнетик, NM – немагнитный металл, D – диэлектрик), осуществляется через электроны проводимости и имеет осциллирующую знакопеременную зависимость от толщины прослойки [5, 6]. Структуры FM/NM/FM с антиферромагнитным межслоевым РККИ взаимодействием часто используют в качестве закрепленного слоя в магниторезистивных элементах [7].

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 магнитной памяти с произвольным доступом (MRAM).

Обменное взаимодействие на границах FM и PM (PM – ферромагнетик при температуре выше его температуры Кюри), приводящее к наведению в слое PM магнитного момента [8], может быть использовано для обменного усиления магнитокалорического эффекта, теоретически предсказанного в [9, 10].

Комбинирование сверхтонких ферромагнитных слоев со слоями тяжелых металлов и 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 перпендикулярной магнитной анизотропии [11] или к поверхностному взаимодействию Дзялошинского-Мория [12], которое порождает киральные неоднородные топологически защищенные распределения намагниченности. Спинорбитальное рассеяние электронов проводимости, инжектируемых из ферромагнетика в тяжелый металл, приводит к обратному спиновому эффекту Холла (СЭХ) [13].

Степень разработанности темы исследования

Развитие технологии изготовления туннельных магнитных контактов (ТМК) стимулировали поиск способов переключения их резистивного состояния. 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 [14]. На сегодняшний день активно внедряется способ переключения ячеек магнитной памяти за счет спинового эффекта Холла (spin-orbit torque (SOT)) [15]. Оба механизма объединяет общий недостаток – высокая плотность тока записи $(10^6 - 10^7 \text{ A/cm}^2)$, сдерживающий процесс миниатюризации MRAM.

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

Ряд работ посвящен управлению обменным смещением в системах FMохіde/FM/AFM за счет электрохимических реакций, например [16]. Известны работы, в которых наблюдается смена знака обменного сдвига в структурах FM/Cr₂O₃ при приложении к ним электрического и магнитного поля [17]. Широко изучен эффект зависимости поверхностной анизотропии от электрического поля (voltage control of magnetic anisotropy (VCMA)) [18], однако эта зависимость недостаточно сильная для одновременного обеспечения переключения состояния TMK и термической стабильности ячеек памяти. В ряде работ предлагается использовать явления магнитострикции в гибридных структурах сегнетоэлектрик/ферромагнетик, например [19].

Известно, что ферромагнитные слои ТМК связаны между собой обменным взаимодействием через диэлектрический слой, которое знакопеременным образом зависит от толщины туннельной прослойки [6]. Приложение к ТМК электрического напряжения должно приводить к изменению формы потенциального барьера и, следовательно, его эффективной ширины, вследствие чего межслоевое обменное взаимодействие может меняться. Однако возможность такого управления экспериментально не исследовалась.

Большое количество теоретических и экспериментальных работ посвящено изучению транспортных эффектов, обусловленных СОВ, включая СЭХ [13], анизотропное и туннельное анизотропное магнетосопротивление [20].

Известны работы, в которых при исследовании СЭХ в пленках тяжелых металлов в качестве инжектора спин-поляризованного тока используется туннельный контакт с ферромагнитным электродом [21]. При этом возникновение поперечной разности потенциалов в немагнитном металле объясняется СОВ инжектированных электронов с атомарными полями материала холловского электрода. Существует ряд теоретических работ, в которых учитывается спинорбитальное рассеяние непосредственно внутри туннельного барьера. Рассматривались процессы, связанные с нецентросимметричностью прослойки [13], а также рассеянием на примесях в барьере [22].

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 ТМК, может достигать 10⁹ В/м. Однако вопрос о возможных эффектах, обусловленных СОВ электронов с внешним электрическим полем, приложенным к диэлектрическому барьеру, в достаточной степени не изучен. Лишь в работе [23] теоретически вычислялся «аномальный» холловский ток в системе FM/D/FM с учетом индуцированного приложенным полем СОВ. Однако экспериментально предложенный механизм спин-орбитального рассеяния во внешнем электрическом поле не исследован.

