

А. Ю. Зюбин, А. В. Асташенок, Г. С. Куприянова

**ПРИМЕНЕНИЕ РАДИОФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ
ДЛЯ ДИАГНОСТИКИ ФУНКЦИОНАЛЬНЫХ СВОЙСТВ
МАГНИТНЫХ ТУННЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ**

Представлены магнитные параметры серии образцов, сформированных на монокристаллических (MgO) и аморфных подложках Si/SiO₂. Оценены такие показатели качества, как наличие парамагнитной фазы, примесей, а также проведен анализ функциональных свойств исследуемых структур на основе постоянной Гильберта. Показаны особенности применения радиофизических методов исследования вещества для диагностики перспективных структур.

The article presents the main investigation results of the structural and magnetic parameters of a series of samples formed on single-crystal (MgO) and on amorphous substrates Si/SiO₂ structures. Were assessed quality indicators such as the paramagnetic phase, the presence of impurities, and an analysis of the functional properties through continued Gilbert was done. The radiophysical methods features for the diagnosis of prospective structures were shown.

Ключевые слова: ферромагнитный резонанс, спинтроника, ширина спектральной линии, постоянная Гильберта.

Key words: ferromagnetic resonance, spintronics, linewidth, Gilbert damping constant.

В последние годы ведутся исследования новых материалов, предназначенных для приложений спинтроники, в частности для создания элементов памяти на основе магнитных туннельных переходов (МТП) [1]. Такой элемент представляет собой две ферромагнитные (ФМ) пленки, разделенные прокладкой из немагнитного материала.



В качестве такой прокладки используется тонкий оксидный слой, играющий роль туннельного барьера. Принцип работы элемента основан на магниторезистивном эффекте, который заключается в том, что сопротивление трехслойной структуры ФМ – НМ – ФМ зависит от взаимной ориентации намагниченностей ФМ обкладок [2]. Одно из требований, предъявляемых к подобным структурам – это возможность перематничивать внешним магнитным полем B_0 подходящей величины одну из ФМ обкладок. В этом случае при превышении некоторого критического значения $B_{0кр}$ происходит переворот момента одной из ФМ обкладок, при этом магнитный момент второй обкладки должен оставаться неизменным. Но при этом следует учитывать, что туннельный барьер должен иметь небольшую толщину [3], ввиду того что применение элемента памяти [4; 5] требует малости его сопротивления. Поэтому уменьшение толщины оксидного слоя приводит к возрастанию величины обменной связи между ФМ обкладками. Перечисленные свойства магнитных туннельных переходов критически зависят от качества формируемых структур. Как показали ранние исследования, создание качественного магнитного туннельного перехода – это прежде всего наилучший подбор качественного ферромагнитного и изолирующего слоев. Функциональные свойства структур зависят как от наличия дефектов и примесей в туннельном барьере, так и от шероховатости граничных слоев, которые трудно учесть теоретически. Кроме того, в магнитных туннельных переходах критическую роль играют границы раздела «ферромагнетик – диэлектрик», поскольку вероятность туннелирования поляризованных электронов определяется в том числе резкостью (отсутствием парамагнитной фазы) и гладкостью границы раздела между ферромагнитным и изолирующим слоем. В данной работе для диагностики качества создаваемых структур и их функциональных свойств использовались методы ферромагнитного и парамагнитного резонансов, которые обладают высокой чувствительностью к электронному состоянию каждого слоя многослойной структуры.

Исследования проводились на установке ЭПР «Радиопан» с резонатором прямоугольного типа E_{102} , с рабочей частотой 9,4–9,6 ГГц. Частота модуляции – 100 кГц. Глубина модуляции и время сканирования подбирались в зависимости от ширины линий спектра. С целью исследования анизотропных свойств структур установка была оборудована двухосевым гониометром, позволяющим изучать угловые зависимости резонансного сигнала в двух геометриях.

