



AKADEMIA GÓRNICZO-HUTNICZA IM. STANISŁAWA STASZICA W KRAKOWIE

DZIEDZINA NAUK INŻYNIERYJNO-TECHNICZNYCH
DYSCYPLINA AUTOMATYKA, ELEKTRONIKA I ELEKTROTECHNIKA

ROZPRAWA DOKTORSKA

Elementy elektroniki spinowej: magnetyczne złącza tunelowe oraz heterostruktury spinowego efektu Halla metal ciężki - ferromagnetyk

Autor: Monika Joanna Cecot

Promotor rozprawy: prof. dr hab. Tomasz Stobiecki
Promotor pomocniczy: dr hab. inż. Witold Skowroński

Praca wykonana: Akademia Górniczo-Hutnicza im. Stanisława Staszica w
Krakowie
Wydział Informatyki, Elektroniki i Telekomunikacji
Instytut Elektroniki

Kraków, 2022

SPIS TREŚCI

Streszczenie	iii
Podziękowania	vii
Spis publikacji	ix
Wykaz skrótów	x
1 WPROWADZENIE	1
2 METODY EKSPERYMENTALNE	3
2.1 Nanoszenie warstw	3
2.2 Charakteryzacja strukturalna	4
2.2.1 Dyfrakcja rentgenowska	4
2.2.2 Mikroskopia sił atomowych	5
2.2.3 Transmisyjna mikroskopia elektronowa	6
2.3 Magnetometria: magnetometr wibracyjny, magnetooptyczny mikroskop Kerra	7
2.4 Metody detekcji dynamiki namagnesowania	7
2.5 Nanostrukturyzacja	9
2.5.1 Nanostrukturyzacja układów metal ciężki/ferromagnetyk/MgO: $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$	10
2.5.2 Nanostrukturyzacja magnetycznych złączy tunelowych	12
3 MAGNETYCZNE ZŁĄCZA TUNELOWE	14
3.1 Parametry złącz MTJ jako podstawowych komórek pamięci MRAM	14
3.2 Wpływ warstw buforowych na właściwości złącz MTJ	19
3.3 Podsumowanie badań magnetycznych złączy tunelowych	35
4 SPINOWY EFEKT HALLA W UKŁADACH METAL CIĘŻKI/FERROMAGNETYK	36
4.1 Dynamika magnetyzacji wzbudzona oddziaływaniem spinowo-orbitalnym	37
4.2 Metoda harmoniczných do wyznaczenia pól efektywnych DL i FL	39
4.3 Zależność temperaturowa spinowego efektu Halla w układzie $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$	42
4.4 Wpływ efektów interfejsowych na zależność temperaturową spinowego efektu Halla w układzie $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$	42
4.5 Podsumowanie badań heterostruktur spinowego efektu Halla	61
5 PODSUMOWANIE	62
6 ZAŁĄCZNIK	64

STRESZCZENIE

Elementy elektroniki spinowej mogą być miniaturyzowane do rozmiarów nanometrowych przy jednoczesnym zwiększeniu szybkości przetwarzania informacji i zmniejszeniu pobieranej energii przez wykorzystujący je układ scalony. Jest to możliwe dzięki wykorzystaniu generowanych w cienkich warstwach prądów spinowych, których momenty siły sterują wektorem magnetyzacji warstwy ferromagnetycznej prowadząc do jego precesji bądź zmiany kierunku. W przypadku pamięci operacyjnych [MRAM](#) i twardych dysków zmiana kierunku wiąże się z zapisem informacji. Przełączenie zewnętrznym polem magnetycznym jest najprostszym przykładem manipulacji wektorem magnetyzacji, jednak z punktu widzenia zastosowania w energooszczędnych pamięciach magnetycznych o dużej pojemności zupełnie niepraktycznym. Stąd duże zainteresowanie efektami indukowanego prądem przełączenia magnetyzacji.

Pierwszym omawianym w pracy efektem jest spinowy transfer momentu siły ([STT](#)) wykorzystywany w magnetycznych złączach tunelowych ([MTJ](#)). Pamięci magnetyczne o swobodnym dostępie [MRAM](#) oparte o [MTJ-STT](#), choć są już dostępne w komercyjnej sprzedaży, wymagają dalszych badań, które umożliwiłyby zwiększenie niezawodności i pojemności.

Drugim efektem jest spinowo-orbitalny moment siły pochodzący z separacji kierunkowej prądu ładunkowego i spinowego. Ten efekt zachodzi w heterostrukturach spinowego efektu Halla składających się z ferromagnetyka i niemagnetycznej warstwy metalu ciężkiego wykazującego sprzężenie spin-orbita.

Praca podzielona jest na dwie główne części w skład których wchodzi: wprowadzenie teoretyczne, dwie publikacje oraz podsumowanie przeprowadzonych badań. W części pierwszej prezentuję badania wpływu różnych warstw buforowych (warstw oddzielających podłoże od warstw aktywnych magnetycznie), w szczególności Ta , $Ta/CuN/Ta$, oraz $Ta/Ru/Ta$ na parametry magnetyczne dolnej elektrody $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ magnetycznego złącza tunelowego jak i na kompletne złącze $Fe_{60}Co_{20}B_{20}/MgO/Fe_{60}Co_{20}B_{20}$. W tym celu wykorzystywane są techniki charakteryzacji strukturalnej oparte o badania dyfrakcji rentgenowskiej, topografię powierzchni metodą mikroskopii sił atomowych, pomiary tłumienia precesji magnetyzacji, pomiary parametrów przełączania. W obu przypadkach wykazano istotny wpływ warstw buforowych na parametry magnetyczne warstwy ferromagnetycznej. Silna tekstura strukturalna oraz szorstkość topograficzna powierzchni korelują ze zwiększonym polem anizotropii. Z kolei dla układów z buforami polikrystalicznymi i amorficznymi o mniejszych szorstkościach otrzymano niższe wartości tłumienia precesji magnetyzacji. W obrębie badanych próbek kompletnych złącz, prąd przełączania i stabilność termiczna różniły się między układami o różnych warstwach buforowych odpowiednio o 20% i 40% na korzyść bufora o mniejszym stopniu uteksturowania.

Druga część pracy przedstawia wyniki badań heterostruktur spinowego efektu Halla w układach: $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ o różnych grubościach metali ciężkich W i Ta . Przeprowadzono systematyczne badania temperaturowe spinowego efektu Halla w oparciu o pomiar harmonicznego napięcia anomального efektu Halla. Dla układu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ uzyskano wysoką wartość kąta Halla, będącego parametrem konwersji prądu ładunkowego na prąd spinowy, sięgającą nawet 0,55 w niskich temperaturach i 0,25 w temperaturze pokojowej.

Oba układy zostały poddane dokładnym badaniom strukturalnym ze szczególną uwagą poświęconą obszarom styku metalu ciężkiego i ferromagnetyka. Wyniki badań przeprowadzonych przy wykorzystaniu wysokorozdzielczej transmisyjnej mikroskopii elektronowej wykazały dyfuzyjne wymieszanie na interfejsie. Zamodelowana warstwa interfejsowa została zaadaptowana do teoretycznego modelu transportu spinowego w celu wyznaczenia w funkcji temperatury efektywnego spinowego kąta Halla, osobno dla metalu ciężkiego i warstwy interfejsowej. Co ciekawe wartość efektywnego kąta Halla dla Ta utrzymuje się na poziomie 0,2 niezależnie od zmian temperatury, podczas gdy efektywność dla warstwy interfejsowej silnie zależy od temperatury.

Ponadto omówiłam technologie wytwarzania kompletnej komórki pamięci [MTJ](#) i heterostruktur spinowego efektu Halla metodą litografii elektronowej. Również obszernie przedyskutowałam metody elektrycznej detekcji dynamiki magnetyzacji oraz metodę wyznaczania spinowego kąta Halla poprzez pomiar harmonicznego napięcia anomального efektu Halla.

ABSTRACT

Spin electronics components can be miniaturized up to nanometer dimensions with energy consumption reduction and increasing speed of data processing. Ferromagnetic layer magnetization vector is tilted from its equilibrium position due to spin current generated in thin layers leading to radio frequency precession or magnetization vector direction switching. In the case of large-capacity memories, switching the magnetization with an external magnetic field is infeasible. This is the reason of the growing interest of current induced effects capable of magnetization switching without any external magnetic field support.

The first effect presented in thesis below is spin transfer torque (STT) used in tunnel magnetic junction. Despite the fact that non-volatile magnetic random access memories MRAMs utilizing STT effect are already in commercial sale, they need a further research to increase reliability and capacity.

The second covered effect is spin-orbit torque (SOT) observed in thin heterostructures composed of heavy metal and ferromagnet HM/FM. Spin Hall effect (SHE) taking place in the non-magnetic heavy metal layer causes direction separation of spin and charge currents.

This thesis is divided in two parts preceded by introduction and description of the measurements methods used to structural and magnetic characterization. Each part consists of theoretical introduction, two publications and summary. In the first part I discuss research on the buffer layers: Ta , $Ta/CuN/Ta$ and $Ta/Ru/Ta$, influence on the magnetic parameters of the magnetic tunnel junction bottom electrode $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ and on the full stack of the MTJ $Fe_{60}Co_{20}B_{20}/MgO/Fe_{60}Co_{20}B_{20}$. For this purpose, structural characterization research utilized X ray-diffraction methods, atomic force microscopy, measurements of the magnetization precession damping and switching parameters has been carried out. In both cases, a significant influence of the buffer layers (layers separating the substrate from the magnetically active layers) on the magnetic parameters of the ferromagnetic layer was demonstrated. Higher texture induces surface topological roughnesses which correlate with anisotropy field increase. In turn smoother polycrystalline and amorphous buffers give lower values of the magnetization precession damping parameter. Within the complete MTJ stack, the switching current density and thermal stability factor differed between systems with different buffer layers by 20% and 40% respectively, in favour of the buffer with a lower atomic structure order.

Second part contains research on spin Hall effect heterostructures: $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ and $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ with different buffers thickness. Systematic temperature measurements of the spin Hall effect were done by means of harmonic anomalous Hall (AHE) voltage measurements. For $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ achieved a high value of spin Hall angle which is the charge current to spin current conversion parameter. For low temperature effective spin Hall angle has reached 0.55 and 0.25 at room temperature.

Both systems went thorough structural investigations with particular attention to the interfaces between heavy metal and ferromagnetic. The results of the high-resolution transmission electron microscopy showed strong mixing on the interface, so the theoretical model of spin diffusion transport was adapted in order to determine the effective spin Hall angle separately for heavy metal and interface layer as a function of temperature. Interestingly, the value of the effective Hall angle for Ta remains at 0.2 regardless of temperature changes, while the efficiency for the interface layer strongly depends on the temperature.

Moreover, the complete memory cell [MTJ](#) and the spin Hall effect devices fabrication technology by means of electron lithography were discussed in details. The methods of electrical detection of magnetization dynamics were also discussed extensively, including the method of determining the spin Hall angle by measuring the Hall voltage harmonics.

PODZIĘKOWANIA

Przede wszystkim pragnę serdecznie podziękować mojemu promotorowi prof. dr. hab. Tomaszowi Stobieckiemu, za wsparcie naukowe, pomoc i wyrozumiałość w trakcie powstawania pracy. Dziękuję za wszystkie cenne rady i dyskusje, które wprowadzały mnie w świat elektroniki spinowej jednocześnie kształtując dojrzałość naukową.

Chciałam również wyrazić głęboką wdzięczność promotorowi pomocniczemu dr. hab. inż. Witoldowi Skowrońskiemu, za wprowadzenie w świat eksperymentów i nanostrukturyzacji. Dziękuję za przekazaną wiedzę i inspirację do prowadzenia badań naukowych.

Składam serdeczne podziękowania dla wszystkich moich współautorów publikacji, szczególnie dla prof. dr. hab. Józefa Barnasia, dr. Łukasza Karwackiego, dr. inż. Jerzego Wrony, dr. hab. inż. Jarosława Kanaka, dr. inż. Sławomira Ziętka, dr. inż. Marka Frankowskiego i dr. inż. Antoniego Żywczaka. Dziękuję za naukowe dyskusje i za dobrą współpracę.

Pragnę złożyć podziękowania dla wszystkich współpracowników naszego zespołu Elektroniki Spinowej, szczególnie dla mgr. inż. Piotra Rzeszuta, dr. inż. Jakuba Chęcińskiego, dr. inż. Piotra Ogrodnika, dr. hab. Macieja Czapkiewicza, dr. hab. inż. Piotra Wiśniowskiego, mgr. Wiesława Powroźnika i dr. inż. Zbigniewa Szklarskiego. Dziękuję za współpracę i codzienną życzliwość.

Dziękuję mojej rodzinie i przyjaciołom, szczególnie Kasi Chachłowskiej, która wieloma rozmowami z pogranicza nauki i sztuki stale podsyca we mnie ogień pasji i ciekawość świata. Dziękuję Adamowi Szustakowi OP za pomoc przy ustalaniu priorytetów.

W końcu dziękuję mojemu kochanemu mężowi Wojtkowi, którego wsparcie i cierpliwość są na wagę złota.

Poniższą pracę dedykuję moim dzieciom, by spełniały marzenia.

Praca częściowo powstała w wyniku realizacji projektów badawczych finansowanych ze środków Narodowego Centrum Nauki:

- "*Fabrication and investigation of spintronics nanostructures in terms of Dynamics Induced by Spin Currents originating from spin-Orbit interaction (DISCO)*" - projekt SONATA 9, numer UMO-2015/17/D/ST3/00500.
- "*Electric-field controlled spintronic devices (E-CONTROL)*" - realizowany we współpracy polsko-fińskiej, międzynarodowy projekt HARMONIA, numer UMO-2012/04/M/ST7/00799.

Praca była także częściowo finansowana ze środków projektu "*Nanoscale spin torques Devices for spin electronics (NANOSPIN)*", numer PSB-045/2010, współfinansowanego przez Szwajcarię w ramach szwajcarskiego programu współpracy z nowymi krajami członkowskimi Unii Europejskiej.

Nanostrukturyzacja została przeprowadzona dzięki infrastrukturze badawczej Akademickiego Centrum Materiałów i Nanotechnologii AGH.

- [P1] **M. Cecot**, J. Wrona, J. Kanak, S. Ziętek, W. Skowroński, A. Żywczak, M. Czapkiewicz and T. Stobiecki, 'Magnetic properties and magnetization dynamics of magnetic tunnel junction bottom electrode with different buffer layers', *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 51, no. 11, pp. 1–4, 2015.
DOI: [10.1109/TMAG.2015.2440561](https://doi.org/10.1109/TMAG.2015.2440561)
- [P2] M. Frankowski, A. Żywczak, M. Czapkiewicz, S. Ziętek, J. Kanak, **M. Banasik**, W. Powroźnik, W. Skowroński, J. Chęciński, J. Wrona et al., 'Buffer influence on magnetic dead layer, critical current, and thermal stability in magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy', *Journal of Applied Physics*, vol. 117, no. 22, p. 223 908, 2015.
DOI: [10.1063/1.4922499](https://doi.org/10.1063/1.4922499)
- [P3] W. Skowroński, **M. Cecot**, J. Kanak, S. Ziętek, T. Stobiecki, L. Yao, S. Van Dijken, T. Nozaki, K. Yakushiji and S. Yuasa, 'Temperature dependence of spin-orbit torques in W/CoFeB bilayers', *Applied Physics Letters*, vol. 109, no. 6, p. 062 407, 2016.
DOI: [10.1063/1.4960793](https://doi.org/10.1063/1.4960793)
- [P4] **M. Cecot**, Ł. Karwacki, W. Skowroński, J. Kanak, J. Wrona, A. Żywczak, L. Yao, S. van Dijken, J. Barnaś, T. Stobiecki. Influence of intermixing at the Ta/CoFeB interface on spin Hall angle in Ta/CoFeB/MgO heterostructures. *Scientific reports*, 7(1), 1-11, 2017.
DOI: [10.1038/s41598-017-00994-z](https://doi.org/10.1038/s41598-017-00994-z)

Załącznik:

- [A1] S. Ziętek, **M. Cecot**, W. Skowroński and T. Stobiecki, 'Magnetization dynamics of NiFe film and anisotropic magnetoresistance device: Comparison of microwave detection methods', *21st International Conference on Microwave, Radar and Wireless Communications (MIKON)*, IEEE, pp. 1–4, 2016.
DOI: [10.1109/MIKON.2016.7492130](https://doi.org/10.1109/MIKON.2016.7492130)

WYKAZ SKRÓTÓW

ac	alternative current
ACMiN	Akademickie Centrum Materiałów i Nanotechnologii
AFM	atomic force microscopy
AHE	anomalous Hall effect
AP	antiparallel
CMOS	complementary metal-oxide semiconductor
CPW	coplanar waveguide
dc	direct current
DOS	density of states
DUT	device under test
FL	free layer
FM	ferromagnetic
FMR	ferromagnetic resonance
FWHM	full width at half maximum
G-S-G	ground-signal-ground configuration
GMR	giant magnetoresistance
HAADF	high-angle annular dark-field
HM	heavy metal
HM/FM	heavy metal / ferromagnetic
HRTEM	high-resolution transmission electron microscopy
LDD	linear dynamic deposition
LLG	Landau-Lifshitz-Gilbert equation
MRAM	magnetoresistive random access memory
MTJ	magnetic tunnel junction
MTJ-STT	magnetic tunnel junction - spin transfer torque
P	parallel
PHE	planar Hall effect
PIMM	pulse inductive microwave magnetometer
PMA	perpendicular magnetic anisotropy

PSPD position-sensitive photodetector
PSV pseudo spin valve
RAM random access memory
RA resistance area product
RF radio frequency
RMS root mean square
SEM scanning electron microscope
SHE spin Hall effect
SMA SubMiniature version A
SML spin memory loss
SNA-FMR scalar network analysis ferromagnetic resonance
SOT spin orbit torque
SOT-MRAM spin orbit torque - magnetoresistive random access memory
SRAM static random access memory
STEM scanning transmission electron microscopy
STT spin transfer torque
STT-MRAM spin transfer torque - magnetoresistive random access memory
TMR tunneling magnetoresistance
VSM vibrating sample magnetometer
XRD x-ray diffraction
XRR x-ray reflectivity

WPROWADZENIE

Niniejsza praca dyskutuje wyniki badań magnetycznych złącz tunelowych i heterostruktur spinowego efektu Halla, które znajdują zastosowanie w magnetycznych pamięciach o dostępie swobodnym [RAM](#), nazwanych ze względu na wykorzystywany fizyczny efekt, odpowiednio [STT-MRAM](#) [1, 2] i [SOT-MRAM](#) [3, 4]. Przeprowadzone badania koncentrują się na: określeniu wpływu warstw buforowych (warstw spodnich, oddzielających podłoże Si/SiO_2 od aktywnych magnetycznie warstw) na parametry magnetyczne i strukturalne warstw złącza tunelowego, wyznaczeniu zależności temperaturowych spinowego kąta Halla oraz wpływu wymieszania na styku warstw metal ciężki/ferromagnetyk.

Urządzenia elektroniki spinowej (nazywanej również spintroniką) mają na celu doprowadzenie do zmniejszenia energii zużywanej przez wbudowane układy pamięci, umożliwienie dalszej miniaturyzacji oraz zwiększenia wydajności układów scalonych wytwarzanych w technologii [CMOS](#). Głównymi atutami są: nieulotność zapisu (*non-volatile*) magnetycznych pamięci [MRAM](#), szybkość przetwarzania, skalowalność oraz wysoka wytrzymałość (*endurance processing*). Wiodącymi kierunkami badań elektroniki spinowej są głowice odczytowe dysków twardych, pamięci magnetyczne (szczególnie pamięci o dostępie swobodnym), czujniki pola magnetycznego [5] oraz urządzenia mikrofalowe, przede wszystkim detektory mikrofalowe i oscylatory - *spin torque oscillator* [6–8].

Głowice odczytowe dysków twardych stanowią pierwszą skomercjalizowaną i powszechnie wykorzystywaną grupę urządzeń spintronicznych. Choć nie stanowią one tematu niniejszej rozprawy, to warto zaznaczyć, że dzięki wykorzystaniu efektu gigantycznego magnetooporu [GMR](#) firma IBM mogła zwiększyć gęstość zapisu na dyskach twardych z funkcjonujących w roku 1956 $2kbit/in^2$ do $1Gbit/in^2$ w roku 1997. W obecnie produkowanych głowicach do odczytu wykorzystuje się efekt tunelowej magnetorezystancji [TMR](#) co pomogło osiągać gęstości zapisu ponad $600Gbit/in^2$.

Podstawowa komórka pamięci [STT-MRAM](#) to cylindryczny układ cienkich warstw metalu (*pillar*). Poszczególne warstwy nanoszone są na utleniony wafel krzemowy i mają grubość od maksymalnie kilkudziesięciu nanometrów do ułamków nanometrów. Podstawowymi warstwami złącza tunelowego są dwie cienkie warstwy ferromagnetyka rozdzielone niemagnetyczną warstwą izolatora stanowiącą barierę tunelową. Spolaryzowane spinowo w pierwszej warstwie ferromagnetycznej elektrony tunelują do drugiej warstwy ferromagnetycznej powodując ultra szybkie ($10^{-9}s$) przełączenie magnetyzacji. Zmianom względnego kierunku namagnesowań warstw ferromagnetycznych towarzyszy zmiana rezystancji, umożliwiającą odczyt informacji przy niewielkim prądzie przepływającym przez złącze. Wyzwaniem jest zapis informacji, ponieważ duża gęstość prądu oznacza ryzyko przebi-

cia bariery tunelowej, natomiast zaprojektowanie złącza pod zbyt małe gęstości prądu prowadzi do jego niestabilności termicznej, dlatego optymalizacja grubości i gładkości powierzchniowej bariery tunelowej to podstawowy problem w technologii złącz tunelowych wytwarzanych na skalę przemysłową. Jak się jednak okazuje, wpływ na parametry złącza mają nie tylko warstwy aktywne magnetycznie wchodzące w jego skład, ale także warstwy leżące pod nim tzw. warstwy buforowe. Zmieniając materiał, grubość, parametry wygrzewania i osadzania warstw buforowych można wpływać na parametry magnetycznego złącza tunelowego, między innymi na pole anizotropii, namagnesowanie nasycenia czy tłumienie precesji namagnesowania. Dzieje się tak dlatego, że przy warstwach o grubościach od kilku do kilkunastu warstw atomowych znaczenie mają nawet niewielkie szorstkości, tekstura krystalograficzna, domieszkowanie czy wymieszanie na styku poszczególnych warstw.

Prądy spinowe mogą być generowane nie tylko w warstwach magnetycznych, ale także w niemagnetycznych metalach ciężkich wykazujących spinowy efekt Halla [9, 10]. Spinowo-orbitalne rozpraszanie elektronów prowadzi do poprzecznej do kierunku przepływu prądu ładunkowego akumulacji spinów, którą wykorzystuje się do wzbudzenia w warstwie ferromagnetyka precesji wektora namagnesowania lub zmiany jego zwrotu. W ten sposób można wyeliminować z klasycznej pamięci **MRAM** konieczność przepływu prądu przez złącze tunelowe w trakcie zapisu informacji zastępując go planarnym prądem zapisu pochodzącym od oddziaływania spinowo-orbitalnego w warstwie metalu ciężkiego [3, 4]. Wykorzystanie efektu polaryzacji spinowo-orbitalnej w pamięciach **MRAM** jest wciąż na etapie badań, które w dużym stopniu koncentrują się na uzyskaniu jak największego współczynnika tzw. spinowego kąta Halla będącego stosunkiem gęstości prądu spinowego do gęstości prądu ładunkowego.

Poniższa dysertacja składa się z pięciu rozdziałów. Zaraz za niniejszym *Wprowadzeniem* znajduje się rozdział 2. zawierający zwięzły opis zastosowanych metod eksperymentalnych. W kolejnych podrozdziałach omówiłam parametry napyłania badanych warstw (podrozdział 2.1), metody charakteryzacji strukturalnej cienkich warstw ciągłych (podrozdział 2.2), metody detekcji dynamiki namagnesowania (podrozdział 2.4), pomiarów magnetometrycznych (podrozdział 2.3) oraz wykorzystaną technologię nanostrukturyzacji (podrozdział 2.5). Rozdział 3. prezentuje najistotniejsze zagadnienia dotyczące magnetycznych złącz tunelowych oraz opracowanie badań wpływu warstw buforowych na parametry ciągłej warstwy ferromagnetycznej wchodzącej w skład **MTJ** (publikacje [P1] i [P2]) jak i wpływu na pełne, strukturyzowane złącze **MTJ** (publikacja [P2]). Rozdział 4. składa się z omówienia najważniejszych wyników dotyczących spinowego efektu Halla i sprzężenia spin-orbita, ścisłego opisu metod pomiaru efektywności konwersji prądu ładunkowego na prąd spinowy oraz opracowania systematycznych wyników badań układów: metal ciężki/ferromagnetyk/MgO zawartych w publikacjach [P3] i [P4] dotyczących odpowiednio układów $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$.

METODY EKSPERYMENTALNE

W cyklu publikacji, wchodzących w skład niniejszej dysertacji, wykorzystałam szereg metod pomiarowych koniecznych do charakteryzacji strukturalnej i magnetycznej warstw ciągłych. Naniesione układy wielowarstwowe, jeszcze przed ich nanostrukturyzacją do postaci aplikacyjnego elementu spintronicznego, przechodzą systematyczne badania strukturalne mające na celu wyznaczenie rzeczywistych grubości poszczególnych warstw i ustalenie struktury krystalicznej (analiza fazowa, rozmiar krystalitów, tekstura). Jest to ważny etap ponieważ niewielka zmiana grubości lub struktury może znacząco wpłynąć na właściwości elektryczne i magnetyczne badanych próbek.

Pomiary dyfrakcji rentgenowskiej zostały wykonane w akredytowanym Laboratorium Badań Strukturalnych¹. Badania szorstkości atomowej powierzchni oraz obserwację struktur domenowych przeprowadziłam w laboratorium SpinLab i laboratorium Magnetoop-tycznym. Pomiary mikroskopem elektronowym zostały, w ramach współpracy, wykonane w laboratorium NanoSpin, Aalto University School of Science w Finlandii², natomiast temperaturowe pomiary namagnesowania wykonano w Akademickim Centrum Materiałów i Nanotechnologii³ (ACMiN) AGH. Strukturyzacja złącz tunelowych oraz wielowarstw bufor/*HM/FM*/MgO została wykonana w Laboratorium Ablacji Laserowej i Nanolitografii *ACMiN* AGH.

Pomiary spinowego kąta Halla i dynamiki magnetyzacji wzbudzonej torkiem spinowo-orbitanym przeprowadziłam w laboratorium SpinLab na stanowiskach do pomiarów mikrofalowych, wyniki zostały przedstawione w rozdziale 4.

2.1 NANOSZENIE WARSTW

Wyniki przedstawione w pracach [P1], [P2], [P3] i [P4] zostały uzyskane na układach wielowarstwowych przekazanych do badań przez laboratoria specjalizujące się w technologii nanoszenia metodami katodowego rozpylenia jonowego (popularnie nazywanego z języka angielskiego *sputteringiem*).

W laboratorium firmy Singulus Technologies AG⁴ układy wielowarstwe magnetycznych złącz tunelowych były nanoszone metodą rozpylania jonowego w urządzeniu Timaris Physical Vapor Deposition Cluster Tool System na termicznie utlenionym podłożu

1 <http://www.lbs.agh.edu.pl/>

2 <https://www.aalto.fi/en/departement-of-applied-physics/nanomagnetism-and-spintronics-nanospin>

3 <http://acmin.agh.edu.pl/>

4 <https://www.singulus.de>

Si. Warstwy buforowe i warstwy ferromagnetyczne $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$ oraz $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ były nanoszone podczas napyłania magnetronowego [dc](#), pod ciśnieniem argonu $2.7 \cdot 10^{-3} mbar$. Warstwa $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$ o zmiennej grubości (w postaci klina) została naniesiona metodą [LDD](#)⁵. Warstwy $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$ i $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ po naniesieniu wykazywały anizotropię jednoosiową leżącą w płaszczyźnie próbki. W celu uzyskania anizotropii prostopadłej, próbki wygrzewano w temperaturze $330^{\circ}C$ przez 20 min (przy ciśnieniu w komorze rzędu $5 \cdot 10^{-6} mbar$). Warstwa MgO stanowiąca barierę tunelową była nanoszona w atmosferze argonu, w trybie [RF](#), bezpośrednio z polikrystalicznego targetu MgO .

Próbki do badań spinowego efektu Halla w układzie $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ zostały naniesione metodą katodowego rozpylania jonowego w Japonii, w National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba⁶.

2.2 CHARAKTERYZACJA STRUKTURALNA

W przypadku układów cienkowarstwowych niezwykle istotny wpływ na właściwości danej warstwy ma jej struktura krystaliczna. W zależności od parametrów osadzania, rodzaju materiału, grubości warstwy, rodzaju podłoża oraz jego temperatury w czasie procesu nanoszenia a także struktury sąsiadujących warstw, pojedyncza warstwa może być amorficzna (charakteryzuje się krótkozasięgowym uporządkowaniem atomowym) lub polikrystaliczna (o długo zasięgowym uporządkowaniu atomowym). Warstwy nanoszone poprzez rozpylanie jonowe, metoda zastosowana w niniejszej pracy, są polikrystaliczne. Jak pokazują wyniki badań, systematyczna analiza strukturalna pozwala na zoptymalizowanie układów m.in. pod kątem współczynnika [TMR](#) [[11–13](#)] i spinowego efektu Halla [[14, 15](#)]. W ramach badań strukturalnych wykorzystano pomiary dyfrakcji promieniowania rentgenowskiego [XRD](#), rentgenowską metodę reflektometryczną [XRR](#), mikroskop sił atomowych [AFM](#) oraz wysoko rozdzielczą mikroskopię elektronową [HRTEM](#).

2.2.1 Dyfrakcja rentgenowska

Rzeczywista grubość poszczególnych warstw, ich struktura oraz faza zostały wyznaczone za pomocą dyfrakcji promieniowania rentgenowskiego [XRD](#). Do pomiarów [XRD](#) zastosowano wysokiej rozdzielczości dyfraktometr X'Pert-MPD z anodą Cu . Dyfraktometr wyposażony w stolik z kołem Eulera umożliwia obrót próbki wokół kierunku prostopadłego do jej powierzchni oraz odchylenie próbki od poziomu do pozycji pionowej.

Metoda [XRD](#) $\theta - 2\theta$ tzw. zwierciadlanego odbicia opiera się na interakcji promieniowania rentgenowskiego z chmurami elektronowymi atomów badanego materiału. Na płaszczyznach sieciowych wiązka promieniowania X ulega dyfrakcji tylko dla określonych kątów padania zgodnie z warunkiem Braggów:

$$n\lambda = 2d_{hkl}\sin\theta_{hkl} \quad (2.1)$$

⁵ https://www.singulus.de/uploads/tx_pspublications/timaris_april2012.pdf

⁶ https://unit.aist.go.jp/src/cie/en_intro/en_intro_outline.html

gdzie: n - rząd ugięcia; λ - długość fali promieniowania rentgenowskiego; d_{hkl} - odległość międzypłaszczyznowa; θ_{hkl} - kąt odbłyску, czyli kąt między wiązką promieni padających, a płaszczyzną hkl kryształu. Przy zadanej długości fali i kącie padania promieniowania wzmocnienie interferencyjne nastąpi jedynie dla ściśle określonych kątów odbicia. Na dyfraktogramie zarejestrowane są refleksy dyfrakcyjne charakterystyczne dla danej rodziny płaszczyzn sieciowych [16]. Przykładowe widma dyfrakcyjne analizy fazowej z pomiaru $\theta - 2\theta$ dla układów wielowarstwowych MTJ są na wykresach: Fig. 2 [P1] i Fig. 1 [P2], dla układów HM/FM Fig. 1a i b [P3] i Fig. 1 [P4], odpowiednio dla $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$.

Z kolei stopień stekstrowania danej warstwy można określić za pomocą pomiaru *rocking curve* - tzw. krzywa kołysania. Źródło promieniowania rentgenowskiego oraz detektor ustawiane są tak by kąt pomiędzy wiązką padającą a odbitą spełniał równanie Braggów dla wybranej rodziny płaszczyzn. Następnie próbka jest obracana o niewielkie kąty (ω). Szerokość otrzymanego piksu, będącego zależnością intensywności promieniowania od kąta wychylenia próbki, świadczy o stopniu stekstrowania badanej warstwy. Im mniejsza szerokość połówkowa *FWHM* tym wyższa tekstura [17]. Wykresy przedstawiające wyniki pomiarów *rocking curve* dla układów MTJ przedstawione są na wykresach Fig. 3 [P1] i Fig. 3 [P2].

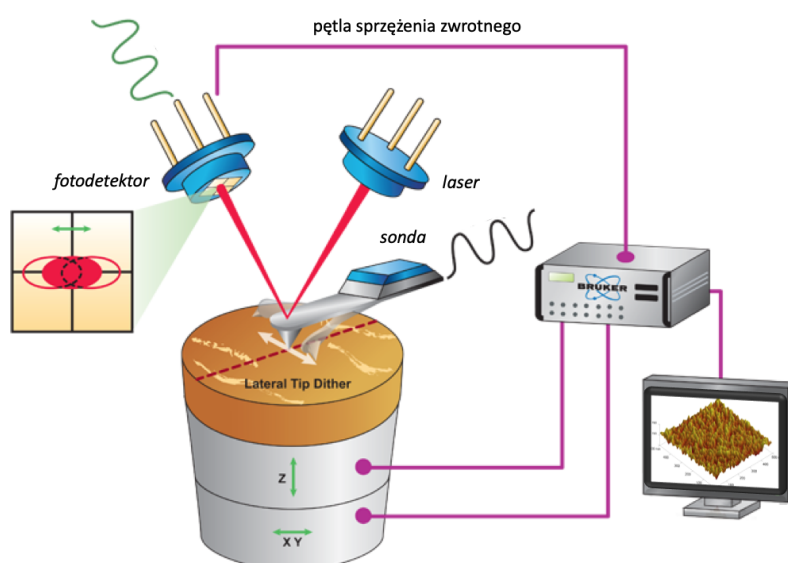
Dodatkowo, przestrzenny rozkład kierunków krystalograficznych był wyznaczany poprzez pomiar figur biegunowych, przykładowe figury dla układów MTJ znajdują się na rysunku Fig. 2 [P2].

Powierzchniowo czuła, niskokątowa metoda krzywych reflektometrycznych *XRR* umożliwia wyznaczenie rzeczywistych grubości warstw oraz ich morfologie (szorstkości i wymieszanie obszarów interfejsowych). Promieniowanie odbite od powierzchni warstwy i interfejsów jest rejestrowane w funkcji kąta padania. Pomiary wykonywane są blisko kąta granicznego z użyciem zwierciadła ogniskującego. Przykładowe krzywe *XRR* i ich analiza są omówione w pracach [P3, P4], odpowiednio na Fig. 5 (c) i Fig. 2 (a).

2.2.2 Mikroskopia sił atomowych

Do pomiarów topografii powierzchni: badań nierówności powierzchni i określenia średniej wielkości kryształitów wykorzystałam mikroskop sił atomowych *AFM* MultiMode V firmy Veeco. Do pomiarów zastosowane zostały sondy NSG firmy NT-MDT o promieniu krzywizny równym 6 nm i stałej sprężystości równej około 11 N/m. Pomiary wykonywane były w trybie kontaktu przerywanego (*tapping-mode*).

Obrazowanie topografii za pomocą mikroskopu *AFM* możliwe jest dzięki oddziaływaniom sił van der Waalsa, występujących między atomami powierzchni próbki a atomami ostrza sondy (Rys. 2.1). Siły oddziaływania powodują ugięcia lub skrećenia belki, na której umiejscowione jest ostrze. Odbity od belki promień lasera pada na fotodetektor *PSPD*. Skaner piezoelektryczny umożliwia ruch próbki we wszystkich trzech płaszczyznach umożliwiając obrazowanie 3D z dokładnością do ułamka nanometra. Zważywszy na niewielkie różnice pomiędzy wartościami *RMS* dla poszczególnych próbek pomiary przepro-



Rys. 2.1: Schemat działania mikroskopu sił atomowych (*adaptacja rysunku*⁷).

wadzano w różnych obszarach próbki z dużą ilością powtórzeń co umożliwiło wykazanie utrzymujących się tendencji. Skany topografii powierzchni układów dolnej elektrody znajdują się w publikacjach [P1] na wykresie Fig. 5 oraz w pracy [P2] Fig. 4.

2.2.3 Transmisyjna mikroskopia elektronowa

Ponieważ wydajność spinowego efektu Halla silnie zależy do efektów interfejsowych na granicy **HM/FM** przeprowadzono badania interfejsów $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ metodami wyskorozdzielczej mikroskopii elektronowej. Badania te zostały przeprowadzone w ramach współpracy na Aalto University School of Science w Finlandii.

