

PACS numbers: 68.65.Ac, 71.20.Be, 73.40.Rw, 75.47.Np, 75.50.Bb, 75.70.Cn, 85.75.Ss

Магнетні тунельні контакти на основі стопу Гойслера Fe_2MnGa

Ю. В. Кудрявцев, В. М. Уваров, J. Dubowik*, Ю. Б. Скірта**

*Институт металлофизики ім. Г. В. Курдюмова НАН України,
бульв. Акад. Вернадського, 36,
03680, МСП, Київ, Україна*

**Институт молекулярной физики ПАН,
вул. Смолуховського, 17,
60-179 Познань, Польща*

***Институт магнетизму НАН України,
бульв. Акад. Вернадського, 36^а,
03680, МСП, Київ, Україна*

Було виготовлено та досліджено магнетні тунельні контакти (МТК), в яких ферромагнетними електродами були плівки стопу Гойслера Fe_2MnGa та стопу $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$; бар'єрним шаром між ними були плівки MgO . Показано, що структура плівок стопу Fe_2MnGa впливає на величину тунельного магнетосопротиву. Одержані величини магнетосопротиву при $T = 293 \text{ K}$ (4–20%) відкривають перспективи практичного використання таких МТК як сенсорів магнетного поля.

Были изготовлены и исследованы магнитные туннельные контакты (МТК), в которых ферромагнитными электродами служили плёнки сплава Гейслера Fe_2MnGa и сплава $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$; барьерным слоем между ними были плёнки MgO . Показано, что структура плёнок сплава Fe_2MnGa влияет на величину туннельного магнитосопротивления. Полученные величины магнитосопротивления при $T = 293 \text{ K}$ (4–20%) открывают перспективы практического использования таких МТК в качестве сенсоров магнитного поля.

Magnetic tunnel junctions (MTJ) with Heusler Fe_2MnGa -alloy and $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ -alloy films as ferromagnetic electrodes and MgO -films as barrier layer are fabricated and investigated. As shown, the structure of Fe_2MnGa -alloy films effects significantly on the tunnel magnetoresistance value. Obtained values of tunnel magnetoresistance (4–20%) at 293 K open the perspectives of practical applications of such MTJ as magnetic-field sensors.

Ключові слова: магнетні властивості, магнетосопрі, магнетні тунельні ко-

нтакти, металеві гетероструктури, тонкі плівки.

(Отримано 25 листопада 2014 р.; остаточн. варіант — 29 січня 2015 р.)

1. ВСТУП

Останнім часом великий інтерес дослідників викликає вивчення ефекту тунельного магнетопору (ТМО), який спостерігається в магнетних тунельних контактах (МТК), через значний потенціал практичного використання цього ефекту при створенні нової генерації магнетної пам'яті (MRAM—Magnetic Random Access Memory) та магнетних головок зчитування [1–3]. Відомо також, що, згідно з формулою Жюльєра, величина ТМО буде тим більше, чим більше буде ступінь спінової поляризації електронів провідності в електродах, що утворюють МТК [1]:

$$\text{ТМО} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2}, \quad (1)$$

де $P_{1,2}$ — ступінь спінової поляризації електронів провідності першого (другого) електрода. Виходячи з формули (1), найкращим кандидатом для використання в якості електродів у МТК є напівметалеві феромагнетики, оскільки за визначенням для них $P = 100\%$. Деякі зі стопів Гойслера (СГ) задовольняють цій умові [4]. Переважна більшість спроб використати плівки СГ в МТК робилася на базі напівметалічних феромагнетних СГ на основі кобальту [5–7]. Слід зазначити, що СГ на основі заліза для створення МТК практично не використовували. Серед СГ на основі заліза стоп Fe_2MnGa привертає особливу увагу. Згідно з літературними даними [8], а також нашими попередніми результатами [9] СГ Fe_2MnGa зі структурою типу $L2_1$ має високий ступінь спінової поляризації електронів провідності ($P = 73,8\%$), завдяки існуванню глибокого мінімуму біля рівня Фермі в енергетичній залежності густини електронних станів для спінової підсистеми проти намагнетованості. В магнетному відношенні стоп Fe_2MnGa зі структурою типу $L2_1$ є феримагнетиком; ненульовий вислідний магнетний момент створюється антипаралельно направленими моментами на вузлах переважно заліза та мангану ($m_{\text{Fe}_2\text{MnGa}} = 2,041\mu_B$, $m_{\text{Fe}} = -0,208\mu_B$, $m_{\text{Mn}} = +2,424\mu_B$, $m_{\text{Ga}} = -0,008\mu_B$). Отже цей стоп може представляти інтерес для спінтроніки при його використанні як спінового інжектора. Крім цього, слід зазначити, що в стопі Fe_2MnGa спостерігали мартенситне перетворення, яке супроводжувалося значними змінами намагнетованості та електроопору [10]. Ця властивість може бути корисною в спінтроніці при створенні сенсорів магнетного поля. Отже, за сукупністю фізичних властивостей, стоп Fe_2MnGa здається нам перспективним для прак-

тичного використання. Метою даної роботи було створення МТК на основі СГ Fe₂MnGa та дослідження їх властивостей.