При анализе серии образцов, сформированных на монокристаллических (MgO) подложках, определялось присутствие примесей в сформированных наноструктурах на подложке MgO методом ферромагнитного резонанса (ФМР): MgO/Fe/Fe₃O₄, MgO/Fe/Fe₃O₄/MgO/Fe₃Si, Si/SiO₂/Fe/Fe₃O₄, были зарегистрированы сигналы ЭПР, представляющие из себя мультишплетные линии малой интенсивности, характерные для ионов Mn²⁺. Было сделано предположение, что ионы Mn²⁺ содержатся в подложке в качестве примеси. Важно было установить,



что ионы не присутствуют в самой наноструктуре. Для подтверждения этого был изучен ряд образцов $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$, сформированных с толщинами слоев магнетита в 19, 16 и 13 нм, которые подвергались отжигу при температуре 500°C [6], необходимому для улучшения магнитных свойств Fe_3O_4 . Было выявлено, что спектры образцов с толщинами слоев магнетита в 16 и 13 нм содержат характерные мультиплетные линии Mn^{2+} с g -фактором 2,011, с константой сверхтонкого взаимодействия $J = 90$ мТ. В качестве примера на рисунке 1 представлен спектр Mn^{2+} образца $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ (16 нм). Однако для образца, у которого слой магнетита толще (19 нм), наблюдалась более сложная спектральная картина. Были обнаружены два перекрывающихся спектра марганца Mn^{2+} с константами сверхтонкого взаимодействия $J = 90$ и 80 мТ, а также линии, отнесенные к парамагнитному Fe. Было сделано предположение, что примесь Mn^{2+} , содержащаяся в некотором количестве в подложке MgO, в процессе отжига диффундирует в слой магнетита.

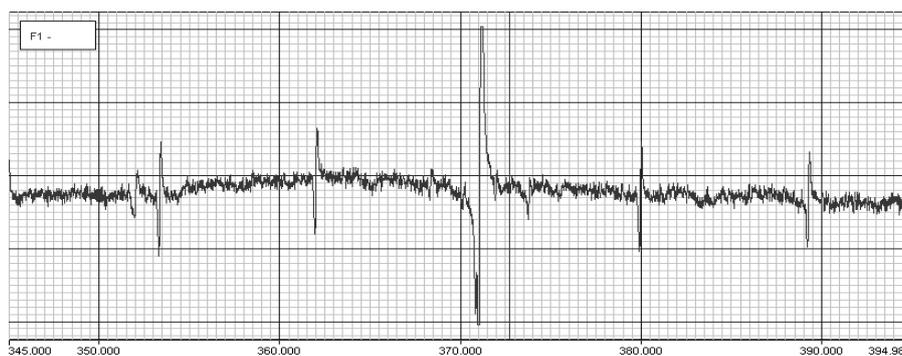


Рис. 1. Спектр электронно-парамагнитного резонанса для структур $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ (толщина слоя магнетита 16 нм)

Следует отметить, что в структурах шпинеля парамагнитные ионы в октаэдрических и тетраэдрических узлах легко различимы, если учесть тот факт, что в тетраэдрических узлах положения ионов магнитоэквивалентны, в то время как в октаэдрических положениях можно выделить четыре магнитонезэквивалентных типа. Спектр ЭПР для подобных кристаллических структур может состоять из четырех наборов линий. Структура линий магнитного резонанса в тонкослойных эпитаксиальных структурах может быть иная. Идентификация изоморфизма вхождения примесей в $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ (19 нм) была выяснена путем анализа угловой зависимости резонансного поля. При повороте образца в плоскости силовых линий постоянного магнитного поля положение спектральных линий одного набора менялось, в то время как линии второго набора не зависели от ориентации образца (рис. 2). Сходные закономерности наблюдались и для других подобных структур. В качестве примера на рисунке 2 представлен спектр образца



MgO/Fe⁵⁷(80Å)/Fe₃O₄(200Å), зарегистрированный при различных положениях образца. Проведенные измерения подтвердили предположение о внедрении примесей марганца в кристаллическую решетку магнетита в процессе отжига в образце, имеющем более толстый слой магнетита (19 нм) [7]. Проведенные исследования позволили выявить структуры, не содержащие подобных примесей.

В дальнейшем была произведена попытка детектирования парамагнитной фазы в структурах MgO/Fe₃O₄/Fe. При изучении ряда структур типа MgO/Fe₃O₄/Fe, MgO/Fe/Fe₃O₄ и Si/SiO₂/Fe/Fe₃O₄ методом ФМР было обнаружено, что в ряде структур, которые формировались для целей создания МТП, проявляется парамагнитная фаза, а следовательно, они не пригодны для этих целей.