Большое число теоретических и экспериментальных работ посвящено изучению эффектов обменной магнитной близости, возникающих при контакте материалов с различным магнитным порядком [24]. Одно из проявлений данного эффекта заключается в наведении намагниченности в парамагнетике, граничащем с ферромагнетиком [8]. В работах [9, 10] 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 FM 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

Научная новизна

Впервые обнаружена зависимость межслоевого обменного взаимодействия в ТМК СоFeB/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 ($E_{ex} = -\int JdS$) 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 A/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 СОВ 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 напряжения и не зависит от материала NM-электрода.

Впервые экспериментально продемонстрирован эффект обменного усиления магнитокалорической эффективности прослоек «слабых» ферромагнетиков между слоями «сильных» ферромагнетиков в структурах $Co_{90}Fe_{10}/Ni_{72}Cu_2/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (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 туннельного магнитного контакта CoFeB/MgO/CoFeB приложением к нему короткого импульса напряжения. Полученные результаты могут быть использованы для разработки энергоэффективной магниторезистивной памяти с произвольным доступом. Разработанная в ходе выполнения диссертационной работы оригинальная технология изготовления TMK 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, а 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 Ni₇₂Cu₂₈ толщиной 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/CoFeB увеличивается 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 туннель-

ному 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.

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 туннельных магнитных контактах CoFeB/MgO/CoFeB. Постановка 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., Изготовление структур осуществлялось автором. Получение кривых намагничивания методом вибрационной магнитометрии проводились Кравцовым Е. А. (Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук, Екатеринбург, Россия).

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 до-

кладывались на 11 российских и международных конференциях. В их число входят:

•XXIII, XXIV, XXVI, XXVII, XXVIII Международные симпозиумы «Нанофизика и наноэлектроника», (Н. Новгород, 2019, 2020, 2022, 2023, 2024 гг.).

•XXIV и XXV Международная 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 ТМС, а также гигантского ТМС в эпитаксиальных структурах Fe(001)/MgO(001)/Fe(001).

Особое внимание уделено технологии изготовления многослойных магнитных туннельных структур [A1] и туннельных магнитных контактов с

аморфным барьером Al₂O₃ [A2] и текстурированным барьером MgO (001) [A3], отработанной в ходе диссертационной работы. Описаны особенности получения различных распределений намагниченности в свободном слое TMK CoFeB/MgO/CoFeB [A4, A5].

Глава 2 посвящена описанию результатов проведенных исследований возможности управления магнитным состоянием ТМК CoFeB/MgO/CoFeB с помощью электрического поля за счет изменения межслоевого обменного вза-имодействия ферромагнитных слоев через диэлектрическую прослойку при приложении к ней напряжения [А3, А6].

Исследованные образцы представляли собой одиночные ТМК, а также цепочки последовательно соединенных ТМК (до 50 шт.) размером 2×3 мкм² с общей структурой Ta(20)/Pt(10)/Ta(20)/CoFeB(2)/MgO(1.5–2.5)/CoFeB(4)/ IrMn(10)/Ta(3)/Pt(10) (толщины указаны в нм). Для исследования зависимости межслоевого обменного взаимодействия от электрического поля измерялись кривые R(H) при различных напряжениях, приложенных к барьеру ТМК.

Увеличение приложенного к ТМК напряжения с 50 мВ до 1 В на один элемент приводило к двум основным эффектам. Первый эффект заключается в падении величины эффекта ТМС (рис. 1, а). Данное явление хорошо известно и связано с возникновением возможности туннелирования электронов из основной спиновой подзоны одного ферромагнитного электрода в неосновную спиновую подзону другого при достаточно больших значениях напряжения, приложенного к барьеру [4].