2. ДЕТАЛІ ВИКОНАННЯ ЕКСПЕРИМЕНТУ

Магнетні тунельні контакти $F1/I/F2$, в яких одним з феромагнетних електродів ($F1$) слугували плівки СГ Fe₂MnGa, а іншим електродом ($F2$) — плівки стопу Ni₈₀Fe₂₀, формували за допомогою маскової технології. Феромагнетні електроди з плівок СГ Fe₂MnGa були приготовлені двома методами — методом магнетронного розпорощення масивної мішені стопу Fe₂MnGa при температурі підкладки $T = 293$ К, а також шляхом термічного випаровування порошку стопу Fe₂MnGa в умовах високого вакууму ($P = 5 \cdot 10^{-5}$ Па) за методом «спалаху» на підкладки при температурі $T = 720$ К. Плівки стопу Ni₈₀Fe₂₀ осаджали методом магнетронного розпорощення масивної мішені на підкладки при кімнатній температурі. Базовий тиск у вакуумній камері становив $2 \cdot 10^{-4}$ Па, тиск аргону під час осадження дорівнював $1,5 \cdot 10^{-1}$ Па. Склад плівок стопу, який був одержаний за допомогою розпорощення мішені стопу Fe₂MnGa, складав Fe_{56,3}Mn_{23,6}Ga_{20,1}, що можна вважати досить близьким до складу вихідного стопу. Бар'єрний шар у МТК формували шляхом електронно-променевого випаровування з монокристала MgO у вакуумі $5 \cdot 10^{-4}$ Па.

На підкладці зі скла або полікору розміром 8×24 мм² одночасно формували 4 контакти, площа яких складала 50×50 мкм². Перед осадженням компонентів МТК на підкладці формували контактні площадки Cr/Cu (Cr — для хорошої адгезії до підкладки, а Cu — для поліпшення електричного контакту з електродами вимірювальної системи). Приєднання МТК до вимірювальної системи було виконано за допомогою притискних позолочених контактів. (див. рис. 1). Позначимо МТК, в яких шари стопу Fe₂MnGa формували шляхом магнетронного розпорощення мішені, як МТК-1, а такі, в яких шляхом методом «спалаху», як МТК-2.

Разом з МТК осаджали також шари «свідків», які використовували для дослідження структури та властивостей шарів, що складають МТК. Структуру складових МТК визначали за допомогою Рентгенової дифракції (РД) з використанням CuK_α -випромінення, а також за допомогою просвітної електронної мікроскопії (ПЕМ). Магнетні властивості МТК та його складових вивчали переважно при кімнатній температурі за допомогою магнетометрії на вібраційному магнетометрі та за допомогою спектроскопії феромагнетного резонансу (ФМР). Гальваномагнетні характеристики МТК досліджували за кімнатної температури у полях до 1200 ерстед.

Електронну структуру СГ Fe₂MnGa та стопу Ni₇₅Fe₂₅ було розраховано повнопотенціальним лінеаризованим методом приєднаних

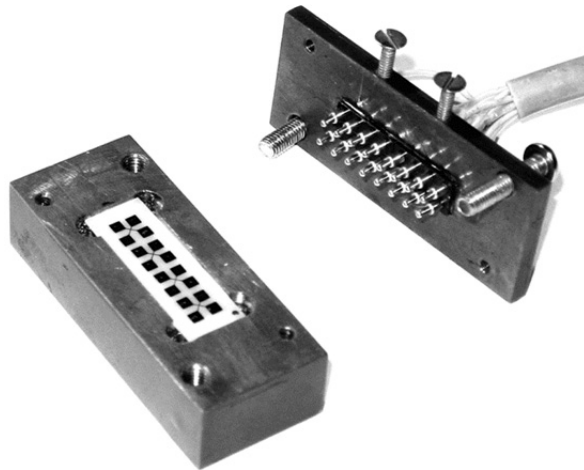


Рис. 1. Полікорова підкладка з 4-ма МТК та система притискних контактів.

пласких хвиль (FLAPW) з використанням програмного коду з пакета Wien2k [11].

3. ОДЕРЖАНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

На рисунку 2 наведено результати обчислення енергетичної залежності густини електронних станів СГ Fe_2MnGa зі структурою типу $L2_1$ та стопу $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ для випадків паралельної та антипаралельної орієнтації векторів вислідної намагнетованості в цих електродах. У випадку тунельного контакту, утвореного феромагнетними електродами з паралельною орієнтацією векторів намагнетованості, сумарний тунельний струм є сумою струмів у спінових підсистемах вздовж та проти вислідної намагнетованості і може бути представлений як [12]:

$$I_p \propto D(E_F)[N_1^\uparrow(E_F)N_2^\uparrow(E_F + eV) + N_1^\downarrow(E_F)N_2^\downarrow(E_F + eV)], \quad (2)$$

де $D(E_F)$ — ймовірність тунелювання крізь бар'єр, $N_{1,2}^{\uparrow\downarrow}(E_F)$ — густина електронних станів (ГЕС) на рівні Фермі для електрода 1 (або 2) для спінової підсистеми по (\uparrow) або проти (\downarrow) напрямку вислідної намагнетованості, eV — енергія електрона при потенціалі зсуву V . У випадку антипаралельної орієнтації векторів намагнетованості феромагнетних електродів МТК вираз для тунельного струму має вигляд:

$$I_{AP} \propto D(E_F)[N_1^\uparrow(E_F)N_2^\downarrow(E_F + eV) + N_1^\downarrow(E_F)N_2^\uparrow(E_F + eV)]. \quad (3)$$

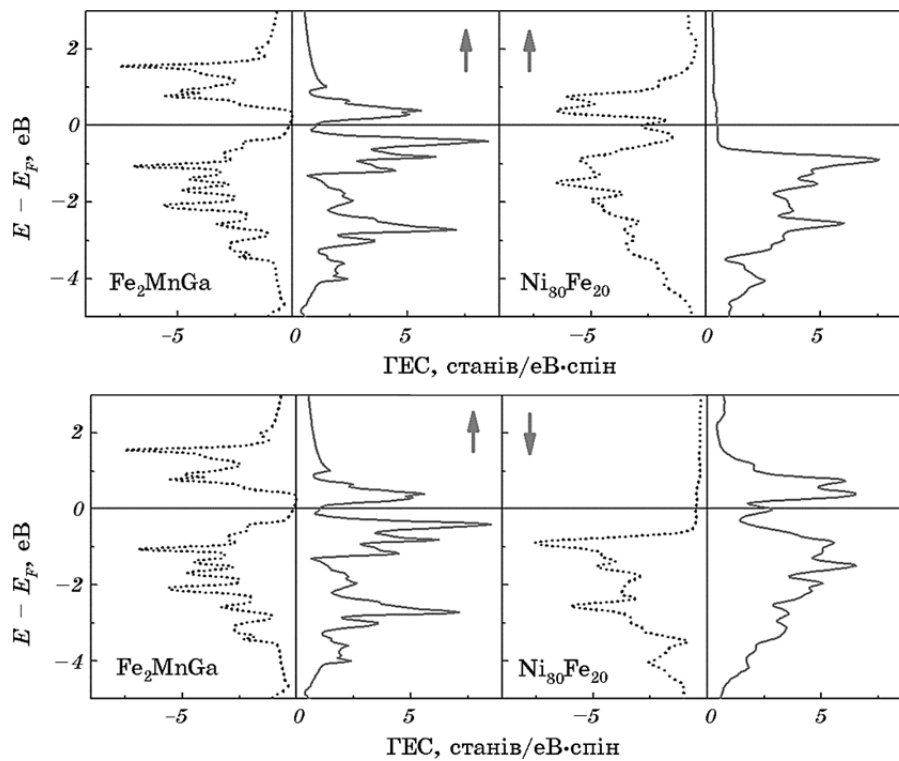


Рис. 2. Енергетичні залежності густини електронних станів стопу Fe_2MnGa зі структурою типу $L2_1$ та стопу $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$, що утворюють магнетний тунельний контакт, при паралельній (верхня панель) та антипаралельній (нижня панель) орієнтації намагнетованості. Суцільні криві відображають енергетичні залежності ГЕС зі спінами вздовж напрямку вислідної намагнетованості електрода, а пунктирні — проти намагнетованості. Стрілками позначені напрямки вислідної намагнетованості електродів.

Використовуючи результати теоретичних розрахунків електронної будови стопу Fe_2MnGa зі структурою типу $L2_1$ та стопу $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$, що наведені на рис. 2, було виконано оцінку величини струму при паралельній та антипаралельній орієнтаціях векторів намагнетованості у феромагнетних електродах. При цьому ми вважали, що ймовірність власне тунелювання не залежить від орієнтації намагнетованості.