Do zobrazowania przekroju poprzecznego układu wielowarstw **HM/FM** wykorzystano transmisyjny mikroskop elektronowy JEOL 2200FS., działający w trybie wysokiej rozdzielczości **HRTEM**. W celu dokonania pomiaru **HRTEM** na próbkach **HM/FM** przygotowywane zostały przekroje poprzeczne [18]. Uzyskano obrazy w ciemnym polu **HAADF** [19], które charakteryzują się silną zmianą kontrastu pochodzącego od liczby atomowej Z na skutek wymieszania dyfuzyjnego materii sąsiadujących warstw. Silniejsza (w większym zakresie zmian grubości interfejsu $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$) zmiana kontrastu Z zachodzi w przypadku mieszania częściowo amorficznych warstw Ta (5 nm) i $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (1 nm) ([P4] Fig. 4b) niż polikrystalicznej warstwy Ta (15 nm) i amorficznej $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (1 nm) [P4] Fig. 4d). Wyniki przedstawiono w pracy [P4] na rysunkach Fig. 3 i Fig. 4, oraz w [P3] - Fig. 5 a, b.

Atomowe uporządkowania strukturalne na przekrojach poprzecznych **HRTEM** zostały porównane z profilami **XRD** $\theta - 2\theta$ Fig. 1a i b [P3] i Fig. 1 [P4], uzyskano bardzo dobrą zgodność analizy fazowej W i Ta z obu metod. Rozmyte profile Z -kontrastu po grubości

⁷ <https://www.bruker.com/en/products-and-solutions/microscopes/materials-afm/afm-modes/tr-mode.html>

przekroju poprzecznego na interfejsach $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ ([P3] Fig.5a) i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ ([P4] Fig.4b i d) w porównaniu do profili kontrastu $CoFeB/MgO$ wykazują wzajemne przedyskutowanie materii, szczególnie silne, w układzie $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$.

2.3 MAGNETOMETRIA: MAGNETOMETR WIBRACYJNY, MAGNETOOPTYCZNY MIKROSKOP KERRA

Pomiary namagnesowania spontanicznego, nasycenia oraz pętle histerezy namagnesowania w funkcji pola magnetycznego i temperatury (w zakresie od 100 K do 320 K), dla warstw ciągłych, zostały wykonane za pomocą magnetometru wibracyjnego **VSM**, typu 7407 firmy LakeShore. Przykładowe pętle histerezy namagnesowania w funkcji pola magnetycznego są na wykresach Fig.1c i d w pracy [P3] oraz Fig.5c w [P4]. Natomiast temperaturowe zależności spontanicznego namagnesowania, zmierzone w celu wyznaczenia temperatury Curie (T_c) warstw $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ naniesionych na różnej grubości warstwy buforowej Ta , przedstawione są na wykresie Fig.5b w pracy [P4].

Obserwację struktur domenowych, wraz z zapisem sekwencji obrazów w czasie rzeczywistym, przeprowadziłam za pomocą magnetoopptycznego mikroskopu Kerra (MOKE). Przykładowe wyniki przełączania domenowego magnetyzacji dolnej elektrody złącz **MTJ** prezentują zdjęcia z Fig. 6 [P2].

2.4 METODY DETEKCJI DYNAMIKI NAMAGNESOWANIA

Do detekcji dynamiki namagnesowania i wyznaczenia tłumienia precesji wykorzystane zostały następujące techniki mikrofalowe: szerokopasmowy rezonans mikrofalowy (*scalar network analysis ferromagnetic resonance* **SNA-FMR**), oraz pomiar indukowanych impulsem sygnałów gasnących *pulse inductive microwave magnetometry* (**PIMM**).

Do obu pomiarów wykorzystany został falowód koplanarny **CPW** na laminacie Duroid 6010.2LM-0250-1E PCB (Rys. 2.2 b). Laminat składa się z dielektryka o grubości $635\mu m$ (o przenikalności elektrycznej $\epsilon_r = 10.2 \pm 0.25$) pokrytego $35\mu m$ warstwą miedzi (Rys. 2.2 b). Falowód został zaprojektowany do pracy w szerokim zakresie częstotliwości (do 20 GHz), w konfiguracji **G-S-G**, przy $85\mu m$ szerokości linii sygnałowej oraz odległości od płaszczyzny uziemienia równej $100\mu m$ (wartości wyznaczone przy użyciu programu TXline⁸) (Rys. 2.2 d). Falowód podłączono do przewodów koncentrycznych za pomocą złączy **SMA**.

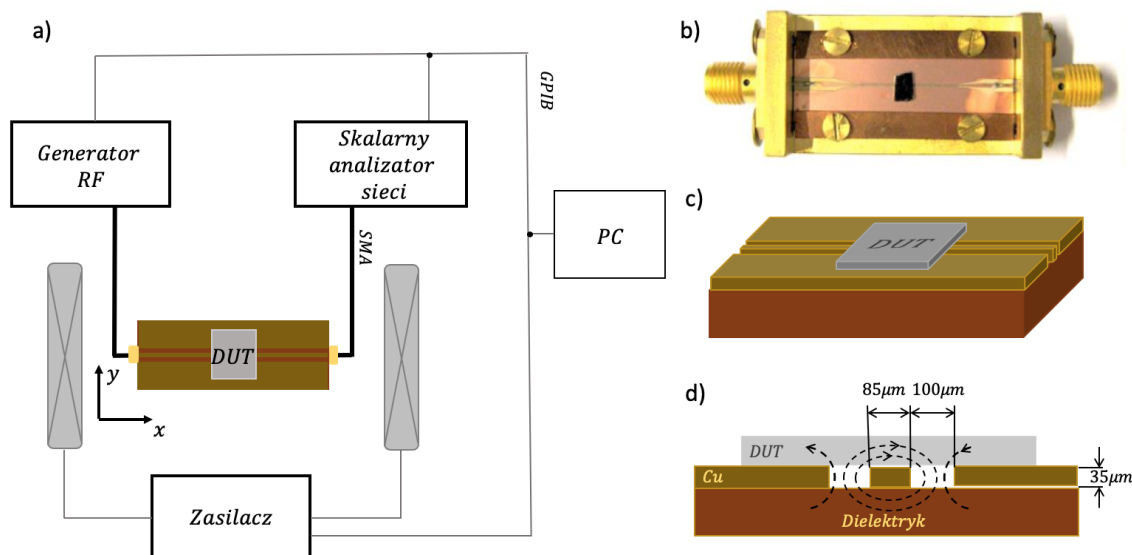
Szerokopasmowy rezonans ferromagnetyczny (**FMR**) badałam z wykorzystaniem skalarnego analizatora obwodów (Rys. 2.2 a). Generator sygnałów **RF** wymusza oscylacje wektora namagnesowania w warstwie ferromagnetycznej, podczas gdy analizator obwodów dokonuje detekcji mocy transmitowanej przez falowód koplanarny (Rys. 2.2 b). Wzbudzone kolejne mody rezonansowe **FMR** absorbują moc przy przemiataniu polem lub częstotliwością. Częstotliwość rezonansową w funkcji pola rezonansowego opisuje relacja dyspersji ([P1] Fig.6). Z dopasowania liniowego do szerokości linii rezonansowych ΔH dla

8 <https://www.awr.com/awr-software/options/tx-line>

kilku częstotliwości f ([P1] Fig.7 inset) można wyznaczyć parametr tłumienia Gilberta α [20]:

$$\Delta H = \Delta H_0 + \alpha \frac{4\pi f}{\gamma}, \quad (2.2)$$

gdzie ΔH_0 jest niezależną od częstotliwości składową poszerzenia szerokości linii, która pochodzi z niejednorodności magnetycznych [21], natomiast γ to stała żyromagnetyczna wynosząca $1,76 \cdot 10^{11} \text{ rad/s} \cdot \text{T}$.



Rys. 2.2: Schemat blokowy układu pomiarowego SNA-FMR (a), zdjęcie falowodu koplarnarnego CPW zastosowanego przy pomiarach SNA-FMR i PIMM (zdjęcie pochodzi z pracy [A1]) (b), rysunek poglądowy falowodu koplarnarnego z próbką (DUT - kolor szary) (c) oraz przekrój poprzeczny falowodu dopasowanego do impedancji 50Ω (d), linie przerywane obrazują rozkład linii pola magnetycznego.

Dodatkowo przykładowe linie rezonansowe o przeważającej składowej symetrycznej oraz odpowiadająca im relacja dyspersji, uzyskane dla 20 nm warstwy NiFe , zostały zamieszczone w załączniku [A1] (Fig. 3, odpowiednio b i d).

Alternatywną metodą detekcji precesji namagnesowania z wykorzystaniem falowodu CPW jest metoda PIMM wykorzystująca impuls mikrofalowy do wzbudzenia dynamiki namagnesowania. Pomiar PIMM został wykorzystany w pracy [P1] w celu wyznaczenia współczynnika tłumienia dodatkową metodą. Układ składał się z falowodu koplarnarnego, generatora Picosecond Pulse Labs Generator 10070A o 65 ps czasie narastania impulsu, oscyloskopu próbkującego Agilent 86100D o paśmie 20 GHz oraz dwóch par cewek Helmholtza. Próbkę umieszczaną jest pomiędzy cewkami, bezpośrednio na falowodzie, warstwa ferromagnetyczna znajduje się jak najbliżej falowodu, jednak by zapobiec zwarcie falowodu musi być od niego oddzielona cienką warstwą izolatora. Przyłożenie zewnętrznego pola magnetycznego wzdłuż osi x (Rys. 2.2 a) powoduje nasycenie magnetyzacji wzdłuż tego kierunku. Następnie 200-ps impulsy prądu przepływając przez CPW indukują pole Oersted w płaszczyźnie próbki, wzdłuż osi y i wzbudzają precesję magnetyzacji wokół

czystości ISO5 i ISO6, dla których dopuszczalna maksymalna ilość cząstek o wymiarach $0,1\mu m$ na $1m^3$ powietrza wynosi odpowiednio 10^5 i 10^6 . Naświetlanie realizowane jest za pomocą skaningowego mikroskopu elektronowego firmy Raith *Raith eLine+*, natomiast trawienie jonowe odbywa się w urządzeniu *Microsystems IonSys 500*. Ze względu na konieczność zastosowania większej liczby kroków przy nanostrukturyzacji magnetycznych złącz tunelowych niż w przypadku wytwarzania pasków Halla, w pierwszej kolejności zostanie przedstawiona metodologia strukturyzacji układów *HM/FM/MgO*.

2.5.1 Nanostrukturyzacja układów metal ciężki/ferromagnetyk/MgO: *W/Co₁₂Fe₆₈B₂₀/MgO* i *Ta/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO*

Strukturyzacja układów do badań *SHE* została wykonana dwustopniową litografią elektro-nową: w pierwszej kolejności wykonywane są paski Halla, a następnie elektrody. Zastosowana dawka wiązki elektronowej wynosiła $300\mu As/cm^2$, przy szerokości wiązki $0,04\mu m$ i $0,08\mu m$, odpowiednio dla pasków i padów kontaktowych).

1. Warstwa pasków Halla:

- naniesienie i naświetlenie fotorezystu w miejscach gdzie zgodnie z maską mają znaleźć się paski Halla,
- trawienie jonowe.

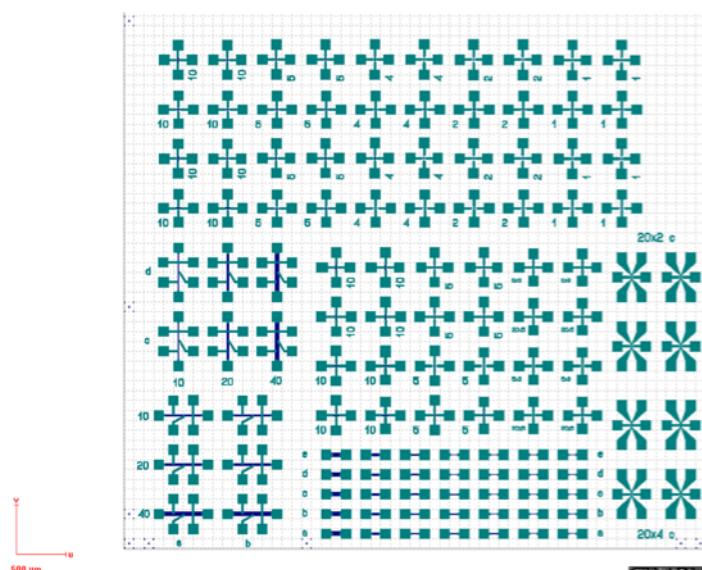
2. Warstwa kontaktów:

- napylenie warstwy przewodzącej,
- naniesienie i naświetlenie fotorezystu w miejscach gdzie zgodnie z maską mają znaleźć się pady kontaktowe,
- trawienie jonowe.

Maska (Rys. 2.4) zawiera znaczniki umożliwiające orientację na próbce, paski Halla z wyprowadzeniami umożliwiającymi pomiary rezystancji metodą dwu i czteropunktową oraz pomiary spinowego efektu Halla. Największe paski mają wymiary $40\mu m \times 400\mu m$ a najmniejsze $1\mu m \times 20\mu m$.

Próbka z warstwami ciągłymi w pierwszej kolejności jest myta w alkoholu etylowym za pomocą myjki ultradźwiękowej, następnie metodą *spin coating* nakładany jest fotorezyst negatywowy uzyskując równomiernie rozprowadzoną warstwę fotoczułej emulsji. Próbka z fotorezystem jest wygrzewana przez 2 minuty w temperaturze $82^\circ C$.

Następnie próbka naświetlana jest wiązką elektronów, w skutek wywołanej reakcji fotorezyst zmienia stopień rozpuszczalności w wywoływaczu. W przypadku fotorezystu negatywowego, stosowanego przy metodzie subtraktywnej, w trakcie naświetlania zachodzi sieciowanie polimeru co zmniejsza jego rozpuszczalność. W przypadku stosowanego przez mnie fotorezystu negatywowego wiązka elektronów zostaje nakierowana na miejsca, gdzie zgodnie z projektem mają znaleźć się paski Halla. Emulsja zostaje utwardzona w naświetlonych miejscach, natomiast pozostały, nieutwardzony fotorezyst zostaje usunięty w procesie wywoływania poprzez rozpuszczenie w wywoływaczu AR300.47.



Rys. 2.4: Przykładowa maska do litografii elektronowej zaprojektowana w programie Raith Nano-suite. Paski Halla (kolor granatowy), elektrody umożliwiające wykonywanie pomiarów (kolor zielony). Znajdujące się przy elementach liczby oznaczają zaprojektowane szerokości pasków podane w μm .

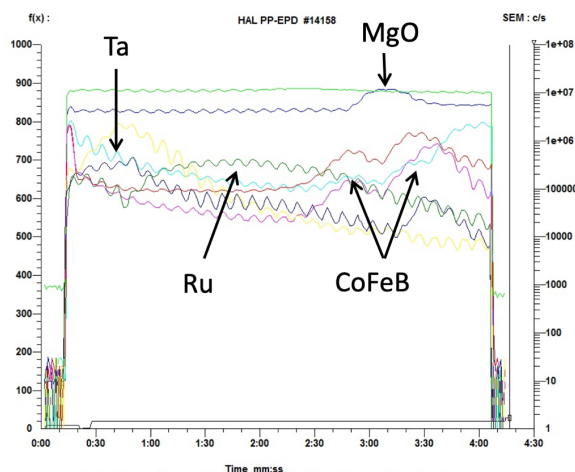
Przykryte utwardzonym fotorezystem obszary pozostaną nienaruszone w trakcie procesu trawienia jonowego.

Naświetlanie przeprowadzane jest w komorze głównej urządzenia Raith eLine+ wiązką elektronową o przekroju $< 1.6 \text{ nm}$. W komorze głównej panuje ciśnienie $< 2 \times 10^{-6} \text{ mbar}$, natomiast ciśnienie w komorze działu elektronowego jest rzędu $< 10^{-8} \text{ mbar}$). Interferometr laserowy zapewnia przemieszczanie próbki z dokładnością 1 nm .

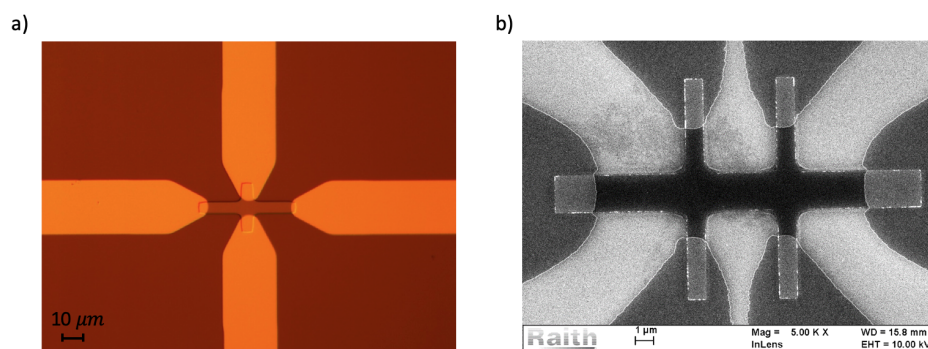
Trawienie jonowe realizowano za pomocą urządzenia *Microsystems IonSys 500* wyposażonego w działło jonowe z plazmowym generatorem RF generującym strumień jonów argonu o energiach od 100 do 2000 eV i gęstości strumienia około 1 mA/cm^2 oraz spektrometr masowy, który pozwala w czasie rzeczywistym (Rys. 2.5) obserwować jakie warstwy są aktualnie trawione. Urządzenie wykorzystywano zarówno do trawienia jonowego jak i nanoszenia cienkich warstw. IonSys 500 wyposażony jest w trzy magnetrone źródła rozpylające do nanoszenia warstw metalicznych: *Al*, *Au*, *Cr*, *Pt*, *Ta* oraz dielektrycznych *Ta₂O₅* i *Al₂O₃*.

Kontakty wytwarzane są w drugim cyklu litografii. Na oczyszczoną z pozostałego fotorezystu próbkę z paskami Halla nanoszona jest warstwa materiału kontaktów: *Al* lub *Ti/Au*. Kolejne kroki są analogiczne jak w przypadku wytwarzania pasków Halla.

Po naświetleniu obszarów elektrod i wywołaniu fotorezystu, poprawność umiejscowienia pasków była kontrolowana przy użyciu mikroskopu metalograficznego NIKON ECLIPSE LV150N (Rys. 2.6 a), natomiast po zakończonym procesie litografii, pełne układy były kontrolowane a ich wymiary dokładnie mierzone za pomocą mikroskopu elektronowego SEM (Rys. 2.6 b).



Rys. 2.5: Przykładowy zapis sygnałów mierzonych przez spektrometr masowy w trakcie procesu trawienia jonowego układu $Ta/Ru/Ta/Co_{60}Fe_{20}B_{20}/MgO/Co_{60}Fe_{20}B_{20}/Ta$. Natężenie danego pierwiastka w funkcji czasu wskazuje, która warstwa jest w danym momencie trawiona.



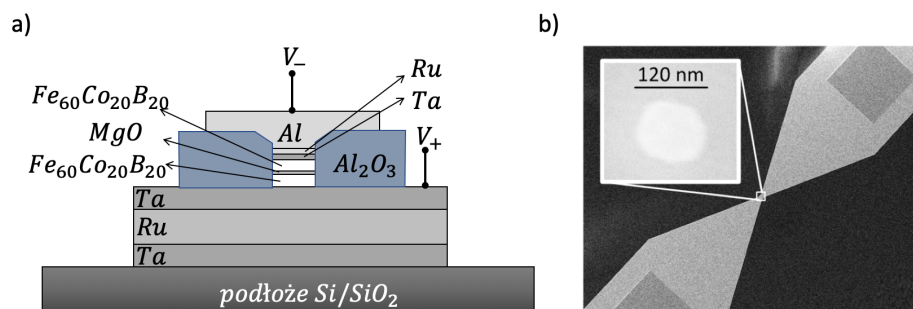
Rys. 2.6: Pasek Halla o wymiarach $55\mu m \times 5\mu m$ wytworzony w procesie litografii elektronowej wraz z fragmentem elektrod umożliwiającymi pomiary, obraz z mikroskopu metalograficznego (a). Pasek Halla o wymiarach $20\mu m \times 2\mu m$ umożliwiający dodatkowo badania czteropunktowe rezystancji, obraz z skaningowego mikroskopu elektronowego (b).

2.5.2 Nanostrukturyzacja magnetycznych złączy tunelowych

Strukturyzacja złączy **MTJ** realizowana jest trójstopniowo ze względu na konieczność wykonania elektrod na osobnych warstwach: elektrody dolne wykonywane są z warstw buforowych $Ta/Ru/Ta$ (Rys. 2.7), natomiast materiał elektrod górnych nanosi się i poddaje strukturyzacji już po wytrawieniu i zabezpieczeniu warstw złącza. Elektrody oddziela warstwa izolatora naniesionego tuż po wytrawieniu eliptycznego cylindra (pilara). W przypadku strukturyzacji magnetycznych złączy tunelowych przeprowadzany był tzw. krok *lift-off*. W tym kroku warstwa izolatora wraz z pozostałym fotorezystem jest usuwana znad pilara za pomocą odczynnika chemicznego.

1. Warstwy dolnej elektrody:

- naniesienie i naświetlenie fotorezystu według projektu dolnej elektrody,



Rys. 2.7: Układ wielowarstwowy magnetycznego złącza tunelowego (a), zdjęcie złącza MTJ na dolnej elektrodzie wykonane skaningowym mikroskopem elektronowym (b), zdjęcie pochodzi z prezentacji [W. Skowroński].

- trawienie jonowe.

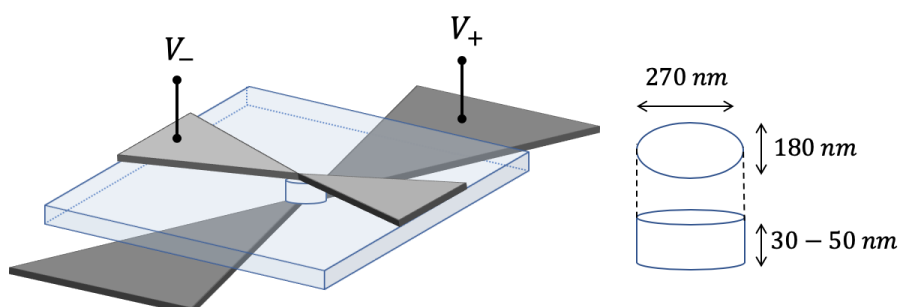
2. Warstwy pilara:

- naniesienie i naświetlenie fotorezystu według projektu pilarów,
- trawienie jonowe,
- napylenie warstwy izolującej Al_2O_3 ,
- lift-off.

3. Warstwy górnej elektrody:

- napylenie warstwy przewodzącej,
- naniesienie i naświetlenie fotorezystu według projektu górnej elektrody,
- trawienie jonowe.

Badane w pracy [P2] pilary o przekroju elipsy, miały wymiary 180 nm i 270 nm, odpowiednio dla osi krótkiej i długiej (Rys. 2.8).



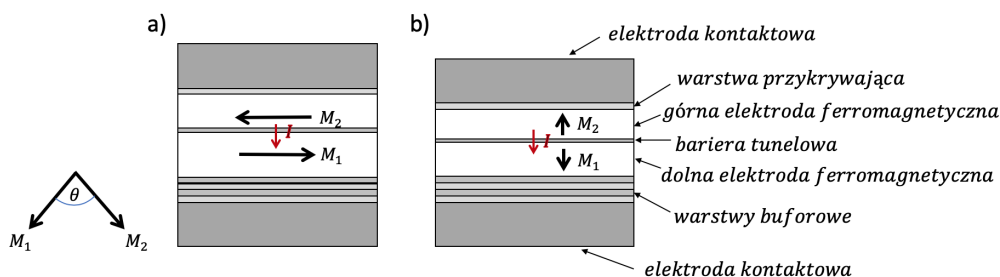
Rys. 2.8: Rysunek poglądowy przedstawiający pojedynczy nanopilar MTJ uzyskany w procesie litografii elektronowej.

MAGNETYCZNE ZŁĄCZA TUNELOWE

Magnetyczne złącza tunelowe MTJ są dwuzaciskowymi elementami, których rezystancję można modyfikować w szerokim zakresie uzyskując wysoki współczynnik tunelowej magnetorezystancji TMR. Współczynnik TMR opisuje się zależnością $(R_{AP} - R_P)/R_P$, gdzie R_{AP} oraz R_P oznaczają odpowiednio opór złącza dla antyrównoległego oraz równoległego ustawienia wektora namagnesowania ferromagnetycznych elektrod. Wartości rezystancji zmieniają się od omów do megaomów, w zależności od rodzaju materiału (amorficzny Al_2O_3 [24], czy krystaliczny MgO [25]) i grubości bariery tunelowej [26], uzyskując w temperaturze pokojowej współczynnik TMR nawet rzędu 600% [13]. Przewidywania teoretyczne wskazują na możliwość osiągnięcia jeszcze większych wartości, w układzie złącza monokrystalicznego $Fe(100)/MgO(100)/Fe(100)$ TMR może dojść do 1000% [27].

3.1 PARAMETRY ZŁĄCZ MTJ JAKO PODSTAWOWYCH KOMÓREK PAMIĘCI MRAM

Złącza MTJ są podstawowym elementem magnetorezystancyjnych pamięci MRAM i czujników w głowicach odczytowych twardych dysków. Najprostszy wariant składa się przede wszystkim z dwóch ferromagnetycznych elektrod przedzielonych dielektrykiem o grubości rzędu od ułamka do kilku nanometrów. Pomiedzy elektrodami ferromagnetycznymi, których wektory magnetyzacji leżą w płaszczyźnie warstwy (Rys. 3.1 a) lub prostopadłe do płaszczyzny warstwy (Rys. 3.1 b) zachodzi tunelowanie elektronów. Warto wspomnieć, że jedną z pierwszych prac o złączach tunelowych opublikowali 30 lat temu polscy naukowcy J. Nowak i J. Rauluszkiewicz [28]



Rys. 3.1: Schematyczne przedstawienie układu warstwowego magnetycznego złącza tunelowego, dla prądu przepływającego prostopadle, z osią łatwą namagnesowania równoległą do płaszczyzny próbki (a) i skierowaną prostopadłe do płaszczyzny warstwy (b), odpowiednio nazywane układami z anizotropią magnetyczną w płaszczyźnie i prostopadłą.

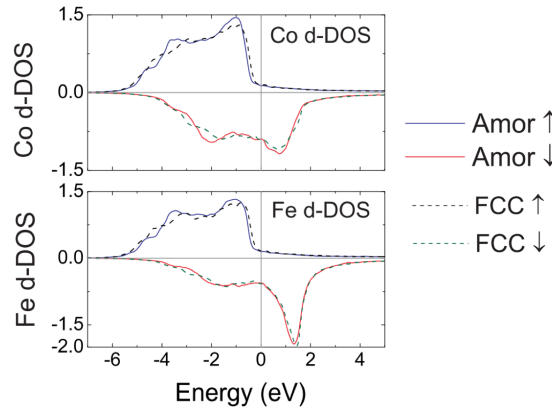
W metalach ferromagnetycznych prąd elektryczny, według dwukanałowego modelu Motta [29], składa się z elektronów 3d o spinach skierowanych „w górę” i elektronów ze spinami skierowanymi „w dół”. W uproszczonym modelu tunelowania kierunek spinu zostaje zachowany a konduktancja zależy od wzajemnego ułożenia magnetyzacji warstw ferromagnetycznych (M_1 i M_2). Kiedy względne orientacje magnetyzacji są pod kątem θ , przewodnictwo zgodnie z modelem M. Julliere [30] staje się proporcjonalne do $\cos\theta$:

$$G(\theta) = \frac{1}{2}(G_P + G_{AP}) + \frac{1}{2}(G_P - G_{AP})\cos\theta, \quad (3.1)$$

gdzie G_{AP} i G_P to konduktancja odpowiednio dla $\theta = 180^\circ$ (kiedy momenty magnetyzacji są antyrównoległe - AP) i $\theta = 0^\circ$ (kiedy momenty magnetyzacji są równoległe - P). Współczynnik tunelowej magnetorezystancji można zdefiniować więc jako:

$$TMR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P}. \quad (3.2)$$

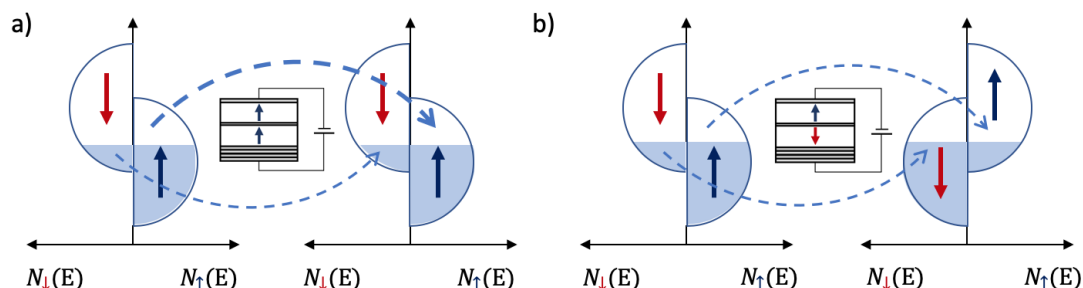
Zjawisko TMR wynika z różnicy w gęstości stanów elektronowych (DOS) na poziomie Fermiego E_F pomiędzy spinami skierowanymi „w górę” $N_\uparrow(E_F)$ i spinami skierowanymi „w dół” $N_\downarrow(E_F)$ (Rys. 3.2). Różna gęstość stanów w elektrodach bezpośrednio przekłada się na różnicę między kanałami prądowymi elektronów, których udział można zmieniać przemagnesowując elektrody zewnętrznym polem magnetycznym. Z rys. 3.2 widać, że gęstość stanów elektronowych 3d dla Co i Fe w warstwie amorficznej i krystalicznej jest zbliżona.



Rys. 3.2: Gęstość stanów elektronowych 3d Co i Fe wyznaczona dla warstw amorficznych (linie ciągłe) i krystalicznych (linie przerywane), dla spinów skierowanych "w górę" i "w dół". Rysunek pochodzi z pracy [31].

Pomiaru prądu/rezystancji tunelowej dokonuje się przy napięciu polaryzującym rzędu kilku mV. Przyłożone napięcie powoduje znaczące przesunięcie poziomu Fermiego w ferromagnetycznych elektrodach i tunelowanie elektronów przez barierę potencjału. Spin tunelujących elektronów jest skierowany zgodnie z kierunkiem namagnesowania pierwszej warstwy ferromagnetyka (elektrody źródła) w wyniku działania tzw. efektu polaryzacji spinowej. Jeśli kierunek namagnesowania elektrody jest zgodny ze spinem tunelujących elektronów, to nośniki większościowe znajdą wiele nieobsadzonych stanów i w rezultacie

rezystancja układu będzie niska a co za tym idzie prąd tunelowania duży (Rys.3.3 a) [32]. Natomiast przy przeciwnym kierunku namagnesowania ze względu na mniejszą dostępną do obsadzenia gęstość stanów dla nośników większościowych rezystancja układu będzie większa a prąd tunelowania mniejszy (Rys.3.3 b).



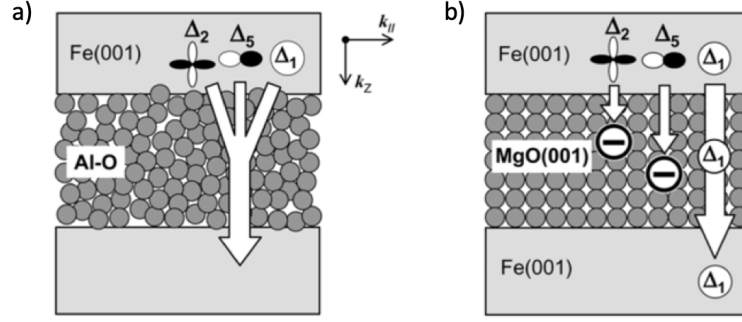
Rys. 3.3: Schematyczne przedstawienie tunelowania elektronów w złączu MTJ, na podstawie funkcji gęstości stanów ferromagnetyka, dla równoległej (a) i antyrównoległej (b) orientacji namagnesowania elektrod ferromagnetycznych (*insets*).

W celu zaobserwowania efektu TMR warstwy ferromagnetyków powinny mieć różne wartości pola koercji, czyli zmieniać kierunek namagnesowania w różnym polu magnetycznym. W ten sposób stan równoległy i przeciwny są stabilne przy danym zewnętrznym polu magnetycznym. Jedną z warstw projektuje się więc magnetycznie twardą a druga magnetycznie miękką. W celu uzyskania takiego układu (nazwanego pseudo zaworem spinowym PSV) do stworzenia elektrod można użyć materiałów ferromagnetycznych różniących się natężeniem pola koercji lub zrobić elektrody ferromagnetyczne o różnej grubości [33].

Proces tunelowania elektronów przez barierę potencjału zależy od parametrów bariery tunelowej. W przypadku wykorzystania materiału amorficznego, jakim jest na przykład Al_2O_3 , elektron w każdym dopuszczalnym stanie tuneluje z równym prawdopodobieństwem, co zostało przedstawione na rysunku 3.4 (a). To podejście nie sprawdza się w przypadku krystalicznej bariery tunelowej z MgO . W ferromagnetykach, stany elektronowe o symetrii Δ_1 mają wyższą polaryzację spinową niż Δ_2 i Δ_5 . Dlatego w przypadku bariery krystalicznej (Rys. 3.4 b), kiedy MgO wzrasta epitaksjalnie na Fe , Co lub ich stopie, występuje zdecydowana dominacja stanu Δ_1 co skutkuje znaczącym zwiększeniem TMR.

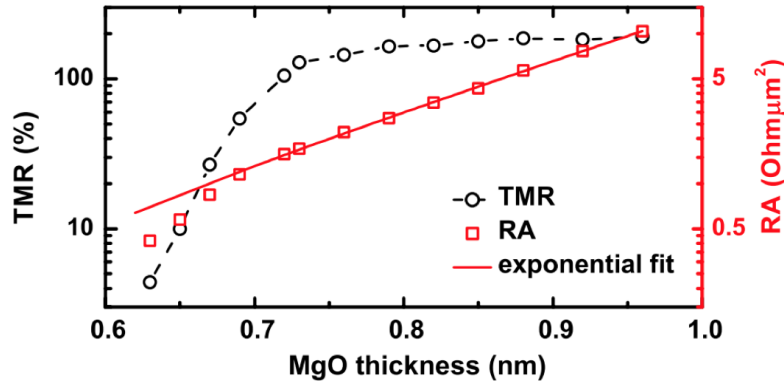
W układach z zastosowaniem amorficznego Al_2O_3 , po optymalizacji materiałowej elektrod jak i poprawieniu parametrów nanoszenia bariery, notowano TMR na poziomie 70% [34] w temperaturze pokojowej. Przykładowo pamięci MRAM o wysokiej gęstości zapisu a także głowice odczytowe dysków twardych wymagają TMR większych niż 150% przy jednoczesnym utrzymaniu jak najniższej wartości iloczynu rezystancji i powierzchni RA (Rys. 3.5). W 2004 roku dla epitaksjalnego kryształu MgO odnotowano wartości rzędu 200% [11, 12], natomiast obecnie wartość TMR dla polikrystalicznego MgO utrzymuje się na poziomie 600% [13, 25].

Przy przepływie prądu w materiale ferromagnetycznym istnieje ilościowa przewaga nośników o wyróżnionej (względem kierunku zewnętrznego pola magnetycznego) orien-



Rys. 3.4: Poglądowe przedstawienie tunelowania przez barierę amorficzną (a) i krystaliczną (b). Rysunek pochodzi z pracy [25].

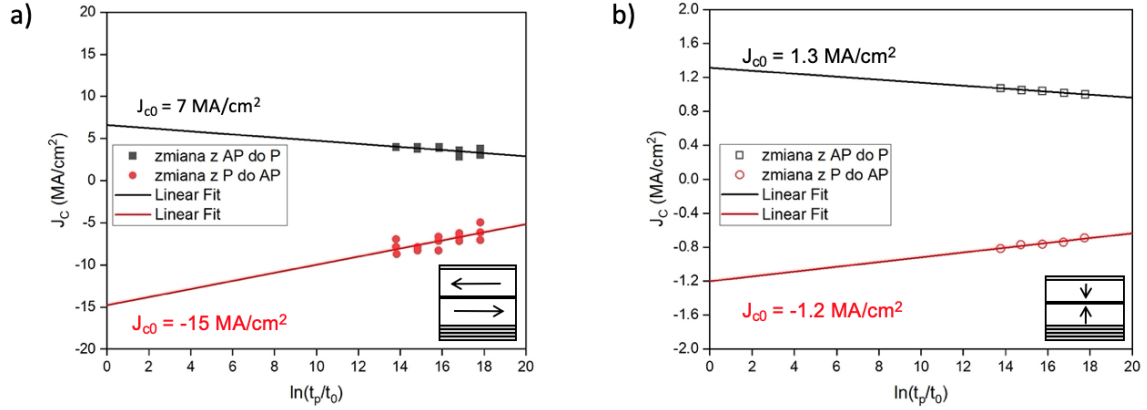
tacji spinu. Ustawiają się one zgodnie (polaryzacja dodatnia) ze zwrotem wektora magnetyzacji lub przeciwnie (polaryzacja ujemna). Polaryzacja spinowa jest nieodłączną właściwością materiałów ferromagnetycznych, a jej stopień zależy przede wszystkim od struktury pasmowej. Spinowo spolaryzowany w ferromagnetyku prąd może zostać przekazany dalej, do innych warstw zachowując całkowicie lub częściowo polaryzację. Zachowanie stopnia polaryzacji zależy przede wszystkim od rodzaju materiału dla którego zachodzi transport nośników. Przepływ prądu ładunkowego przez warstwę ferromagnetyczną jest jednym ze sposobów polaryzacji spinowej nośników. Inne metody polaryzacji wykorzystują takie zjawiska jak pompowanie spinów [35] lub spinowy efekt Halla omówiony w rozdziale 4.