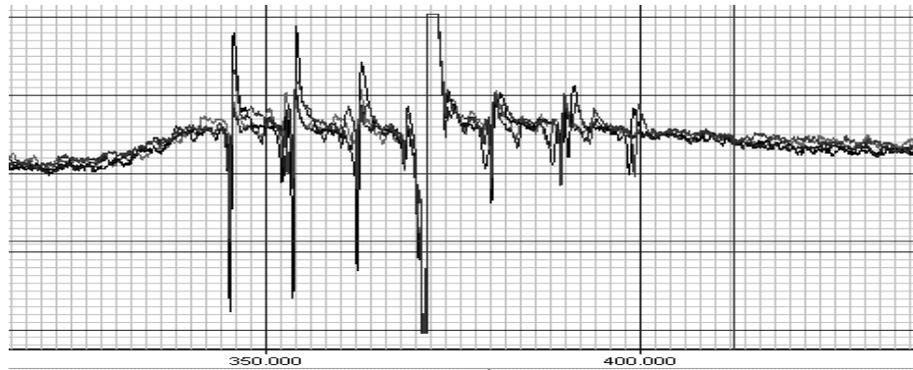


Рис. 2. Спектр MgO/Fe⁵⁷(80Å)Fe₃O₄(200Å), измеренный при различной ориентации образца, расположенного в плоскости силовых линий постоянного магнитного поля

Природа парамагнитной фазы может быть различной. Исследования, проведенные методом ФМР, показали, что парамагнитная фаза связана с парамагнитным состоянием железа. На рисунке 2 приведены кривые спектра при $\theta = 0, 30$ и 40° , где θ — это угол между направлением силовых линий постоянного магнитного поля и плоскостью пленки образца [8]. Процесс адаптации спинового момента тока [9; 10] происходит на расстояниях порядка 1 нм. Такое расстояние намного меньше характерной длины спин-решеточной релаксации, которая в ферромагнитных металлах составляет несколько десятков нанометров. Благодаря этому спиновый поток на магнитных неоднородностях сохраняется, происходит лишь его перераспределение. Индуцированная спиновым током динамика неоднородно намагниченной *s-d*-системы приближенно может быть описана обобщенным уравнением Ландау — Лившица (ОУЛЛ):

$$\frac{dM}{dt} = -\gamma [M \times H_{eff}] + T_{s,t} + \frac{G}{\gamma M_s^2} (M \times \frac{dM}{dt}),$$



где M – вектор намагниченности; t – время; α – параметр затухания Гильберта; M_s – намагниченность насыщения; H_{eff} – эффективное поле; $T_{s,t} = \gamma T$ – вращающий момент; G – параметр затухания Гильберта (иногда используется безразмерный параметр $a = G/\gamma M_s$).

Особый интерес представляет G – параметр затухания Гильберта, очень важный для описания динамики спиновых взаимодействий в исследуемых системах с точки зрения скорости спиновой релаксации и контроля скорости достижения спиновой намагниченностью равновесия, что, в свою очередь, определяет и функциональные свойства структур. Величина постоянной Гильберта может быть извлечена из ширины линии сигнала ФМР. На необходимость анализа ширины линии ФМР в тонких металлических пленках и корреляции между шириной линии ФМР и качеством магнитных структур было обращено внимание в статьях [11; 12].

Вклад в ширину линии из-за гильбертового затухания можно вычислить по формуле

$$\Delta H^{Gilb} = \frac{dH}{d\omega} \Gamma,$$

где Γ – частотная ширина линии. Тогда для гильбертова уширения справедливо простое выражение

$$\Delta H^{Gilb} = \frac{2\omega}{\sqrt{3}\gamma} \frac{\alpha}{\cos \beta}.$$

Важным также является установление того факта, что ширина линии обусловлена именно гильбертовым затуханием. В противном случае необходимо определить влияние на ширину линии гильбертового затухания. Существенный индикатор того, что присутствует дополнительный вклад, – это сравнение ширины линии, измеренной при расположении образца в плоскости магнитного поля ΔH_{\parallel} и перпендикулярно магнитному полю ΔH_{\perp} . Согласно решению уравнения Ландау – Лифшица справедливо соотношение $\Delta H_{\parallel} = \Delta H_{\perp}$. При дополнительных вкладах это соотношение не выполняется.

С точки зрения диагностики образца важным является определение вкладов, обусловленных дефектами образца и приводящих к неоднородному уширению линии. Дополнительный вклад можно выразить следующим образом:

$$\Delta H^{Inhom} = \frac{\partial H}{\partial \varphi_H} \Delta \varphi_H + \frac{\partial H}{\partial \theta_H} \Delta \theta_H,$$

где параметры $\Delta \theta_H$, $\Delta \varphi_H$ характеризуют степень неоднородности образца. Производные резонансного поля по углам могут быть найдены из соответствующей угловой зависимости ширины линии ФМР.