Рис. 1. Кривые магнетосопротивления цепочек ТМК. 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]

Второй эффект заключается в смещении кривой намагничивания свободного слоя по магнитному полю на 6 Э (рис. 1, б) для цепочки с сопротивлением 3.4 кОм на контакт и толщиной барьера $t_b \sim 2$ нм. При увеличении толщины MgO и, соответственно, сопротивления ТМК величина этого смещения уменьшается (рис. 1, в). Так, в образце с сопротивлением 10 кОм на контакт ($t_b \sim$ 2.2 нм), сдвиг кривой гистерезиса свободного слоя составляет 3 Э при напряжении 1 В на контакт. При сопротивлении 200 Ом на контакт наблюдается сужение кривых намагничивания (рис. 1, г), что связано с джоулевым разогревом.

Механизм возникновения сдвига кривой гистерезиса свободного слоя на зависимости R(H) при приложении напряжения к ТМК состоит в изменении межслоевого обменного взаимодействия между ферромагнитными электродами через туннельную прослойку.

Чтобы исключить эффекты разогрева и перераспределения тока, которые могут иметь место при проведении транспортных измерений при постоянном токе, было исследовано влияние коротких импульсов электрического напряжения на магнитное состояние ТМК. Обнаружено, что приложение к одиночному контакту импульсов 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 10^4 A/cm².

В главе 3 обсуждается новый обнаруженный эффект, заключающийся в квадратичной зависимости поперечной разности потенциалов в NM-электроде от внешнего электрического напряжения, приложенного к туннельному контакту CoFeB/MgO/NM (NM = Pt, Ta) [A7, A8].

Широко известные прямой и обратный СЭХ, обусловленные спинорбитальным рассеянием электронов на атомарных или встроенных электрических полях, зависят только от величины транспортного тока и, поэтому, линейны по приложенному напряжению ($V_{Hall} \sim j \sim E$). Идея состояла в том, что в туннельных контактах спин-орбитальное взаимодействие туннелирующих электронов с большим внешним электрическим полем, приложенным к барьеру (~ 10^9 B/м), должно приводить к возникновению поперечной разности потенциалов, пропорциональной этому полю не только через транспортный ток, но и непосредственно ($V_{Hall} \sim jE \sim E^2$).

Исследованные образцы представляли собой туннельные контакты Ta(20)/ CoFeB(10)/MgO(1.5)/Pt(t) (t = 1, 2, 10) и Ta(20)/CoFeB(10)/MgO(1.5)/Ta(2) (толщины указаны в нм) с NM-электродом Т-образной формы микронного латерального размера (рис. 2).

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 (рис. 2).



Рис. 2. (а) Схема образца и геометрия измерений. (б) Изображение образца, полученное в оптическом микроскопе. Номера электродов соответствуют схеме (а). «S» обозначает площадь туннельного контакта, стрелка указывает направление приложенного магнитного поля.

На рис. 3 приведены характерные зависимости холловского напряжения от магнитного поля для положительного (а) и отрицательного (б) напряжения $V_{bias} = \pm 2$ В, приложенного к туннельному барьеру.



Рис. 3. Типичные зависимости холловской разности потенциалов от магнитного поля для положительного (а) и отрицательного (б) напряжения $V_{bias} = \pm 2$ В, приложенного к туннельному барьеру. Толщина верхнего Pt-электрода составляет 1 нм. (в) – сумма (круги) и разность (треугольники) кривых (а) и (б), которые соответствуют четной и нечетной частям исходного холловского сигнала по электрическому полю соответственно. Приведенные графики являются ре-

зультатом усреднения 70 измерений [А7, А8].

Измеренный сигнал можно разделить на четную и нечетную части по приложенному электрическому полю (рис. 3, в). Четная 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 Pt-электроде.

Зависимость амплитуды четной части холловского сигнала от V_{bias} , измеренная в нулевом магнитном поле хорошо аппроксимируется параболой (рис. 4). Нечетный холловский сигнал описывается линейной зависимостью.





