А. Ю. Гойхман, А. В. Зенкевич, Е. Е. Прохоренко, А.О. Черненков, А.А. Алиевский, А.Ю. Зюбин, Г.С. Куприянова

ИССЛЕДОВАНИЕ МНОГОСЛОЙНЫХ СТРУКТУР ДЛЯ МАГНИТНЫХ ТУННЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ МЕТОДОМ ФЕРРОМАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА

Методом ферромагнитного резонанса проведены исследования магнитных свойств и магнитного взаимодействия в трехслойных тонкопленочных наноразмерных структурах ферромагнетик — изолятор — ферромагнетик. Полученные результаты, согласуясь с данными измерения магнитного гистерезиса, демонстрируют диагностические возможности метода ФМР при исследовании функциональности многослойных структур для приложений спинтроники.

The article presents research on magnetic properties and magnetic interaction of a 3-layer ferromagnetic – insulator – ferromagnetic nanoscale thin film structures by the ferromagnetic resonance method (FRM). The results proved by magnetic hysteresis measurement data show FRM diagnostic possibilities for the functionality identification of multilayer structures for spintronics applications.

Ключевые слова: ферромагнитный резонанс, спинтроника, гистерезис.

Keywords: ferromagnetic resonance, spintronics, hysteresis. Введение

В последние годы резко активизировались исследования, ставящие своей целью разработку новых материалов и их комбинаций для приложений в спинтронике — активно развивающегося направления наноэлектроники, которое основано на эффектах учета спинового состояния электронов в элементах магнитной памяти, магнитных транзисторах, магнитных фильтрах и других элементах микроэлектроники [1].

Магнитные туннельные переходы (МТП), состоящие из структур ферромагнетик (ФМ) — туннельный изолятор (ТИ) — ферромагнетик, являются основным элементом энергонезависимой памяти произвольного доступа нового поколения. В элементе магнитной памяти, основанном на квантовом туннелирования электронов (проводимости), ориентация намагниченности одной из ферромагнитных обкладок изменяется приложением внешнего магнитного поля, величина которого подбирается так, чтобы ориентация намагниченности второй ферромагнитной обкладки не менялась. Изменение вероятности туннелирования при изменении относительной ориентации намагниченности ферромагнитных обкладок приводит к изменению «гигантского магнитосопротивления» $R_{GM}=(R_{\uparrow\downarrow}-R_{\uparrow\uparrow})/R_{\uparrow\uparrow}$ тонкопленочной структуры

Вестник Российского государственного университета им. И. Канта. 2009. Вып. 4. С. 64 – 71.

ФМ — ТИ — ФМ и может быть использовано для создания статических элементов магнитной памяти произвольного доступа (magnetic random access memory, MRAM). Такие элементы памяти энергонезависимы (сохраняют информацию в отсутствие питания), обладают неограниченной способностью к перезаписи, дают возможность быстрого считывания и записи и могут быть так же миниатюрны, как и конкурирующие технологии. Благодаря этому набору качеств, а также весьма низкой оценочной стоимости изготовления при интегрировании в кремниевую технологию, данная технология может вытеснить другие технологии изготовления элементов памяти, в частности флэш-память [2].

Одна из проблем, возникающих при разработке новой комбинации материалов и попытке формирования МТП на основе этих материалов, заключается в эффекте магнитного обменного взаимодействия между двумя ФМ слоями, разделенными туннельным изолятором, который отрицательно влияет на возможность независимого переключения намагниченности ФМ слоев — первого критерия функциональности структуры. Этот эффект может быть вызван как плохим качеством туннельного изолятора, так и сочетанием магнитных характеристик нижнего и верхнего ФМ слоев [3].

Данная работа посвящена исследованию магнитных свойств (намагниченности, кристаллической и магнитоупругой анизотропии) многослойных структур методом ферромагнитного резонанса (ФМР). Являясь наиболее точным методом определения электронного состояния, метод ФМР может быть успешно использован при исследовании эффектов магнитного взаимодействия в сверхтонких наноструктурах. Цель настоящей работы — исследование возможности применения ФМР как диагностического метода при определении функциональности формируемых наноразмерных структур Fe₃Si/SiO₂/Co, Fe₃Si/SiO₂/Fe₃O₄ и Fe₃O₄/MgO/Fe₃Si.