Було встановлено, що зміна взаємної орієнтації векторів намагнетованості в шарах Fe_2MnGa та $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$, що утворюють МТК, має викликати зміну величини струму (опору) крізь МТК більш ніж в 3 рази. Отже вибрана пара феромагнетних електродів забезпечує умови для одержання значного магнетоопору. При роботі з реальним стопом $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ми припустили, що його електронна структура

(енергетична залежність ГЕС) несуттєво відрізняється від такої для ступу $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$, для якого було виконано розрахунки.

На рисунку 3 наведено результати ПЕМ плівок ступу Fe_2MnGa , що були одержані різними методами. Видно, що за допомогою магнетронного розпорошення в плівках формується аморфна (або дрібнокристалічна) структура, в той час, як осадження в умовах високого вакууму на підкладки при високій температурі викликає формування структури типу В2 з дуже великим розміром зерна. В плівках ступу $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, згідно з результатами дослідження РД, формується дрібнокристалічна ГЦК-структура зі сталою кристалічної ґратниці $a = 0,3529$ нм.

Як свідчать результати дослідження магнетних властивостей аморфних (або дрібнокристалічних) плівок ступу Fe_2MnGa , одержаних шляхом магнетронного розпорошення мішені на підкладки при кімнатній температурі, вони є м'якими феромагнетиками — величина коерцитивної сили для них складає лише $H_c \cong 4,5$ Е (див. рис. 4) і мають досить велику ефективну намагнетованість — 539 Гс (див. рис. 5). Крім цього слід також зазначити, що смуги поглинання в спектрах ФМР цих плівок мають дуже малу ширину — лише 50 ерстед. Цей факт може свідчити про досить високу композиційну (і відповідно магнетну) однорідність плівок. Слід також зазначити, що ступінь спінової поляризації електронів провідності в плівках ступу Fe_2MnGa , визначений за допомогою методу Андріївського відбиття, при $T = 4,2$ К становив лише $P = 40\%$ (на відміну від теоретично передбачених $P = 73,8\%$). Причина такого значного змен-

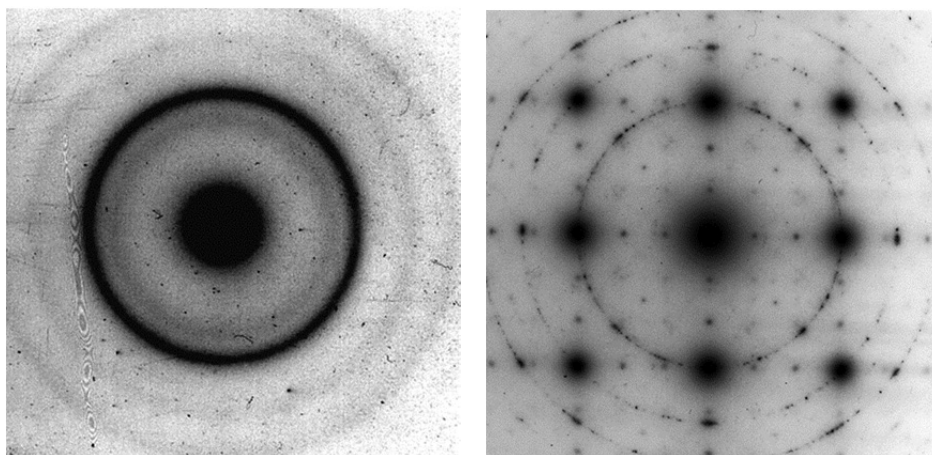


Рис. 3. Мікродифракція плівок ступу Fe_2MnGa , що були одержані методом магнетронного розпорошення мішені на підкладку при кімнатній температурі (ліворуч) та методом «спалаху» в умовах високого вакууму на підкладку при температурі $T = 720$ К (праворуч).

шення величини спінової поляризації електронів провідності ми пов'язуємо із значним структурним безладом в аморфному стані стопу. В той же час плівки стопу Fe_2MnGa з більш досконалою кристалічною структурою, які впорядковані по типу, принаймні, B2, при $T = 250 \text{ K}$ демонструють велику «магнетну цупкість» ($H_c \cong 5000 \text{ E}$, див. вставку на рис. 4), яка обумовлена, мабуть, значною магнето-кристалічною анізотропією стопу. Крім цього петля гістерезису намагнетованості для плівки стопу Fe_2MnGa є несиметричною відносно нульового магнетного поля, що може свідчити про існування в плівках стопу обмінної анізотропії $H_{\text{обм.аніз.}} \cong 600 \text{ E}$. Значна магнетна жорсткість цих плівок завадила нам одержати їх спектри ФМР через брак насичення. Як виходить з дослідження польової і температурної залежності намагнетованості, температура Кюрі плівок стопу Fe_2MnGa , які були одержані методом спалаху, є близькою до кімнатної температури.