Rys. 3.5: Zależność TMR oraz iloczynu rezystancji i powierzchni RA od grubości bariery MgO [36].

Z punktu widzenia zastosowania MTJ w pamięciach STT-MRAM kluczowy jest balans między jak najmniejszą gęstością prądu przełączenia J_c a jak najwyższą wartością parametru stabilności termicznej komórki MTJ, wyrażającego stosunek efektywnej energii anizotropii magnetycznej do energii termicznej $\Delta = H_{keff}\mu_0 M_S V / K_B T$ (gdzie K_B to stała Boltzmanna, T to temperatura bezwzględna). Natomiast gęstość progowa prądu krytycznego potrzebna do przełączenia warstwy swobodnej FL zgodnie z [37] wynosi:

$$J_{c0} = \alpha \frac{\gamma e}{\mu_B g} \mu_0 M_S H_{keff} V = 2\alpha \frac{\gamma e}{\mu_B g} E, \quad (3.3)$$



Rys. 3.6: Gęstość prądu przełączania dla różnych czasów trwania impulsu, przy $t_0 = 1\text{ ns}$ dla złącza: (a) z anizotropią w płaszczyźnie $\text{CoFeB}(2,3)/\text{MgO}(0,96)/\text{CoFeB}(2,3)$ $\Delta_{avg} = 36$, (b) z anizotropią prostopadłą $\text{CoFeB}(1,0)/\text{MgO}(1,28)/\text{CoFeB}(1,0)$ na buforze $5\text{Ta}/10\text{Ru}/3\text{Ta}$ $\Delta_{avg} = 63$ [P2]. Kolor czarny - przejście ze stanu antyrównoległego (AP) namagnesowania do równoległego (P), kolor czerwony - przejście ze stanu P namagnesowania do AP. Grubości warstw w nanometrach.

gdzie: α to tłumienie, γ to stała żyromagnetyczna elektronu, e to ładunek elektronu, μ_B to magneton Bohra, g to parametr polaryzacji spinowej, $\mu_0 M_S$ to namagnesowanie nasycenia, H_{keff} to pole anizotropii efektywnej, V to objętość komórki MTJ, E jest efektywną energią anizotropii magnetycznej.

Z wzoru 3.3 wynika, że progowy prąd krytyczny jest wprost proporcjonalny do bariery energii oddzielającej dwa przeciwne kierunki wektora namagnesowania. Bariera ta jest większa w przypadku anizotropii w płaszczyźnie o czynnik pola odnamagnesowania: $H_{keff} = |H_k + H_{dem}| = |H_k + \mu_0 M_S/2|$, gdzie pole anizotropii H_k dla warstwy ferromagnetycznej $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{B}_{20}$ jest rzędu wielkości 12kA/m (15 mT) i jest zaniedbywalnie małe wobec pola $H_{dem} = 272\text{kA/m}$ (340 mT) [37]. Natomiast w przypadku anizotropii prostopadłej jest mniejsza: $H_{keff} = |H_k - \mu_0 M_S|$, co skutkuje mniejszym prądem koniecznym do przełączenia magnetyzacji. Kolejnym czynnikiem obniżającym prąd krytyczny jest redukcja objętości komórki MTJ, czym mniejsza średnica pila, tym mniejsza objętość i tym mniejszy prąd przełączania. Te dwie cechy, anizotropia prostopadła i zmniejszanie objętości komórek pamięci STT-MRAM prowadzą do zdolności wytworzenia subnanometrowych pamięci STT-MRAM [38].

Uwzględnienie efektów termicznych prowadzi do zdefiniowania gęstości prądu przełączania J_c , będącego funkcją czasu trwania impulsu t_p :

$$J_c = J_{c0} \left(1 - \frac{1}{\Delta} \ln\left(\frac{t_p}{t_0}\right)\right), \quad (3.4)$$

Eksperymentalnie J_{c0} wyznacza się dla $\ln(t_p/t_0) = 0$ (Rys. 3.6), a parametr stabilności termicznej Δ z nachylenia prostych funkcji $J_c(\ln(t_p/t_0))$.

Porównując charakterystyki przełączania z rysunku 3.6, mniejsze prądy krytyczne i wyższe współczynniki stabilności termicznej wykazują złącza z prostopadłą anizotropią magnetyczną, dlatego właśnie ta technologia została zastosowana do produkcji pamięci

STT-MRAM przez Samsung, IBM, Avalanche, Everspin. Na przykład firma Avalanche Technology¹ w komunikacie z 03.05.2021 ogłosiła dostępność pamięci *Perpendicular STT-MRAM* do zastosowań lotniczych o pojemności 64 Mb. Z kolei naukowcy z Tohoku University² 14.12.2021 przedstawili najmniejszą na świecie komórkę pamięci **STT-MRAM MTJ** o średnicy 2 nm zdolną do ultraszybkiego przełączenia rzędu 3.5 ns.

Ze względu na niezwykle, wręcz ekstremalnie wysokie wymagania technologiczne odnośnie struktury warstwowej, precyzji reżimu grubości, szorstkości i tekstury krystalicznej, badania jakie przeprowadziłam i opisałam w publikacjach [P1] i [P2] są niezwykle istotne dla technologii pamięci **STT-MRAM**.

3.2 WPŁYW WARSTW BUFOROWYCH NA WŁAŚCIWOŚCI ZŁĄCZ MTJ

W moich badaniach magnetycznych złącz tunelowych koncentrowałam się na teksturze i szorstkości warstw buforowych, ich wpływie na pole anizotropii magnetycznej oraz na parametr tłumienia precesji namagnesowania. Parametr tłumienia determinuje szybkość przetwarzania informacji danej pamięci, dlatego celem badań jest opracowanie magnetycznych złącz tunelowych charakteryzujących się małym tłumieniem, natomiast duże pole anizotropii określa trwałość zapisu informacji. Wyniki przedstawiłam w pracach [P1] i [P2].

W pracy [P1] badałam układy o następującej strukturze wielowarstwowej *bufor/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(2)/MgO(2)/Ta(5)* (wartości w nawiasach oznaczają grubości warstw w nm), gdzie *Co₄₀Fe₄₀B₂₀* to dolna elektroda magnetycznego złącza tunelowego. Badane były następujące bufory:

- a) *Ta(5)/CuN(30)/Ta(5)*,
- b) *Ta(5)/CuN(15)/Ta(3)/CuN(15)/Ta(5)*,
- c) *Ta(5)/CuN(10)/Ta(5)*,
- d) *Ta(5)*,
- e) *Ta(10)*,
- f) *Ta(5)/Ru(10)/Ta(5)*.

Jak wykazałam, wielkość pola anizotropii ([P1] Fig.1), w obrębie warstw buforowych, koreluje ze stopniem stekstrowania ([P1] Fig.3) oraz szorstkością ([P1] Fig.4). Dobrze steksturyzowany układ *Ta(5)/Ru(10)/Ta(5)* o $RMS = 0,34$ nm i średniej wielkości ziaren równej około 22 nm, posiada najwyższy poziom współczynnika tłumienia precesji namagnesowania równy $\alpha = 10,7 \cdot 10^{-3} \pm 3 \cdot 10^{-4}$ ([P1] Fig. 7 f). Z kolei układ (d) z warstwą amorficznego *Ta* (o grubości 5 nm) jest najgładniejszy, z najniższą wartością tłumienia $\alpha = 5,1 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-4}$ ([P1] Fig. 7 d). Podobny poziom tłumienia, $\alpha = 5,7 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-4}$ ([P1] Fig. 7 a) wykazywała silnie steksturyzowana warstwa *Ta(5)/CuN(30)/Ta(5)*. Podane

¹ <https://www.avalanche-technology.com/avalanche-technology-introduces-64mb-stt-mram-for-aerospace-applications/>

² https://www.tohoku.ac.jp/en/press/magnetic_tunnel_junction_technology.html

wartości współczynnika tłumienia zostały wyznaczone z pomiarów [SNA-FMR](#), wartości pochodzące z pomiarów [PIMM](#) są nieco niższe (w granicy do około 10%).

Układ (d) z $Ta(5)$, pomimo najniższego tłumienia, nie zostanie wykorzystany jako samodzielnny bufor w układzie [MTJ](#) ze względu na wysoką rezystywność oraz niską wartość pola anizotropii $\mu_0 H_K = 5,2mT$, jest jednak dobrym kandydatem do badań spinowego efektu Halla, co zostało przedstawione w rozdziale 4. Najwyższą wartość pola anizotropii wykazał bufor (f) z Ru $\mu_0 H_K = 12,2mT$ ([\[P1\]](#) Fig.1), dla którego wartość H_K była wyższa, odpowiednio o 135% i 39%, od układów z Ta lub CuN . Z tego względu do badań kompletnego układu [MTJ](#), w których kluczową rolę odgrywa stabilność termiczna zależna m.in. od wartości H_K , zdecydowano się wykorzystać bufory z Ru .

Kolejnym krokiem było skonstruowanie kompletnego układu [MTJ](#) z barierą tunelową i powtórzenie badań tekstury, szorstkości i tłumienia. Kontynuując wątek strukturalny i szorstkości chciałam uzyskać odpowiedź na pytanie jak zmiana bufora wpływa na parametry złącza. W pracy [\[P2\]](#) zostały przedstawione wyniki badań układów dolnej elektrody $bufor/Fe_{60}Co_{20}B_{20}(klin\ 0,8 - 1,1)/MgO(1,28)/Ta(5)/Ru(5)$, górnej elektrody $bufor/MgO(1,28)/Fe_{60}Co_{20}B_{20}(klin\ 0,9 - 1,6)/Ta(5)/Ru(5)$ oraz kompletne układy [MTJ](#) $bufor/Fe_{60}Co_{20}B_{20}(1)/MgO(klin)/Fe_{60}Co_{20}B_{20}(1,5)/Ta(5)/Ru(5)$ z buforami:

I $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$,

II $Ta(5)/Ru(10)/Ta(10)$,

III $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$.

Najniższa warstwa Ta we wszystkich przypadkach jest amorficzna, natomiast wyżej położone warstwy Ru i Ta są polikrystaliczne. Wyniki *rocking curve* ([\[P2\]](#) Fig.3) pokazują, że tekstura Ru o grubości 20 nm jest znacząco wyższa w porównaniu do Ta , podobnie zachowuje się warstwa Ta znajdująca się na Ru - im grubsza warstwa tym silniejsza tekstura ([\[P2\]](#) Fig. 3). Przeprowadzone pomiary topografii powierzchni pokazały, że wysoka tekstura przenosi się na większą szorstkość powierzchni. Zmierzona wartość [RMS](#) dla buforów I $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$, II $Ta(5)/Ru(10)/Ta(10)$ wynosiła odpowiednio 0,22 nm i 0,24 nm, natomiast dla III $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$ wzrosła do 0,28 nm ([\[P2\]](#) Fig. 4). W dalszych badaniach skoncentrowano się na układach z najcieńszym buforem I $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$ oraz najgrubszym III $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$.

Pomiary parametru tłumienia, z wykorzystaniem metody pomiarowej [SNA-FMR](#), zostały przeprowadzone dla układów z dolną elektrodą. Badania wykazały znacząco wyższe tłumienie dla układu z buforem III $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$ w porównaniu do układu z buforem I $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$, wartości α wynosiły odpowiednio 0,026 oraz 0,018.

Warstwa $Fe_{60}Co_{20}B_{20}$ o grubości 1 nm wykazywała anizotropię prostopadłą, natomiast $Fe_{60}Co_{20}B_{20}$ o grubości 2 nm anizotropię w płaszczyźnie. Wyznaczona dla bufora I $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$ wartość pola anizotropii wynosiła $\mu_0 H_K = 562mT$ (dla dolnej elektrody) i $\mu_0 H_K = 101mT$ (dla górnej elektrody). Natomiast dla bufora III $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$ $\mu_0 H_K = 533mT$ (dla dolnej elektrody) oraz $\mu_0 H_K = 92mT$ (dla górnej elektrody), uzyskane wartości są zbliżone do wyników publikowanych w pracy [\[37\]](#).

Dla układu z buforem **I** uzyskaliśmy o 20% mniejszą gęstość prądu krytycznego J_c w porównaniu do układu z buforem **III**. Różnica wynika z większego wymieszania na interfejsie w przypadku próbki z buforem **I**, w wyniku którego dochodzi do zmniejszenia aktywnej magnetycznie grubości warstwy $Fe_{60}Co_{20}B_{20}$ (powstaje magnetycznie martwa warstwa - *magnetic dead layer*) i w efekcie zmniejszenia jej pola koercji. Układ z buforem **I** posiadał o 20% większą grubość warstwy magnetycznie martwej w porównaniu do **III**. Tak duża różnica pomiędzy układami może wynikać z różnicy w strukturze Ta będącego w bezpośrednim kontakcie z $Fe_{60}Co_{20}B_{20}$. Dla próbek z buforem **I** warstwa 3 nm Ta ma najłagodniejszą teksturę ([P2] Fig. 1) co ułatwia mieszanie warstw na interfejsie.

Średnia wartość parametru stabilności Δ (średnia z Δ^+ i Δ^-) dla bufora **III** $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$ wynosi $\Delta^{avg} = 32,5$, natomiast dla **I** $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$ stabilność termiczna wynosi $\Delta^{avg} = 63$. Powszechnie przyjęta dolna granica średniej stabilności termicznej wynosi $\Delta^{avg} = 40$ i ma gwarantować 10-letni czas retencji na poziomie bitowym [39]. Znacząco większa wartość stabilności termicznej w przypadku magnetycznego złącza tunelowego z buforem **I**, przy stosunkowo niewielkiej różnicy w wartościach J_c , wynika z większej wartości energii anizotropii prostopadłej i mniejszego tłumienia dla bufora typu **I** niż dla **III**.

PUBLIKACJA [P1]

M. Cecot, J. Wrona, J. Kanak, S. Ziętek, W. Skowroński, A. Żywczak, M. Czapkiewicz and T. Stobiecki, 'Magnetic properties and magnetization dynamics of magnetic tunnel junction bottom electrode with different buffer layers', *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 51, no. 11, pp. 1–4, 2015.

DOI: [10.1109/TMAG.2015.2440561](https://doi.org/10.1109/TMAG.2015.2440561)

Magnetic Properties and Magnetization Dynamics of Magnetic Tunnel Junction Bottom Electrode With Different Buffer Layers

Monika Cecot¹, Jerzy Wrona^{1,2}, Jarosław Kanak¹, Sławomir Ziętek¹, Witold Skowroński¹,
Antoni Żywczak³, Maciej Czapkiewicz¹, and Tomasz Stobiecki¹

¹Department of Electronics, AGH University of Science and Technology, Kraków 30-059, Poland

²Singulus Technologies, Kahl am Main 63796, Germany

³Academic Center of Materials and Nanotechnology, AGH University of Science and Technology, Kraków 30-059, Poland

We present the research on magnetic tunnel junction bottom electrodes CoFeB prepared on different buffer layers: 5Ta/30CuN/5Ta, 5Ta/15CuN/3Ta/15CuN/5Ta, 5Ta/10CuN/5Ta, 5Ta, 10Ta, and 5Ta/10Ru/5Ta (all thicknesses in nanometers). The buffer crystallographic microstructures were characterized with X-ray diffraction measurements while the roughness was investigated with atomic force microscopy measurements. We show the influence of crystallographic texture and surface roughness on the coercivity and anisotropy fields. Ferromagnetic resonance measurements were performed with a scalar network analyzer to determine the spin-wave dispersion relation of the precession frequency and the damping parameter. The results were confirmed with pulse inductive microwave magnetometry measurements.

Index Terms—Buffer layers, ferromagnetic resonance (FMR), magnetic tunnel junction (MTJ), magnetization dynamics.

I. INTRODUCTION

EXTENSIVE work on magnetic tunnel junctions (MTJs) in recent years allowed development of non-volatile magnetic random access memory (MRAM) which further enhanced research on MTJs to achieve a high performance of non-volatile devices [1]. Numerous applications of MTJs also include magnetic field sensors, high-frequency detectors, and oscillators that take advantage of the dynamic processes of magnetic multilayers [2]–[5]. The magnetic properties of CoFeB layers strongly depend on the choice of the buffer layers and their appropriate selection can provide more effective magnetic parameters [6]–[8]. The value of Gilbert damping factor α is important from a magnetization dynamics point of view and also for the critical current-induced switching density in spin-transfer torque (STT) devices [9]. Small damping values are essential in minimizing energy consumption in STT-based MRAM. CoFeB thin films have been investigated with the ferromagnetic resonance (FMR) technique in [10]–[13]. There have been several publications concerning the dynamic properties of thin CoFeB on different buffers [14]–[17]. In this paper, we discuss the influence of roughness and crystallographic texture of different buffer layers on the dynamic properties of the CoFeB/MgO/Ta system as well characterize systems with several seed layers including buffers with Ta layers which are the focus of interest for research on spin Hall effect [18].

II. EXPERIMENT

Multilayer systems were deposited on thermally oxidized Si(001) substrates and annealed at 330 °C for 20 min

Manuscript received March 20, 2015; revised May 28, 2015; accepted May 28, 2015. Date of publication June 3, 2015; date of current version October 22, 2015. Corresponding author: M. Cecot (e-mail: mbanasik@agh.edu.pl).

Color versions of one or more of the figures in this paper are available online at <http://ieeexplore.ieee.org>.

Digital Object Identifier 10.1109/TMAG.2015.2440561

using a Singulus Timaris Physical Vapor Deposition Cluster Tool System. All samples had an uniaxial in-plane anisotropy in a 2 nm thick $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ layer. The details of sample preparation have been described elsewhere [19]. Multilayer structures were as follows: buffer/ $2\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ / $2\text{MgO}/5\text{Ta}$ with buffer layers: (a)–(f) 5Ta/30CuN/5Ta, 5Ta/15CuN/3Ta/15CuN/5Ta, 5Ta/10CuN/5Ta, 5Ta, 10Ta, and 5Ta/10Ru/5Ta, respectively, where the numbers refer to the nominal thickness in nanometer. The coercivity H_c and the anisotropy H_k fields as well as the magnetization M_s were determined from hysteresis loops measured by a vibrating sample magnetometer (VSM). The microstructure was characterized with X-ray diffraction (XRD) θ – 2θ and rocking curve methods. The surface roughness was examined with atomic force microscopy (AFM) measurements. The magnetization dynamic properties were investigated with scalar network analyzer FMR (SNA-FMR) spectroscopy and a pulse inductive microwave magnetometer (PIMM) [20], [21]. The FMR measurement system consisted of a dedicated coplanar waveguide with the line width 85 μm , which allows the measurement of the magnetization precession of very thin films. The waveguide was designed to operate in the band of 0–20 GHz. In measurements using SNA, the external magnetic field was swept to obtain the absorption lines for different values of frequency. PIMM measurements were used in the limited range. In order to significantly increase the signal-to-noise ratio at the PIMM experiment, the autocorrelation method was used in the software control system.

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Magnetic Properties

Determined from VSM hysteresis loop measurement values of H_c , H_k , and M_s are depicted in Fig. 1. External magnetic field was applied in the plane of the sample along either easy or hard axis in the range of ± 20 and ± 100 mT, respectively.

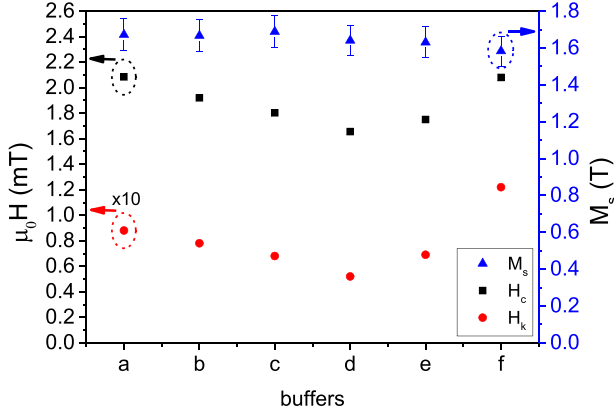


Fig. 1. Coercivity H_c anisotropy H_k fields and magnetization M_s determined from VSM measurements for 2 nm $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ layer with different buffers—(a) 5Ta/30CuN/5Ta, (b) 5Ta/15CuN/3Ta/15CuN/5Ta, (c) 5Ta/10CuN/5Ta, (d) 5Ta, (e) 10Ta, and (f) 5Ta/10Ru/5Ta.

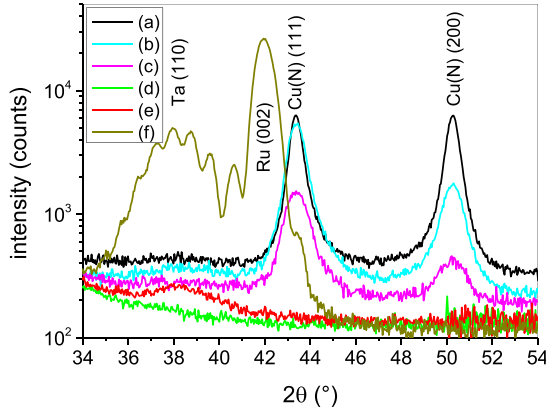


Fig. 2. XRD profiles for buffers (a) 5Ta/30CuN/5Ta, (b) 5Ta/15CuN/3Ta/15CuN/5Ta, (c) 5Ta/10CuN/5Ta, (d) 5Ta, (e) 10Ta, and (f) 5Ta/10Ru/5Ta. Well crystallized layers of Ru and CuN. For buffer with 10 nm Ta broad peak was observed whereas the thinner Ta layer no peaks had showed.

This diagram clearly shows that the saturation magnetization and the coercivity are affected very little, whereas the uniaxial anisotropy field of CoFeB layer strongly depends on the type of buffers. The highest anisotropy field was measured for the system with buffer (f) of $\mu_0 H_k = 12.2$ mT. For sample with buffer (a), anisotropy field was $\mu_0 H_k = 8.8$ mT. The lowest value was measured for buffer (d) with 5 nm Ta, for which $\mu_0 H_k = 5.2$ mT.

B. Microstructure: Texture and Roughness

XRD measurements for buffers showed that CuN grew in two crystallographic orientations with fcc (111) and fcc (200) planes parallel to the sample surface (Fig. 2). Ru crystallized into hcp (001)-oriented texture. Ta layer with thickness 5 nm was amorphous whereas the thicker Ta layer was crystallized into a tetragonal disoriented structure.

Full-width at half-maximum (FWHM) determined from the rocking curve measurements reveals that the texture of single thick CuN layer is highest for buffer (a) and decreases for buffer (b) with Ta 3 nm insertion and buffer (c) with a

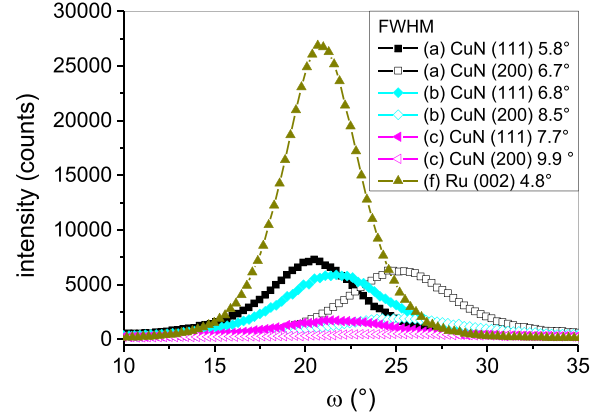


Fig. 3. Rocking curve profiles measured at positions Cu(N) (111), Cu(N) (200), and Ru (002) with FWHM values for (a)–(f) buffers.

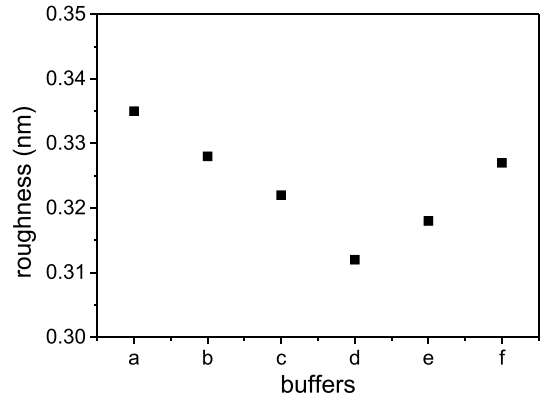


Fig. 4. RMS roughness derived from AFM measurements for the structure: buffer/ $2\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ /2MgO/5Ta with different buffers multilayers. (a) 5Ta/30CuN/5Ta. (b) 5Ta/15CuN/3Ta/15CuN/5Ta. (c) 5Ta/10CuN/5Ta. (d) 5Ta. (e) 10Ta. (f) 5Ta/10Ru/5Ta.

thin CuN layer (Fig. 3). The texture of Ru in buffer (f) is high which confirmed the highly (001)-oriented growth of the Ru buffer layer.

Annealed single layers were scanned with AFM in tapping mode on the top of the structures. Root-mean-square (RMS) values of the roughness were obtained for 500 nm \times 500 nm surface images (Fig. 4). The roughness of the SiO_2 substrates was on the order of 0.27 nm.

The greatest roughness was observed for the system with 30 nm CuN for which $\text{RMS} = 0.335$ nm with the largest grains diameter (22 nm). High roughness has also been measured for samples with Ru, where $\text{RMS} = 0.327$ nm, with a 15 nm grain diameter. This fact is a consequence of highly oriented columnar growth of textured CuN and Ru as we have shown in our previous papers [6] and [22]. Buffers with single Ta layer gave the smoothest surfaces with the smallest grains 4 nm for which $\text{RMS} = 0.312$ nm. Fig. 5 presents the images of topography for buffers (a), (d), and (f). The H_c and H_k were the highest for the roughest buffers and decreased with decreasing roughness of the layers. For further analysis, we will focus only on samples (a), (d), and (f) for which the differences in microstructure and changes in anisotropy fields are the strongest.

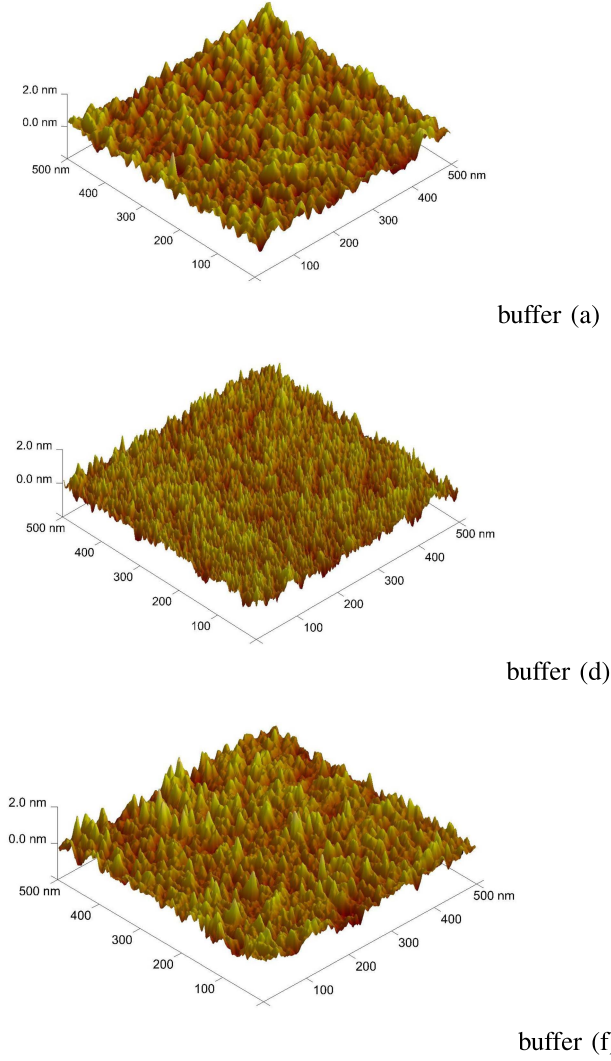


Fig. 5. AFM measurements maps of the surface for structures with selected buffers. (a) 5Ta/30CuN/5Ta. (d) 5Ta. (f) 5Ta/10Ru/5Ta.

C. Magnetization Dynamics

The magnetization dynamics was examined with the SNA-FMR technique where FMR signal is obtained from the electromagnetic wave power absorption. The FMR line shape consists of symmetric and anti-symmetric Lorentzian components with respect to the resonance field. From the fit of the two components, the resonance field was determined [23]. Analytical models of the dispersion relation for measurements with external magnetic field applied along the in-plane hard-axis (1) were derived as follows:

$$f = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(\mu_0 H + \mu_0 M_s) \left(\mu_0 H - \frac{2K_u}{\mu_0 M_s} \right)} \quad (1)$$

where γ is the gyromagnetic ratio ($1.76 \cdot 10^{11}$ rad/s · T), M_s is the saturation magnetization, μ_0 is the permeability, K_u is the uniaxial in-plane anisotropy, and H is the external magnetic field. The dispersion relations were presented in Fig. 6.

From the FWHM of the resonance line and frequency relation, the Gilbert damping coefficient was obtained in

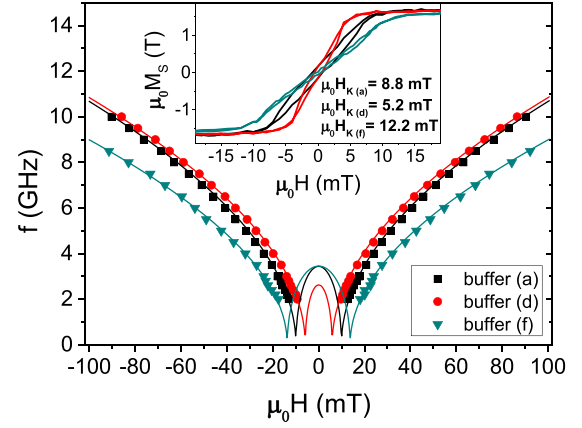


Fig. 6. Spin-wave dispersion relations of CoFeB films with in-plane uniaxial anisotropy for selected buffers. (a) 5Ta/30CuN/5Ta. (d) 5Ta. (f) 5Ta/10Ru/5Ta. Inset: hard axis hysteresis loops.

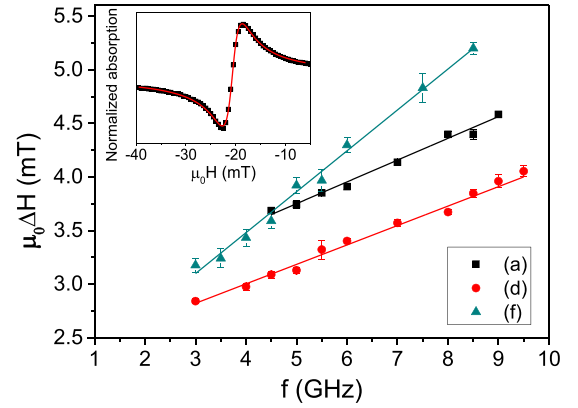


Fig. 7. Linewidth versus frequency dependence for the samples with different buffers. (a) 5Ta/30CuN/5Ta. (d) 5Ta. (f) 5Ta/10Ru/5Ta. Inset: example of FMR line with fitted Lorentzian curve.

accordance with the following equation:

$$\Delta H = \Delta H_0 + \alpha \frac{4\pi f}{\gamma} \quad (2)$$

where ΔH is the linewidth, ΔH_0 is the frequency-independent component of linewidth broadening that originates from magnetic inhomogeneities, and α is the damping coefficient. Fig. 7 contains linewidth as a function of frequency.

Low damping coefficients measured for samples with the lowest in-plane uniaxial anisotropy were: $\alpha = 5.1 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-4}$ for buffer (d) with $K_u = 3398$ J/m³ and $\alpha = 5.7 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-4}$ for buffer (a) with $K_u = 5849$ J/m³, whereas the highest $\alpha = 10.7 \cdot 10^{-3} \pm 3 \cdot 10^{-4}$ was measured for buffer (f) with the highest in-plane anisotropy $K_u = 7684$ J/m³.

In addition to SNA-FMR measurement, a PIMM experiment was performed for as-deposited samples to confirm damping coefficient values. The PIMM measurements were performed with an external magnetic field of 5 mT (slightly above H_c) applied along the easy axis (Fig. 8). The highest damping was measured for the system with buffer (f) $\alpha = 9.65 \cdot 10^{-3} \pm 2 \cdot 10^{-4}$ and the lowest for buffer (d) $\alpha = 4.64 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-4}$ as well as in the results derived from SNA-FMR. The damping coefficient for the sample with

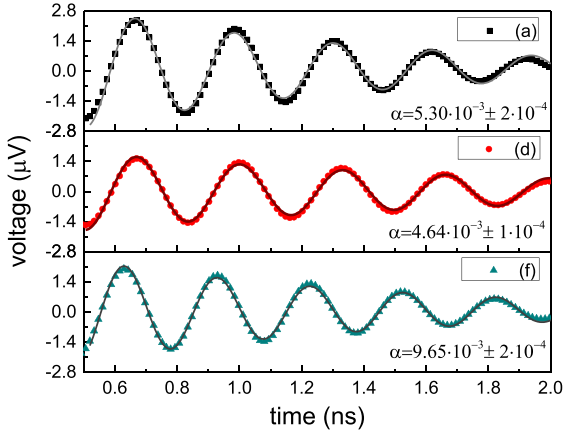


Fig. 8. Frequency precession in the saturation field derived from PIMM coefficients for samples with selected buffers. (a) 5Ta/30CuN/5Ta. (d) 5Ta. (f) 5Ta/10Ru/5Ta. The damping parameters α were obtained from fits of an exponentially damped sinusoid (red lines).

buffer (a) was $\alpha = 5.30 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-4}$. The damping coefficient for as-deposited samples was lower in comparison with the annealed ones.

IV. CONCLUSION

In conclusion, we performed measurements of the MTJ bottom electrode of 2 nm thick $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ deposited on different buffers. We discussed how buffer layers' crystallographic texture and roughness influence on uniaxial anisotropy fields and the magnetization dynamics. The high values of the anisotropy field correlate with the samples with the high texture and high roughness. The structure with an amorphous Ta layer was the smoothest and has the lowest value of the anisotropy field. Very low damping coefficients were delivered from ferromagnetic resonance detected with the SNA-FMR measurement techniques as well as the PIMM experiment. Damping coefficient was highest for the well-textured sample with buffer 5Ta/10Ru/5Ta, whereas the smallest value was for the buffer with a 5 nm Ta layer. We note that relatively low damping factor was observed for the sample with buffer 5Ta/30CuN/5Ta, which is an attractive candidate for applications due to its high thickness and low resistivity. Therefore, from an energy consumption point of view, it is worth optimizing the buffer layers.

ACKNOWLEDGMENT

This work was supported in part by the NANOSPIN under Grant PSPB-045/2010 from Switzerland through the Swiss Contribution, in part by the AGH University Dean's Grant 15.11.230.219, in part by the Polish National Science Center under Grant DEC-2012/05/E/ST7/00240, and in part by the Foundation for Polish Science through the START program.