Методика эксперимента

В данной работе для формирования многослойных магнитных структур ФМ – ТИ – ФМ применялся метод импульсного лазерного осаждения (ИЛО), реализованный в сверхвысоковакуумной (остаточное давление Р≈10-7 Па) камере с использованием YAG:Nd лазера, работающего в режиме модуляции добротности (λ=1.06 мкм, τ=10 нс). Выходная энергия лазерного импульса программировалась в пределах E=0,1 ÷ 0,3 Дж за импульс. Поликристаллические структуры на основе системы Fe₃Si/SiO₂ были сформированы по разработанной ранее методике (см. [4]), суть которой коротко заключается в следующем. На предварительно окисленных подложках Si(100) методом импульсного лазерного осаждения формируется бислойная структура Fe/Si, поверхность которой затем окисляется при комнатной температуре в плазме тлеющего разряда кислорода, образуя сверхтонкий (~ 2 нм) слой SiO₂ (рис. 1, *a*). Толщины индивидуальных слоев Fe и Si подбираются исходя из того, что количество железа должно быть достаточным для образования Fe₃Si, учитывая то, что часть кремния расходуется на формирование слоя SiO₂. Контроль толщины формируемых слоев проводился с учетом предварительной калибровки скоростей осаждения методом резерфордовского обратного рассеяния легких ионов (РОР). После формирования слоя SiO₂ вакуумным отжигом активируется твердофазная реакция силицидообразования Fe₃Si, формируемого таким образом в контакте с SiO₂ (рис. 1, б). Структуры Fe(110)/Fe₃O₄(110)/MgO(100)/Fe₃Si комбинированного типа (Fe/Fe₃O₄/MgO – эпитаксиальная система, а Fe₃Si — поликристаллическая) формировались на подложках MgO(100). Эпитаксиальный рост возможен в силу близости параметров решеток Fe₃O₄(110), Fe(110) и MgO (100) (несовпадение в параметрах решетки между MgO и Fe составляет ~ 2,5 %, между Fe и Fe₃O₄ ~ 2 %) [5; 6]. Ферромагнитный слой Fe₃O₄(110) формируется последовательно с эпитаксиальным подслоем Fe(110) при повышенной температуре (T~ 450 °C для Fe₃O₄ и 250 °C для Fe), что позволяет получить фиксированный ФМ слой с улучшенными магнитными характеристиками [7]. Формирование сверхтонкого сплошного эпитаксиального слоя туннельного изолятора MgO(100) состоит в процессе осаждения Mg в атмосфере кислорода при низком (~10⁻⁶ Па) давлении на поверхность ФМ слоя Fe₃O₄(110) с последующим отжигом при T = 300 °C в течение 20 минут в одном вакуумном цикле.

ФМР измерения были выполнены на ЭПР спектрометре Radiopan в Х-зоне с частотой 9,5 ГГц. Модернизация спектрометра, проведенная группой «Новый Радиопан» Вроцловского университета, позволила автоматизировать процесс регистрации спектра. Применение электронной приставки свипирования магнитного поля, разработанного и изготовленного авторами механического гониометра, позволило исследовать спектры ФМР в двух, так называемых in plane и out of plane геометриях (рис. 1). Измерения в геометрии *in plane* проводятся таким образом, что при вращении образца плоскость пленки остается все время в плоскости линий постоянного магнитного поля, тем самым фиксируется анизотропия, характеризующая кристаллический порядок. Это дает возможность установить положение легких осей намагничивания (в этом случае магнитные моменты выстраиваются вдоль одного направления), которые совпадают с главными кристаллографическими осями. При измерениях в геометрии out of plane вращение образца осуществляется в плоскости, перпендикулярной линиям постоянного магнитного поля, начиная с направления легкой оси исследуемой пленки. Угловая зависимость сигналов ФМР в режиме out of plane позволяет исследовать магнитную анизотропию образца.



Рис. 1. Две геометрии ФМР исследования тонкопленочных структур: *a* — in plane геометрия, при которой исследуется кристаллическая анизотропия, и *δ* — out of plane геометрия, позволяющая исследовать магнитную анизотропию

ФМР исследование сформированных образцов проводилось в два этапа: сначала регистрировался сигнал от образца в геометрии in plane, а затем после определения положения оси легкого намагничивания и выставления параллельной позиции в этой геометрии образец, не меняя положения углов, закреплялся на держателе для измерения в out of plane геометрии. Такой подход позволил проводить сравнение полученных ФМР сигналов от разных образцов трехслойных структур при одном и том же положении кристаллографических осей.