Плівки стопу $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, як і очікувалося, є м'якими феромагнетиками ($H_c \cong 3 \text{ E}$) (див. рис. 4) і мають ефективну намагнетованість $M_{\text{еф}} = 429,6 \text{ Gc}$ (див. рис. 5). На рисунку 6 наведено магнеторезисти-

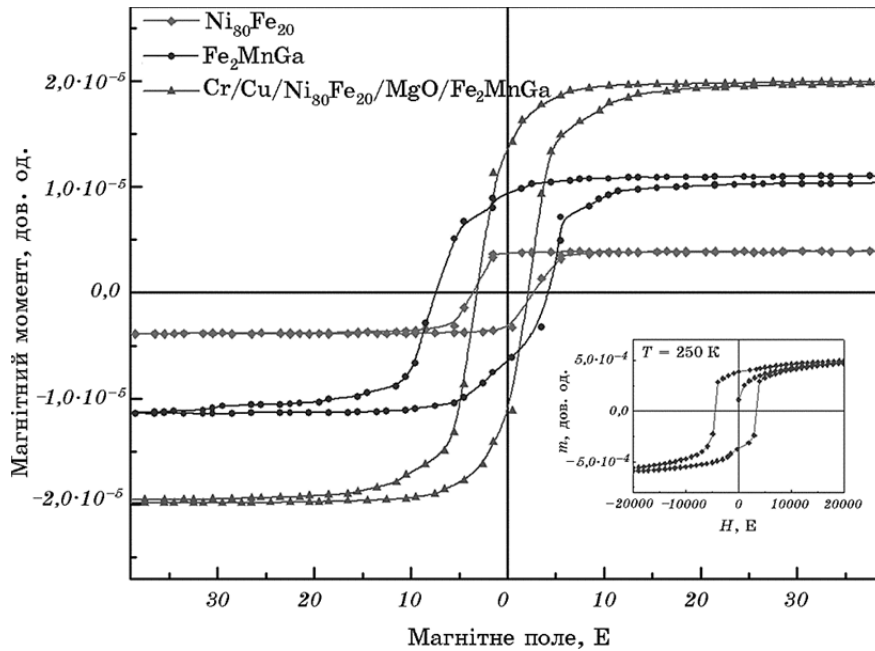


Рис. 4. Петлі гістерезису намагнетованості МТК-1 $\text{Cr/Cu/Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{MgO}/\text{Fe}_2\text{MnGa}$ та його феромагнетних складових у конфігурації «магнетне поле паралельне поверхні плівки». Вставка показує петлю гістерезису намагнетованості плівки стопу Fe_2MnGa , що була одержана в умовах високого вакууму на підкладку при $T = 720 \text{ K}$.

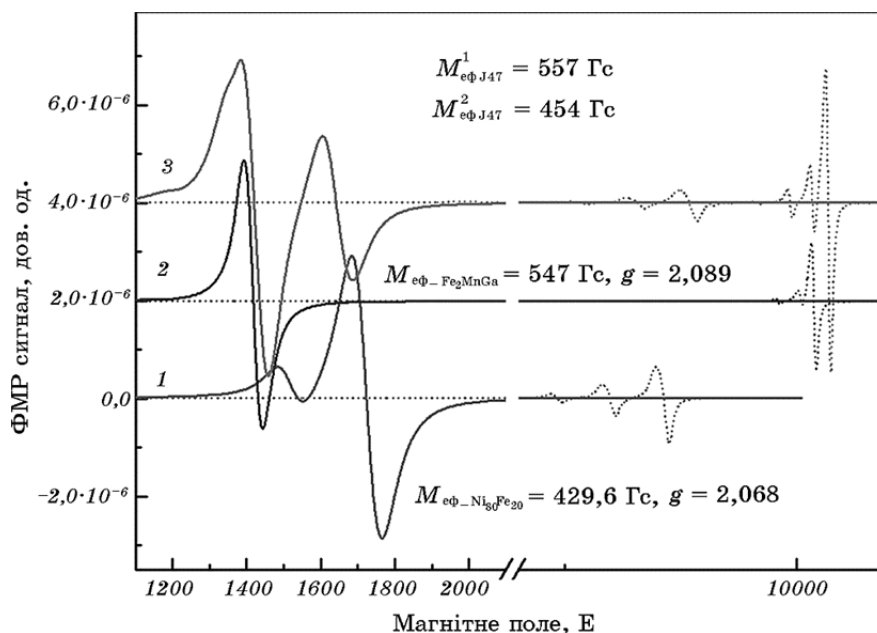


Рис. 5. Спектри ФМР МТК-1 Cr/Cu/Fe₂MnGa/MgO/Ni₈₀Fe₂₀ (3) та його феромагнетних складових — плівок стопів Гойслера Fe₂MnGa (2) та Ni₈₀Fe₂₀ (1) для випадку, коли магнетне поле паралельне (суцільні лінії) або перпендикулярне (пунктирні лінії) площині плівки. Для зручності спостереження криві були зсунуті відносно одна одної вздовж вісі Y.