Важно отметить, что в образце с верхним Та-электродом толщиной 2 нм наблюдается аналогичный квадратичный эффект Холла. Причем его величина практически такая же, как и в образце с Pt-электродом той же толщины. Из литературы известно, что константа СОВ в Та на порядок меньше, чем в Pt, а поскольку квадратичный эффект при изменении материала верхнего электрода практически не изменился, он не может быть обусловлен спин-холловским рассеянием в верхнем NM-электроде.

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.

Обычно достаточно большой (до 10 градусов) магнитокалорический эффект достигается в магнитном поле величиной несколько десятков кЭ вблизи температуры Кюри (T_c) магнитного материала. Необходимость создания таких сильных полей сдерживает разработку и применение систем магнитного охлаждения. Авторами работ [9, 10] сделаны теоретические оценки и предложен новый подход к повышению эффективности магнитного охлаждения, основанный на использовании эффекта магнитной близости парамагнетика (ферромагнетика при температуре выше его температуры Кюри) (PM) с ферромагнетиками (FM) в наноструктурах FM/PM/FM. Согласно расчетам, проведенным в [9, 10], средний квадрат намагниченности PM прослойки и, следовательно, ее магнитная энтропия, зависит от взаимной ориентации намагниченности FM берегов, которой можно управлять приложением относительно небольшого магнитного поля порядка 100 Э.

В рамках диссертационной работы было проведено экспериментальное исследование магнитокалорического эффекта в двух типах многослойных наноструктур: $Co_{90}Fe_{10}(20)/Ni_{72}Cu_{28}(5-15)/Co_{40}Fe_{40}B_{20}(15)$ [A9] и CoSm(30)/Fe(1)/Gd(2.5–5)/Fe(1)/CoFeB(2) [A10, A11]. Слои $Co_{90}Fe_{10}(20)$ и CoSm(30)/Fe(1) обладают более высокой коэрцитивностью по сравнению со слоями $Co_{40}Fe_{40}B_{20}(15)$ и Fe(1)/CoFeB(2), которые перемагничиваются в относительно малых полях.

Магнитокалорический потенциал ΔS исследованных образцов определялся с использованием соотношения Максвелла по температурной зависимости кривых их намагничивания, полученных методами СКВИД-магнитометрии, вибрационной магнитометрии и магнитооптики. Во всех исследованных образцах увеличение температуры приводит к уменьшению межслоевого обменного взаимодействия через прослойку РМ, которое зависит от магнитных корреляций последней и поэтому характеризует степень ее упорядоченности.

На рис. 5 приведены зависимости $\Delta S(T)$ для образца с толщиной прослойки Ni₇₂Cu₂₈ равной 5 нм. Также показаны результаты измерения $\Delta S(T)$ для образцов Ni₈₀Fe₂₀(10)/Ni₆₇Cu₃₃(7)/Co₉₀Fe₁₀(3)/Ir₂₀Mn₈₀(25), полученные в [25].



Рис. 5. Экспериментальные зависимости $\Delta S(T)$ для многослойных систем Ni₈₀Fe₂₀(10)/Ni₆₇Cu₃₃(7)/Co₉₀Fe₁₀(3)/Ir₂₀Mn₈₀(25) [25] (S1), Co₉₀Fe₁₀(20)/ Ni₇₂Cu₂₈(5)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(15) [A9] (S2) 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 [26].

Максимальный магнитокалорический потенциал составил $\Delta S \approx 3.3 \cdot 10^3$ эрг/см³/К при $T = T_c$. Соответствующее значение магнитокалорической эффективности $\Delta S/\Delta H \approx 16.5$ эрг/(см³·K·Э). На том же графике приведена температурная зависимость ΔS отдельной пленки Ni₆₇Cu₃₃ в области полей от H = 0 Э до H = 30 Э, полученная экстраполяцией данных из работы [26] в область малых Величина ΛS В максимуме составила около 70 эрг/(см³·К). Н. а $\Delta S/\Delta H \approx 2.33$ эрг/(см³·К·Э). Таким образом, величина $\Delta S/\Delta H$ прослойки Ni₇₂Cu₂₈ между слоями СоFe и СоFeB выросла примерно в 7 раз по сравнению с отдельной пленкой Ni₆₇Cu₃₃.