В результате прецессии вектора намагниченности внутри магнитной подсистемы могут возникать возбужденные состояния, например



магноны. Энергия этих возбужденных состояний также со временем рассеивается в тепло. Динамика намагниченности описывается уравнением Блоха – Бломбергера:

$$\dot{M} = -\gamma [M \times H_{eff}] - \frac{M_x}{T_2} e_x - \frac{M_y}{T_2} e_y - \frac{M_z - M_s}{T_1} e_z,$$

где T_1 и T_2 – продольное и поперечное время релаксации соответственно. Если $T_1 \gg T_2$, то проекция намагниченности на ось z остается постоянной, а энергия рассеивается. Уширение линии из-за механизма Блоха – Бломбергера можно найти по формуле

$$\Delta H^{BB} = \frac{dH}{d\omega} \frac{1}{T_2}.$$

Анализ показывает, что при $\Delta H_{\parallel} > \Delta H_{\perp}$ необходимо учитывать магн-нон-магнонное уширение, которое влияет на уширение сигнала при измерениях в геометрии «в плоскости». Полная ширина линии находится суммированием всех вкладов.

С целью выявления характерных особенностей каждого из вкладов были проведены модельные расчеты ширины линии сигнала ФМР для модельных эпитаксиальных структур при использовании уравнения Ландау – Лифшица и термодинамического подхода. Характерный вид полярной зависимости ширины линии для монокристаллической пленки с намагниченностью 750 emu/cm^3 , константой анизотропии $K_{411} = -1 \cdot 10^5$, параметром затухания $\alpha = 0,005$ ($G = 0,66 \cdot 10^8 \text{ c}^{-1}$), $1/T_2 = 5 \cdot 10^8 \text{ c}^{-1}$ и частотой резонанса $9,5 \text{ ГГц}$ представлен на рисунке 3. Отдельно показаны вклады гильбертова уширения, уширения за счет механизма Блоха – Бломбергера и за счет неоднородности образца.

Анализ показывает, что вклад в уширение линии со стороны неоднородности образца может быть существенным в интервале углов $-30^\circ < \theta_H < 30^\circ$.

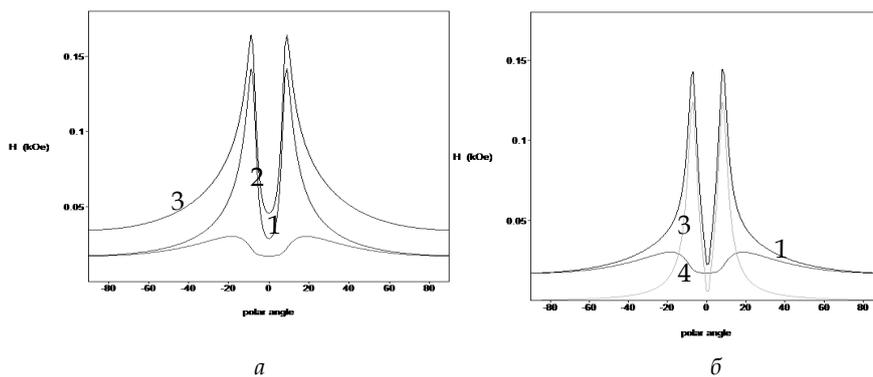


Рис. 3. Результаты модельного расчета для первоначально заданных параметров (а) и при условии $\Delta\theta_H = 0,1^\circ$ (б) полярной зависимости ширины резонансной линии (3) монокристаллической пленки для гильбертова уширения (1), уширения за счет механизма Блоха – Бломбергера (2) и за счет неоднородностей (4)



С целью определения постоянной затухания экспериментально была изучена угловая зависимость ширины линии для серии многослойных структур. Для трехслойных структур типа $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4\text{Fe}_{57}/\text{Pt}$, различающихся толщиной образца, наблюдалась хорошо разрешенная спектральная картина. В качестве примера на рисунке 4 представлен ФМР спектр поликристаллической структуры $\text{Fe}_3\text{Si}(190\text{A})/\text{SiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4(200\text{A})\text{Fe}_{57}(80)/\text{Pt}(1000)$. Анализ угловой зависимости ширины линии для вышеназванных структур показал, что выполняется соотношение $\Delta H_{\parallel} = \Delta H_{\perp}$, следовательно, можно считать, что основной вклад – гильбертовое уширение, тогда параметр затухания Гильберта можно оценить по формуле $G = \frac{g^2 MDH}{2w}$. Результаты расчетов для образцов $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Fe}_{57}/\text{Pt}$ (толщина 350 нм) и $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Fe}_3\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Fe}(80)/\text{Pt}$ (толщина 400 нм) приведены ниже (табл.). Оценки показывают, что в более толстой структуре коэффициент затухания выше.