Исследование магнитных характеристик (петля гистерезиса и кривая намагничивания) формируемых пар образцов ФМ — ТИ и ФМ — ТИ — ФМ проводилось на кафедре магнетизма физического факультета МГУ им. М. В. Ломоносова методом вибрационной магнитометрии, на приборе LakeShore, позволяющем проводить измерения намагниченности в полях до 2 Т.

Результаты и обсуждение

С целью выявления диагностических возможностей ФМР методики исследования локальных магнитных свойств тонкопленочных многослойных магнитных структур, по описанной выше методике были изготовлены три образца трехслойных структур ФМ – ТИ – ФМ на основе одних и тех же материалов, но в разной комбинации и разном кристаллическом состоянии. В таблице 1 приведено краткое описание и структура сформированных образцов. Толщины слоев сформированных образцов измерялись методом резерфордовского обратного рассеяния.

Таблица 1

Образец 1		Образец 2		Образец 3	
Fe/Fe3O4/MgO/Fe3Si		Fe ₃ Si/SiO ₂ /Fe ₃ O ₄ /Fe		Fe3Si/SiO2/Fe/Fe3O4	
Fe/Fe3O4/MgO эпитаксия Fe3Si поликристалл		Вся структура поликристалл		Вся структура поликристалл	
Fe15I MgO Fe101 F4 MgO	– 150 A 30 A 100 A 40 A подложка	Fe Fe ₃ O ₄ SIO, Fe ₃ SI SIO, SI(1001_	I> 60 A I= 130 A I⇒ 30 A I= 160 A Подложив	10,0,0 56 50,5 50,5 50,5 50,5 50,5 50,5 5	~ 130 A ~ 50 A ~ 30 A ~ 150 A Teanome

Описание и толщины слоев сформированных образцов

На рисунке 2 приведены ФМР спектры (*a*) сформированных образов при одинаковом параллельном положении геометрии out of plane и угловые характеристики анизотропии образцов в этой геометрии (б).



Рис. 2: *а* – ФМР спектры; б – угловые зависимости резонансных полей для трех образцов. В образцах 1 и 2 разрешаются сигналы Fe и Fe₃Si

Приведенные зависимости интенсивности производной пика поглощения микроволновой мощности от приложенного внешнего постоянного магнитного поля при параллельной ориентации образца обладают рядом особенностей: в образцах 1 и 2 наблюдаются два разрешенных ферромагнитных пика, отвечающие состояниям Fe (в низких полях ~150 mT) и Fe₃Si (в более высоких полях ~250 mT), обладающих анизотропией, в то время как в образце 3 наблюдается интенсивный одиночный пик, характерный для ферромагнитного силицида железа Fe₃Si. Сравнительный анализ спектров ФМР демонстрирует близкие значения интенсивности пиков, отвечающих Fe и Fe₃Si в образце 1, значительное увеличение относительной интенсивности пика Fe₃Si в образце 2, и, наконец, еще более значительное увеличение относительной интенсивности пика Fe₃Si в образце 3, ведущее к отсутствию пика Fe на последнем спектре. Учитывая, что во всех трех образцах слой Fe₃Si находится в одном и том же кристаллическом состоянии и имеет одну и ту же толщину, подобное изменение его относительной интенсивности на спектрах ФМР можно связать только с наличием магнитного взаимодействия в соответствующих трехслойных системах. Формирование магнитожесткого слоя Fe₃O₄ (т.е. с высокими значениями коэрцитивной силы H_c ~ 50 mT) производилось с использованием дополнительного слоя Fe, обеспечивающего высокие значения намагниченности насыщения (Ms ~ 800 emu/cc) формируемому таким образом магнитосильному слою Fe₃O₄-Fe. В результате в образцах 1 (Fe/Fe₃Si/MgO/Fe₃Si) и 2 (Fe₃Si/SiO₂/Fe₃O₄/Fe) слои Fe и Fe₃Si, дающие вклады в ФМР спектр, оказались отделены друг от друга слоями туннельного изолятора (MgO и SiO₂ соответственно) и слоем Fe₃O₄; при этом в образце 3 (Fe₃Si/SiO₂/Fe /Fe₃O₄) слои Fe и Fe₃Si отделены лишь сверхтонким (2 нм) слоем SiO₂. Разрешимость и сравнимые по порядку величины интенсивности пиков Fe и Fe₃Si в образцах 1 и 2 могут быть объяснены, учитывая описанную разницу в конфигурации слоев, которые при этом обладают схожими морфологическими и структурными качествами.