REFERENCES

- [1] K. Ando *et al.*, "Spin-transfer torque magnetoresistive random-access memory technologies for normally off computing (invited)," *J. Appl. Phys.*, vol. 115, no. 17, p. 172607, 2014.
- [2] W. Skowroński, M. Frankowski, J. Wrona, T. Stobiecki, P. Ogrodnik, and J. Barnaś, "Spin-torque diode radio-frequency detector with voltage tuned resonance," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 7, p. 072409, 2014.
- [3] O. Boulle *et al.*, "Shaped angular dependence of the spin-transfer torque and microwave generation without magnetic field," *Nature Phys.*, vol. 3, no. 7, pp. 492–497, May 2007.
- [4] A. M. Deac *et al.*, "Bias-driven high-power microwave emission from MgO-based tunnel magnetoresistance devices," *Nature Phys.*, vol. 4, no. 10, pp. 803–809, 2008.
- [5] P. Wiśniowski, M. Dąbek, S. Cardoso, and P. P. Freitas, "Magnetic field sensing characteristics of MgO based tunneling magnetoresistance devices with $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ and $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{20}\text{B}_{20}$ electrodes," *Sens. Actuators A, Phys.*, vol. 202, pp. 64–68, Nov. 2013.
- [6] M. Frankowski *et al.*, "Buffer influence on magnetic dead layer, critical current and thermal stability in magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy," *J. Appl. Phys.*, vol. 117, p. 223908, 2015.
- [7] J. Sinha *et al.*, "Enhanced interface perpendicular magnetic anisotropy in Ta/CoFeB/MgO using nitrogen doped Ta underlayers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 24, p. 242405, 2013.
- [8] P. Wiśniowski, T. Stobiecki, J. Kanak, G. Reiss, and H. Brückl, "Influence of buffer layer texture on magnetic and electrical properties of IrMn spin valve magnetic tunnel junctions," *J. Appl. Phys.*, vol. 100, no. 1, p. 013906, 2006.
- [9] S. Sievers *et al.*, "Toward wafer scale inductive characterization of spin-transfer torque critical current density of magnetic tunnel junction stacks," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 51, no. 1, Jan. 2015, Art. ID 1400804.
- [10] A. Caprile *et al.*, "Static and dynamic analysis of magnetic tunnel junctions with wedged MgO barrier," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 51, no. 1, Jan. 2015, Art. ID 4400304.
- [11] F. Xu, Q. Huang, Z. Liao, S. Li, and C. K. Ong, "Tuning of magnetization dynamics in sputtered CoFeB thin film by gas pressure," *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 7, p. 07A304, 2012.
- [12] H. Yu *et al.*, "High propagating velocity of spin waves and temperature dependent damping in a CoFeB thin film," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, no. 26, p. 262412, 2012.
- [13] Y. P. Chen, X. Fan, Q. Lu, and J. Q. Xiao, "Damping dependence in microwave assisted magnetization reversal," *J. Appl. Phys.*, vol. 110, no. 5, p. 053905, 2011.
- [14] S. Ikeda *et al.*, "A perpendicular-anisotropy CoFeB–MgO magnetic tunnel junction," *Nature Mater.*, vol. 9, pp. 721–724, Jul. 2010.
- [15] S. Chen, M. Tang, Z. Zhang, B. Ma, S. T. Lou, and Q. Y. Jin, "Interfacial effect on the ferromagnetic damping of CoFeB thin films with different under-layers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 3, p. 032402, 2013.
- [16] T. Devolder *et al.*, "Damping of $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$ ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, no. 2, p. 022407, 2013.
- [17] G. Malinowski, K. C. Kuiper, R. Lavrijsen, H. J. M. Swagten, and B. Koopmans, "Magnetization dynamics and Gilbert damping in ultrathin $\text{Co}_{48}\text{Fe}_{32}\text{B}_{20}$ films with out-of-plane anisotropy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 94, p. 102501, Mar. 2009.
- [18] L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, "Spin-torque switching with the giant spin Hall effect of tantalum," *Science*, vol. 336, no. 6081, pp. 555–558, 2012.
- [19] J. Wrona *et al.*, "Low resistance magnetic tunnel junctions with MgO wedge barrier," *J. Phys., Conf. Ser.*, vol. 200, no. 5, p. 052032, 2010.
- [20] S. Serrano-Guisan *et al.*, "Inductive determination of the optimum tunnel barrier thickness in magnetic tunneling junction stacks for spin torque memory applications," *J. Appl. Phys.*, vol. 110, no. 2, p. 023906, 2011.
- [21] M. Farle, "Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers," *Rep. Prog. Phys.*, vol. 61, no. 7, p. 755, 1998.
- [22] J. Kanak *et al.*, "X-ray diffraction analysis and Monte Carlo simulations of CoFeB–MgO based magnetic tunnel junctions," *J. Appl. Phys.*, vol. 113, no. 2, p. 023915, 2013.
- [23] N. Mecking, Y. S. Gui, and C.-M. Hu, "Microwave photovoltage and photoresistance effects in ferromagnetic microstrips," *Phys. Rev. B*, vol. 76, p. 224430, Dec. 2007.

PUBLIKACJA [P2]

M. Frankowski, A. Żywczak, M. Czapkiewicz, S. Ziętek, J. Kanak, **M. Banasik**, W. Powroźnik, W. Skowroński, J. Chęciński, J. Wrona et al., 'Buffer influence on magnetic dead layer, critical current, and thermal stability in magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy', *Journal of Applied Physics*, vol. 117, no. 22, p. 223 908, 2015.

DOI: [10.1063/1.4922499](https://doi.org/10.1063/1.4922499)

Buffer influence on magnetic dead layer, critical current, and thermal stability in magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy

Marek Frankowski,^{1,a)} Antoni Żywczak,^{2,b)} Maciej Czapkiewicz,¹ Sławomir Ziętek,¹ Jarosław Kanak,¹ Monika Banasik,¹ Wiesław Powroźnik,¹ Witold Skowroński,¹ Jakub Chęciński,^{1,3} Jerzy Wrona,^{1,4} Hubert Głowiński,⁵ Janusz Dubowik,⁵ Jean-Philippe Ansermet,⁶ and Tomasz Stobiecki¹

¹AGH University of Science and Technology, Department of Electronics, Al. Mickiewicza 30, 30-059 Kraków, Poland

²AGH University of Science and Technology, Academic Center of Materials and Nanotechnology, Al. Mickiewicza 30, 30-059 Kraków, Poland

³AGH University of Science and Technology, Faculty of Physics and Applied Computer Science, Al. Mickiewicza 30, 30-059 Kraków, Poland

⁴Singulus Technologies, Kahl am Main 63796, Germany

⁵Institute of Molecular Physics, Polish Academy of Sciences, ul. Mariana Smoluchowskiego 17, 60-179 Poznań, Poland

⁶Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, EPFL, IPCM-Station 3, CH-1015 Lausanne, Switzerland

(Received 17 February 2015; accepted 3 June 2015; published online 12 June 2015)

We present a detailed study of Ta/Ru-based buffers and their influence on features crucial from the point of view of applications of Magnetic Tunnel Junctions (MTJs) such as critical switching current and thermal stability. We study buffer/FeCoB/MgO/Ta/Ru and buffer/MgO/FeCoB/Ta/Ru layers, investigating the crystallographic texture, the roughness of the buffers, the magnetic domain pattern, the magnetic dead layer thickness, and the perpendicular magnetic anisotropy fields for each sample. Additionally, we examine the effect of the current induced magnetization switching for complete nanopillar MTJs with lateral dimensions of 270×180 nm. Buffer Ta 5/Ru 10/Ta 3 (thicknesses in nm), which has the thickest dead layer, exhibits a much larger thermal stability factor (63 compared to 32.5) while featuring a slightly lower critical current density value (1.25 MA/cm^2 compared to 1.5 MA/cm^2) than the buffer with the thinnest dead layer Ta 5/Ru 20/Ta 5. We can account for these results by considering the difference in damping which compensates for the difference in the switching barrier heights. © 2015 AIP Publishing LLC.

[<http://dx.doi.org/10.1063/1.4922499>]

I. INTRODUCTION

Magnetic Tunnel Junctions (MTJs) with Perpendicular Magnetic Anisotropy (PMA) have brought significant attention in view of numerous applications such as magnetic field sensors,^{1–4} microwave generators and detectors,^{5–8} and high-density non-volatile magnetic random access memory cells.^{9–13} The latter is particularly interesting due to the advantageous features exhibited by MTJs which include low critical switching current density, good thermal stability, low power consumption, and the ability to scale down the junction size.^{9–12} In general, as the PMA can be affected by the MTJ layer structure,^{14–18} these properties can also be modified significantly, creating an opportunity for further improvement of the magnetic memory technology based on MTJs. Recently, a lot of attention has been paid to layer thickness and buffer material problems in FeCoB/MgO systems,^{15–19} which are widely used to achieve large Tunneling Magnetoresistance (TMR) values.^{10,15,20} Different buffer layer textures may influence the roughness

and thus the electrical and magnetic properties of the samples,^{21–23} affecting the parameters which are crucial in the context of magnetic memory. We discuss Ta/Ru buffers, which are used by the nanoelectronics industry.²⁴ Moreover, buffers with Ta layers are particularly interesting, since they are also commonly used in spin Hall effect experiments.^{25–27}

In this work, we have used FeCoB/MgO MTJs with three different sets of Ta/Ru/Ta buffer layers in order to investigate the magnetic dead layer thickness, the critical current, and the thermal stability. In Sec. II, we describe in detail the preparation and the layer structure of the junctions as well as experimental methods used. As presented in Sec. III, we have performed wafer-level measurements to characterize MTJs structural and magnetic properties for different buffer types. By means of a Current Induced Magnetization Switching (CIMS) experiment conducted on patterned samples, the transport properties have also been investigated. The experimental results are discussed and the physical explanation for the observed differences between MTJ parameters measured with various buffer types is proposed. Finally, in Sec. IV, we present a summary and conclusions.

^{a)}mfrankow@agh.edu.pl

^{b)}zywczak@agh.edu.pl

II. EXPERIMENTAL

The samples have been deposited on a thermally oxidized silicon wafer (SiO_2 thickness of 100 nm) using a Singulus Timaris cluster tool system. We have prepared two single ferromagnetic layer systems: one with a ferromagnetic layer deposited below the MgO layer (buffer / $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{B}_{20}$ wedge / MgO 1.28 / Ta 5 / Ru 5, all thicknesses in nm), which will be further referred to as bottom, and another one with a ferromagnetic layer deposited above the MgO layer (buffer / MgO 1.28 / $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{B}_{20}$ wedge / Ta 5 / Ru 5), which will be further referred to as top, for three different buffers: (i) Ta 5 / Ru 10 / Ta 3, (ii) Ta 5 / Ru 10 / Ta 10, and (iii) Ta 5 / Ru 20 / Ta 5. The measurements have been performed for samples before and after the thermal treatment of 330 °C for 1 h with the perpendicular magnetic field bias of 0.42 T.

After analysis of single FeCoB layers, we have developed full MTJ stack with the multilayer structure as follows: buffer / $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{B}_{20}$ 1.0 / MgO wedge / $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{20}\text{B}_{20}$ 1.5 / Ta 5 / Ru 5.

Crystallographic properties of the prepared samples have been investigated using X-Rays Diffraction (XRD) $\theta - 2\theta$ and rocking curve measurements. The surface topography and the grain size dependence on the buffer have been examined with an Atomic Force Microscope (AFM). Single layer systems have been investigated by means of a Vibrating Sample Magnetometer (VSM) and a polar Magneto-optic Kerr Effect (p-MOKE) microscope. The magnetization, the anisotropy fields, and the magnetic dead layer thickness have been found using measurements for different FeCoB layer thicknesses.

The MTJs have been patterned into elliptical shaped pillars with lateral dimensions of 270×180 nm using an electron beam lithography, an ion-beam etching, and a lift-off process. The CIMS experiment has been conducted with different current pulse time widths, and the intrinsic critical currents and thermal stability factors have been calculated for the MTJs with each buffer.²⁸ To determine the damping coefficients, we have used Ferromagnetic Resonance detected with a Vector Network Analyzer (VNA-FMR).

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Microstructure: Texture and roughness

The lowermost Ta buffer layer deposited directly on SiO_2 was amorphous, which is in agreement with our previous investigations,²⁹ whereas the two remaining layers Ru and Ta were both highly textured. Figure 1 shows XRD $\theta - 2\theta$ diffraction patterns in a narrow 2θ range for the samples with (i), (ii), and (iii) buffers. Different intensities of Ru and Ta peaks result from different thicknesses of the layers. In wide angular 2θ range XRD measurements (not shown), only Ru (002) and Ta (110) peaks and their second order are visible, suggesting that Ru and Ta buffer layers are highly oriented. The Ru layer in the buffer has grown polycrystalline in a columnar structure, which is clearly visible in transmission electron microscopy images shown for similar buffer structures in Refs. 29 and 30. As has been shown in Ref. 29, the XRD profiles and Monte Carlo simulations

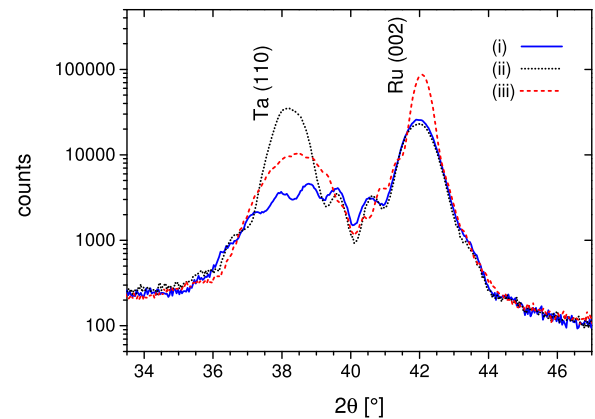


FIG. 1. XRD $\theta - 2\theta$ profiles for each buffer before annealing.

confirm the columnar growth of Ta/Ru/Ta buffers. Ru in these buffers has grown in hcp (002)-oriented texture, whereas Ta has grown in bcc (110)-oriented texture.

In order to determine the degree of the texture of the Ru and Ta layers in buffer systems (i), (ii), and (iii), the pole figures and rocking curves have been measured. Pole figures for buffer (ii) at position $2\theta = 44^\circ$, which corresponds to peak Ru (101), and at position $2\theta = 38.34^\circ$, which corresponds to peak Ta (110), are shown in Fig. 2. The upper pole

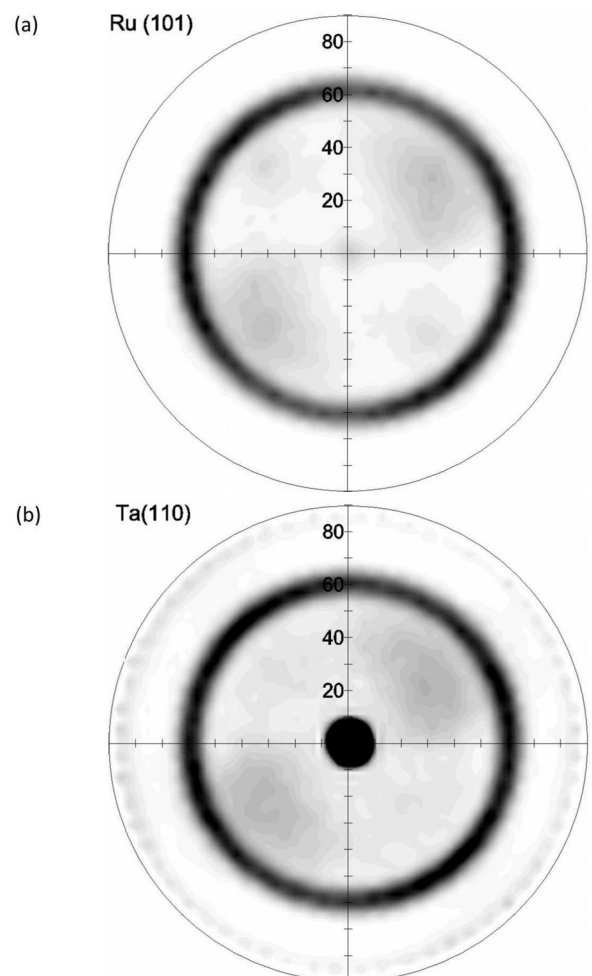


FIG. 2. An example of XRD pole figures for (a) Ru (101) and (b) Ta (110) in the case of intermediately textured buffer (ii).

figure shows a ring at position $\psi = 61.3^\circ$, which is the angle between Ru (002) and Ru (101) planes. In the lower pole figure, there is a spot in the center and a ring at position $\psi = 60^\circ$, which is the angle between $\{110\}$ planes in Ta. Diffuse rings of Ru (101) and Ta (110) indicate that the layers have sheet texture with no crystallographic orientation in the layer plane. This confirms the fact that Ru and Ta buffer layers are polycrystalline with highly oriented columnar grains which contribute to roughness.

To verify the degree of texture for the buffers, we have measured rocking curve profiles on Ru (002) and Ta (110) peaks (Fig. 3). In the case of Ru layers, the narrowest full width at half maximum was observed for buffer (iii), which leads to conclusion that the Ru texture for this buffer is significantly higher than for buffers (i) and (ii). The texture degree of the Ta layer deposited on Ru was shown to be the lowest for sample (i) and to increase in the case of samples (ii) and (iii).

Surface roughness of the single ferromagnetic layer systems with different buffers has been investigated with AFM in a tapping mode (Fig. 4). As-deposited single layer systems have been examined by scanning $500 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$ areas on top of the structures. The Root Mean Square (RMS) roughness of stacks (i) and (ii) with 10 nm of Ru in the buffer has been equal to 0.22 nm and 0.24 nm, respectively. In the case of stack (iii) with 20 nm of Ru, the roughness has

increased to 0.28 nm. This is likely due to a highly oriented Ru polycrystalline columns on the lowermost amorphous Ta layer.²⁹ Resultant columnar grain diameters of the measured systems have been all at the same level of 15 nm, regardless of the type of the buffer. As the structural measurements have shown, buffer (i) has the smoothest surface while maintaining the weakest texture.

B. Magnetic properties: Dead layer and anisotropy

The VSM measurement of the magnetic moment per unit area as a function of the nominal thickness for as-deposited and annealed structure with FeCoB *bottom* layer is presented in Fig. 5.

Using the intersection of the linear fit with the x axis, one can estimate the magnetic dead layer thickness t_d for each buffer.³¹ As seen in Fig. 5, the largest dead layer thickness has been observed for buffer (i) and the smallest one for buffer (iii).

After annealing in magnetic field of 0.42 T, the dead layer thickness has increased in each sample. However, the character of their dependence on different buffer compositions has been preserved. Additionally, the domain structure for *bottom* samples with FeCoB layer thickness of 1 nm has

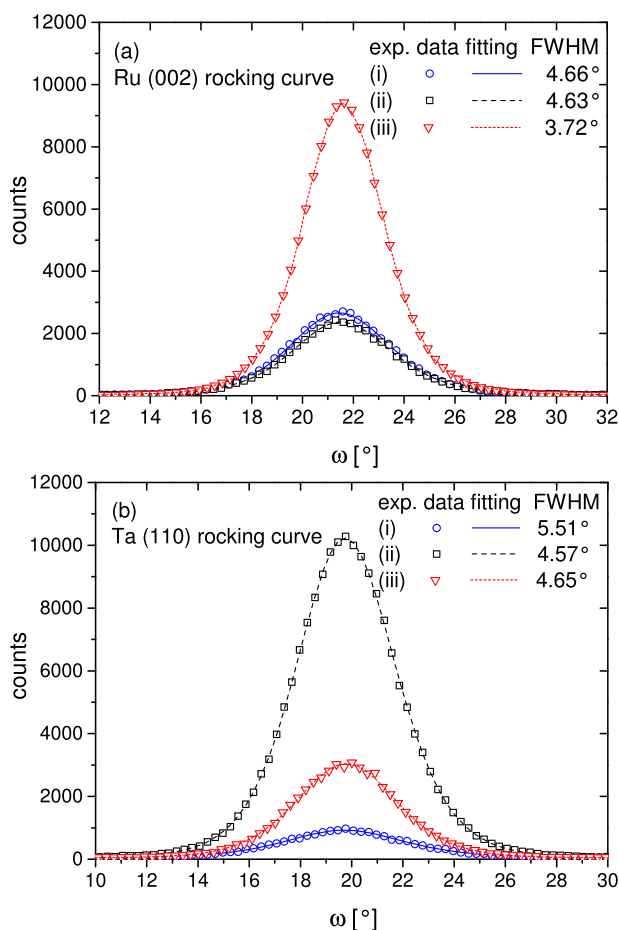


FIG. 3. XRD rocking curve measurements for (a) Ru (002) and (b) Ta (110) peaks for each buffer.

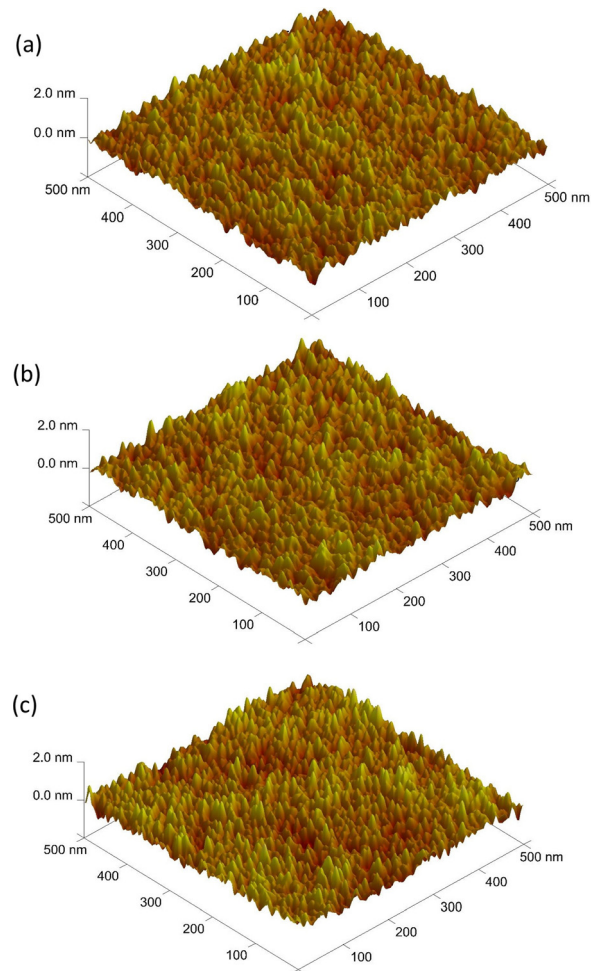


FIG. 4. AFM images of the surface topography for single ferromagnetic layer systems. The RMS is equal to (a) 0.22 nm for buffer (i), (b) 0.24 nm for buffer (ii), and (c) 0.28 nm for buffer (iii). Grains diameter is 15 nm.

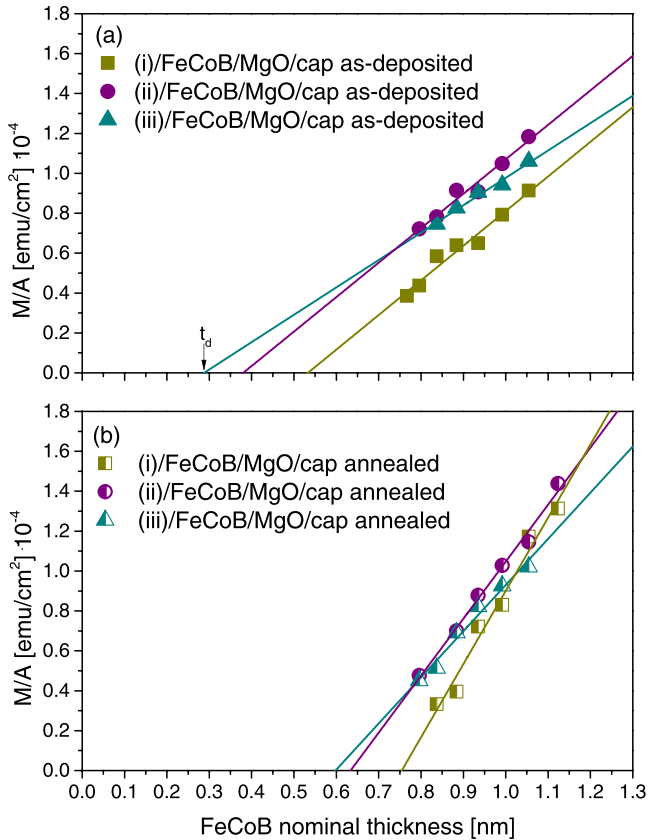


FIG. 5. Magnetic moment per unit area of FeCoB layer in the (a) as-deposited and (b) annealed *bottom* samples as a function of nominal thickness FeCoB with linear fits. The intersection point between the linear fit and the x axis is an estimated magnetic dead layer thickness t_d for each buffer.

been examined by field-induced magnetization reversal process with a p-MOKE microscope (Fig. 6).

For both as-deposited and annealed structures with buffer (i), one large domain and a smooth domain wall propagation have been observed, in contrary to the irregular domains observed for samples with buffer (iii). Such irregular domain structures are typical of films presenting a spatial dispersion of the PMA energy barriers.³² The intermediate results have been obtained in the case of buffer (ii), for which the domain image acquired for the as-deposited sample shows stripe-like, irregular domains typical for samples with thickness near the spin reorientation transition regime. After annealing, the domain size increased, indicating a uniform spin orientation perpendicular to the plane. This effect may be caused directly as a result of the atomic ordering during annealing in external magnetic field or indirectly, by changing the effective thickness of the ferromagnetic layer through the enlargement of the paramagnetic dead-layer. Because the annealing has kept a monotonic change of the FeCoB parameters for buffers (i), (ii), and (iii), below we focus only on measurements taken for the extreme cases (i) and (iii). Figure 7 shows the magnetic moment per unit area of *top* samples before and after the annealing. Clearly, the magnetic dead layer thickness in the case of *top* samples is higher than in the *bottom* ones. Results showing a similar asymmetry were obtained by means of transmission electron microscopy and secondary ion mass spectrometry measurements.^{20,33} This tendency can be explained by greater interface diffusion when Ta capping layer is sputtered on FeCoB for *top* structures, in contrast to *bottom* structures, where FeCoB is deposited on the Ta sublayer of the buffer. We assume that the mixing at the Ta-FeCoB interfaces is, in general, induced by a large negative interfacial enthalpy.

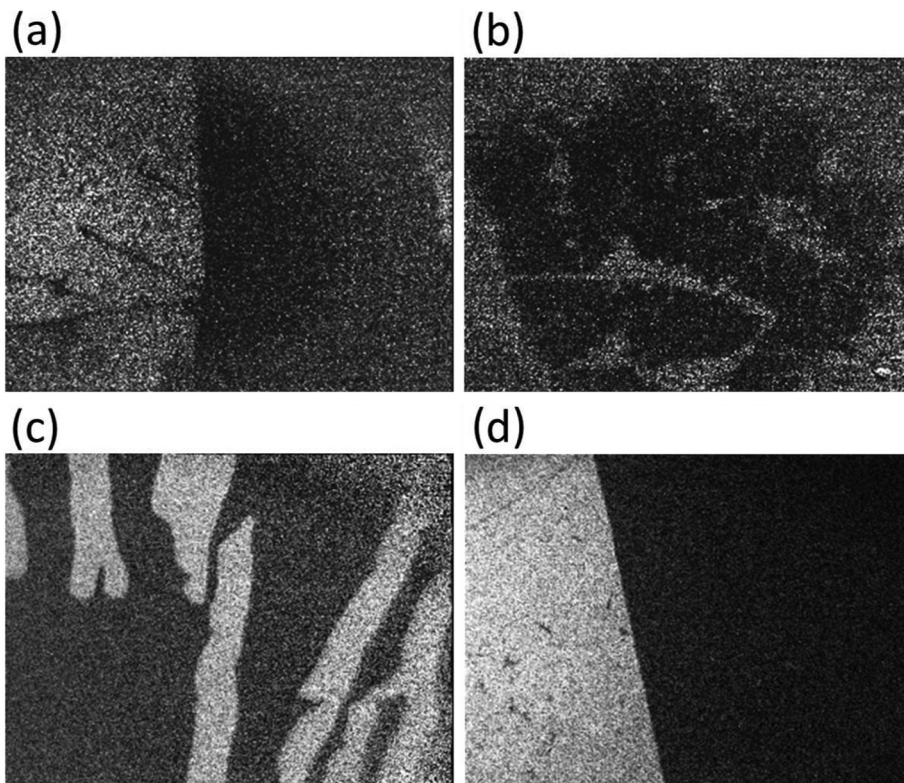


FIG. 6. MOKE images during the magnetisation reversal of *bottom* FeCoB layers for (a) buffer (i), (b) buffer (iii), (c) buffer (ii) as-deposited, and (d) buffer (ii) annealed. Images for buffers (i) and (iii) are taken from as-deposited samples.

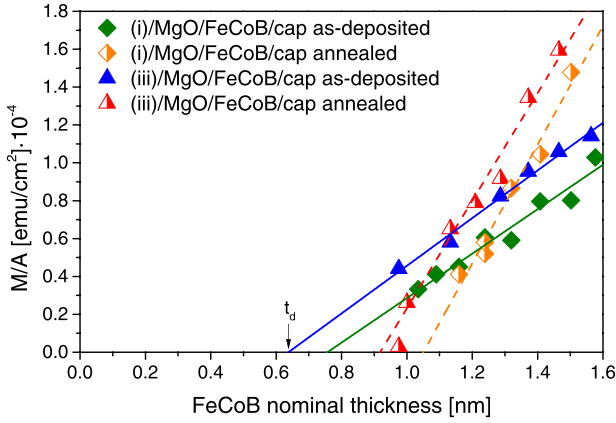


FIG. 7. Magnetic moment per unit area of FeCoB layer in the as-deposited and the annealed *top* sample as a function of nominal thickness FeCoB with linear fits.

Therefore, the larger absolute value of mixing enthalpy for Ta in Fe (-67 kJ/mol of atoms) and for Ta in Co (-109 kJ/mol of atoms) compared to that for Fe in Ta (-54 kJ/mol of atoms) and Co in Ta (-86 kJ/mol of atoms)³⁴ may partially explain the difference in dead layers thicknesses. Even more important may be the fact that during the magnetron sputtering of Ta on FeCoB, heavy Ta atoms penetrate the FeCoB layer more easily in one case than the other.

VSM measurements have shown a strong PMA in single FeCoB layer *bottom* systems and weak in-plane anisotropy in the *top* layer case. For double layer systems with MgO thickness of 1 nm, both anisotropies have preferred magnetization vectors orientation perpendicular to the sample plane. The anisotropy field H_k , estimated to be the in-plane saturation field,¹⁰ for buffer (i) has been equal to 1010 Oe (FeCoB above MgO) and 5620 Oe (FeCoB below MgO), while for buffer (iii) it has been equal to 920 Oe (FeCoB above MgO) and 5330 Oe (FeCoB below MgO). One can see that the H_k value is significantly higher in the case of FeCoB below MgO system, similarly to the single layer measurements. Additionally, buffer (i) has higher H_k values than buffer (iii).

C. Critical current and thermal stability

In order to perform CIMS experiment we have nano-patterned annealed FeCoB bilayers with MgO thickness of 1 nm and resistance-area product equal to $40 \Omega \mu\text{m}^2$, as for patterned devices of nm-scale dimensions, we can assume a constant thickness of MgO tunnel barrier, as the slope of the wedge of 0.005 nm per nm is negligible for such small structures. We note that, although the single FeCoB layer above MgO has appeared to be near the spin reorientation transition region, for bilayer nano-pillars with elliptical cross-section with the long and short axes of 270×180 nm, the shape anisotropy gives smaller contribution to the in-plane anisotropy component comparing to continuous layers and, therefore, strong effective PMA is observed (inset in Fig. 8).

An example of field hysteresis loop is depicted in the inset of Fig. 8. We have used magnetic field bias to compensate the hysteresis field shift in order to perform a CIMS experiment. TMR values up to 72% have been observed. From the current polarity, we can identify the layer above

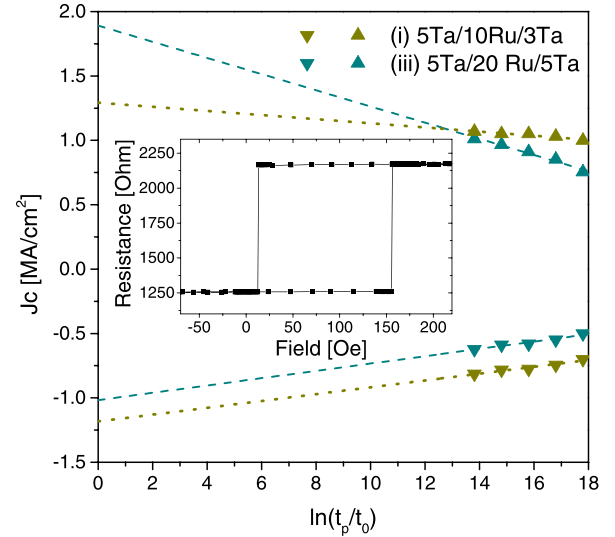


FIG. 8. Critical current densities for buffers (i) and (iii) in function of different pulse time widths. t_0 was equal to 1 ns. The perpendicular magnetic field hysteresis loop for the sample on the (i) buffer (inset).

the MgO barrier to be a free layer. The CIMS hysteresis loop has been measured for different time pulse widths in order to estimate the intrinsic critical current²⁸ (Fig. 8). Static perpendicular magnetic field was applied during current sweep in the CIMS experiment in order to compensate offset field related to coupling mechanisms and voltage induced anisotropy changes. We have performed measurements independently on a few devices and obtained similar results within an experimental error. Critical current values have been slightly better for the buffer (i) with the thickest dead layer: $J_{crit}^+ = 1.3$ MA/cm², $J_{crit}^- = 1.2$ MA/cm², and $J_{crit}^{avg} = 1.25$ MA/cm² than for the buffer (iii) with a thin dead layer: $J_{crit}^+ = 1.9$ MA/cm², $J_{crit}^- = 1.1$ MA/cm², and $J_{crit}^{avg} = 1.5$ MA/cm². Although lower critical current density values have already been reported for voltage-assisted current-induced switching^{35,36} and in fully epitaxial MgO-based MTJs,³⁷ the values presented here remain sufficiently small in context of pure current-induced switching. The thermal stability factors Δ were calculated using the formula³⁸

$$J_c = J_{crit} \left(1 - \frac{1}{\Delta} \ln \left(\frac{t_p}{t_0} \right) \right), \quad (1)$$

where J_c is the current density value for pulse time width t_p and t_0 was equal to 1 ns. Contrary to relationship between J_{crit} for investigated buffers, Δ parameters for the junctions are $\Delta^+ = 35$, $\Delta^- = 30$, and $\Delta^{avg} = 32.5$ for buffer (iii), while for buffer (i) we obtained $\Delta^+ = 81$, $\Delta^- = 45$, and $\Delta^{avg} = 63$. We note that the last value is greater than the commonly assumed limit of 40.³⁹ In other words, the sample (i) not only preserves a desirably low critical current but also even further decreases it while greatly enhancing the thermal stability.

However, the fact that sample (i) has greater thermal stability factor than sample (iii) while maintaining similarly small J_{crit} demands an explanation. We believe that such behaviour can be accounted for the smaller damping coefficient in the sample (i) that compensates for the larger energy

barrier needed for the current-induced switching originating from increased dead layer thicknesses and therefore increased perpendicular anisotropy fields. In order to confirm this hypothesis, we have conducted VNA-FMR measurements on the annealed single layer systems and calculated the damping factor α , using the standard formula⁴⁰

$$\Delta H = \Delta H_0 + \alpha \frac{4\pi f}{\gamma}, \quad (2)$$

where ΔH_0 is a frequency-independent component of line width which originates from magnetic inhomogeneities and γ is the gyromagnetic ratio. Results are presented in Fig. 9.

One can see that the measurement is in agreement with our hypothesis, as the damping factor for buffer (iii) $\alpha = 0.026$ is 44% greater than the factor for buffer (i) $\alpha = 0.018$. Regarding the results of the structural measurements, we suppose that the smaller damping originates from the smoother interface of the layers deposited on buffer (i).⁴¹

IV. SUMMARY AND CONCLUSIONS

We have investigated the influence of three different buffers on the properties of MTJs with PMA. The thinnest magnetically dead layer has been observed for buffer Ta 5 / Ru 20 / Ta 5, which has the strongest texture and the biggest roughness, and produces irregular domain images. The thickest dead layer has been observed for buffer Ta 5 / Ru 10 / Ta 3, which has the weakest texture and the smallest roughness, and produces MOKE images with one large domain. Buffer Ta 5 / Ru 10 / Ta 10 exhibited intermediate properties between the other two. What is more, we have shown that the anisotropy fields for buffer Ta 5 / Ru 10 / Ta 3 are larger than for buffer Ta 5 / Ru 20 / Ta 5.

By means of CIMS experiments, we have obtained the critical current values of 1.25 MA/cm² for Ta 5 / Ru 10 / Ta 3 and of 1.5 MA/cm² for Ta 5 / Ru 20 / Ta 5. However, there is a two-fold difference in thermal stability factors between these two buffer structures. Buffer Ta 5 / Ru 10 / Ta 3 produces Δ equal to 63. We have shown that the rough buffer with a strong texture has damping factor of 44% greater than

the smooth one. We conclude that the difference in damping factors compensates for the difference in the switching barrier heights. As a result, by adjusting buffer characteristics, one can obtain a significant increase in thermal stability factors while keeping the critical current values at a similar level. This can be important for the further optimization of the MTJs.

ACKNOWLEDGMENTS

M.F. and J.Ch. acknowledge Polish Ministry of Science and Higher Education Diamond Grant No. DI 2011001541. A.Z., M.B., J.D., H.G., J.-Ph.A., and T.S. acknowledge the NANOSPIN Grant No. PSPB-045/2010 from Switzerland through the Swiss Contribution. J.K., M.B., M.C., and W.P. acknowledge Polish National Science Center Grant No. DEC-2012/05/E/ST7/00240. W.S. acknowledges support from Foundation for Polish Science through START programme.

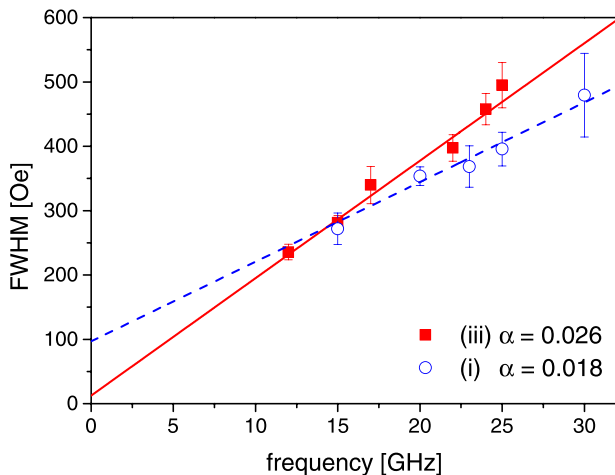


FIG. 9. VNA-FMR measurement for the annealed *top* layers on buffers (i) and (iii).