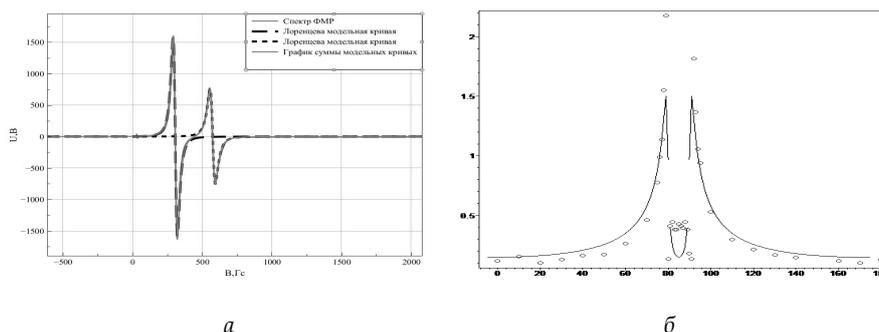


Рис. 4. Спектр образца № 2669 $\text{Fe}_3\text{Si}(190\text{A})/\text{SiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4(200\text{A})\text{Fe}_{57}(80)/\text{Pt}(1000)$ для параллельной (а) и перпендикулярной (б) ориентации плоскости образца относительно внешнего магнитного поля

Значения параметров намагнитченностей для исследованных трехслойных структур

Образец	$M_1, \text{emu/cc}$	$M_2, \text{emu/cc}$	$G_1, 10^8 \text{ s}^{-1}$	$G_2, 10^8 \text{ s}^{-1}$
1	~ 700	~ 1270	1,4	2,2
2	~ 960	~ 1040	1,3	4,0

Дополнительную информацию о равномерности нанесению пленок, однородности слоев и наличии дефектов можно получить путем исследования угловой зависимости ширины линии при вращении образца в плоскости силовых линий постоянного магнитного поля.

Было проведено экспериментальное исследование азимутальной зависимости ширины линии ряда эпитаксиальных структур типа $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{Si}$, $\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{Si}/\text{MgO}/\text{Fe}_3\text{Si}$, различающихся методом приго-



товления. Результаты, приведенные на рисунке 5, демонстрируют нарушение симметрии в азимутальной зависимости. Это может быть вызвано либо неравномерностью нанесения слоя при формировании структуры, либо дефектами интерфейса.

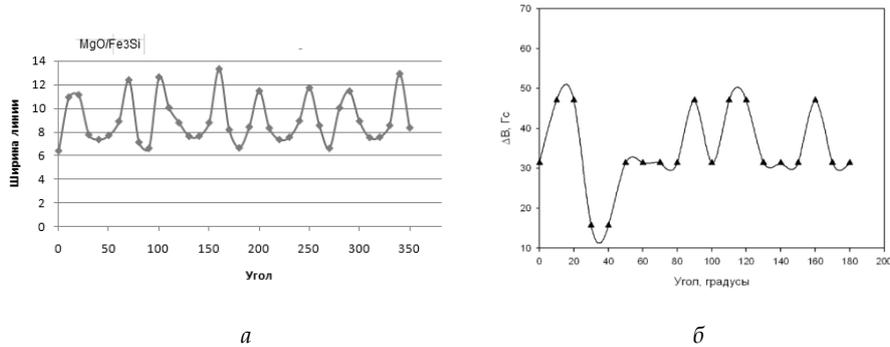


Рис. 5. Азимутальная зависимость ширины линии сигнала ФМР для эпитаксиальных структур MgO/Fe₃Si (а) и MgO/Fe₃Si/MgO/Fe₃Si (б)