На рис. 6 показаны температурные зависимости магнитокалорического потенциала ΔS (а) и магнитокалорической эффективности $\Delta S/\Delta H$ (б) в структурах CoSm(30)/Fe(1)/Gd(2.5–5)/Fe(1)/CoFeB(2).



Рис. 6. Температурные зависимости Δ*S* (а) и Δ*S*/Δ*H* (б) в структурах FM/Gd/FM. Значения Δ*S* показаны для образцов с толщиной прослойки 5 и 3 и 2.5 нм, тогда как ΔS/ΔH приводится для образцов с прослойкой Gd толщиной 3 и 2.5 нм и сравнивается с той же величиной в отдельном (толщиной 30 нм) слое Gd [27].

Наибольшее полученное значение изменения энтропии составило $2.3 \cdot 10^4$ эрг/см³К для структуры с толщиной Gd 2.5 нм. При увеличении толщины слоя Gd до 5 нм изменение энтропии практически отсутствует, что, вероятно, связано с тем, что корреляционная длина в Gd меньше 5 нм. Максимальные значения магнитокалорической эффективности наблюдаются в структурах с толщинами прослойки Gd 2.5 и 3 нм 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 [27].

В заключении отражены основные выводы диссертационного исследования, которые состоят в следующем.

1. Отработана технология изготовления ТМК CoFeB/MgO/CoFeB микронного и субмикронного латерального размера, демонстрирующие эффект ТМС величиной 200 % при комнатной температуре. В зависимости от геометриче-

ских 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 10^4 A/cm², 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 Холла линейны по приложенному напряжению и имеют на порядок меньшую величину. Приложение к туннельному контакту переменного напряжения приводит к возникновению постоянного холловского сигнала, величина которого 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·K), что, по оценкам, примерно в 50 раз больше, чем изменение энтропии $\Delta S \approx 70$ эрг/(см³·K) отдельной пленки Ni₆₈Cu₃₂ при приложении к ней магнитного поля 30 Э. 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.

Список публикаций по теме диссертационной работы

A1. 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.

А2. 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.

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.

Список литературы

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

4. 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.

5. 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.

6. 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.

7. Gallagher, W. J. Development of the magnetic tunnel junction MRAM at IBM: From first junctions 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.

8. 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.

9. 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.

10. 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.

11. 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.

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

13. 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.

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

15. 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.

16. 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.

17. Ashida, T. Isothermal electric switching of magnetization in Cr_2O_3/Co thin film system / T. Ashida, M. Oida, N. Shimomura [et al.] // Appl. Phys. Lett. — 2015. — Vol. 106, no. 13.

18. 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.

19. Peng, B. Deterministic Switching of Perpendicular Magnetic Anisotropy by Voltage Control of Spin Reorientation Transition in $(Co/Pt)_3/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ -PbTiO₃ Multiferroic Heterostructures / B. Peng, Z. Zhou, T. Nan [et al.] // ACS Nano. -2017. - Vol. 11, no. 4. - P. 4337-4345.

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

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

22. 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.

23. 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.

24. 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.

25. 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.

26. Michalski, S. Isothermal entropy changes in nanocomposite $\text{Co:Ni}_{67}\text{Cu}_{33}$ / S. Michalski, R. Skomski, X.-Zh. Li [et al.] // J. Appl. Phys. — 2012. — Vol. 111, no. 7.

27. 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.

Пашенькин Игорь Юрьевич

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

Автореферат диссертации на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук

Подписано к печати 20.12.2024 г. Тираж 60 экз.

Отпечатано в Институте Физики Микроструктур РАН – филиале Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А. В. Гапонова-Грехова Российской академии наук»

607680, Нижегородская область, Кстовский район, д. Афонино, ул. Академическая, д. 7