- ¹P. Wiśniowski, J. Almeida, S. Cardoso, N. Barradas, and P. Freitas, *J. Appl. Phys.* **103**(7), 07A910 (2008).
- ²H. Wei, Q. Qin, Z. Wen, X. Han, and X.-G. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **94**(17), 172902 (2009).
- ³P. Wisniowski, M. Dabek, S. Cardoso, and P. Freitas, *Sens. Actuators, A* **202**, 64–68 (2013).
- ⁴P. Wisniowski, M. Dabek, W. Skowronski, T. Stobiecki, S. Cardoso, and P. Freitas, *Appl. Phys. Lett.* **105**(8), 082404 (2014).
- ⁵S. I. Kiselev, J. Sankey, I. Krivorotov, N. Emley, R. Schoelkopf, R. Buhrman, and D. Ralph, *Nature* **425**(6956), 380–383 (2003).
- ⁶O. Boulle, V. Cros, J. Grollier, L. Pereira, C. Deranlot, F. Petroff, G. Faini, J. Barnas, and A. Fert, *Nat. Phys.* **3**(7), 492–497 (2007).
- ⁷A. M. Deac, A. Fukushima, H. Kubota, H. Maehara, Y. Suzuki, S. Yuasa, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, D. D. Jayaprawira, and N. Watanabe, *Nat. Phys.* **4**(10), 803–809 (2008).
- ⁸W. Skowronski, M. Frankowski, J. Wrona, T. Stobiecki, P. Ogrodnik, and J. Barnas, *Appl. Phys. Lett.* **105**(7), 072409 (2014).
- ⁹N. Nishimura, T. Hirai, A. Koganei, T. Ikeda, K. Okano, Y. Sekiguchi, and Y. Osada, *J. Appl. Phys.* **91**(8), 5246–5249 (2002).
- ¹⁰S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura, and H. Ohno, *Nat. Mater.* **9**(9), 721–724 (2010).
- ¹¹H. Meng and J.-P. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **88**(17), 172506 (2006).
- ¹²H. Sato, M. Yamanouchi, K. Miura, S. Ikeda, H. Gan, K. Mizunuma, R. Koizumi, F. Matsukura, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **99**(4), 042501 (2011).
- ¹³R. Sbiaa, H. Meng, and S. Piramanayagam, *Phys. Status Solidi RRL* **5**(12), 413–419 (2011).
- ¹⁴B. Tao, D. Li, Z. Yuan, H. Liu, S. Ali, J. Feng, H. Wei, X. Han, Y. Liu, Y. Zhao *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **105**(10), 102407 (2014).
- ¹⁵I. Barsukov, Y. Fu, A. Gonçalves, M. Spasova, M. Farle, L. Sampaio, R. Arias, and I. Krivorotov, *Appl. Phys. Lett.* **105**(15), 152403 (2014).
- ¹⁶C.-W. Cheng, W. Feng, G. Chern, C. Lee, and T.-h. Wu, *J. Appl. Phys.* **110**(3), 033916 (2011).
- ¹⁷Y.-J. Chang, A. Canizo-Cabrera, V. Garcia-Vazquez, Y.-H. Chang, and T.-h. Wu, *J. Appl. Phys.* **114**(18), 184303 (2013).
- ¹⁸V. Sokalski, M. T. Moneck, E. Yang, and J.-G. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **101**(7), 072411 (2012).
- ¹⁹V. Sokalski, D. M. Bromberg, M. T. Moneck, E. Yang, and J.-G. Zhu, *IEEE Trans. Magn.* **49**(7), 4383–4385 (2013).
- ²⁰S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **93**(8), 082508 (2008).
- ²¹J. Sort, B. Dieny, and J. Nogués, *Phys. Rev. B* **72**(10), 104412 (2005).
- ²²P. Wiśniowski, T. Stobiecki, J. Kanak, G. Reiss, and H. Brückl, *J. Appl. Phys.* **100**(1), 013906 (2006).
- ²³J. Kanak, T. Stobiecki, and S. van Dijken, *IEEE Trans. Magn.* **44**(2), 238–245 (2008).

- ²⁴M. Gottwald, K. Lee, J. Kan, B. Ocker, J. Wrona, S. Tibus, J. Langer, S. Kang, and E. Fullerton, *Appl. Phys. Lett.* **102**(5), 052405 (2013).
- ²⁵L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. Tseng, D. Ralph, and R. Buhrman, *Science* **336**(6081), 555–558 (2012).
- ²⁶M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani, *Phys. Rev. B* **83**(17), 174405 (2011).
- ²⁷C. Hahn, G. De Loubens, O. Klein, M. Viret, V. V. Naletov, and J. B. Youssef, *Phys. Rev. B* **87**(17), 174417 (2013).
- ²⁸H. Kubota, A. Fukushima, Y., Ootani, S. Yuasa, K. Ando, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, N. Watanabe, and Y. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2* **44**(9L), L1237 (2005).
- ²⁹J. Kanak, P. Wiśniowski, T. Stobiecki, A. Zaleski, W. Powroźnik, S. Cardoso, and P. Freitas, *J. Appl. Phys.* **113**(2), 023915 (2013).
- ³⁰S. Karthik, Y. Takahashi, T. Ohkubo, K. Hono, H. Gan, S. Ikeda, and H. Ohno, *J. Appl. Phys.* **111**(8), 083922 (2012).
- ³¹J. Sinha, M. Hayashi, A. J. Kellock, S. Fukami, M. Yamanouchi, H. Sato, S. Ikeda, S. Mitani, S. Yang, S. S. P. Parkin, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **102**(24), 242405 (2013).
- ³²M. Czapkiewicz, T. Stobiecki, and S. van Dijken, *Phys. Rev. B* **77**(2), 024416 (2008).
- ³³S. Karthik, Y. Takahashi, T. Ohkubo, K. Hono, S. Ikeda, and H. Ohno, *J. Appl. Phys.* **106**(2), 023920 (2009).
- ³⁴F. R. Boer, *Cohesion in Metals: Transition Metal Alloys* (North Holland, 1988), Vol. 1.
- ³⁵Y. Shiota, S. Miwa, T. Nozaki, F. Bonell, N. Mizuochi, T. Shinjo, H. Kubota, S. Yuasa, and Y. Suzuki, *Appl. Phys. Lett.* **101**(10), 102406 (2012).
- ³⁶W.-G. Wang, M. Li, S. Hageman, and C. Chien, *Nat. Mater.* **11**(1), 64–68 (2012).
- ³⁷J. C. Leutenantsmeyer, V. Zbarsky, S. Wittrock, M. Walter, P. Peretzki, H. Schuhmann, A. Thomas, K. Rott, G. Reiss, T. H. Kim, M. Seibt, and M. Muenzenberg, “Spin-transfer torque switching at ultra low current densities,” preprint [arXiv:1405.4172](https://arxiv.org/abs/1405.4172) (2014).
- ³⁸R. Koch, J. Katine, and J. Sun, *Phys. Rev. Lett.* **92**(8), 088302 (2004).
- ³⁹S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. M. Lee, F. Matsukura, Y. Ohno, T. Hanyu, and H. Ohno, *IEEE Trans. Electron Devices* **54**(5), 991–1002 (2007).
- ⁴⁰T. D. Rossing, *J. Appl. Phys.* **34**(4), 995–995 (1963).
- ⁴¹S. Serrano-Guisan, W. Skowronski, J. Wrona, N. Liebing, M. Czapkiewicz, T. Stobiecki, G. Reiss, and H.-W. Schumacher, *J. Appl. Phys.* **110**(2), 023906 (2011).

3.3 PODSUMOWANIE BADAŃ MAGNETYCZNYCH ZŁĄCZ TUNELOWYCH

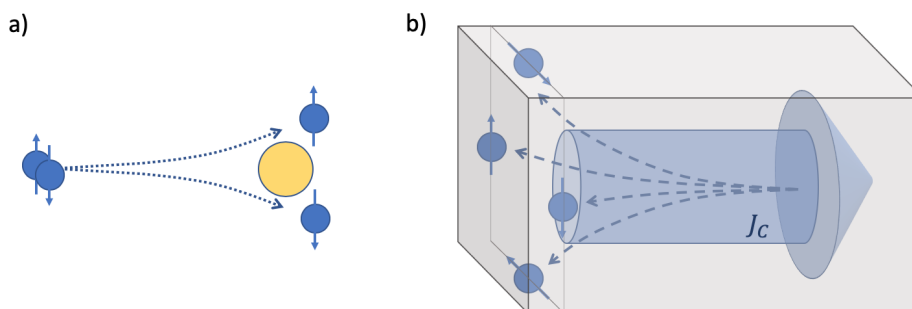
Podsumowując, w pracy [P1] badałam wpływ wybranych warstw buforowych na właściwości magnetyczne dolnej elektrody złącza MTJ z anizotropią magnetyczną w płaszczyźnie. Analizowałam wpływ struktury krystalicznej i topograficznej szorstkości powierzchni na wartości pola anizotropii magnetycznej i parametru tłumienia precesji magnetyzacji. Wysoka wartość pola anizotropii koreluje z wysokim stopniem uteksturyzowania oraz dużą szorstkością powierzchni. Natomiast najmniejsze tłumienie dynamiki namagnesowania, wyznaczone dwiema niezależnymi metodami: PIMM i SNA-FMR, otrzymałam dla układu z najgładszym, amorficznym buforem tantalowym.

W pracy [P2] koncentrowałam się na wpływie warstw buforowych zarówno na dolną elektrodę jak i na kompletny układ złącza MTJ z anizotropią prostopadłą. Wpływ warstw buforowych na parametry magnetyczne dolnej elektrody jak i parametry charakteryzujące pełne złącze MTJ prąd krytyczny J_c i stabilność termiczną Δ^{avg} przejawia się w dużej mierze w grubościach warstwy magnetycznie martwej. Dla bufora Ta o najmniejszej teksturze grubość warstwy magnetycznie martwej jest największa. Pomiedzy układami uzyskano różnice w wartościach prądów krytycznych sięgające różnicy 20% dla układu o najniższym poziomie J_c w porównaniu do układu z najwyższą wartością J_c , jednakże różnica w otrzymanych wartościach parametru stabilności termicznej Δ^{avg} jest praktycznie dwukrotna, odpowiednio: 63 i 32,5. Zatem struktura warstwowa bufora I Ta(5)/Ru(10)/Ta(3) sprzyja uzyskaniu dobrych wartości parametrów J_c i Δ^{avg} . Podobnie jest w przypadku parametru tłumienia precesji namagnesowania. Dla dobrze steksturyzowanego bufora III Ta(5)/Ru(20)/Ta(5) wartość tłumienia jest o 44 % większa niż w przypadku gładszego bufora I Ta(5)/Ru(10)/Ta(3). Optymalizując zatem parametry warstw buforowych można uzyskać wysoką wartość stabilności termicznej przy jednoczesnym utrzymaniu niskiej wartości gęstości prądu przełączania i niewielkim tłumieniu precesji magnetyzacji.

SPINOWY EFEKT HALLA W UKŁADACH METAL CIĘŻKI/FERROMAGNETYK

Spinowy efekt Halla (SHE) [10] jest spinowym odpowiednikiem zwykłego efektu Halla. W klasycznym przypadku w przewodniku, prostopadle do płaszczyzny wyznaczonej przez kierunek prądu i wektor indukcji magnetycznej, w wyniku działania siły Lorentza, pojawia się poprzeczna różnica potencjałów, zwana napięciem Halla. Natomiast, jeśli przewodnikiem jest ferromagnetyk to dodatkowo obserwowany jest wkład pochodzący od procesów występujących podczas przemagnesowania, w tym przypadku mamy do czynienia z anomalnym efektem Halla (AHE). Procesy fizyczne odpowiedzialne za AHE można podzielić na zewnętrzne (*extrinsic*): *skew scattering* [40] i *side jump scattering* [41] oraz wewnętrzny *intrinsic deflection* [42]. Procesy zewnętrzne wynikają z obecności domieszek magnetycznych lub innych centrów rozproszeniowych [Rys. 4.1 a)], natomiast procesy wewnętrzne wynikają z topologicznych własności struktury pasmowej.

Źródłami SHE są te same procesy fizyczne co w przypadku AHE, wszystkie wynikają z oddziaływania spin-orbita. Spinowy efekt Halla zachodzi w niemagnetycznych materiałach wykazujących sprzężenie spin-orbita takich jak metale ciężkie, np. Pt [43, 44], W [14, 15], Ta [15, 45, 46], WTa [47], przewodniki domieszkowane np. CuIr [48, 49], W(O) [50], AuW i AuTa [51] lub izolatory topologiczne BiSe [52, 53]. W przypadku SHE nie pojawia się jednak elektryczne napięcie Halla, dochodzi jedynie do akumulacji elektronów z przeciwnymi kierunkami spinów przy krawędziach warstwy (Rys. 4.1 b).

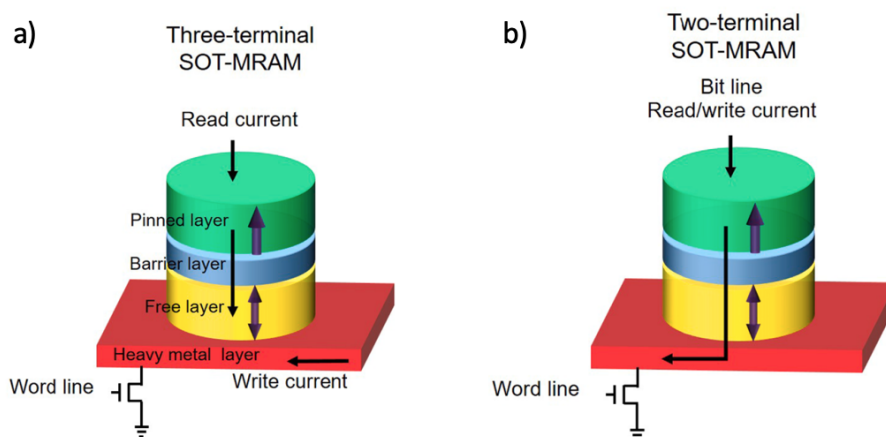


Rys. 4.1: Spinowo zależne rozpraszanie na domieszkach (a), zobrazowanie kierunkowej separacji prądów ładunkowego i spinowego (b). Rysunek sporządzony na podstawie wystąpienia dr. C. H. Backa¹.

¹ <https://www.youtube.com/watch?v=GekyqDTKbUQ&t=2903s>

Założenia teorii spinowego efektu Halla w metalach opublikował J. E. Hirsch w 1999 roku [9], natomiast jedno z pierwszych doniesień o zaobserwowaniu efektu SHE w półprzewodnikach zostało opublikowane w 2004 roku [54], gdzie do badań wykorzystano magnetoptyczny efekt Kerra. Natomiast szczegółową analizę badań eksperymentalnych i teoretycznych różnych stanów materii skondensowanej oraz opis metod pomiarowych SHE można znaleźć w przeglądowej pracy J. Sinova et al. [10].

Wstrzyknięcie wygenerowanego przez SHE prądu spinowego do warstwy ferromagnetycznej może spowodować wychylenie wektora namagnesowania lub zmianę jego kierunku bez konieczności przyłożenia zewnętrznego pola magnetycznego [55, 56]. W ten sposób można stworzyć komórkę pamięci o dostępie swobodnym opartą o MTJ i SHE, które ze względu na wzbudzony w warstwie FM torc spinowo-orbitalny nazywane są SOT-MRAM. Główną zaletą pamięci SOT-MRAM w stosunku do STT-MRAM jest większa odporność na uszkodzenia bariery tunelowej złącza MTJ. W komórkach trójterminalowych linia zapisu jest odseparowana od linii odczytu dzięki czemu przez złącze MTJ płynie jedynie niewielki prąd odczytu (Rys. 4.2 a) [4]. Możliwe jest także zaprojektowanie dwuterminalowej komórki SOT-MRAM (Rys. 4.2 b), która jednocześnie wykorzystuje efekty STT i SOT [57, 58].



Rys. 4.2: Schemat komórki pamięci SOT-MRAM trójterminalowej (a) i schemat komórki dwuterminalowej (b). Rysunek pochodzi z pracy [59].

4.1 DYNAMIKA MAGNETYZACJI WZBUDZONA ODDZIAŁYWANIEM SPINOWO-ORBITALNYM

W pracach [P3] i [P4] badane układy HM/FM charakteryzują się prostopadłą anizotropią magnetyczną, co znaczy, że w stanie remanencji wektor magnetyzacji jest prostopadły do powierzchni warstwy.

Bez zewnętrznego wymuszenia, wektor magnetyzacji warstwy ferromagnetycznej leży wzdłuż efektywnego pola magnetycznego H_{eff} , czyli w pozycji, która gwarantuje lokalne minimum energii układu:

$$H_{eff} = -\frac{\partial E}{\mu_0 M_S V \partial \hat{m}}, \quad (4.1)$$

Na całkowitą energię składa się energia anizotropii, oddziaływanie z zewnętrznym polem magnetycznym i energia od magnesowania. Przy pojawieniu się zewnętrznego wymuszenia, przykładowo w postaci przyłożonego zewnętrznego pola magnetycznego, wektor magnetyzacji wychyla się z położenia równowagi i zaczyna precesję wokół H_{eff} . Dynamikę namagnesowania opisuje równanie Landau'a-Lifshitz'a-Gilberta (LLG):

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_S} \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}, \quad (4.2)$$

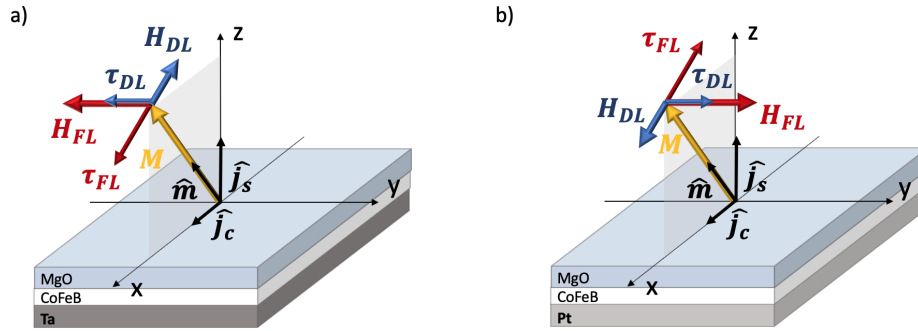
gdzie \mathbf{M} to wektor magnetyzacji próbki, γ to stała żyromagnetyczna elektronu, a M_S jest namagnesowaniem nasycenia.

Równanie LLG (4.2) składa się z dwóch członów: momentu siły wywołującego precesję wektora magnetyzacji oraz tłumienia. Człon tłumienia precesji magnetyzacji zawiera stałą tłumienia Gilberta α .

W przypadku układów HM/FM w których wygenerowany w warstwie metalu wykazującego sprzężenie spinowo-orbitalne prąd spinowy, równanie LLG posiada dodatkowy człon zawierający indukowane prądem momenty siły - torki *damping-like* i *field-like*:

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) + \frac{\alpha}{M_S} (\mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}) - \gamma (\boldsymbol{\tau}_{DL} + \boldsymbol{\tau}_{FL}), \quad (4.3)$$

gdzie $\boldsymbol{\tau}_{DL} = H_{DL}[\hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times (\hat{\mathbf{j}}_s \times \hat{\mathbf{j}}_c)]$ to tork *damping-like*, $\boldsymbol{\tau}_{FL} = H_{FL}[\hat{\mathbf{m}} \times (\hat{\mathbf{j}}_s \times \hat{\mathbf{j}}_c)]$ to tork *field-like*, $\hat{\mathbf{m}} = \frac{\mathbf{M}}{M_S}$ to wersor magnetyzacji, $\hat{\mathbf{j}}_s$ i $\hat{\mathbf{j}}_c$ to odpowiednio wersory wektorów gęstości prądów: spinowego i ładunkowego, iloczyn $\hat{\mathbf{j}}_s \times \hat{\mathbf{j}}_c$ określa kierunek polaryzacji prądu spinowego na interfejsie.



Rys. 4.3: Indukowane prądem spinowym (SHE) torki *damping-like* $\boldsymbol{\tau}_{DL}$ i *field-like* $\boldsymbol{\tau}_{FL}$ oddziałujące na wektor magnetyzacji warstwy FM oraz odpowiadające im pola efektywne H_{DL} i H_{FL} dla układów HM/FM/MgO, gdzie warstwa HM wykazuje ujemny kąt Halla np. Ta (a) i dodatni np. Pt (b).

Oddziałują one na precesję wektora magnetyzacji analogicznie do przyłożonego zewnętrznego pola magnetycznego o danym kierunku i natężeniu (Rys. 4.3), dlatego opisuje się je jako pola efektywne odpowiednio H_{FL} i H_{DL} . Prąd w warstwie niemagnetycznej wywołuje także składową pola Oersted $H_{Oe} \approx j_{HM} t_{HM} / 2$, którą należy uwzględnić przy wyznaczaniu składowej *field-like* [44]. W pierwszym przybliżeniu, w układach HM/FM wartości momentów nie powinny zależeć od grubości warstwy ferromagnetycznej. Energia potrzebna na przełączenie jest proporcjonalna do objętością warstwy FM, zatem w

zakresie drogi dyfuzji spinu, mierzony za pomocą pól H_{FL} i H_{DL} wpływ SOT na magnetyzację będzie malał wraz ze wzrostem grubości t_{FM} . Unormowane względem gęstości prądu płynącego przez metal ciężki j_{HM} (w pracy [P4] oznaczony jako j_N) pola efektywne H_{DL} i H_{FL} są wprost proporcjonalne do parametrów efektywności *spin-torque efficiencies* $\zeta_{DL(FL)}$ i zdefiniowane jako:

$$\zeta_{DL(FL)} = \frac{2e}{\hbar} \mu_0 M_S t_{FM} \frac{H_{DL(FL)}}{j_{HM}}, \quad (4.4)$$

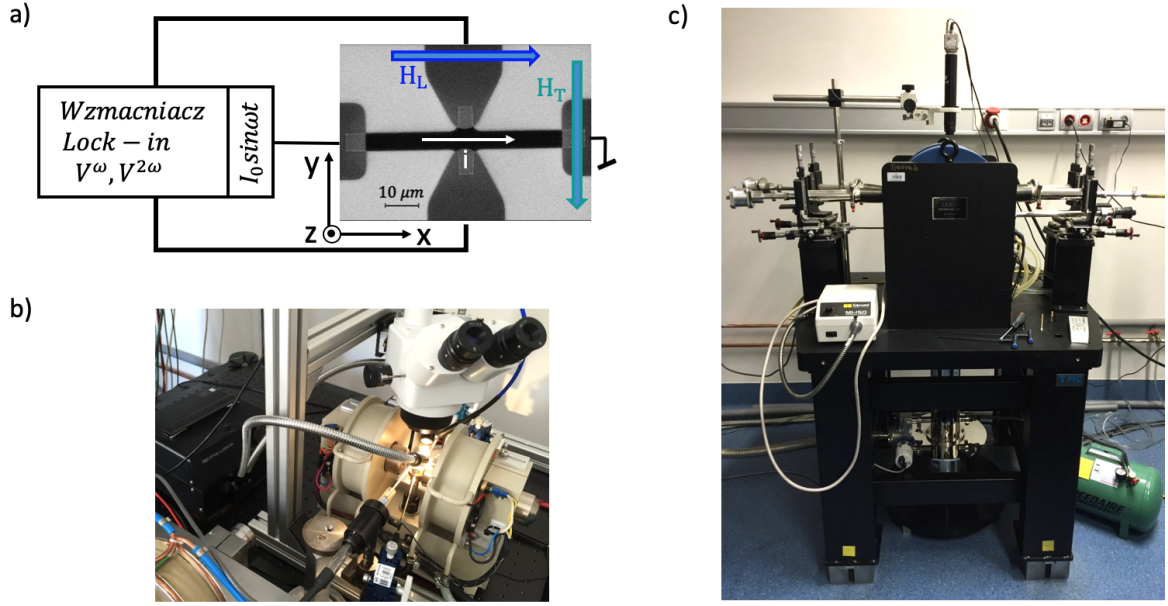
gdzie M_S to wartość magnetyzacji nasycenia, t_{FM} grubość warstwy ferromagnetycznej a j_{HM} to gęstość prądu w warstwie metalu ciężkiego.

Efektywność *damping-like* ζ_{DL} wyraża stosunek efektywnego prądu spinowego absorbowanego przez warstwę ferromagnetyczną do prądu ładunkowego przepływającego przez warstwę metalu ciężkiego, tak zwany efektywny spinowy kąt Halla. Znak kąta Halla jest zależny od kierunku polaryzacji spinowej [54]. Przykładowo Ta i W wykazują ten sam kierunek polaryzacji, oznaczany jako ujemny kąt Halla (Rys. 4.3 a), w przeciwieństwie do Pt i Ir o dodatnim kącie Halla (Rys. 4.3 b). Parametry efektywności $\zeta_{DL(FL)}$ umożliwiają porównanie wielkości oddziaływań spinowo-orbitalnych w układach z różnymi metalami ciężkimi, należy jednak zwrócić uwagę na sposób wyznaczania prądu j_{HM} w układach warstw HM/FM. Do wyznaczenia parametru efektywnego kąta Halla powinien być brany pod uwagę prąd w metalu ciężkim. W układach HM/FM mamy rozptyw prądu w postaci połączenia równoległego rezystorów. Dlatego, w celu dokładnego wyznaczenia gęstości prądu płynącego przez metal ciężki wykonaliśmy dodatkowe próbki celem wyznaczenia rezystywności badanych materiałów.

4.2 METODA HARMONICZNYCH DO WYZNACZENIA PÓŁ EFEKTYWNYCH DL I FL

Wykorzystywana w pracach [P3] i [P4] metoda harmonicznym anomalnego napięcia Halla, służąca do wyznaczania pól efektywnych oddziaływań spinowo-orbitalnych, polega na detekcji harmonicznym napięcia Halla będącej odpowiedzią na wymuszenie prądem *ac* o niskiej, zazwyczaj do kilku kHz, częstotliwości w zewnętrznym polu magnetycznym przykładanym wzdłuż kierunku przepływu prądu i poprzecznie (Rys. 4.4 a). Pierwsza harmoniczna ma taki sam przebieg dla pomiarów w polach H_L i H_T (Rys. 4.5, przebieg czarny). Natomiast druga harmoniczna jest reprezentowana przez różniące się między sobą dla pól H_L i H_T przebiegi (Rys. 4.5, kolor niebieski i granatowy) i jest wynikiem homodynowego mieszania prądu wolnozmiennego z rezystancją Halla modulowaną przez oscylacje magnetyzacji indukowane SOT. W pierwszej opublikowanej pracy prezentującej wyniki pomiarów badań metodą harmonicznym, uwzględniono wyłącznie *fild-like torque*, pomijając *damping torque* oraz planarny efekt Halla PHE [60]. Kolejne prace rozszerzyły metodę uwzględniając zarówno efekty AHE jak i PHE [44, 61, 62].

Dynamika magnetyzacji jest znacznie szybsza od częstotliwości używanego prądu przemienne, dlatego przyjmuje się ustawienie wektora magnetyzacji jako wypadkową pola anizotropii, zewnętrznego pola magnetycznego oraz pól indukowanych prądem. Za-



Rys. 4.4: Schemat układu pomiarowego 1. i 2. harmonicznej napięcia Halla (ω i 2ω), zewnętrzne pole magnetyczne skierowane wzdłuż osi $\pm x$ i $\pm y$ to odpowiednio H_L (indeks \parallel) i H_T (indeks \perp). Zdjęcie paska Halla wykonane skaningowym mikroskopem elektronowym (a), zdjęcia stacji pomiarowej dla badań w temperaturze pokojowej (b) i kriostatu do badań w niskich temperaturach (c).

leżna od czasu rezystancja Halla $R_{xy}(t)$ dla składowej prądu pierwszego rzędu, zgodnie z [63], jest opisana wzorem:

$$R_{xy}[H_{ext} + H_I(t)] \approx R_{xy}(H_{ext}) + \frac{\partial R_{xy}}{\partial H_I} H_I \sin(\omega t), \quad (4.5)$$

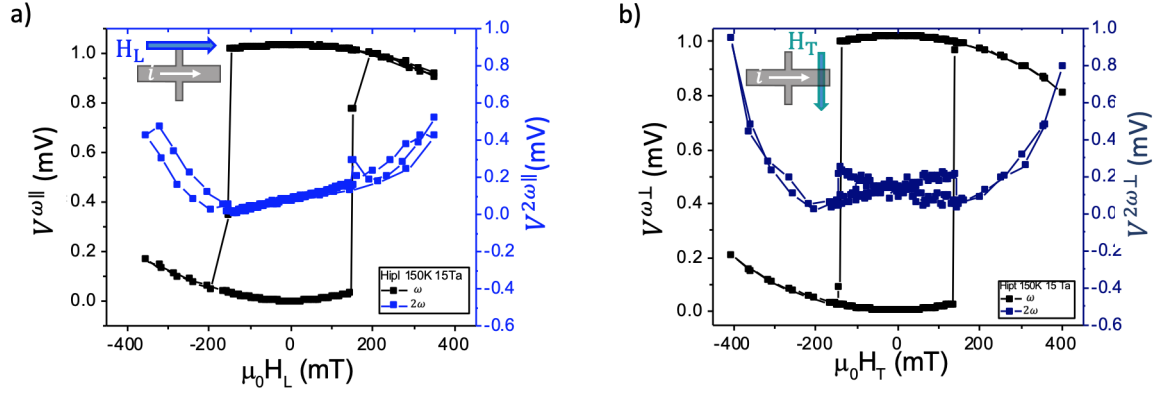
gdzie H_{ext} to zewnętrzne pole magnetyczne a $H_I = H_{DL} + H_{FL} + H_{Oe}$ to efektywne pole indukowane prądem będące sumą składowych *damping-like* i *field-like* SOT oraz pola Oersteda. Pierwsza i druga harmoniczna sygnału oznaczona jest odpowiednio ω i 2ω (w pracy [P4] stosowane są oznaczenia $1f$ i $2f$). Definiując napięcie Halla $V_{xy}(t) = R_{xy}(t)I_0 \sin(\omega t)$, gdzie I_0 jest amplitudą prądu, otrzymujemy:

$$V_{xy}(t) \approx I_0[R_{xy}^0 + R_{xy}^\omega \sin(\omega t) + R_{xy}^{2\omega} \cos(2\omega t)], \quad (4.6)$$

$$V_{xy}(t) \approx V_0 + V^\omega \sin(\omega t) + V^{2\omega} \cos(2\omega t), \quad (4.7)$$

gdzie $R_{xy}^0 = \frac{1}{2} \frac{dR_{xy}}{dB_I} H_I$, $R_{xy}^\omega = R_{xy} B_{ext}$, $R_{xy}^{2\omega} = \frac{1}{2} H_I + R_{\nabla T}^{2\omega}$ (w warunkach izotermicznych $R_{xy}^{2\omega} = \frac{1}{2} H_I$) to odpowiednio zerowa, pierwsza i druga harmoniczna rezystancji Halla. Przebieg pierwszej harmonicznej w funkcji zewnętrznego pola jest analogiczny do rezystancji Halla. Czynniki drugiej harmonicznej zawiera zmodulowaną SOT rezystancję Halla, oraz dodatkowy czynnik od efektów termicznych $R_{\nabla T}^{2\omega}$ pomijany w warunkach izotermicznych [64].

W celu wyznaczenia pól efektywnych H_{DL} i H_{FL} (w [P3] i [P4] oznaczone jako ΔH_{DL} i ΔH_{FL}) w przypadku układów z anizotropią prostopadłą, wystarczy w warunkach oscylacji



Rys. 4.5: Przebiegi dla 1. i 2. harmonicznej (ω i 2ω) w polach H_L (a) i H_T (b) dla próbki $Ta(15)/Co_{40}Fe_{40}B_{20}(t_{FM})/MgO(5)/Ta(3)$, pomiary przeprowadzone w temperaturze 150 K [P4].

małego kąta względem osi z [44], wykonać pomiary napięć harmonicznych w kierunkach L i T (Rys.4.4 a) [61, 62]:

$$H_{DL} = -2 \frac{B_X \pm 2rB_Y}{1 - 4r^2}, \quad (4.8)$$

$$H_{FL} + H_{Oe} = -2 \frac{B_Y \pm 2rB_X}{1 - 4r^2}, \quad (4.9)$$

gdzie $B_{X,Y} = \frac{\partial V^{2\omega}}{\partial H_{L,T}} / \frac{\partial^2 V^{1\omega}}{\partial H_{L,T}^2}$ to współczynniki wyznaczone z pierwszej i drugiej harmonicznej napięcia Halla przy zewnętrznym polu magnetycznym, odpowiednio H_L i H_T , r to stosunek planarnej do anomalnej rezystancji Halla: $r = \Delta R_{PHE} / \Delta R_{AHE}$ (w pracy [P4] r oznaczone jako ζ). Dla układu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ (praca [P3]) r jest wysoki i wynosi 30%, co zostało uwzględnione przy wyznaczaniu pól efektywnych H_{DL} i H_{FL} . W przypadku układów $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$ (praca [P4]) r wynosi 0,3%.

Przy niewielkich wartościach r równania 4.8 i 4.9 można uprościć do postaci:

$$H_{DL,FL} = -2 \frac{\partial V^{2\omega}}{\partial H_{L,T}} / \frac{\partial^2 V^{1\omega}}{\partial H_{L,T}^2}. \quad (4.10)$$

Do przebiegu pierwszej harmonicznej, w obszarze pomiędzy przełączeniami kierunku magnetyzacji, dopasowywana jest parabola ([P3] Fig. 3 b, [P4] Fig. 7 b), natomiast druga harmoniczna dla obu pól jest, w wyznaczonym przez przełączenie zakresie, linią prostą ([P3] Fig. 3 c, d, [P4] Fig. 7 b). Pomiary przeprowadzano na stanowisku do badań w temperaturze pokojowej (Rys.4.4 b) jak i w kriostacie umożliwiającym pomiary w niskich temperaturach (Rys.4.4 c).

4.3 ZALEŻNOŚĆ TEMPERATUROWA SPINOWEGO EFEKTU HALLA W UKŁADZIE $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$

W pracy [P3] badane były układy HM/FM , z anizotropią prostopadłą, o różnej grubości warstwy metalu ciężkiego $W(t_W)/Co_{12}Fe_{68}B_{20}(1.3)/MgO(2.5)/Ta(4)$, gdzie $t_W = 2, 4, 6$ nm. Celem badań było wyznaczenie zależności pól efektywnych i wydajności *SOT field-like* i *damping-like* od temperatury, oraz zbadanie wpływu interfejsu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ na parametry *SOT*. Wolfram jest metalem ciężkim wykazującym wyjątkowo silne sprzężenie spin-orbita, jednak wartość spinowego kąta Halla θ_{SH} silnie zależy od fazy do której krystalizuje w trakcie nanoszenia. Warstwy W o grubościach $t_W = 2$ nm i 4nm posiadały wysokorezystywną fazę β ([P3] Fig. 1 a), która jest niezbędna do uzyskania anizotropii prostopadłej *PMA* w warstwie $Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ i dużych wartości θ_{SH} (efektywności *damping-like*). Przy większych grubościach wolframu dochodzi do przejścia fazowego, dla grubości $t_W = 6$ nm niskorezystywna faza α staje się dominująca co skutkuje brakiem *PMA* w temperaturze pokojowej. Dla grubości pośredniej $t_W = 4$ nm zaobserwowaliśmy stopniową rotację namagnesowania, co utrudnia w wyższych temperaturach wyznaczenie efektywnych pól *damping-like* i *field-like* (pętla histerezy *AHE* nie jest prostokątna, [P3] Fig. 2). Z tego względu dalsze badania zostały przeprowadzone dla układu z $t_W = 2$ nm. W temperaturze pokojowej składowa podłużna *damping-like* wyniosła $\xi_L = 0,25$, wraz ze spadkiem temperatury odnotowaliśmy znaczący wzrost obu składowych: podłużnej *damping-like* i poprzecznej *field-like*, ([P3] Fig.4). W temperaturze 19 K składowa podłużna osiąga $\xi_L = 0,55$ ([P3] Fig.4b), będąc w tym czasie najwyższą wartością kąta Halla opublikowaną dla W . Wysoka wartość oddziaływania spin-orbita w układzie $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ może wynikać ze znaczącego wpływu efektów interfejsowych pochodzących na przykład od efektu Rashby [10], również domieszki metali ciężkich w interfejsie *HM/FM* mogą zwiększać sprzężenie spin-orbita [65, 66]. Przeprowadzone pomiary skaningowej transmisyjnej mikroskopii elektronowej *STEM*, Z-kontrastu oraz *XRR* ([P3] Fig.5 a) - c)) potwierdzają silne wymieszanie na interfejsie, którego szorstkość wynosi $\lambda_{W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}} = 0,57$ nm. Dla porównania szorstkość na styku $Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ wynosi $\lambda_{Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO} = 0,18$ nm. Rozmycie interfejsu nie jest wynikiem wygrzewania układu, pojawia się już podczas wzrostu warstw.