вні властивості плівок стопу Fe₂MnGa, які були одержані методом магнетронного розпорошення мішені. Видно, що магнеторезистивний ефект в них є дуже малим — він не перебільшує 0,02%.

З результатів, наведених на рис. 4 та 5, випливає, що в магнетному відношенні шари плівок СТ Fe₂MnGa та Ni₈₀Fe₂₀ в МТК-1 не є цілком незалежними. Хоча в спектрі ФМР МТК-1 присутні смуги поглинання компонентів, що утворюють МТК, вони розташовані дещо при інших значеннях магнетних полів. Цей незначний зсув смуг поглинання є еквівалентним невеликому збільшенню ефективної намагнетованості шарів Fe₂MnGa та Ni₈₀Fe₂₀ в МТК-1 (див. рис. 5). Крім цього, МТК-1 є більш магнетом'яким, ніж феромагнетні компоненти, що його утворюють (див. рис. 4).

Вольт-амперна характеристика (ВАХ) МТК-1 Cr/Cu/Ni₈₀Fe₂₀/MgO/Fe₂MnGa, що наведена на рис. 7, є суттєво нелінійною, симетричною відносно нульового значення прикладеної до МТК-1 напруги, що переконливо свідчить про існування в ньому тунельного ефекту. Тунелювання електронів крізь бар'єр викликає експоненційну залежність величини тунельного струму від товщини бар'єру, яка може бути представлена формулою Сіммонса [13]:

$$I(V) = f(t_b) \left[(\varphi - V/2) e^{-(1,025\sqrt{\varphi-V/2})t_b} - (\varphi + V/2) e^{-(1,025\sqrt{\varphi+V/2})t_b} \right], \quad (4)$$

де I — тунельний струм, φ та V — середня висота бар'єру та прикладена напруга до контакту в вольтях відповідно, а t_b — товщина бар'єру в ангстремах. Аналіз даної ВАХ за формулою Сіммонса дозволив нам визначити ширину та висоту бар'єру: ширина бар'єру складала $t_b = 1,56$ нм, а його висота $\varphi = 1,52$ В. Експоненційний характер ВАХ спричинив значну залежність тунельного опору від прикладеної напруги (див. рис. 7). Зовнішнє магнетне поле величиною в 1000 ерстед викликає певні зміни як у ВАХ МТК, так і величини його електроопору. Залежність величини ТМО МТК-1 $\text{Cr/Cu/Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{MgO}/\text{Fe}_2\text{MnGa}$ від прикладеної напруги та зовнішнього магнетного поля наведено на рис. 8.

Видно, що величина магнетоопору при кімнатній температурі і зовнішньому магнетному полі $H = 1000$ ерстед залежить від прикладеної до МТК напруги і складає 4–7%. Слід зазначити, що величина магнетоопору МТК-1 $\text{Cr/Cu/Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{MgO}/\text{Fe}_2\text{MnGa}$ більш ніж на 2 порядки перевищує величину магнетоопору як плівок стопу $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, так і плівок стопу Fe_2MnGa , що складають такий МТК.

МТК-2 $\text{Fe}_2\text{MnGa}/\text{MgO}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, що містять більш досконалі в