Таким образом, из проведенного анализа был сделан вывод о том, что образец 1 является наиболее удачным с точки зрения независимого переключения и отсутствия магнитного обменного взаимодействия между слоями. При этом образец 2 также является перспективным с точки зрения приложений магнитных туннельных переходов, обладая, однако, неким внутренним обменным взаимодействием между ФМ слоями, которое может быть исключено при пониженных температурах (T_N или T_{He})

Результаты исследования магнитных свойств описанных выше образцов методом вибрационной магнитометрии смогли подтвердить выдвинутые выше предположения.

По приведенным на рисунке 3 петлям гистерезиса можно сделать вывод о наличии независимого переключения намагниченности в образце 1: в диапазоне полей –10÷10 mT наблюдается узкая петля гистерезиса, характерная для Fe₃Si, переходящая в широкую петлю Fe₃O₄ в диапазоне –100÷100 mT. Образец 2 не демонстрирует столь характерной петли гистерезиса независимо переключающихся Φ M слоев, однако при этом в диапазонах полей –60÷–30 и 30÷60 mT наблюдаются некие особенности, дающие основание предположить, что в данном образце возможно независимое переключение намагниченности, при проведении исследований при пониженных температурах [8], в то время как кривая намагниченности образца 3 является идеальной петлей гистерезиса Fe₃Si с коэрцитивной силой Hc ~ 50 Э, не демонстрируя никаких тенденций к независимому переключению.



Рис. 3. Петли гистерезиса для трех исследованных образцов:

a – наблюдается независимое переключение; *δ* – тенденция
к независимому переключению; *β* – отсутствие независимого переключения

Итак, результаты проведенных исследований демонстрируют диагностические возможности ФМР методики с точки зрения выявления наиболее перспективных образцов со структурами магнитных туннельных переходов на предмет независимого переключения намагниченности в ФМ слоях. Использование ферромагнитного резонанса при исследовании магнитных свойств многослойных систем является дешевой и простой альтернативой применению стандартных методик измерения кривых намагниченности, таких как SQUID, VSM, МОКЕ и т.д., во-первых, в связи с возможностью исследования поведения каждого магнитного слоя, во-вторых, в связи с большей чувствительностью по отношению к отдельным слоям, и наконец, по спектрам ФМР, полученным при комнатной температуре, представляется возможным предсказать наличие независимого переключения в трехслойных системах даже при отсутствии явного наблюдения ступенчатой петли гистерезиса при измерении кривой намагничивания.

Список литературы

1. Zutic I., Fabian J., Das Sarma S. // Rev. Mod. Phys. 2004. V. 76. P. 323.

2. Grynkewich G., Akerman J., Brown P. et al. // MRS bulletin. 2004. №11. P. 818.

3. Demokritov S., Wolf J. A. et al. // Europhys. Lett. 1991. 15. P. 881-886.

4. Mantovan R., Georgieva M. et al. // Phys. Stat. Sol. (a). 2008. V. 205. P. 1753.

5. *Mijiritskii A.* Structural of surfaces and bulk phases formed during gas-metal interactions. Ph.D. thesis, Groningen, 2000.

6. McGuigan L., Barklie R. C. et al. // Phys. Rev. 2008. B. 77. P. 174424.

7. Magen C., Snoeck E. et al. // J. Appl. Phys. 2008. 104. P. 013913.

8. Park C., Zhu J-G. et al. // IEEE Trans. On Magn. 2005. P. 2691.

Об авторах

А. Ю. Гойхман – студ. МИФИ (ГУ), лаборант, РГУ им. И. Канта.

А.В. Зенкевич – канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотр., МИФИ (ГУ).

Е.Е. Прохоренко — студ., РГУ им. И. Канта.

А.О. Черненков – студ., РГУ им. И. Канта.

А.А. Алиевский – асп., РГУ им. И. Канта.

А.Ю. Зюбин – асп., РГУ им. И. Канта.

Г.С. Куприянова – д-р физ.-мат. наук, проф., РГУ им. И. Канта.

Authors

A. Goikhman – student, Moscow Engineering Physics Institute.

A. Zenkevich – Dr., Moscow Engineering Physics Institute.

Ye. Prokhorenko - student, IKSUR.

A. Chernenkov - student, IKSUR.

A. Aliyevsky – PhD student, IKSUR.

A. Zyubin – PhD student, IKSUR.

G. Kupriyanova – Prof., IKSUR.