4.4 WPŁYW EFEKTÓW INTERFEJSOWYCH NA ZALEŻNOŚĆ TEMPERATUROWA SPINOWEGO EFEKTU HALLA W UKŁADZIE $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$

Praca [P4] przedstawia wyniki badań przeprowadzonych na układach wielowarstwowych z anizotropią prostopadłą $Ta(t_{Ta})/Co_{40}Fe_{40}B_{20}(t_{FM})/MgO(5)/Ta(3)$, gdzie $t_{Ta} = 5, 10, 15$ nm, $t_{FM} = 0,8 - 1,5$ nm (w pracy [P4] grubości warstw oznaczone są literką *d*). Celem pracy było zbadanie wpływu zarówno wymieszania na interfejsie *HM/FM*, jak i struktury krystalicznej układu na parametry *SOT*. Warstwy Ta o grubościach 10 nm i 15 nm wykazywały wysokorezystywną, tetragonalną fazę β , podczas gdy Ta o grubości 5 nm był amorficzny ([P4] Fig. 1). W obszarze interfejsowym, podobnie jak w przypadku

interfejsu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$, podczas nanoszenia dochodzi do wymieszania Ta i $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$. Największą szorstkość (wymieszanie dyfuzyjne) interfejsu zmierzaliśmy za pomocą pomiarów [XRR](#) dla układu o $t_{Ta} = 5nm$, wartość [RMS](#) wynosi $\lambda_{Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}} = 0,57nm \pm 0.02nm$, dla $t_{Ta} = 10nm$ $\lambda_{Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}} = 0,53nm \pm 0.02nm$, a dla $t_{Ta} = 15nm$ $\lambda_{Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}} = 0,51nm \pm 0.02nm$. Pomiary [HRTEM](#), [STEM](#) i Z-kontrastu potwierdzają wzajemną silną dyfuzję Ta i $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ ([\[P4\]](#) Fig. 3 i 4). Większe wymieszanie dla cieńszego Ta wynika z faktu iż stykają się dwie warstwy amorficzne.

Pomiary spinowego efektu Halla metodą harmonicznym przeprowadziłam w zakresie temperatury od 20 K do 300 K ([\[P4\]](#) Fig.8). W przeciwieństwie do układu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$, dla którego obie składowe rosły wraz ze zmniejszaniem temperatury, moduł składowej *field-like* maleje wraz ze spadkiem temperatury podczas gdy *damping-like* rośnie. Zaproponowany w pracy model transportu spinowego rozpatruje interfejs jako osobną warstwę o własnych parametrach drogi dyfuzji spinu i spinowego kąta Halla. Głównym zadaniem zaadaptowanego modelu było wyznaczenie efektywnego kąta Halla osobno dla warstwy Ta (w pracy [\[P4\]](#) oznaczonej literą N - niemagnetyczna) i warstwy interfejsowej (I) $\Theta_{SH} = \Theta_{SH}(\theta_{SH}^N, \theta_{SH}^I)$. Efektywny kąt Halla dla Ta utrzymuje się na stałym poziomie $\theta_{SH}^N = -0,2$ podczas gdy kąta Halla dla interfejsu zmienia znak pomiędzy temperaturami 150-250 K ([\[P4\]](#) Fig. 9). Zmiana znaku może oznaczać konieczność rozpatrywania spinowego kąta Halla warstwy interfejsowej jako wypadkowego współczynnika konwersji, który jest zależny zarówno od niemagnetycznej warstwy [HM](#) jak i warstwy ferromagnetycznej. Dodatkowo, wpływ mogą mieć jeszcze inne procesy zależne od temperatury wpływające na utratę pamięci spinowej *spin memory loss* [SML](#) [\[67, 68\]](#).

PUBLIKACJA [P3]

W. Skowroński, **M. Cecot**, J. Kanak, S. Ziętek, T. Stobiecki, L. Yao, S. Van Dijken, T. Nozaki, K. Yakushiji and S. Yuasa, 'Temperature dependence of spin-orbit torques in W/CoFeB bilayers', *Applied Physics Letters*, vol. 109, no. 6, p. 062 407, 2016.

Temperature dependence of spin-orbit torques in W/CoFeB bilayers

Witold Skowroński,^{1,a)} Monika Cecot,¹ Jarosław Kanak,¹ Sławomir Ziętek,¹ Tomasz Stobiecki,¹ Lide Yao,² Sebastiaan van Dijken,² Takayuki Nozaki,³ Kay Yakushiji,³ and Shinji Yuasa³

¹AGH University of Science and Technology, Department of Electronics, Al. Mickiewicza 30, 30-059 Kraków, Poland

²NanoSpin, Department of Applied Physics, Aalto University School of Science, P.O. Box 15100, FI-00076 Aalto, Finland

³Spintronics Research Center, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

(Received 19 April 2016; accepted 30 July 2016; published online 12 August 2016)

We report on the temperature variation of spin-orbit torques in perpendicularly magnetized W/CoFeB bilayers. Harmonic Hall voltage measurements in perpendicularly magnetized CoFeB reveal increased longitudinal and transverse effective magnetic field components at low temperatures. The damping-like spin-orbit torque reaches an efficiency of 0.55 at 19 K. Scanning transmission electron microscopy and X-ray reflectivity measurements indicate that considerable interface mixing between W and CoFeB may be responsible for strong spin-orbit interactions. *Published by AIP Publishing.* [<http://dx.doi.org/10.1063/1.4960793>]

Efficient manipulation of magnetization using electrical signals at the nanoscale will further the development of next generation magnetic memories, logic,¹ and microwave devices.² The spin Hall effect³ and Rashba effect⁴ are intensively studied, as they produce effective magnetic fields that can be used to switch the magnetization of magnetic nano-pillars,⁵ excite microwave oscillations in nano-discs,⁶ or induce magnetic domain-wall motion in nanowires.⁷ Quantitatively, spin-orbit torques are characterized by the spin Hall angle (θ_H), which is a measure of the ratio between spin current density (J_s) and charge current density (J_c). Different heavy metal/ferromagnet bilayers have been proposed as the source of spin-orbit torques, including Ta,⁸ Hf,⁹ Pt,¹⁰ CuIr,¹¹ and W,^{12,13} with W exhibiting the largest θ_H to date. Recent work on oxidized W has also revealed promising results.¹⁴ Studies on the symmetry of spin-orbit torques pointed out different contributions to the effective magnetic field arising from the bulk spin Hall effect and interface Rashba interactions.¹⁵ In addition, it has been shown that the interface between heavy metal and ferromagnetic layers strongly affects both θ_H ¹⁶ and the spin diffusion length.¹⁷

In this letter, we report on effective magnetic fields arising from spin-orbit interactions in W/CoFeB/MgO system. Transverse and longitudinal torques are measured in a temperature range from 19 to 300 K. Contrary to Ta buffers,¹⁸ we find that both transverse and longitudinal torque magnitudes increase with decreasing temperature, with the longitudinal torque reaching an efficiency of 0.55 at 19 K. Considerable mixing between W and CoFeB is measured by scanning transmission electron microscopy (STEM) and X-ray reflectivity (XRR) analysis, which may be responsible for strong spin-orbit interactions in W/CoFeB bilayers.

The investigated samples consisted of sputter-deposited multilayers with the following structure: W(t_W)/Co₁₂Fe₆₈B₂₀ (1.3)/MgO(2.5)/Ta(4) (thicknesses in nm), with $t_W = 2, 4$, and

6 nm. After deposition, the samples were measured using vibrating sample magnetometry (VSM), X-ray diffraction (XRD), and XRR, and they were successively annealed in a high vacuum chamber. Microstructure analysis was performed using a JEOL 2200FS TEM with double Cs correctors, operated at 200 keV. Cross-sectional TEM specimens were prepared by a MultiPrep polishing machine (Allied High-Tech) and Ar ion milling. Selected samples were patterned using e-beam lithography, ion-beam etching, and lift-off processes into 70 μm long Hall bars of different width spannings from 1 to 40 μm . During microfabrication, electrical contacts with a dimension of 100 \times 100 μm were deposited and most of the Ta top layer was etched away leaving only a thin oxidized layer as protection.

The resistivity of the samples was measured using a four-probe method, both for as-deposited devices (with in-plane magnetic anisotropy) and annealed ones (with effective perpendicular magnetic anisotropy - PMA). The harmonic Hall voltage measurements were carried out using lock-in amplification in a Janis cryogenic probe station equipped with an electromagnet. During these experiments, the temperature was varied between 19 and 300 K. Measurements were performed for various magnetic field orientations: perpendicular to the sample plane (along z axis - i.e., anomalous Hall effect (AHE) configuration), longitudinal to the stripe (along x axis), and transverse to the stripe (along y axis).

First, the crystallographic phases of W with different layer thicknesses ($t_W = 2, 4$, and 6 nm) were determined using XRD measurements. The θ - 2θ scans of Fig. 1(a) reveal that the β -tungsten phase is present in all samples, whereas a clear α -tungsten reflection is visible only for the sample with a 6 nm thick W layer. The same conclusion can be drawn from four-point resistivity measurements. Assuming a CoFeB resistivity of 113 $\mu\Omega\text{cm}$ (measured independently) and a parallel resistor model, the calculated W resistivity (ρ_W) amounts to 128 and 105 $\mu\Omega\text{cm}$ for $t_W = 2$ nm and 4 nm, respectively, but it decreases significantly to 36 $\mu\Omega\text{cm}$ for $t_W = 6$ nm,

^{a)}Electronic mail: skowron@agh.edu.pl

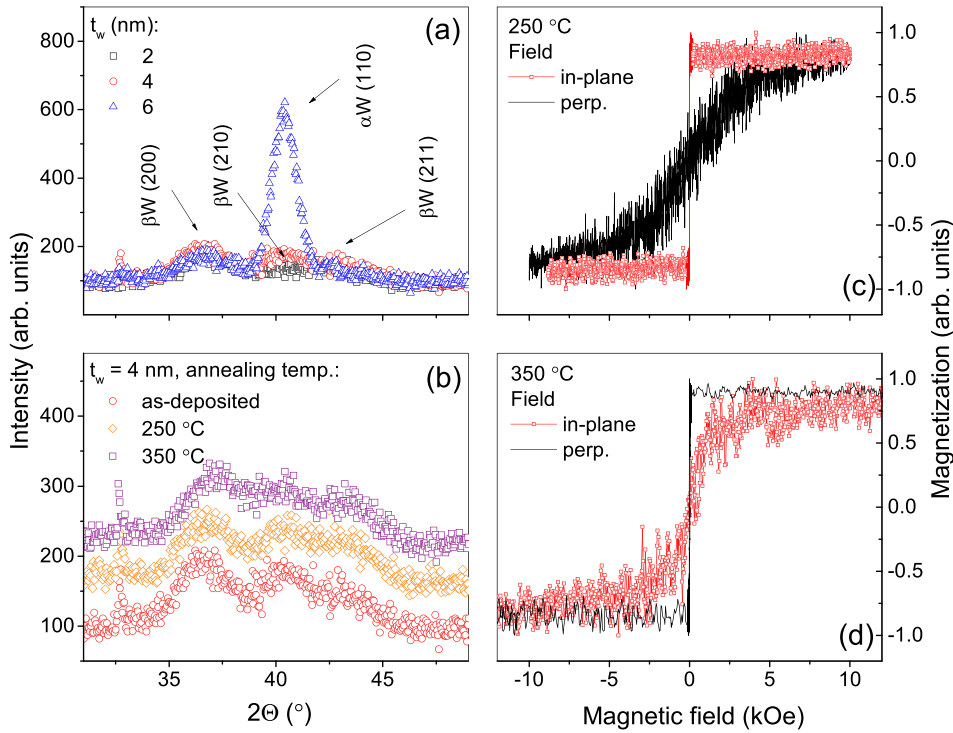


FIG. 1. XRD θ - 2θ scans for as-deposited samples with different t_W (a) and for annealed samples with $t_W = 4$ nm (b) - curves are offset for clarity. In-plane and perpendicular magnetization curves for the sample with $t_W = 4$ nm after annealing at 250 °C (c) and 350 °C (d).

supporting the presence of a low-resistive α -tungsten phase.¹⁹ We also verified that α -tungsten does not form in the thinner W layers during annealing (Fig. 1(b)). Because the β -tungsten phase is crucial for obtaining PMA and large spin Hall angles,²⁰ we focus on the thinner W buffers only. We note that the resistivity of W/CoFeB bilayers did not change (within experimental error) upon annealing.

Independently, the magnetic properties of the deposited stacks were verified using VSM. Exemplary magnetic hysteresis loops for $t_W = 4$ nm are presented in Fig. 1. The measurements indicate a transition from in-plane anisotropy to PMA after annealing at 350 °C, which is consistent with our earlier work.²¹

Next, the AHE of samples with $t_W = 2$ and 4 nm were measured in perpendicular magnetic field (Fig. 2). Although both W layers induce PMA in CoFeB, the switching for $t_W = 2$ nm is more abrupt compared to $t_W = 4$ nm. This effect, which can be attributed to more gradual magnetization rotation or magnetic domain formation,²² hampers the extraction of effective magnetic fields. We note that this behavior persists even at low temperatures (inset in Fig. 2), ruling out superparamagnetism in 1.3 nm thick CoFeB as its origin. Because of the dependence of PMA on buffer thickness, we limit our discussion to effective magnetic fields in W/CoFeB bilayers with $t_W = 2$ nm. For thicker buffers, the PMA was too weak to reliably measure the effective fields.

Figure 3 shows AHE and harmonic Hall voltages at $T = 19$ K for the sample with $t_W = 2$ nm. The first harmonic Hall voltage signal measured in a magnetic field applied longitudinal to the Hall bar (H_L) exhibits a parabolic shape and it was fitted using a quadratic function for the magnetization pointing along $+z$ and $-z$ directions. Results for a magnetic field applied transverse to the long axis of the Hall bar (H_T) are almost identical (not shown). Likewise, the second harmonic signal was fitted using a linear function for both

perpendicular magnetization directions. In this case, the two fitted lines are either symmetric (measurement along H_L - Fig. 3(c)) or asymmetric (measurement along H_T - Fig. 3(d)) with respect to the polarity of magnetic field. The model presented in Ref. 23 was used to calculate the effective longitudinal ΔH_L and transverse ΔH_T magnetic fields

$$\Delta H_{L(T)} = -2 \frac{B_{L(T)} \pm 2rB_{T(L)}}{1 - 4r^2} \quad (1)$$

$$B_{L(T)} = -2 \frac{\partial V^{2\omega}}{\partial H_{L(T)}} \bigg/ \frac{\partial^2 V^{1\omega}}{\partial H_{L(T)}^2},$$

where r is the ratio of planar Hall resistance (PHR) to anomalous Hall resistance (AHR) and the \pm sign corresponds to the perpendicular magnetization direction. We measured a

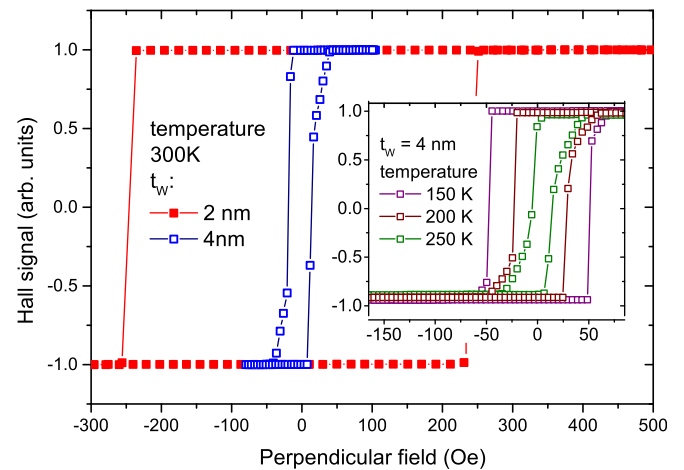


FIG. 2. AHE vs. perpendicular magnetic field measured at room temperature for samples with $t_W = 2$ (full symbols) and 4 nm (open symbols). The inset presents the AHE signal for $t_W = 4$ nm measured at various temperatures.

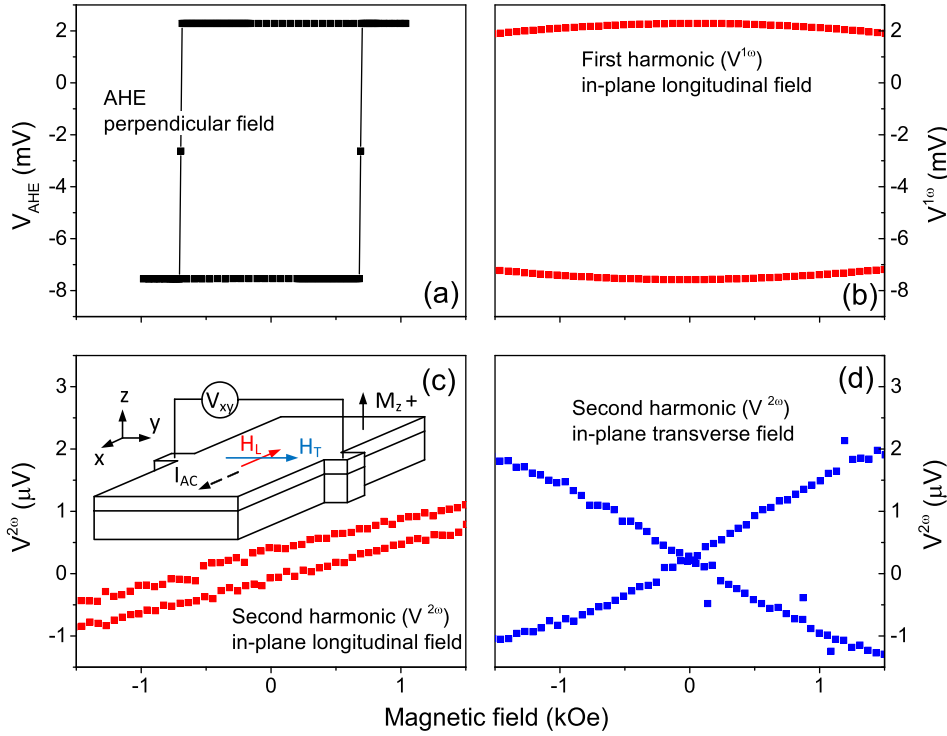


FIG. 3. (a) AHE vs. perpendicular magnetic field, (b) first harmonic Hall voltage vs. longitudinal in-plane field, (c) and (d) second harmonic Hall voltage vs. longitudinal and transverse field, respectively, obtained at $T = 19$ K for $t_W = 2$ nm. Note that the first Harmonic Hall voltage signal is similar to (b). The inset in (c) shows the harmonic Hall voltage measurement configuration.

relatively large PHR/AHR ratio of $r = 0.3$,²⁴ which was included in our analysis of spin-orbit torques.

Using a parallel resistor model, we calculated the current density in the W buffer layer as $J_c = 2.17 \times 10^{10} \text{ A/m}^2$. J_c drops by about 3% at $T = 19$ K with respect to the room temperature value, as the resistance increases with decreasing temperature. This negative temperature coefficient is explained by the existence of an amorphous phase in the W buffer and will be discussed in detailed elsewhere. The data presented here were measured in a $10\text{-}\mu\text{m}$ -wide stripe; however, no significant dependence of the strip's width on the determined values of effective magnetic field was found. Instead of θ_H , we characterized our bilayers using damping-like and field-like spin-orbit torque efficiencies (ζ_L and ζ_T , respectively), as we independently measured these two torque components. The following equation was used to calculate the effective spin-orbit torques:

$$\Delta H_{L(T)}/J_c^W = \hbar \zeta_{L(T)}/2eM_s t'_{\text{CoFeB}}, \quad (2)$$

where \hbar is the reduced Planck's constant, e is the electron charge, M_s is the saturation magnetization, and t'_{CoFeB} is the effective thickness of CoFeB: $t'_{\text{CoFeB}} = 0.92 \text{ nm}$ (comparing to $t_{\text{CoFeB}} = 1.3 \text{ nm}$ nominal thickness, without a magnetic dead layer taken into account).²¹ The saturation magnetization of CoFeB at room temperature equals $\mu_0 M_s = 1.6 \text{ T}$ and it increases to 2 T at $T = 19 \text{ K}$. Figure 4 presents the effective magnetic fields and spin-orbit torque efficiencies vs. temperature.

The result for ζ_L determined at room temperature is in good agreement with spin Hall angles for W buffer layers in literature.^{12,13,20} A slightly higher value is expected for thicker W, as $t_W = 2 \text{ nm}$ used here is smaller than the spin diffusion length of W.²⁰ The temperature dependence of the longitudinal spin-orbit-torque is similar to Ta.¹⁸ On the other

hand, the magnitude of the transverse effective field decreases with increasing temperature, which is qualitatively different compared to Ta buffers. In order to explain this discrepancy and to shed some light on the large spin Hall angles that are reported in W/CoFeB bilayers, we studied the interface between these two layers using STEM and XRR analysis.

Figure 5 presents a Z-contrast STEM image. The chemical sensitivity of the high-angle scattered electron signal provides good contrast between the polycrystalline W buffer, CoFeB/MgO bilayer, and the Ta film with a thin oxidized layer on top. The line scan in Fig. 5(b) shows a gradual change of Z-contrast near the W/CoFeB interface, providing proof of considerable intermixing between these two layers. This observation is further corroborated by the XRR

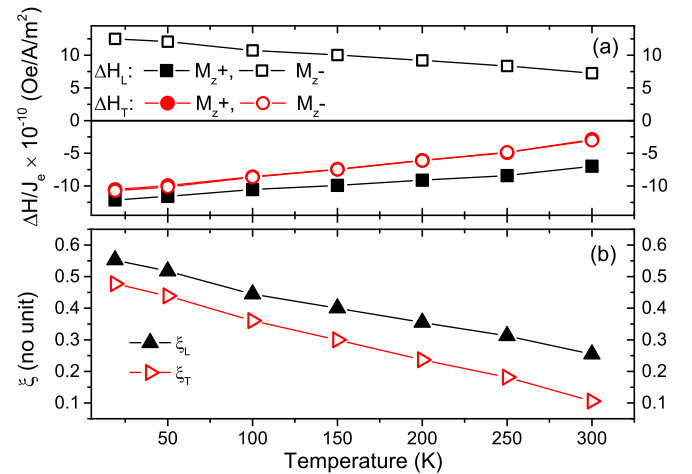


FIG. 4. (a) $\Delta H_L/J_c$ and $\Delta H_T/J_c$ as a function of temperature measured for a $10\text{-}\mu\text{m}$ -wide stripe with $t_W = 2 \text{ nm}$. The Oersted field contribution was calculated from the current flowing through the buffer and subtracted from the transverse field. (b) Spin Hall efficiency as determined from Eq. (2).

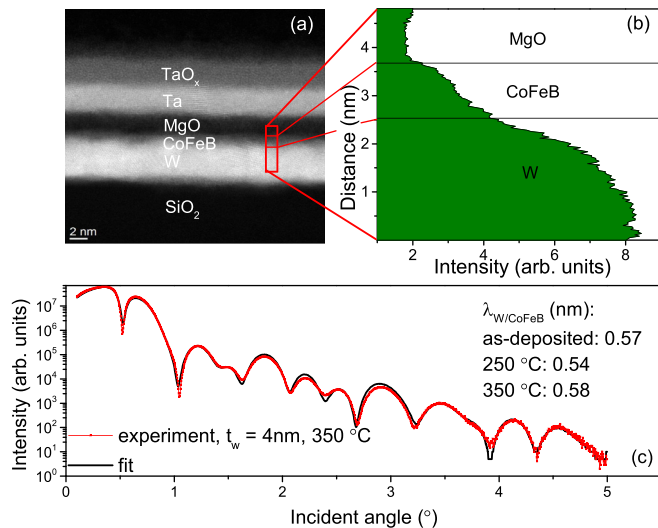


FIG. 5. Z-contrast STEM image of the fabricated multilayer stack (a) and line scan profile along vertical axis (b), indicating significant intermixing at the interface between CoFeB and W. Good fits to XRR measurements are only obtained if large W/CoFeB interface roughness $\lambda_{\text{W/CoFeB}}$ is assumed (c). The interface roughness does not change during annealing.

measurements of Fig. 5(c), which show that the W/CoFeB interface is very rough ($\lambda_{\text{W/CoFeB}} = 0.57 \text{ nm}$), whereas a much smaller roughness is obtained for the CoFeB/MgO interface ($\lambda_{\text{CoFeB/MgO}} = 0.18 \text{ nm}$). We note that $\lambda_{\text{W/CoFeB}}$ is not affected by thermal annealing of the sample, i.e., intermixing primarily occurs during film growth.

Strong intermixing between the W and CoFeB layers may explain large spin-orbit effect in W/CoFeB bilayers. It has been predicted theoretically that impurities may enhance the spin-orbit-coupling.²⁵ Indeed, in Ref. 26, the authors show that by adding heavy metal dopants into a ferromagnet, a significant increase of spin-orbit interaction can be observed. We therefore conclude that intermixing between W and CoFeB explains strong spin-orbit interactions in W/CoFeB bilayer leading to large planar and spin Hall effects as well as anisotropic and spin Hall magnetoresistance.¹³

In summary, we investigated spin-orbit torques in perpendicularly magnetized CoFeB on a thin W underlayer. Harmonic Hall voltage measurements were used to determine longitudinal and transverse spin-orbit effective magnetic fields. The damping-like spin-orbit torque component is found to increase with decreasing temperature reaching $\xi_L = 0.55$ at 19 K. The field-like torque magnitude also decreases with increasing temperature contrary to Ta buffers. Strong spin-orbit torques in W/CoFeB may be explained by a significant interface contribution. From TEM and XRR measurements, we conclude that the large interface effect originates from intermixing between the W and CoFeB layers.

We thank J. Barnaś and T. Taniguchi for a fruitful discussion and J. Chęciński for help in calculations. This work is partially supported by the National Science Center,

Poland, Grant Harmonia No. UMO-2012/04/M/ST7/00799. W.S. acknowledges the National Science Center, Poland, Grant No. UMO-2015/17/D/ST3/00500. S.v.D. acknowledges financial support from the European Research Council (ERC-2012-StG 307502-E-CONTROL). L.Y. acknowledges financial support from the Academy of Finland (Grant Nos 286361 and 293929). Microfabrication was performed at Academic Center for Materials and Nanotechnology of AGH University. STEM analysis was conducted at the Aalto University Nanomicroscopy Center (Aalto-NMC).

- ¹T. Kawahara, K. Ito, R. Takemura, and H. Ohno, *Microelectron. Reliab.* **52**, 613–627 (2012).
- ²R. L. Stamps, S. Breitreutz, J. Akerman, A. V. Chumak, Y. Otani, G. E. W. Bauer, J.-U. Thiele, M. Bowen, S. A. Majetich, M. Kläui, I. L. Prejbeanu, B. Dieny, N. M. Dempsey, and B. Hillebrands, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 333001 (2014).
- ³J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 126603 (2004).
- ⁴I. M. Miron, G. Gaudin, S. Auffret, B. Rodmacq, A. Schuhl, S. Pizzini, J. Vogel, and P. Gambardella, *Nat. Mater.* **9**, 230–234 (2010).
- ⁵I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, *Nature* **476**, 189–193 (2011).
- ⁶V. E. Demidov, S. Urazhdin, H. Ulrichs, V. Tiberkevich, A. Slavin, D. Baither, G. Schmitz, and S. O. Demokritov, *Nat. Mater.* **11**, 1028–1031 (2012).
- ⁷S. Emori, U. Bauer, S.-M. Ahn, E. Martinez, and G. S. D. Beach, *Nat. Mater.* **12**, 611–616 (2013).
- ⁸J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani, and H. Ohno, *Nat. Mater.* **12**, 240–245 (2012).
- ⁹M. Akyol, J. G. Alzate, G. Yu, P. Upadhyaya, K. L. Wong, A. Ekicibil, P. Khalili Amiri, and K. L. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 032406 (2015).
- ¹⁰L. Liu, T. Moriyama, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 036601 (2011).
- ¹¹Y. Niimi, M. Morota, D. H. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert, and Y. Otani, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 126601 (2011).
- ¹²C.-F. Pai, M.-H. Nguyen, C. Belvin, L. H. Vilela-Leão, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 082407 (2014).
- ¹³S. Cho, S.-h. C. Baek, K.-D. Lee, Y. Jo, and B.-G. Park, *Sci. Rep.* **5**, 14668 (2015).
- ¹⁴K.-U. Demasius, T. Phung, W. Zhang, B. P. Hughes, S.-H. Yang, A. Kellock, W. Han, A. Pushp, and S. S. P. Parkin, *Nat. Commun.* **7**, 10644 (2016).
- ¹⁵K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin, and P. Gambardella, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 587–593 (2013).
- ¹⁶W. Zhang, W. Han, X. Jiang, S.-H. Yang, and S. S. P. Parkin, *Nat. Phys.* **11**, 496–502 (2015).
- ¹⁷J.-C. Rojas-Sánchez, N. Reyren, P. Laczkowski, W. Savero, J.-P. Attané, C. Deranlot, M. Jamet, J.-M. George, L. Vila, and H. Jaffrès, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 106602 (2014).
- ¹⁸J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, S. Takahashi, S. Maekawa, M. Yamanouchi, and H. Ohno, *Phys. Rev. B* **89**, 174424 (2014).
- ¹⁹C.-F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 122404 (2012).
- ²⁰Q. Hao and G. Xiao, *Phys. Rev. Appl.* **3**, 034009 (2015).
- ²¹W. Skowroński, T. Nozaki, D. D. Lam, Y. Shiota, K. Yakushiji, H. Kubota, A. Fukushima, S. Yuasa, and Y. Suzuki, *Phys. Rev. B* **91**, 184410 (2015).
- ²²J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, M. Yamanouchi, and H. Ohno, *Nat. Commun.* **5**, 4655 (2014).
- ²³J.-V. Kim, *Solid State Phys.* **63**, 217–294 (2012).
- ²⁴S. Cho and B.-G. Park, *Curr. Appl. Phys.* **15**, 902–905 (2015).
- ²⁵T. P. Parez and P. Bruno, *Pramana* **58**, 293–311 (2002).
- ²⁶A. Hrabec, F. J. T. Goncalves, C. S. Spencer, E. Arenholz, A. T. N'Diaye, R. L. Stamps, and C. H. Marrows, *Phys. Rev. B* **93**, 014432 (2016).

PUBLIKACJA [P4]

M. Cecot, Ł. Karwacki, W. Skowroński, J. Kanak, J. Wrona, A. Żywczak, L. Yao, S. van Dijken, J. Barnaś, T. Stobiecki. Influence of intermixing at the Ta/CoFeB interface on spin Hall angle in Ta/CoFeB/MgO heterostructures. *Scientific reports*, 7(1), 1-11, 2017.

DOI: [10.1038/s41598-017-00994-z](https://doi.org/10.1038/s41598-017-00994-z)

SCIENTIFIC REPORTS

OPEN

Influence of intermixing at the Ta/CoFeB interface on spin Hall angle in Ta/CoFeB/MgO heterostructures

Monika Cecot¹, Łukasz Karwacki², Witold Skowroński¹, Jarosław Kanak¹, Jerzy Wrona³, Antoni Żywczak⁴, Lide Yao⁵, Sebastiaan Dijken⁵, Józef Barnaś^{2,6} & Tomasz Stobiecki¹

When a current is passed through a non-magnetic metal with strong spin-orbit coupling, an orthogonal spin current is generated. This spin current can be used to switch the magnetization of an adjacent ferromagnetic layer or drive its magnetization into continuous precession. The interface, which is not necessarily sharp, and the crystallographic structure of the nonmagnetic metal can both affect the strength of current-induced spin-orbit torques. Here, we investigate the effects of interface intermixing and film microstructure on spin-orbit torques in perpendicularly magnetized Ta/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO trilayers with different Ta layer thickness (5 nm, 10 nm, 15 nm), greater than the spin diffusion length. Effective spin-orbit torques are determined from harmonic Hall voltage measurements performed at temperatures ranging from 20 K to 300 K. We account for the temperature dependence of damping-like and field-like torques by including an additional contribution from the Ta/CoFeB interface in the spin diffusion model. Using this approach, the temperature variations of the spin Hall angle in the Ta underlayer and at the Ta/CoFeB interface are determined separately. Our results indicate an almost temperature-independent spin Hall angle of $\theta_{SH}^N \approx -0.2$ in Ta and a strongly temperature-dependent θ_{SH}^N for the intermixed Ta/CoFeB interface.

It is well known that spin current induced *via* the spin Hall effect (SHE) in a heavy metallic layer may exert a torque on the magnetic moment of an adjacent ferromagnetic layer¹. This torque in turn can induce magnetization dynamics, which may be observed by various experimental techniques, namely spin-torque ferromagnetic resonance², spin-orbit-torque-induced magnetization switching^{3,4}, domain-wall motion^{5,6} or harmonic Hall voltage measurements⁷. Recent reports indicate that signals detected in the ferromagnetic layer do not refer directly to the spin Hall angle, considered as an *intrinsic* property of the non-magnetic layer and defined as the ratio of the induced spin current density to the charge current density in this layer². Consequently, additional torques due to spin-orbit interaction at the interface between the non-magnetic and ferromagnetic layer are invoked. This interfacial spin-orbit interaction leads to a nonequilibrium spin polarization of electrons at the interface, which in turn gives rise to a spin-orbit torque (SOT). Currently, there is a great interest, both experimental⁸ and theoretical⁹, in interface SOTs. However, it is rather difficult to distinguish experimentally between SOTs originating at the interface and torques that are generated by SHE in the non-magnetic layer. Theoretical calculations of SOTs usually assume a sharp interface^{10,11}. This approximation is justified in some cases, but it is generally invalid for amorphous structures. For example, in CoFeB/Ta and CoFeB/W¹², X-ray and neutron reflectometry¹³ indicate strong intermixing between the two layers, resulting in a relatively wide interface region. When considering the interface contribution to the total SOT, spin transport across the interfaces and possible mechanisms of spin relaxation need to be taken into account. Accordingly, the effect can be captured by an efficiency parameter or, equivalently, an effective spin Hall angle. Since the SOT consists of two components – damping-like and field-like torques – two spin Hall torque efficiencies have been proposed¹⁴. Investigations of interface atomic ordering and electrical conductivity effects on the spin-orbit torque arising from SHE are crucial for the design of novel

¹AGH University of Science and Technology, Department of Electronics, Al. Mickiewicza 30, 30-059, Kraków, Poland. ²Faculty of Physics, Adam Mickiewicz University, ul. Umultowska 85, 61-614, Poznań, Poland. ³Singulus Technologies AG, Hanauer Landstrasse 103, Kahl am Main, 63796, Germany. ⁴AGH University of Science and Technology, Academic Center of Materials and Nanotechnology, Al. Mickiewicza 30, 30-059, Kraków, Poland. ⁵NanoSpin, Department of Applied Physics, Aalto University School of Science, P.O. Box 15100, FI-00076, Aalto, Finland. ⁶Institute of Molecular Physics, Polish Academy of Sciences, ul. Smoluchowskiego 17, 60-179, Poznań, Poland. Correspondence and requests for materials should be addressed to M.C. (email: monika.cecot@agh.edu.pl)

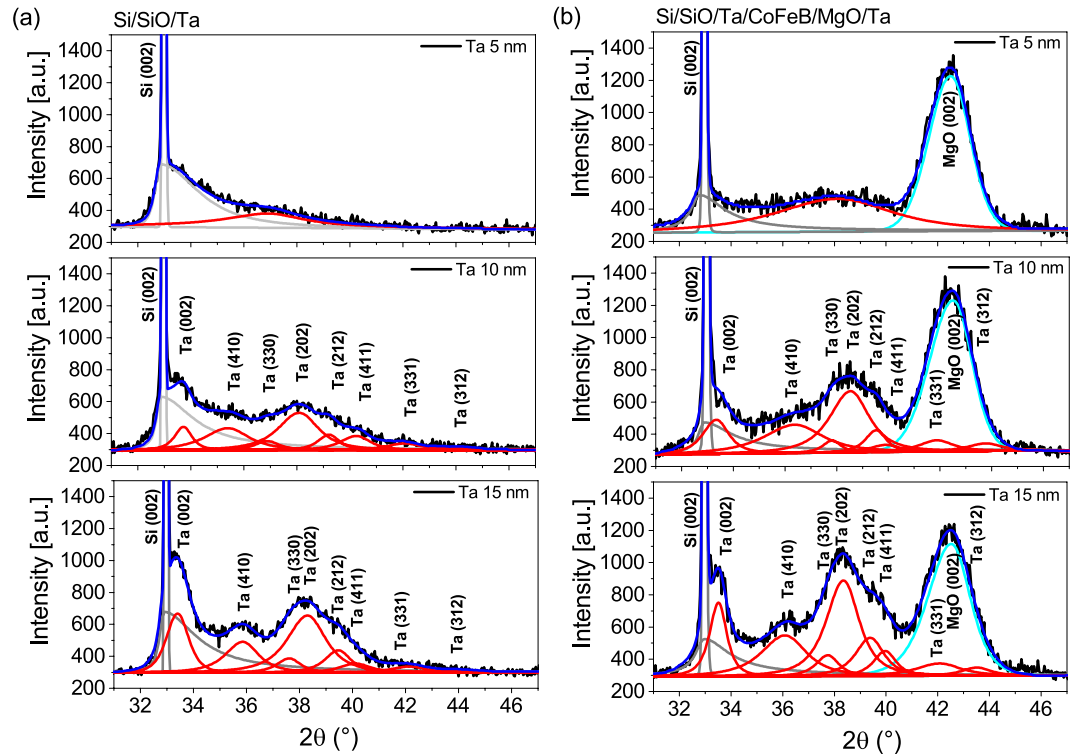


Figure 1. $\theta - 2\theta$ profiles for single Ta layers (a), and for full multilayer stacks Ta(d_{Ta})/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(1)/MgO(5)/Ta(3) (b), where $d_{Ta} = 5, 10, 15$ nm. Black lines depict the experimental data, blue lines are fits, red lines represent the distribution of Ta peaks for different orientations, cyan lines are a fit for MgO, and gray lines show the substrate peaks.

spintronic devices utilizing SOTs. High resistance phases of heavy metals are desirable as the spin Hall angle is enhanced. For example, tungsten above a certain thickness shows a phase transition from the high resistivity β -W phase to the low resistivity α -W phase, which results in a decrease of the spin Hall angle^{12,15,16}. A detailed assessment of structural effects on SOTs is complicated by a relatively broad distribution of experimental data from different laboratories and the use of different definitions. For instance, reported values of the spin Hall angle in systems with Ta span between -0.03 and -0.15 (at room temperature)^{17–21}. Moreover, one should make a distinction between heterostructures with in-plane and perpendicular magnetic anisotropy (PMA) of the ferromagnetic layer. In the case of structures with PMA (considered in this paper), the harmonic Hall voltage method^{22–24} seems to be the most appropriate because the damping-like and field-like torques are determined based on independent measurements. In our Ta/CoFeB bilayers, no transition between α -Ta and β -Ta phase is observed, the growth of a given phase is determined exclusively by sputtering conditions. The CoFeB layer exhibits PMA and the Ta buffer layer is thicker than the spin diffusion length, which falls within the range $1.2\text{--}2.5$ nm^{18,25–27}. Since available experimental data on the damping-like torque, converted to effective spin Hall angle, fluctuate between -0.03 ¹⁷ and -0.11 ²⁰, we investigate effects caused by the interface and crystallographic structure, which may be responsible for the scattering of reported data. We provide microstructural data and electrical conductivity measurements and show that both physical parameters depend on the Ta underlayer thickness, beyond the range already investigated^{3,28–32}. The thinnest Ta layer is amorphous, whereas thicker Ta layers comprise the tetragonal β phase. In all cases, interface effects originate from the mixing of Ta and CoFeB causing a relatively thick interface layer. Patterned structures of micrometer-dimensions are investigated with harmonic Hall voltage measurements in a wide range of temperatures in order to clearly designate the field-like and damping-like torques. Because of substantial interlayer mixing, we propose to model transport properties by considering the interface as a distinct layer with its own spin diffusion length and spin Hall angle.