Таким образом, ФМР может быть использован как диагностический метод определения качества сформированных структур, предназначенных для магнитных туннельных переходов. Данные ФМР позволяют оценить наличие и концентрацию дефектов, присутствие парамагнитной фазы. Именно эти факторы негативно влияют на качество МТП. В изученных тонкослойных структурах магнетита, сформированных на подложках MgO, было определено, что при отжиге примеси Mn, содержащиеся в подложке, внедряются в функциональный слой магнетита. А среди синтезированных структур серии MgO/Fe/Fe₃O₄, MgO/Fe₃O₄/Fe, которые различаются толщиной образцов, отожженных при одинаковой температуре 450 °С, и структур на аморфной подложке Si SiO₂/Fe/Fe₃O₄ были обнаружены структуры, имеющие парамагнитную фазу. По результатам анализа выявлены качественные наноструктуры, не имеющие примесей и парамагнитных фаз, а по результатам азимутальной зависимости ширины линии – структуры, обладающие свойствами качественной эпитаксии.

Список литературы

1. Zutic I., Fabian J., Das Sarma S. Spintronics Fundamentals and applications // Rev. Mod. Phys. 2004. Vol. P. 76. 323.
2. Parkin S., Jiang X., Kaiser C. et al. Magnetically engineered spintronic sensors and memory // Proceedings of the IEEE. 2003. Vol. 91. P. 661–680.
3. Slaughter J., Chen E., Whig R. et al. Magnetic Tunnel Junction Materials for Electronic Applications // JOM-e. 2000. Vol. 52 (6). P. 1.



4. Durlam M., Naji P., DeHerrera M. et al. Nonvolatile RAM based on magnetic tunnel junction elements // Proc. IEEE Int. Solid-State Circuits Conf. Dig. Tech. Papers. 2000. Feb. P. 130–131.

5. Parkin S., Jiang X., Kaiser C. et al. Magnetically engineered spintronic sensors and memory // Proceedings of the IEEE. 2003. Vol. 91. P. 661–680.

6. Гойхман А.Ю., Куприянова Г.С., Прохоренко Е.Е., Черненко А.О. Магнитно-резонансные свойства тонкопленочных структур с Fe_3O_4 // Вестник Российского государственного университета им. И. Канта. 2010. Вып. 4.

7. Durlam M., Naji P., DeHerrera M. et al. Nonvolatile RAM based on magnetic tunnel junction elements // Proc. IEEE Int. Solid-State Circuits Conf. Dig. Tech. Papers. 2000. Feb. P. 130–131.

8. Youssef J., Layadi A. Ferromagnetic resonance study of Permalloy/Cu/Co/NiO spin valve system // J. Appl. Phys. 2010. 108. 053913.

9. Zakeri Kh., Lindner J., Barsukov I. et al. Erratum: Spin dynamics in ferromagnets: Gilbert damping and two-magnon scattering // Phys. Rev. 2007. B 76. 104416.

10. Lenz K., Wende H., Kuch W. et al. Two-magnon scattering and viscous Gilbert damping in ultrathin ferromagnets // Phys. Rev. 2006. B 73. 144424.

11. Швачко Ю.Н., Стариченко Д.В., Шматов Г.А., Гобов Ю.В. Ширина линии ферромагнитного резонанса в анизотропном магнетике при разориентации резонансного и сканирующего магнитных полей // Физика твердого тела. 2002. Т. 44, вып. 11. С. 2029–2034.

12. Веселов А.А., Веселов А.Г., Высоцкий С.Л. Магнитные свойства термически напыленных тонких пленок Fe/GaAs (100) // Журнал технической физики. 2002. Т. 72, вып. 8. С. 139–142.

Об авторах

Андрей Юрьевич Зюбин – науч. сотр., Балтийский федеральный университет им. И. Канта, Калининград.

E-mail: azubin@mail.ru

Артём Валерьевич Асташенок – канд. физ.-мат. наук, доц., Балтийский федеральный университет им. И. Канта, Калининград.

E-mail: AAstashenok@kantiana.ru

Галина Сергеевна Куприянова – д-р физ.-мат. наук, проф., Балтийский федеральный университет им. И. Канта, Калининград.

E-mail: galkupr@yandex.ru

About authors

Andrey Zubin – research fellow, I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.

E-mail: azubin@mail.ru

Artem Astashenok – PhD, ass. prof., I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.

E-mail: AAstashenok@kantiana.ru

Dr Galina Kupriyanova – prof., I. Kant Baltic Federal University, Kaliningrad.

E-mail: galkupr@yandex.ru