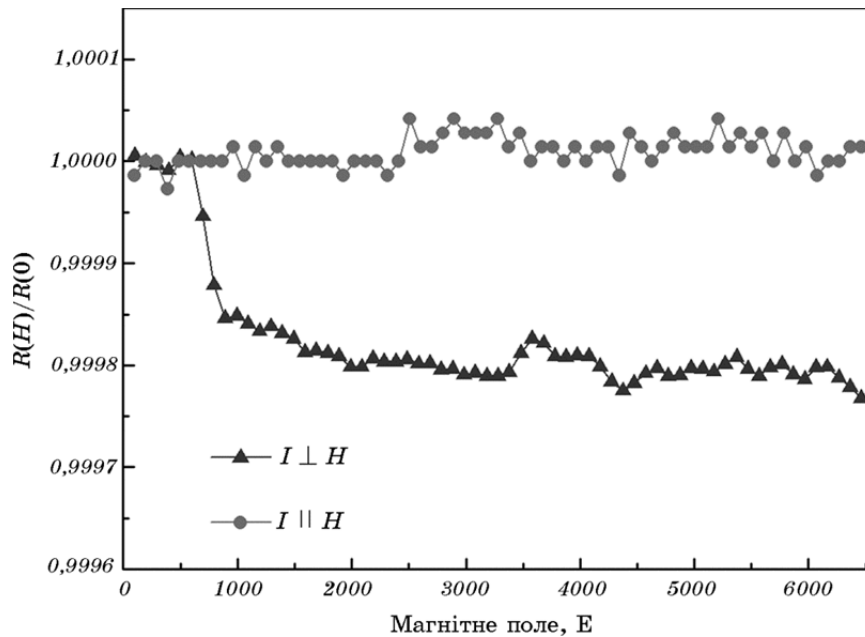


Рис. 6. Вплив магнетного поля на величину електроопору плівок стопу Fe_2MnGa для випадків, коли магнетне поле паралельне та перпендикулярне напрямку електричного струму.

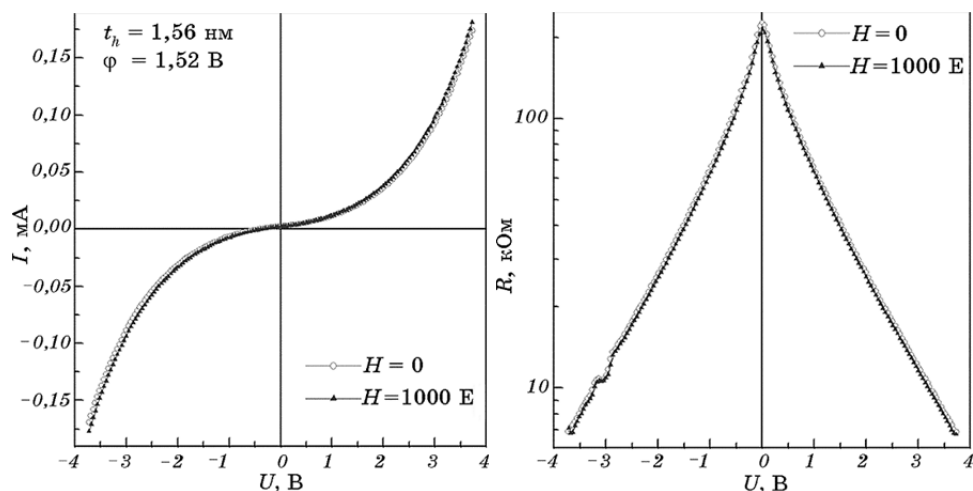


Рис. 7. Вплив магнетного поля на ВАХ (ліворуч) та тунельний опір (праворуч) МТК-1 Cr/Cu/Ni₈₀Fe₂₀/MgO/Fe₂MnGa.

структурному відношенні шари СГ Fe₂MnGa (незважаючи на досить невелику намагнетованість при кімнатній температурі в шарах Fe₂MnGa) демонструють більшу залежність від магнетного поля як ВАХ, так і ТМО (див. рис. 9).

Видно, що ці ВАХ також є помітно нелінійними, а також що характер залежності ВАХ від знаку прикладеної напруги є дещо різним для позитивних і негативних значень V . Крім того, слід також зазначити, що $I(V)$ криві не проходять через нуль напруги. Ми пов'язуємо причину цього явища з контактною різницею потенціалів.

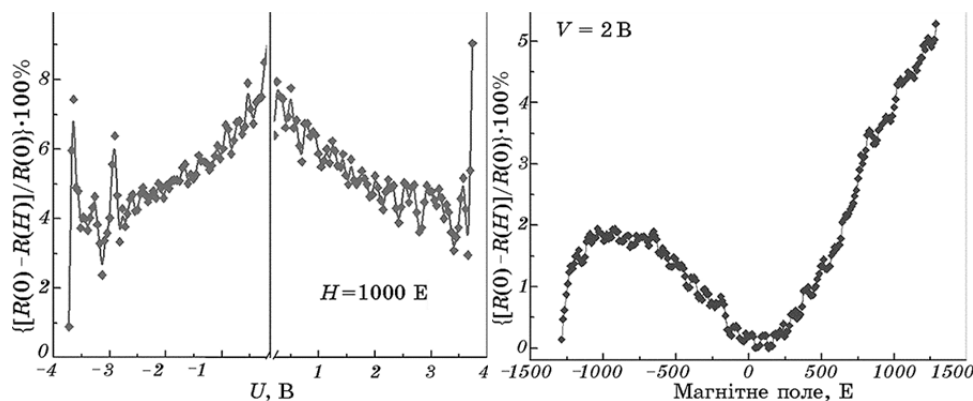


Рис. 8. Залежність величини ТМО МТК-1 Cr/Cu/Ni₈₀Fe₂₀/MgO/Fe₂MnGa від прикладеної до МТК напруги (ліворуч) та зовнішнього магнетного поля (праворуч).