Results

Structure. Two sets of samples were prepared. The first set consisted of Ta(d_{Ta})/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(t_{FM})/MgO(5)/Ta(3) multilayer stacks, with $d_{Ta} = 5, 10, 15$ and $t_{FM} = 0.8\text{--}1.5$, while structures in the second set comprised single Ta layers with a thickness of d_{Ta} (all thicknesses in nm). Structural analysis of the Ta layer was performed on single Ta layers with $d_{Ta} = 5, 10, 15$ nm (Fig. 1(a)) and on annealed Ta(d_{Ta})/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(1)/MgO(5)/Ta(3) multilayer stacks, with identical Ta thickness (Fig. 1(b)). Comparisons between the $\theta - 2\theta$ X-ray Diffraction (XRD) profiles of Ta in the full stacks and in single layers do not reveal major structural differences. The $\theta - 2\theta$ profiles of 5 nm thick Ta layers show a very broad low-intensity peak, indicating an amorphous-like disordered structure. On the other hand, the profiles of thicker Ta layers (10 nm and 15 nm) contain peaks that originate from a polycrystalline tetragonal β phase³³. The $\theta - 2\theta$ XRD measurements on our samples do not indicate the presence of the α -Ta

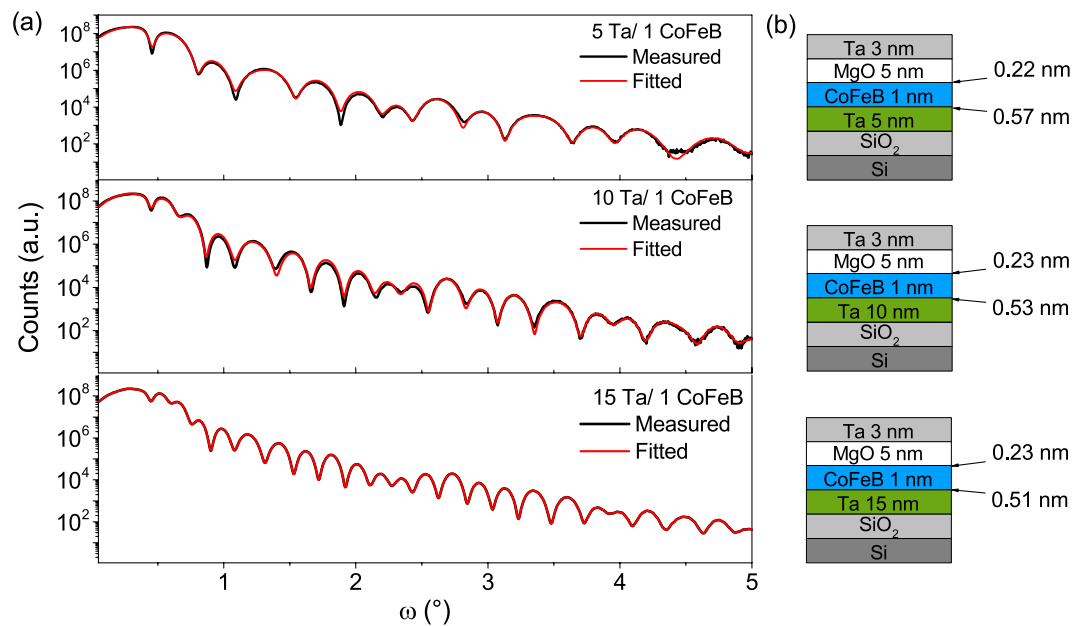


Figure 2. The best fits to X-ray reflectivity data for full structures: Ta(d_{Ta})/CoFeB(1)/MgO(5)/Ta(3), where $d_{\text{Ta}} = 5, 10, 15$ nm (a), and interfacial RMS roughness for Ta/CoFeB and CoFeB/MgO interfaces (b), determined with an accuracy of ± 0.02 nm.

phase. For all samples, the MgO layers have a highly (001)-oriented texture, while the thin CoFeB layers remain amorphous after annealing. Subsequently, using the X-ray Reflectivity (XRR) method³⁴ we analysed Ta/CoFeB and CoFeB/MgO interfaces; corresponding profiles are presented in Fig. 2(a). The thickness of the CoFeB/MgO interface is about 0.23 nm, while that of the Ta/CoFeB interface is in the range from 0.51 nm to 0.57 nm, see Fig. 2(b). The RMS surface roughness from Atomic Force Microscope (AFM), measured on the surface of single Ta layers, is comparable to the thickness of the CoFeB/MgO interface from XRR. The RMS roughness is as follows: 0.23 nm, 0.26 nm and 0.29 nm for 5 nm, 10 nm and 15 nm of Ta, respectively. As expected, the smoothest surface is found in the amorphous 5 nm Ta sample³⁵, while the polycrystalline Ta layers (10 and 15 nm) are increasingly rough. A significant difference between the widths of the Ta/CoFeB and CoFeB/MgO interfaces can be explained by the mechanisms described below. The small thickness of the CoFeB/MgO interface mainly stems from surface roughness, which indicates poor interdiffusion between the CoFeB and MgO layers. In turn, the large thickness of the Ta/CoFeB interface may have an origin in a large negative interfacial enthalpy, which is a driving force for interdiffusion. It is worth noting that for Fe in Ta the interfacial enthalpy is -54 kJ/(mole of atoms) and for Co in Ta it is -86 kJ/(mole of atoms)³⁶. The above conclusions are confirmed by the interface change which is observed after annealing by means of XRR analysis. For the annealed samples Ta/CoFeB interface roughness increases by 30 percent with respect to as-deposited layers while the CoFeB/MgO interface remains unaltered. In addition, the XRR measurement results implicate a tendency for the interface thickness to diminish with increasing Ta layer thickness. These phenomena can be explained by easier interdiffusion when both CoFeB and Ta (5 nm) are amorphous than between the amorphous CoFeB and polycrystalline Ta (10 nm and 15 nm) layers. The described tendency is in accordance with the decrease in thickness of the magnetic dead layer, see next paragraph.

High-resolution Transmission Electron Microscopy (TEM) images of samples with 5 nm Ta and 15 nm of Ta are shown in Fig. 3. The layer thicknesses of each multilayer stack correspond closely to the intended growth parameters. In both samples, the MgO layer exhibits a polycrystalline structure with the (002)-planes oriented parallel to the interfaces, while the CoFeB layer is amorphous. The main difference between the two samples is the crystalline structure of the Ta underlayer. The 5 nm thick Ta layer is amorphous³⁵ (Fig. 3(a)), whereas the 15 nm Ta layer is polycrystalline (Fig. 3(b)). The crystallographic orientations in the 15 nm thick Ta layer are in agreement with the $\theta - 2\theta$ XRD measurements. The interface between Ta and CoFeB is mixed in both samples. TEM measurements reveal a gradual change in Z-contrast, as illustrated by the line profiles in Fig. 4(b,d). The more gradual increase in Z-contrast in Fig. 4(d) suggests that atomic interdiffusion changes slightly when the Ta layer thickness is increased from 5 nm to 15 nm. This effect is most likely caused by the crystal structure of the Ta layers, which evolves from amorphous to polycrystalline when the film becomes thicker. Variations in intermixing and the crystal structure can both affect electronic transport across the Ta/CoFeB interface. In order to apprehend the difference in Z-contrast, we propose the following scenario. For the sample with a 5 nm Ta layer, atomic diffusion takes place between two amorphous layers and thus the intermixed zone is more or less homogeneous. Accordingly, the derivative of the Z-contrast contour is constant in the CoFeB area (inset in Fig. 4(b)). In the case of 15 nm of Ta, however, atomic diffusion takes place between amorphous CoFeB and polycrystalline Ta layers, and intermixing occurs mainly along the Ta grain boundaries. Therefore, the shape of the Z-contrast contour close to Ta is rounded and saturates more slowly (Fig. 4(d)).

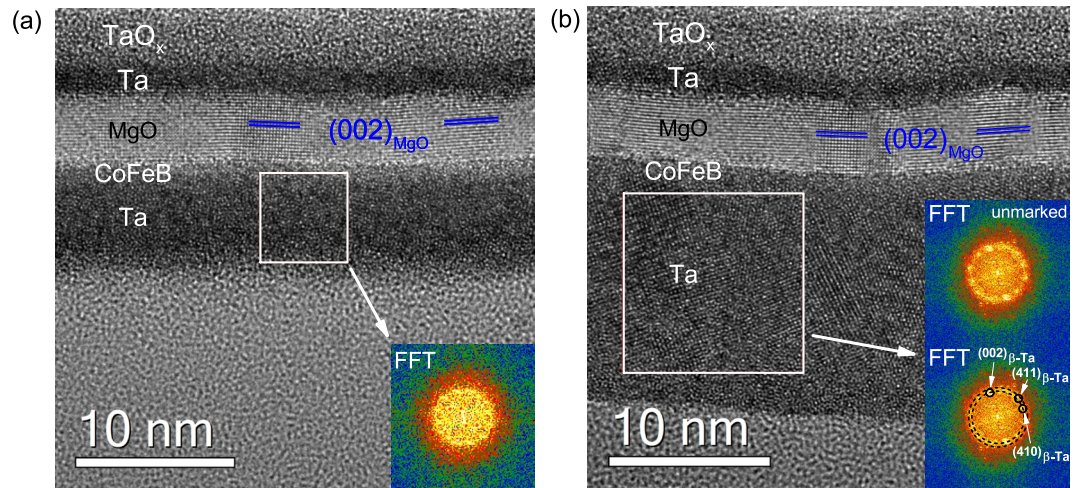


Figure 3. HRTEM images of Ta(d_{Ta})/CoFeB(1)/MgO(5)/Ta(3) samples. (a) $d_{Ta} = 5$ nm; (b) $d_{Ta} = 15$ nm. The (002) planes in the MgO layers are marked with blue lines. The insets in (a,b) show fast Fourier transform (FFT) patterns from designated areas. The results indicate that the 5 nm Ta layer is amorphous and the 15 nm Ta layer is polycrystalline.

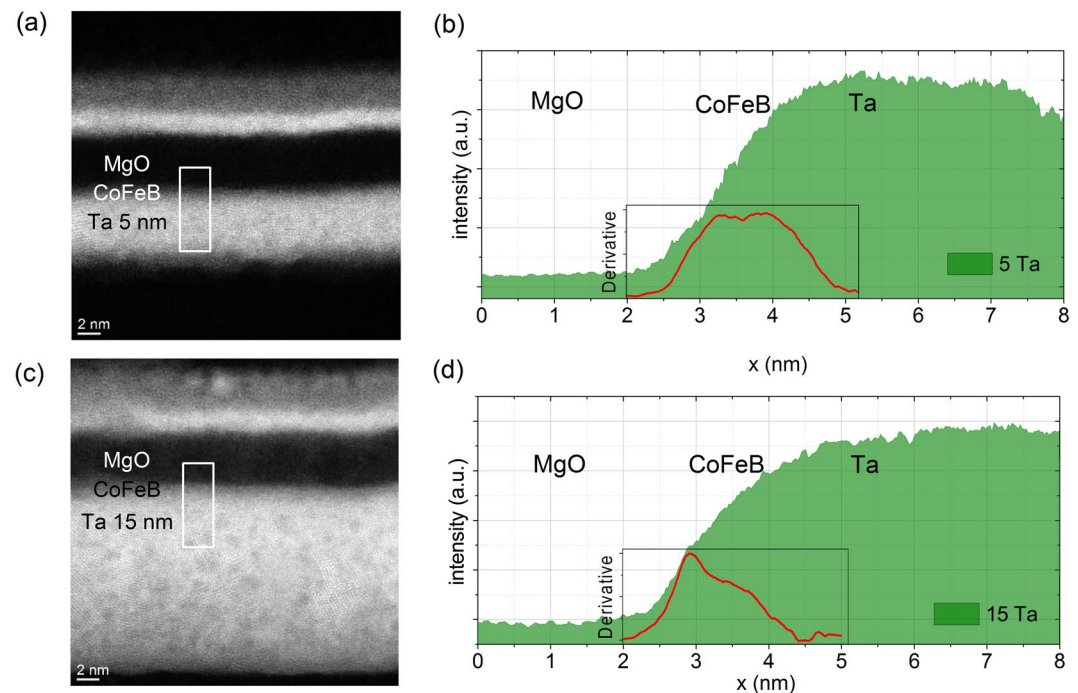


Figure 4. (a,c) Scanning Transmission Electron Microscopy (STEM) Z-contrast images and (b,d) Z-contrast profiles from the indicated areas for samples with (a,b) 5 nm of Ta and (c,d) 15 nm of Ta. The insets show derivatives of the Z-contrast profiles.

Temperature dependence of electrical and magnetic properties. The longitudinal resistivity ρ_{xx} of the full multilayer stacks and single Ta layers was measured using a 4-probe method. The room-temperature resistivities of single Ta layers are as follows: $\rho_{5Ta} = 235 \mu\Omega \text{ cm}$, $\rho_{10Ta} = 195 \mu\Omega \text{ cm}$, $\rho_{15Ta} = 185 \mu\Omega \text{ cm}$. The resistivity of Ta can be used as a probe of structural order. High resistivity of more than $200 \mu\Omega \text{ cm}$ confirms the amorphous structure of 5 nm Ta. In turn, resistivities of the order of $190 \mu\Omega \text{ cm}$ evidence the presence of the β -Ta phase in 10 and 15 nm Ta layers^{37,38}. The obtained resistivities of β -Ta are similar to those reported in refs 18 and 39. The resistivity of amorphous CoFeB, $\rho_{CoFeB} \approx 165 \mu\Omega \text{ cm}$, is derived from the parallel resistors model. The temperature dependence of longitudinal resistivity (ρ_{xx}) for the full stacks and for single Ta layers is presented in Fig. 5(a). Interestingly, the resistivity of the full multilayer stacks changes very little with temperature – the highest resistivity change is 4% for the sample with the thinnest Ta layer. In this case, a negative temperature coefficient of resistivity is noticed, which is characteristic of the amorphous phase. For $d_{Ta} = 5$ nm, resistivity of the single layer

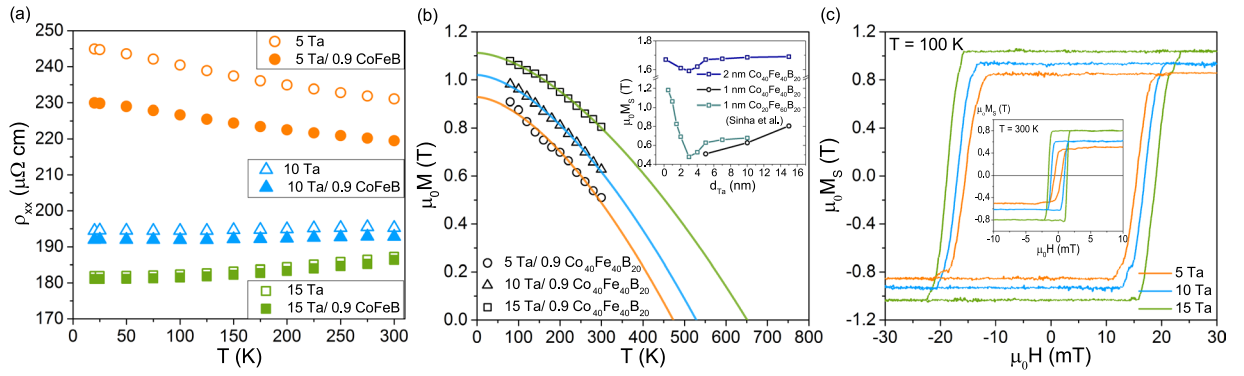


Figure 5. (a) Temperature dependence of the longitudinal resistivity for multilayer stacks and single Ta layers. (b) Spontaneous magnetization M as a function of temperature; solid lines represent calculations using Bloch's law; inset: comparison of saturation magnetization M_s vs. Ta underlayer thickness, for 1 nm and 2 nm of Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (our results) and data for 1 nm Co₂₀Fe₆₀B₂₀ in ref. 40. (c) Magnetic hysteresis loops obtained at 100 K and at room temperature (inset).

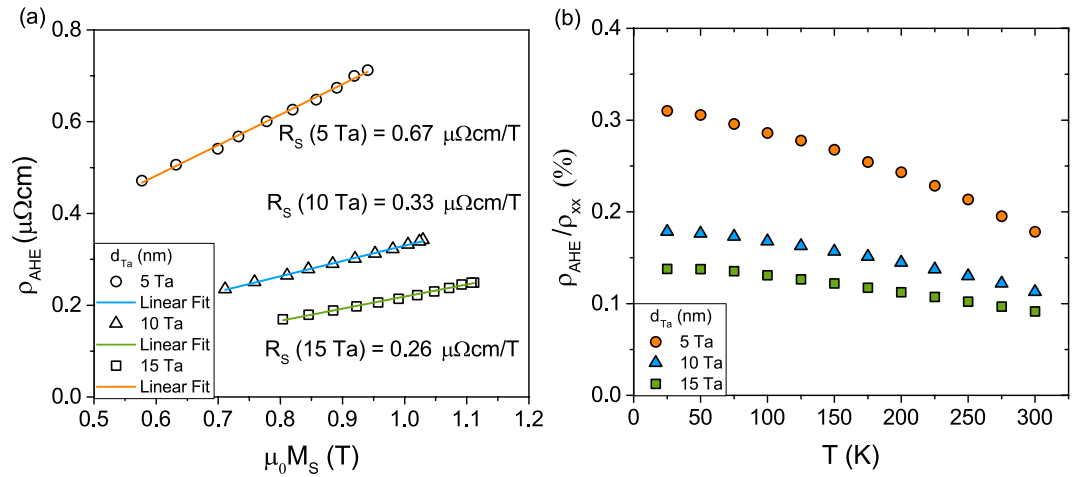


Figure 6. (a) Anomalous Hall resistivity of Ta/CoFeB/MgO as a function of saturation magnetization. The slope determines the corresponding anomalous Hall coefficient R_s . (b) Temperature dependence of the ratio ρ_{AHE}/ρ_{xx} .

is noticeably larger than that of the corresponding stack layer. For $d_{Ta} = 10$ nm the difference is rather insignificant. All this supports the conjecture that the 10 nm and 15 nm layers of Ta are in the β phase, while the 5 nm layer of Ta is amorphous. We examined the magnetization of the CoFeB layer as a function of temperature for samples with different Ta thickness (Fig. 5(b)). The temperature dependence of spontaneous magnetization is described by Bloch's law: $M = M_0(1 - (T/T_C)^{3/2})$, where M_0 is a spontaneous magnetization at $T = 0$ K and T_C is the Curie temperature. Strong changes of the CoFeB layer saturation magnetization with Ta thickness provide additional evidence of the amorphous phase and intermixed interface of thin Ta layers. Our saturation magnetization results of 2 nm CoFeB and reports in literature show a drop in saturation magnetization for $d_{Ta} \approx 3$ nm at room temperature (see the inset to Fig. 5(b))^{19, 40}. This thickness dependence indicates that thin Ta amorphous layers readily mix with amorphous CoFeB, causing a reduction of saturation magnetization. Magnetic hysteresis loops (Fig. 5(c)) confirm perpendicular magnetization in the annealed samples. However, the magnetic hysteresis loop for the sample with 5 nm of Ta shows weaker perpendicular magnetic anisotropy than other samples. This is a result of much smaller interface anisotropy contribution to effective anisotropy⁴¹ for the sample with 5 nm of amorphous Ta due to a thick magnetic dead layer (MDL). The fact that strong mixing at the Ta/CoFeB interface can result in an MDL has already been reported^{40, 42, 43}. Actually, MDL for the sample with 5 nm of Ta is the widest and reaches 0.55 nm, while for 10 nm of Ta and 15 nm MDL is 0.46 nm and 0.39 nm, respectively. An increased thickness of MDL reflects the interdiffusion at the Ta/CoFeB interface.

Anomalous Hall effect. Anomalous Hall voltage measurements were performed for an external magnetic field applied perpendicularly to the sample plane and temperatures from 20 K to 300 K. The anomalous Hall effect (AHE) is described quantitatively by the anomalous Hall coefficient R_s , which can be calculated using $\rho_{AHE} = R_s \cdot \mu_0 M_s$, where ρ_{AHE} is the anomalous Hall resistivity. Figure 6(a) presents the anomalous Hall resistivity as a function of saturation magnetization. The variation of M_s is derived from temperature-dependent data. The

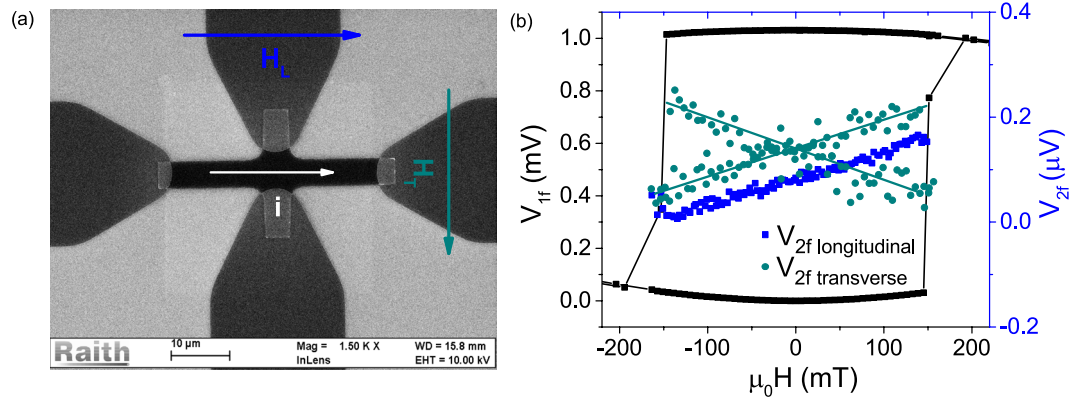


Figure 7. (a) SEM image of the Hall bar with illustrated directions of current flow and external magnetic field: longitudinal H_L and transverse H_T to the current. (b) First harmonic (1f) and second harmonic (2f) Hall voltage signals (longitudinal and transverse in the latter case) measured at 150 K.

slopes of these curves, which are almost constant, correspond to the anomalous Hall coefficients. This agrees with theoretical predictions^{44,45} showing a proportionality between R_S and ρ_{xx} (the resistivity of our samples varies less than 4% between 20 K and 300 K (Fig. 5(a))). The larger R_S value for the sample with 5 nm Ta in comparison to other samples points to a substantial influence of the Ta/CoFeB interface. The ratio of the Hall resistivity ρ_{AHE} to the longitudinal resistivity ρ_{xx} is shown in Fig. 6(b). The results are comparable to those reported in refs 46 and 47. The planar Hall resistance was measured in an external magnetic field applied in the film plane with rotation of the field direction. In contrast to W/CoFeB heterostructures^{12,48,49}, the planar Hall effect (PHE) for Ta underlayers is much smaller than the corresponding AHE contribution^{19,50}. The ratio of planar Hall resistance, R_{PHE} , and the anomalous Hall resistance, R_{AHE} , is of the order of $\zeta = R_{PHE}/R_{AHE} \approx 0.4\%$, which is within the margin of error, and therefore PHE can be omitted. This substantially simplifies the formula for effective torque fields, as described below.

Spin torque efficiencies. To evaluate the spin torque exerted on the CoFeB layer we determined the spin torque efficiencies. Therefore, the Hall voltage measurements were performed for an external magnetic field applied in the sample plane in two directions: longitudinally and transversely to the current flowing through the Hall bar. Details of the measurement technique are described e.g. in refs 12, 22 and 23. A lock-in technique was used to measure the first and second harmonics of the Hall voltage. A low frequency (385 Hz) alternating charge current was passed through the Hall bar, while the external magnetic field was applied along and across the Hall bar, as indicated in Fig. 7(a). Measurements were performed on 10 μm wide and 40 μm long Hall bars. In order to determine the current density, the precise widths of the patterned strips were measured by scanning electron microscopy (SEM). From the harmonic Hall voltage measurements, the spin-orbit-induced-effective-fields (related to the spin torques) were obtained as a function of temperature for all three studied samples (for different values of d_{Ta}). From measurements with a longitudinal external magnetic field, H_L , we derived the effective field ΔH_{DL} . Analogously, from measurements with a transverse external field, H_T , we obtained the effective field ΔH_{FL} . Taking into account that $\zeta = R_{PHE}/R_{AHE}$ is negligibly small, these effective fields are determined by the voltage harmonics according to the formulas

$$\Delta H_{DL(FL)} = -2 \frac{\partial V_{2f}}{\partial H_{L(T)}} / \frac{\partial^2 V_{1f}}{\partial H_{L(T)}^2}, \quad (1)$$

where $V_{1f,2f}$ are the first and second harmonic Hall signals measured for H_L and H_T . Exemplary voltage signals measured at 150 K are presented in Fig. 7(b). The temperature variation of the effective fields is shown in Fig. 8. Below 150 K, the longitudinal effective field, referred to as the damping-like (DL) field, is approximately constant, while at higher temperatures absolute values slightly decrease in all three samples (see Fig. 8(b)). The transverse effective field, referred to as field-like (FL), steadily decreases with increasing temperature. One can also note that from room temperature down to 150 K, ΔH_{FL} dominates. Both fields, ΔH_{DL} and ΔH_{FL} , decrease with increasing Ta layer thickness, contrary to the results reported by Kim *et al.*¹⁹. However, it should be noted that our results cover a different range of Ta thickness. For thin Ta layers the spin diffusion length has a decisive influence, while for thicker layers studied here the crystallographic structure plays a major role. Taking into account the current density in Ta and magnetic moment of CoFeB, the longitudinal (damping-like) and transverse (field-like) torque efficiencies $\xi_{FL(DL)}$ are obtained from the formula $\xi_{FL(DL)} = (2|e|\hbar)(\mu_0 M_s d_F / J_N) \Delta H_{FL(DL)}$. The temperature variation of the evaluated spin torque efficiencies are presented in Fig. 8. The physical meaning of these quantities will be discussed in the next section.

Discussion

To model spin transport and spin torques we consider interface as a distinct layer with its own properties such as spin diffusion length and spin Hall angle. A similar approach has already been used in the case of Pt/Py structures^{11,14}. One of the key issues is the determination of an effective spin Hall angle of the structure, which

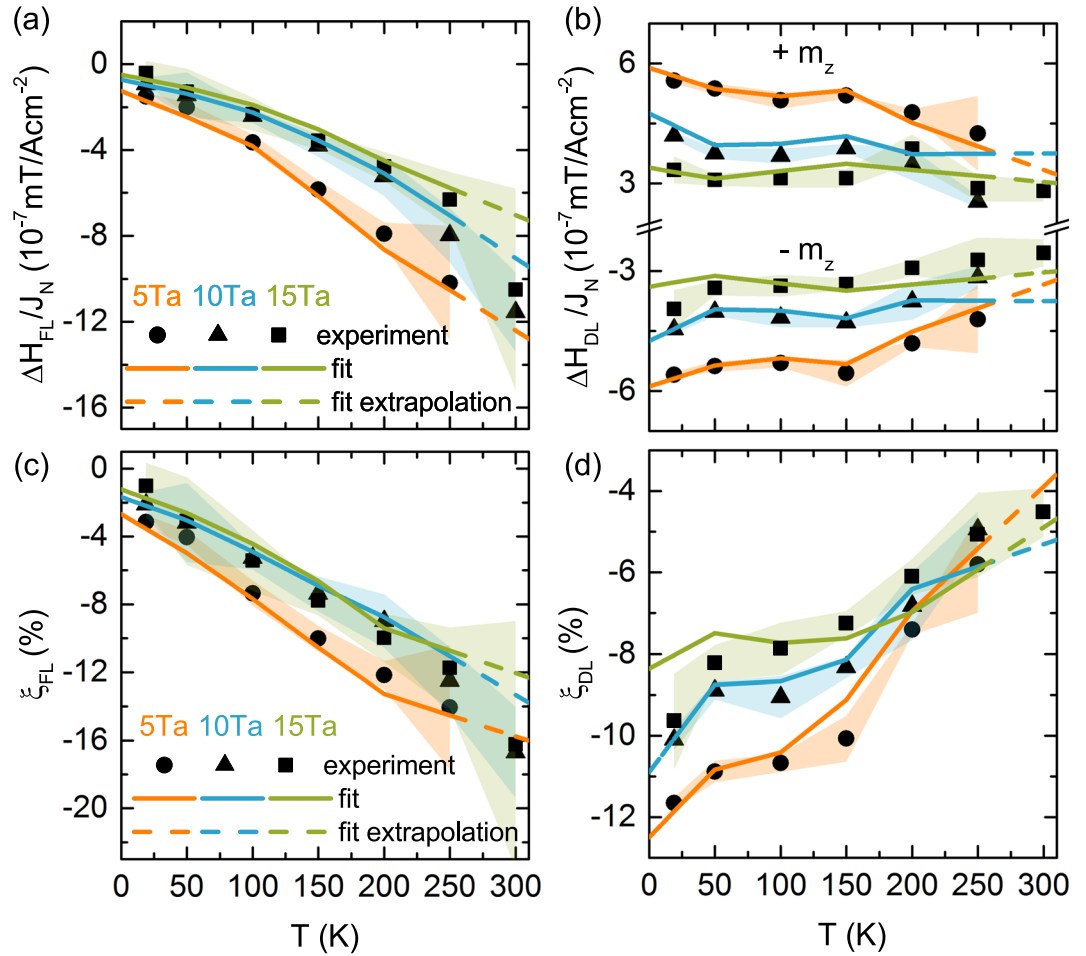


Figure 8. Field-like H_{FL} (a) and damping-like H_{DL} (b) components of the spin-orbit torque induced effective magnetic field. Damping-like components are shown for two indicated orientations of the CoFeB layer magnetization. Spin-torque efficiencies corresponding to the field-like (c) and damping-like (d) components of the effective magnetic field. Shaded areas denote experimental error bars. The symbols correspond to experimental data while the solid lines represent the numerical fits. Shaded areas denote experimental error bars.

generally can be a certain function of the spin Hall angle θ_{SH}^N of the Ta layer, referred to as a non-magnetic (N) layer, and of the spin Hall angle θ_{SH}^I of the interface (I) layer, i.e. $\Theta_{SH} = \Theta_{SH}(\theta_{SH}^N, \theta_{SH}^I)$. In general, the anomalous Hall effect can also play a role in the conversion of charge current to spin current in N/F bilayer systems. In our case, however, this effect is small, as shown above. A simple drift-diffusion equation for spin current in an N/I/F (Non-magnetic/Interface/Ferromagnetic) structure contains a diffusion term resulting from spin accumulation at the interfaces and a drift term due to SHE (see Theoretical method in Method section). In order to fit this model to experimental data we need to make some assumptions. First of all, we assume a constant spin diffusion length, λ_N , in the non-magnetic layer (excluding the interface). In literature this parameter ranges from ~ 1 nm to more than 3 nm^{21,27}. In general, this parameter can also vary with temperature, however we neglect this variation due to possible compensation by changes in resistivity ρ_N . Moreover, both real, G_r , and imaginary, G_i , parts of spin-mixing conductance are fixed by fitting to the data for a range of spin diffusion lengths and spin Hall angles. This fitting shows that, approximately, $G_r(T) \sim \text{const}$ and $G_i(T) \sim T$.

This is consistent with the mixing conductance estimated for bulk Ta by *ab initio* methods^{51,52}, where, however, a crystalline phase was assumed and the strong spin-orbit coupling was not taken into account. The model has been then fitted to the experimental data for the available range of temperatures. Furthermore, the so-called spin memory loss (SML) parameter, defined as $\text{SML} = [1 - \exp(-d_I/\lambda_I)] \cdot 100\%$, has been introduced. In numerical calculations we assumed $d_I/\lambda_I = 0.05$, which corresponds to $\text{SML} \approx 4.9\%$. This parameter has been assumed constant with respect to temperature. Such an assumption, however, may not hold at higher temperatures.

Figure 8 show the best fit of the model to the experimental data on the field-like and damping-like components of the effective magnetic field and to the corresponding spin torque efficiencies. The absolute value of the field-like component of the spin-torque efficiency increases with increasing temperature, while the damping-like component decreases. This behaviour of the field-like component can be explained by a dominant contribution of the imaginary part of the spin-mixing conductance. In the case of the damping-like component, the temperature dependence of g_i cancels out and the dominating contribution comes from the temperature dependence of the effective spin Hall angle.

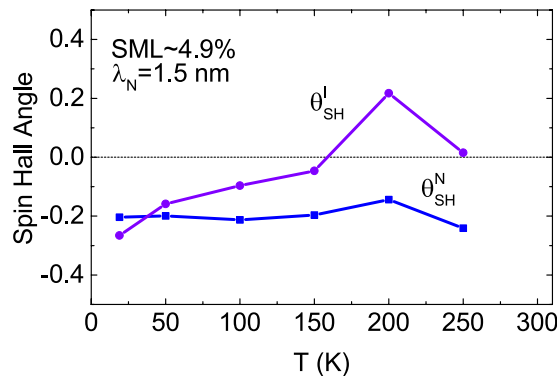


Figure 9. Spin Hall angle of the interface and non-magnetic metal Ta layers obtained from fits to experimental data with indicated parameters of spin memory loss (SML) and λ_N .

Figure 9 shows the temperature dependence of the spin Hall angle in the non-magnetic and interface layers, and the results indicate a strong interfacial effect. As the spin Hall angle in the non-magnetic layer is approximately constant with respect to temperature, the interfacial spin Hall angle changes its sign for temperatures between 150–250 K. This sign reversal indicates that the interfacial spin Hall angle should be treated as an effective spin current conversion coefficient, which is influenced by both non-magnetic and ferromagnetic layers, and whose behaviour at higher temperatures may differ from the behaviour of non-magnetic metals. Additional processes may play a role in this temperature range, resulting in higher spin memory loss. Opposite signs of the spin Hall angles in the non-magnetic and interfacial layers have occurred also in the analysis of spin-pumping-induced ISHE in a Bi/Py bilayer system, where scattering on impurities has been considered as a possible explanation of this behaviour⁵³. The second interesting feature of the interface spin Hall angle is its magnitude, which in the vicinity of 200 K is remarkably larger (though it has an opposite sign) than that in the Ta layer. This, however, is reasonable, as the charge current density in the interface layer is smaller than that in the Ta layer. Apart from this, an additional extrinsic mechanism of SHE in the interface layer can occur due to intermixing (side-jump and/or skew-scattering on magnetic impurities). Generally, signs (and also magnitudes) of different contributions may be different as well. This, in turn, may lead to sign reversal of the Hall effect in the interface layer. It should be also taken into consideration that for temperature of 250 K the measured effective fields had the greatest uncertainty due to narrow switching characteristic. We also note that the interfacial spin Hall angle in a Pt/Py structure has been estimated to be 25 times larger than the spin Hall angle in a single Pt layer¹¹, whereas the interfacial contribution in a Bi/Py bilayer has been estimated to be ca. 4 times larger than the contribution from a single Pt layer⁵³.