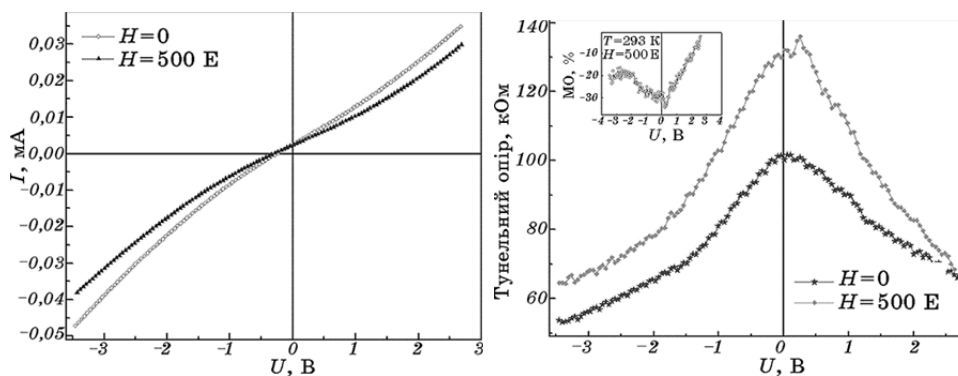


Рис. 9. Вплив магнетного поля на ВАХ (ліворуч) та тунельний опір (праворуч) та магнетоопір (вставка праворуч) МТК-2 $\text{Fe}_2\text{MnGa}/\text{MgO}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$.

лів, яка виникає між електродами МТК та електродами вимірювальної системи. Величина ТМО МТК-2 $\text{Fe}_2\text{MnGa}/\text{MgO}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ значно залежить від прикладеної до МТК напруги і складає за кімнатної температури 5–25% в зовнішньому магнетному полі $H = 500$ Е (див. рис. 9).

Одержані значення величини ТМО МТК на основі СГ Fe_2MnGa , на нашу думку, є достатніми для того, щоб такі МТК знайшли практичне застосування як сенсори магнетного поля. Для одержання більших величини ТМО бажано використовувати плівки СГ Fe_2MnGa з високим ступенем атомного порядку.

Автори вдячні А. О. Краковному за визначення ступеня спінової поляризації електронів провідності в плівках стопу Гойслера Fe_2MnGa .

Дану роботу було виконано за підтримки проекту 2/14-Д Державної цільової науково-технічної програми «Нанотехнології та наноматеріали» на 2010–2014 роки.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. M. Julliere, *Phys. Lett.*, **54A**, 225 (1975).
2. T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.*, **139**: L231 (1995).
3. J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3273 (1995).
4. I. Galanakis and Ph. Mavropoulos, *J. Phys.: Condensed Matter*, **19**: 315213 (2007).
5. N. Tezuka, N. Ikeda, S. Sugimoto, and K. Inomata, *Appl. Phys. Lett.*, **89**: 252508 (2006).
6. Z. Gercsi, A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi, K. Hono, M. Kikuchi, N. Tezuka, and K. Inomata, *Appl. Phys. Lett.*, **89**: 082512 (2006).

7. Y. Sakuraba, J. Nakata, M. Oogane, Y. Ando, H. Kato, A. Sakuma, T. Miyazaki, and H. Kubota, *Appl. Phys. Lett.*, **88**: 022503 (2006).
8. A. T. Zayak, P. Entel, K. M. Rabe, W. A. Adeagbo, and M. Acet, *Phys. Rev. B*, **72**: 054113 (2005).
9. Y. V. Kudryavtsev, N. V. Uvarov, V. N. Iermolenko, I. N. Glavatskij, and J. Dubowik, *Acta Mater.*, **60**: 4780 (2012).
10. W. Zhu, E. K. Liu, L. Feng, X. D. Tang, J. L. Chen, G. H. Wu et al., *Appl. Phys. Lett.*, **95**: 222512 (2009).
11. P. Blaha, K. Schwarz, G. K. H. Madsen, D. Kvasnicka, and J. Luitz, *WIEN2k, An Augmented Plane Wave + Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties* (Wien, Austria: Karl-Heinz Schwarz Techn. Universitat Wien: 2001).
12. N. V. Volkov, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*, **182**, No. 3: 263 (2012) (in Russian).
13. J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.*, **34**: 238 (1963).