In conclusion, we examined the spin Hall effect and spin torques in Ta/CoFeB/MgO heterostructures. The crystallographic structure of a non-magnetic metal layer and properties of the interface with a ferromagnetic layer were investigated. We demonstrated that strong intermixing at the interface leads to a magnetically dead layer, which is especially thick for structures with 5 nm of an amorphous Ta layer. To account for the experimentally determined damping-like and field-like effective fields, we applied a drift-diffusion model, assuming the interfacial region as a distinct layer. By fitting the theoretical model to experimental data we have determined the spin Hall angle in the Ta layer and in the Ta/CoFeB interface layer. The interface spin Hall angle was shown to change its sign with increasing temperature. Moreover, at temperatures around 200 K its magnitude is larger than the spin Hall angle in the tantalum layer.

Methods

Sample preparations and micro-fabrication. All samples were deposited using magnetron sputtering in a Singulus Timaris PVD Cluster Tool System on thermally oxidized 4-inch Si(001) wafers. The Ta and CoFeB layers were magnetron sputtered under argon pressure of 2.7×10^{-3} mbar. For CoFeB, a linear dynamic deposition (LDD) wedge technology was used to achieve a smooth gradation of film thickness. Samples with a different t_{FM} layer were used to study the formation of a magnetic dead layer. However, for the SHE measurements, all structures had a constant CoFeB thickness, $t_{FM} = 0.91$ nm. For this thickness, the as-deposited samples exhibited an uniaxial in-plane anisotropy, which turned into perpendicular anisotropy after 20 minutes of post-deposition annealing at 330 °C. Using e-beam lithography and ion-beam etching methods, the samples were patterned into 10 μm wide and 40 μm long Hall bars with $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ contact pads. Additional structures were prepared for 4-point resistance measurements. During the microfabrication process, the covering Ta layer was etched so that only a thin naturally oxidized Ta layer was left as a protective layer.

Measurement method. Continuous layers were used for structural and magnetic characterization. $\theta - 2\theta$ X-ray Diffraction was employed to study the crystallographic structure. Interface roughness was examined by X-ray Reflectivity and the surface morphology of the Ta layers was measured using Atomic Force Microscopy. High-resolution structural characterization of multilayer samples with 5 nm and 15 nm of Ta was carried out using a JEOL 2200FS Transmission Electron Microscope with double Cs correctors. Both HRTEM and STEM with high-angle annular dark-field (HAADF) contrast (Z-contrast) were used. The magnetic properties of the FM layer were probed using a LakeShore 7407 vibrating sample magnetometer (VSM) with an LN2 cryostat. The magnetic dead layer thickness was obtained from the x-axis interception value of the linear fit to M/A (the magnetic

moment per unit area) vs. t_{FM} . The change of magnetization was measured in a magnetic field (± 50 mT) at temperatures ranging from 80 K to 300 K. Anomalous Hall resistance used for obtaining ρ_{AHE} was calculated as a ratio of anomalous Hall voltage to current flowing through magnetic parts. Anomalous Hall voltage and spin-orbit effective fields were measured by means of Keithley 2636 A source-meter and Stanford SR830 DSP Lock-in Amplifier.

Theoretical method. The drift-diffusion equation written down for the non-magnetic (N) and interface (I) layers takes the following form refs 14, 19, 54 and 55:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_s^N(z) &= -\frac{1}{2e\rho_N} \frac{\partial \mu_s^N(z)}{\partial z} - \theta_{SH}^N J_N \hat{\mathbf{y}}, \\ \mathbf{j}_s^I(z) &= -\frac{1}{2e\rho_I} \frac{\partial \mu_s^I(z)}{\partial z} - \theta_{SH}^I J_I \hat{\mathbf{y}}, \end{aligned} \quad (2)$$

where ρ_N and ρ_I denote resistivity of the N and I layers, respectively, e is the electron charge ($e < 0$), μ_s is the spin accumulation, while J_N and J_I denote the charge current density in the N and I layers (along the x axis). In the following we assume $\theta_{SH}^I = \alpha \theta_{SH}^N$, with the proportionality coefficient α considered as a fitting parameter. Boundary conditions necessary for derivation of the spin accumulation μ_s (and thus also spin current) take the following form:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_s^N(z = d_I) &= \mathbf{j}_s^I(z = d_I), \\ \mathbf{j}_s^I(z = 0) &= \mathbf{j}_s^{FI}, \\ \mathbf{j}_s^N(z = d_I + d_N) &= 0, \\ \mu_s^I(z = d_I) &= \mu_s^N(z = d_N), \end{aligned} \quad (3)$$

where $d_{I,N}$ is the thickness of the I and N layers, respectively, and $z = 0$ corresponds to the I/F interface. Furthermore, \mathbf{j}_s^{FI} is the spin current at the F/I interface, taken on the interface layer side. This spin current obeys the boundary condition⁵¹:

$$e\mathbf{j}_s^{FI} = G_r \hat{\mathbf{m}} \times \hat{\mathbf{m}} \times \mu_s^I(0) + G_i \hat{\mathbf{m}} \times \mu_s^I(0), \quad (4)$$

where $\hat{\mathbf{m}}$ is a unit vector along the magnetic moment of the F layer, $G_r \equiv \text{Re}[G_{mix}]$, $G_i \equiv \text{Im}[G_{mix}]$, and G_{mix} is the so-called spin-mixing conductance. The above equation is appropriate when the spin polarization of SHE-induced spin current is normal to $\hat{\mathbf{m}}$. Otherwise the spin current component parallel to $\hat{\mathbf{m}}$ may flow into the magnet and can induce the anomalous Hall effect.

The spin current \mathbf{j}_s^{FI} creates a torque in the ferromagnetic layer, which can be expressed in terms of an effective field $\Delta \mathbf{H}$ as

$$\frac{\partial \hat{\mathbf{m}}}{\partial t} = \boldsymbol{\tau} = \gamma \hat{\mathbf{m}} \times \Delta \mathbf{H}, \quad (5)$$

where γ is the gyromagnetic ratio and $\Delta \mathbf{H}$ is related to the spin current \mathbf{j}_s^{FI} via the formula

$$\Delta \mathbf{H} = \frac{\hbar}{2e \mu_0 M_s d_F} \hat{\mathbf{m}} \times \mathbf{j}_s^{FI}. \quad (6)$$

The damping-like, $\Delta \mathbf{H} \cdot \hat{\mathbf{x}} \equiv \Delta H_{DL}$, and field-like, $\Delta \mathbf{H} \cdot \hat{\mathbf{y}} \equiv \Delta H_{FL}$ components of this effective field are

$$\begin{aligned} \Delta H_{DL} &= \frac{\hbar}{2e \mu_0 M_s d_F} J_N \theta_{SH}^N \\ &\times \frac{\tanh\left(\frac{d_N}{2\lambda_N}\right) \text{csch}\left(\frac{d_I}{\lambda_I}\right) + \alpha \left(\frac{\rho_N}{\rho_I}\right) \left[\tanh\left(\frac{d_I}{2\lambda_I}\right) \coth\left(\frac{d_N}{\lambda_N}\right) - \frac{\rho_I \lambda_I}{\rho_N \lambda_N} \right]}{\coth\left(\frac{d_N}{\lambda_N}\right) \coth\left(\frac{d_I}{\lambda_I}\right) + \frac{\rho_I \lambda_I}{\rho_N \lambda_N}} \\ &\times \frac{g_r(1 + g_r) + g_i^2}{(1 + g_r)^2 + g_i^2} (-m_z), \\ \Delta H_{FL} &= -\frac{\hbar}{2e \mu_0 M_s d_F} J_N \theta_{SH}^N \\ &\times \frac{\tanh\left(\frac{d_N}{2\lambda_N}\right) \text{csch}\left(\frac{d_I}{\lambda_I}\right) + \alpha \left(\frac{\rho_N}{\rho_I}\right) \left[\tanh\left(\frac{d_I}{2\lambda_I}\right) \coth\left(\frac{d_N}{\lambda_N}\right) - \frac{\rho_I \lambda_I}{\rho_N \lambda_N} \right]}{\coth\left(\frac{d_N}{\lambda_N}\right) \coth\left(\frac{d_I}{\lambda_I}\right) + \frac{\rho_I \lambda_I}{\rho_N \lambda_N}} \\ &\times \frac{g_i}{(1 + g_r)^2 + g_i^2}, \end{aligned} \quad (7)$$

where $m_z = \pm 1$ is the projection of the ferromagnet's magnetization onto the z axis and $g_{r,i}$ defined as:

$$g_{r,i} = 2G_{r,i} \frac{\coth\left(\frac{d_N}{\lambda_N}\right)\coth\left(\frac{d_I}{\lambda_I}\right) + \frac{\rho_I\lambda_I}{\rho_N\lambda_N}}{\frac{1}{\rho_I\lambda_I}\coth\left(\frac{d_N}{\lambda_N}\right) + \frac{1}{\rho_N\lambda_N}\coth\left(\frac{d_I}{\lambda_I}\right)}. \quad (8)$$

References

- Hoffmann, A. Spin Hall effects in metals. *IEEE Transactions on Magnetics* **49**, 5172 (2013).
- Liu, L., Moriyama, T., Ralph, D. & Buhrman, R. Spin-torque ferromagnetic resonance induced by the spin Hall effect. *Physical Review Letters* **106**, 036601 (2011).
- Lo Conte, R. *et al.* Spin-orbit torque-driven magnetization switching and thermal effects studied in Ta/CoFeB/MgO nanowires. *Applied Physics Letters* **105**, 122404 (2014).
- Hao, Q. & Xiao, G. Giant spin Hall effect and switching induced by spin-transfer torque in a W/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO structure with perpendicular magnetic anisotropy. *Physical Review Applied* **3**, 034009 (2015).
- Durrant, C. J. *et al.* Scanning Kerr microscopy study of current-induced switching in Ta/CoFeB/MgO films with perpendicular magnetic anisotropy. *Applied Physics Letters* **93**, 014414 (2016).
- Emori, S., Bauer, U., Ahn, S.-M., Martinez, E. & Beach, G. S. Current-driven dynamics of chiral ferromagnetic domain walls. *Nature Materials* **12**, 611–616 (2013).
- Kim, K.-W., Lee, H.-W., Lee, K.-J. & Stiles, M. D. Chirality from interfacial spin-orbit coupling effects in magnetic bilayers. *Physical Review Letters* **111**, 216601 (2013).
- Fan, X. *et al.* Quantifying interface and bulk contributions to spin-orbit torque in magnetic bilayers. *Nature Communication* **5**, 3042 (2014).
- Amin, V. P. & Stiles, M. D. Spin transport at interfaces with spin-orbit coupling: Phenomenology. *Physical Review B* **94**, 104420 (2016).
- Haney, P. M., Lee, H.-W., Lee, K.-J., Manchon, A. & Stiles, M. D. Current induced torques and interfacial spin-orbit coupling: Semiclassical modeling. *Physical Review B* **87**, 174411 (2013).
- Wang, L. *et al.* Giant room temperature interface spin Hall and inverse spin Hall effects. *Physical Review Letters* **116**, 196602 (2016).
- Skowronski, W. *et al.* Temperature dependence of spin-orbit torques in W/CoFeB bilayers. *Applied Physics Letters* **109**, 062407 (2016).
- Zhu, T. *et al.* The study of perpendicular magnetic anisotropy in CoFeB sandwiched by MgO and tantalum layers using polarized neutron reflectometry. *Applied Physics Letters* **100**, 202406 (2012).
- Pai, C.-F., Ou, Y., Vilela-Leão, L. H., Ralph, D. & Buhrman, R. Dependence of the efficiency of spin Hall torque on the transparency of Pt/ferromagnetic layer interfaces. *Physical Review B* **92**, 064426 (2015).
- Pai, C.-F. *et al.* Spin transfer torque devices utilizing the giant spin Hall effect of tungsten. *Applied Physics Letters* **101**, 122404 (2012).
- Hao, Q., Chen, W. & Xiao, G. Beta (β) tungsten thin films: structure, electron transport, and giant spin Hall effect. *Applied Physics Letters* **106**, 182403 (2015).
- Zhang, C. *et al.* Magnetotransport measurements of current induced effective fields in Ta/CoFeB/MgO. *Applied Physics Letters* **103**, 262407 (2013).
- Allen, G., Manipatruni, S., Nikonov, D. E., Doczy, M. & Young, I. A. Experimental demonstration of the coexistence of spin Hall and Rashba effects in β -tantalum/ferromagnet bilayers. *Physical Review B* **91**, 144412 (2015).
- Kim, J. *et al.* Anomalous temperature dependence of current-induced torques in CoFeB/MgO heterostructures with Ta-based underlayers. *Physical Review B* **89**, 174424 (2014).
- Qiu, X. *et al.* Angular and temperature dependence of current induced spin-orbit effective fields in Ta/CoFeB/MgO nanowires. *Scientific Reports* **4**, 4491 (2014).
- Liu, L. *et al.* Spin-torque switching with the giant spin Hall effect of tantalum. *Science* **336**, 555 (2012).
- Pi, U. H. *et al.* Tilting of the spin orientation induced by Rashba effect in ferromagnetic metal layer. *Applied Physics Letters* **97**, 162507 (2010).
- Hayashi, M., Kim, J., Yamanouchi, M. & Ohno, H. Quantitative characterization of the spin-orbit torque using harmonic Hall voltage measurements. *Physical Review B* **89**, 144425 (2014).
- Akyol, M. *et al.* Effect of the oxide layer on current-induced spin-orbit torques in Hf/CoFeB/MgO and Hf/CoFeB/TaOx structures. *Applied Physics Letters* **106**, 032406 (2015).
- Kwon, J. H., Deorani, P., Yoon, J., Hayashi, M. & Yang, H. Influence of tantalum underlayer on magnetization dynamics in Ni₈₁Fe₁₉ films. *Applied Physics Letters* **107**, 022401 (2015).
- Behera, N., Chaudhary, S. & Pandya, D. K. Anomalous anti-damping in sputtered β -Ta/Pt bilayer system. *Scientific Reports* **6**, 19488 (2016).
- Morota, M. *et al.* Indication of intrinsic spin Hall effect in 4d and 5d transition metals. *Physical Review B* **83**, 174405 (2011).
- Jamali, M. *et al.* Planar Hall effect based characterization of spin orbital torques in Ta/CoFeB/MgO structures. *Journal of Applied Physics* **119**, 133902 (2016).
- Hou, Q. & Xiao, G. Giant spin Hall effect and magnetotransport in a Ta/CoFeB/MgO layered structure: A temperature dependence study. *Physical Review B* **91**, 224413 (2015).
- Kim, J. *et al.* Layer thickness dependence of the current-induced effective field vector in Ta|CoFeB|MgO. *Nature Materials* **12**, 240–245 (2013).
- Ou, Y., Pai, C.-F., Shi, S., Ralph, D. & Buhrman, R. Origin of fieldlike spin-orbit torques in heavy metal/ferromagnet/oxide thin film heterostructures. *Physical Review B* **94**, 140414 (2016).
- Kim, J., Sheng, P., Takahashi, S., Mitani, S. & Hayashi, M. Spin Hall magnetoresistance in metallic bilayers. *Physical Review Letters* **116**, 097201 (2016).
- Moseley, P. T. & Seabook, C. J. The crystal structure of β -tantalum. *Acta Cryst.* **B29**, 1170 (1973).
- Bowen, D. K. & Tanner, B. K. X-Ray Metrology in Semiconductor Manufacturing. *CRC Press* 115–129 (2006).
- Liu, J., Ohkubo, T., Mitani, S., Hono, K. & Hayashi, M. Correlation between the spin Hall angle and the structural phases of early 5d transition metals. *Applied Physics Letters* **107**, 232408 (2015).
- De Boer, F. R., Mattens, W., Boom, R., Miedema, A. & Niessen, A. Cohesion in metals. North-Holland, Amsterdam (1988).
- Clevenger, L., Mutscheller, A., Harper, J., Cabral, C. Jr. & Barmak, K. The relationship between deposition conditions, the beta to alpha phase transformation, and stress relaxation in tantalum thin films. *Journal of Applied Physics* **72**, 4918 (1992).
- Stella, K., Büstel, D., Franzka, S., Posth, O. & Diesing, D. Preparation and properties of thin amorphous tantalum films formed by small e-beam evaporators. *Journal of Physics D: Applied Physics* **42**, 135417 (2009).
- Avci, C. O. *et al.* Fieldlike and antidamping spin-orbit torques in as-grown and annealed Ta/CoFeB/MgO layers. *Physical Review B* **89**, 214419 (2014).

40. Sinha, J. *et al.* Enhanced interface perpendicular magnetic anisotropy in Ta/CoFeB/MgO using nitrogen doped ta underlayers. *Applied Physics Letters* **102**, 242405 (2013).
41. Tao, B. S. *et al.* Perpendicular magnetic anisotropy in Ta/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgAl₂O₄ structures and perpendicular CoFeB/MgAl₂O₄/CoFeB magnetic tunnel junction. *Applied Physics Letters* **105**, 102407 (2014).
42. Chen, Y.-T. & Xie, S. Magnetic and electric properties of amorphous Co₄₀Fe₄₀B₂₀ thin films. *Journal of Nanomaterials* **2012**, 29 (2012).
43. Frankowski, M. *et al.* Buffer influence on magnetic dead layer, critical current, and thermal stability in magnetic tunnel junctions with perpendicular magnetic anisotropy. *Journal of Applied Physics* **117**, 223908 (2015).
44. Smit, J. The spontaneous Hall effect in ferromagnetics II. *Physica* **24**, 39 (1958).
45. Berger, L. Side-jump mechanism for the Hall effect of ferromagnets. *Physical Review B* **2**, 4559 (1970).
46. Wu, S., Zhu, T., Yang, X. & Chen, S. The anomalous Hall effect in the perpendicular Ta/CoFeB/MgO thin films. *Journal of Applied Physics* **113**, 17C717 (2013).
47. Zhu, T., Chen, P., Zhang, Q., Yu, R. & Liu, B. Giant linear anomalous Hall effect in the perpendicular CoFeB thin films. *Applied Physics Letters* **104**, 202404 (2014).
48. Cho, S. & Park, B.-G. Large planar Hall effect in perpendicularly magnetized W/CoFeB/MgO structures. *Current Applied Physics* **15**, 902 (2015).
49. Cho, S. *et al.* Large spin Hall magnetoresistance and its correlation to the spin-orbit torque in W/CoFeB/MgO structures. *Scientific Reports* **5**, 14668 (2015).
50. Torrejon, J. *et al.* Interface control of the magnetic chirality in CoFeB/MgO heterostructures with heavy-metal underlayers. *Nature Communications* **5**, 4655 (2014).
51. Brataas, A., Bauer, G. E. & Kelly, P. J. Non-collinear magnetoelectronics. *Physics Reports* **427**, 157 (2006).
52. Zwierzycki, M., Tserkovnyak, Y., Kelly, P. J., Brataas, A. & Bauer, G. E. First-principles study of magnetization relaxation enhancement and spin transfer in thin magnetic films. *Physical Review B* **71**, 064420 (2005).
53. Hou, D. *et al.* Interface induced inverse spin Hall effect in bismuth/permalloy bilayer. *Applied Physics Letters* **101**, 042403 (2012).
54. Chen, Y.-T. *et al.* Theory of spin Hall magnetoresistance. *Physical Review B* **87**, 144411 (2013).
55. Chen, Y.-T. *et al.* Theory of spin Hall magnetoresistance (SMR) and related phenomena. *Journal of Physics: Condensed Matter* **28**, 103004 (2016).

Acknowledgements

M.C. and Ł.K. received financial support from the NANOSPIN under Grant PSPB-045/2010 from Switzerland through the Swiss Contribution, W.S. acknowledges National Science Center, Poland, Grant No. 2015/17/D/ST3/00500, J.K. acknowledges DEC-2012/05/E/ST7/00240, T.S. acknowledges Grant Harmonia No. UMO-2012/04/M/ST7/00799. S.v.D. and L.Y. acknowledge financial support from the Academy of Finland (Grant Nos 12286361 and 13293929) and the European Research Council (ERC-2012-StG 307502). Microfabrication process was performed at Academic Center for Materials and Nanotechnology of AGH University. TEM analysis was conducted at the Aalto University OtaNano - Nanomicroscopy Center (Aalto-NMC). M.C. acknowledges AGH University Dean's Grant No. 15.11.230.269. Ł.K. would like to thank Anna Dyrdał for helpful discussions.

Author Contributions

J.W. performed sample deposition, M.C., Ł.K., J.B. and T.S. wrote the manuscript, M.C. and W.S. carried out microstructurization, conducted the electrical conductivity, spin Hall and anomalous Hall experiments, A.Ż. and J.W. conducted the magnetization measurements, J.K. conducted XRD and XRR measurements, L.Y. and S.v.D. conducted the TEM measurements, Ł.K. did modelling and performed fitting, J.B. supervised the project in terms of theory, T.S. supervised the project in terms of experiment. All authors reviewed the manuscript.

Additional Information

Competing Interests: The authors declare that they have no competing interests.

Publisher's note: Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



Open Access This article is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License, which permits use, sharing, adaptation, distribution and reproduction in any medium or format, as long as you give appropriate credit to the original author(s) and the source, provide a link to the Creative Commons license, and indicate if changes were made. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in a credit line to the material. If material is not included in the article's Creative Commons license and your intended use is not permitted by statutory regulation or exceeds the permitted use, you will need to obtain permission directly from the copyright holder. To view a copy of this license, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>.

© The Author(s) 2017

4.5 PODSUMOWANIE BADAŃ HETEROSTRUKTUR SPINOWEGO EFEKTU HALLA

Podsumowując przeprowadzono systematyczne temperaturowe pomiary harmonicznego napięcia Halla w układach: $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ o różnych grubościach metali ciężkich. W przypadku układu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ grubość warstwy metalu ciężkiego silnie wpływa na jego parametry strukturalne. Między grubościami 4nm i 6nm zaobserwowano przejście fazowe odpowiednio z wysoko rezystywnej fazy β -W do fazy α -W. Wartość efektywnego kąta Halla dla układu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}$ silnie zależy od temperatury uzyskując 0,55 w temperaturze 19K i 0,25 w temperaturze pokojowej. Z pomiarów XRR otrzymano dużą szorstkość interfejsu HM/FM oznaczającą silne wymieszanie na styku metalu ciężkiego i ferromagnetyka powodujące wzmocnienie efektów spin-orbita.

Duże wymieszanie na interfejsie zaobserwowano także dla układu $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}$. W obu przypadkach wyniki pomiarów reflektometrii rentgenowskiej XRR potwierdziły obrazy wykonane przy pomocy wysokorozdzielczego elektronowego mikroskopu skaningowego. Przeprowadzone pomiary temperaturowe składowych pola efektywnego dla trzech grubości $Ta = 5$ nm, 10 nm i 15 nm pozwoliły na zaadaptowanie teoretycznego modelu dyfuzyjnego transportu spinowego i wyznaczenie w funkcji temperatury spinowego kąta Halla osobno dla Ta i warstwy interfejsowej o grubości oszacowanej z badań strukturalnych. Wartość kąta Halla dla Ta jest praktycznie stała w funkcji temperatury i wynosi -0,2, natomiast efektywność warstwy interfejsowej (interfejsowy kąt Halla) ma charakter rosnący ze wzrostem temperatury zmieniając znak w przedziale temperatur 150 - 200K. Zmiana znaku wskazuje, że interfejsowy kąt Halla należy traktować jako efektywny współczynnik konwersji prądu spinowego, na który mają wpływ zarówno warstwa Ta , jak i ferromagnetyczna $CoFeB$, których zachowanie w wyższych temperaturach może różnić się w wyniku utraty pamięci spinowej (SML).

PODSUMOWANIE

Elektronika spinowa daje możliwość dalszej miniaturyzacji elementów elektronicznych oraz wykorzystania efektów kwantowych przy jednoczesnym zachowaniu integracji z technologią krzemową. Zastosowanie magnetycznych złącz tunelowych do budowy komercyjnych nieulotnych pamięci magnetycznych o dostępie swobodnym [MRAM](#) wskazuje na duży potencjał jaki niosą prądy spinowe - przez brak strat na ciepło *Jule'a* - w nowoczesnej elektronice. Jednocześnie, biorąc pod uwagę wymagania stawiane pamięciom [STT-MRAM](#) i [SOT-MRAM](#) jako potencjalnym zamiennikom pamięci [SRAM](#), niezbędne są dalsze intensywne badania, zarówno podstawowe jak i stosowane, w celu uzyskania coraz lepszych parametrów wielokrotnego przełączania magnetyzacji przez zwiększenie wytrzymałości (*endurance*) złącz [MTJ](#).

W niniejszej pracy przedstawiłam wyniki badań eksperymentalnych nad wpływem struktury krystalicznej i szorstkości powierzchniowej warstw buforowych na parametry warstwy ferromagnetycznej magnetycznego złącza tunelowego. Badania zaprezentowane w publikacji [\[P1\]](#) wykazały znaczące różnice w wartościach pól anizotropii oraz tłumienia precesji magnetyzacji dla próbek z buforami o różnej strukturze i szorstkościach, wskazując na możliwe korelacje. Większe wartości parametru tłumienia zostały uzyskane dla próbek z większą szorstkością topograficzną oraz silniejszą teksturą warstw buforowych. Wyniki badań przedstawione w publikacji [\[P2\]](#) potwierdzają uzyskane zależności, także dla układów kompletnych złącz tunelowych. Dla układu z buforem **I** $Ta(5)/Ru(10)/Ta(3)$, o mniejszej szorstkości i słabszej teksturze, wartość stabilności termicznej była większa o 50%, natomiast gęstość prądu krytycznego komórki złącza [MTJ](#) była mniejsza o 20% w porównaniu do układu z wysoko steksturyzowanym buforem **III** $Ta(5)/Ru(20)/Ta(5)$.

Dla heterostruktur spinowego efektu Halla $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ i $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$, o różnych grubościach warstw W i Ta zostały przeprowadzone systematyczne badania harmonicznych napięcia anomalnego efektu Halla w szerokim zakresie temperatur (20K-250K). Wyniki przedstawiono odpowiednio w pracach [\[P3\]](#) i [\[P4\]](#). Układy zostały dokładnie scharakteryzowane pod względem ich struktury krystalicznej, szczególnie w obszarze interfejsu metalu ciężkiego i ferromagnetyka, wykorzystując między innymi wysokorozdzielczy elektronowy mikroskop z kontrastem Z . W przypadku układu $W/Co_{12}Fe_{68}B_{20}/MgO$ odnotowano wysoką wartość kąta Halla sięgającą 0,55 w temperaturze 19K i 0,25 w temperaturze pokojowej. Dla układu $Ta/Co_{40}Fe_{40}B_{20}/MgO$ zaadaptowano teoretyczny model dyfuzyjnego transportu spinowego i wyznaczono spinowy kąt Halla oddzielnie dla warstwy metalu ciężkiego

i dla warstwy interfejsowej w funkcji temperatury. Wyznaczony przy pomocy modelu efektywny kąt Halla dla Ta w pełnym zakresie mierzonej temperatury utrzymywał się na stałym poziomie -0,2, natomiast dla warstwy interfejsowej efektywność silnie zmienia się wraz ze zmianą temperatury, co wskazuje na znaczący udział efektów interfejsowych.

ZAŁĄCZNIK

[A1] S. Ziętek, **M. Cecot**, W. Skowroński and T. Stobiecki, 'Magnetization dynamics of NiFe film and anisotropic magnetoresistance device: Comparison of microwave detection methods', *21st International Conference on Microwave, Radar and Wireless Communications (MIKON)*, IEEE, pp. 1–4, 2016.

DOI: [10.1109/MIKON.2016.7492130](https://doi.org/10.1109/MIKON.2016.7492130)

Magnetization dynamics of NiFe film and anisotropic magnetoresistance device: comparison of microwave detection methods

Sławomir Ziętek¹, Monika Cecot¹, Witold Skowroński¹, Tomasz Stobiecki¹

¹AGH University of Science and Technology,
Department of Electronics,
Al. Mickiewicza 30, 30-059 Kraków, Poland
zietek@agh.edu.pl

Abstract— We compare experimental techniques for detection of the ferromagnetic resonance (FMR) and spin waves in thin ferromagnetic films and patterned magnetoresistance device. For 20 nm of the NiFe the microwave frequency dispersion relation and damping parameter were obtained by pulse inductive microwave magnetometer (PIMM) and scalar network analysis (SNA). Finally, on $2 \times 90 \mu\text{m}^2$ magnetoresistive stripe FMR and standing spin wave spectra were measured by means of spin diode effect (SDE).

Index Terms — magnetization dynamics, damping parameter, ferromagnetic resonance, spin waves, spin diode effect, NiFe films.

I. INTRODUCTION

Magnetization dynamics is an attractive research topic that combines microwave phenomenon of magnetic thin films, nanotechnology and spintronics. Utilization of ferromagnetic resonance (FMR) and standing spin waves (SSW) can be interesting from a microwave electronics application point of view. In the long term, it can lead to the development of a new group of radio frequency (RF) devices such as RF detectors [1-6], RF oscillators [7,8], interferometers [9], demodulators [10], phase detectors [11] and magnetic field sensors [12,13]. Moreover, spintronics devices can be also used as a nonvolatile and ultralow energy-consuming magnetic random access memories (MRAM) cells.

In order to achieve even higher frequencies and improve the quality factor of RF devices, it is important to examine its magnetic properties in a wide frequency range. Material parameters such as magnetization saturation, magnetic anisotropy and damping factor play an important role in designing and improvement of RF spintronics devices.

Magnetization dynamics phenomenon can be observed by a number of experimental methods, utilizing both magneto-optical, inductive and anisotropic magnetoresistance (AMR) effects. In this work we focus on three following microwave techniques: pulse inductive microwave magnetometry (PIMM) [14,15], scalar network analysis ferromagnetic resonance (SNA-FMR) [16] and spin diode effect (SDE) [17] in order to determine effective damping parameter in NiFe films. First two are used to derive the dynamic magnetic properties of continuous film, whereas the last one is utilized to measure magnetization dynamics in micro- or nanosized patterned

elements. The SDE method can be successfully used in more complicated multilayer devices such as magnetic tunnel junction (MTJ) [18] and giant magnetoresistive (GMR) elements [4,6].

II. THEORETICAL BACKGROUND

Exchange interaction between magnetic moments in ferromagnetic film causes that excitation of moments reveals collective behavior and, in some cases, can be treated as uniform precession of magnetization vector. Magnetization dynamics in magnetic materials is described by Landau-Lifszyc-Gilbert (LLG) equation (Eq.1), which couples excitation of magnetization (magnons) and electromagnetic waves (photons) penetrating into the ferromagnetic film. Magnetic moments in ferromagnetic film, when excited out of equilibrium point, precess with eigenfrequencies, and vanishes due to presence of the damping.

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_S} \vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \quad (1)$$

Where, γ is the gyromagnetic ratio, and α is Gilbert damping parameter. The specific solution of LLG equation, limited to the thin film case, (Eq.2) describes FMR frequency as a function of external magnetic field (H), assuming following parameters: magnetization saturation (M_s), effective uniaxial magnetic anisotropy (K_u).

$$f = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(\mu_0 H + \mu_0 M_S)(\mu_0 H - \frac{2K_u}{\mu_0 M_S})} \quad (2)$$

III. EXPERIMENTAL TECHNIQUES AND RESULTS

A. NiFe films: inductive methods

On thermally oxidized silicon wafer, 20 nm thick $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ layer was deposited using magnetron sputtering technique. The NiFe wafer has been cut into $5 \times 10 \text{ mm}^2$ pieces and next these samples were examined by PIMM, SNA, and after patterning into $2 \times 90 \mu\text{m}^2$ stripe by SDE techniques.

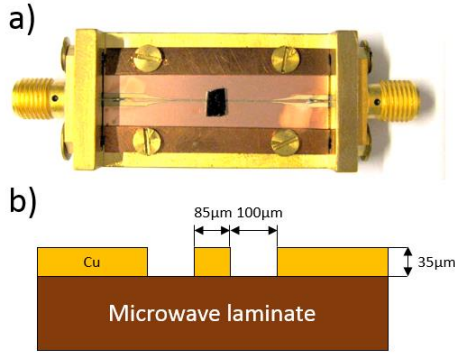


Fig. 1 a) Photo of CPW, which was used in PIMM and SNA measurements methods b) cross section of CPW matched to 50Ω of impedance.

Measurement setup for PIMM (Fig 2.a) consist of 65-ps rise-time pulse generator, 20 GHz bandwidth sampling oscilloscope, two-axial Helmholtz coils pairs and coplanar waveguide (CPW) (Fig.1). The sample is placed inside the coils on the CPW (Fig.1a). Application of the external magnetic field along y axis saturates sample's magnetization vector along this direction. 200-ps long pulses of current passes through the CPW and induce an in-plane Oersted field pulse along the x axis, which excites magnetization precession around this direction. These free oscillations of magnetization generate alternating magnetic field, which in turn induce small current in CPW, that is measured using sampling oscilloscope.

In order to avoid microwave distortion of electric circuit, we have performed subtraction of microwave background signal, which is devoid of any magnetic contributions. For this purpose, the magnetic field is applied along x axis, and thus magnetization of the ferromagnetic film is not excited by the field pulse.

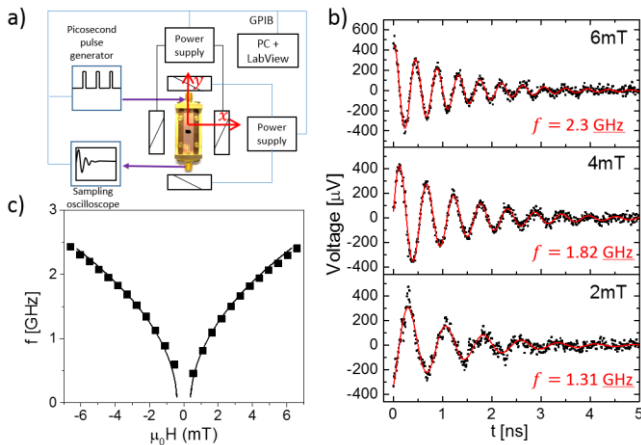


Fig. 2. a) Experimental setup for PIMM measurement, b) PIMM data (black points) measured at 2, 4 and 6 mT. Red lines show best fits of Eq.3. c) dispersion relation of the resonance frequency as a function of external magnetic field. Solid black line presents the best fit of Eq.2.

The sample was investigated at magnetic field in range of ± 8 mT. Pulses with amplitude of 500 mV and duration time of 200 ps at 100 kHz repetition rate were applied.

The time-dependent responses of damped magnetization precession measured at the magnetic fields of 2 mT, 4 mT and 6 mT are shown in Fig.2b. The red lines represent the best fits, which are given by the following equation:

$$U(t) = U_0 + A \frac{t}{\tau_0} \sin(\omega t + \varphi) \quad (3)$$

Where, τ_0 is the time constant, ω is the FMR frequency and A_0 is the amplitude. The damping coefficient was determined as:

$$\alpha = \frac{2}{\gamma \tau_0 \mu_0 M_S} \quad (4)$$

Alternative to the PIMM technique, SNA-FMR is basing on forced oscillation excited by RF sinusoidal waveform generator (Fig. 3a). The spectrum analyzer is used to measure transmitted power through the CPW. Excitation of FMR modes in NiFe film (Fig.3b) reduces the signal reaching the spectrum analyzer due to the absorption of the microwave power, which is measured during magnetic field or frequency sweeping. The resonance frequency as a function of magnetic field is shown in Fig.3c. Fig.3d. shows the FMR line widths as a function of frequency and the red line represents the linear fit of Eq.5 which are used to determine the damping coefficient:

$$\Delta H = \Delta H_0 + \alpha \frac{4\pi f}{\gamma} \quad (5)$$

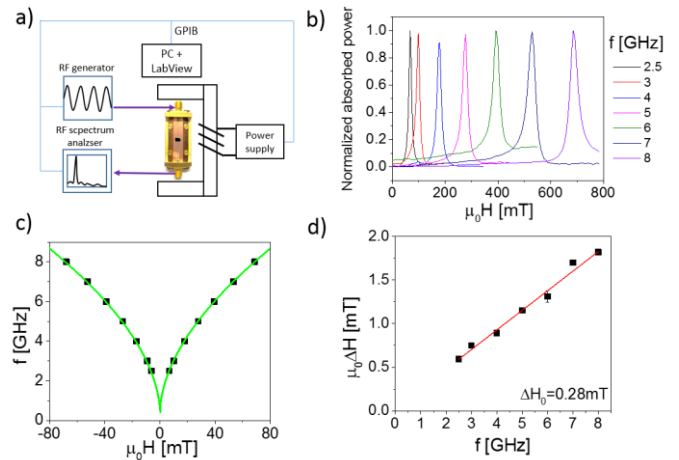


Fig. 3. a) Experimental setup for SNA-FMR measurement, b) FMR lines of NiFe 20nm film, c) dispersion relation of the resonance frequency as a function of external magnetic field. Green line presents the best fit of Eq.2 d) FMR line width as a function of frequency. Red line is linear fit of Eq.5.

B. NiFe device: magnetoresistive method

In order to investigate FMR phenomenon in patterned devices, SDE technique is used. The scheme of the measurement system is shown in Fig.4.a. The RF power is delivered to the NiFe stripe by a microwave probe. Alternating current passing through the stripe can generate alternating Oersted field, which induces its magnetization precession [3,4,6]. Due to the AMR effect the resistance of NiFe stripe

oscillate, which leads to the rectification of RF current. The output signal on bias tee results in DC voltage component, which is measured by voltmeter.

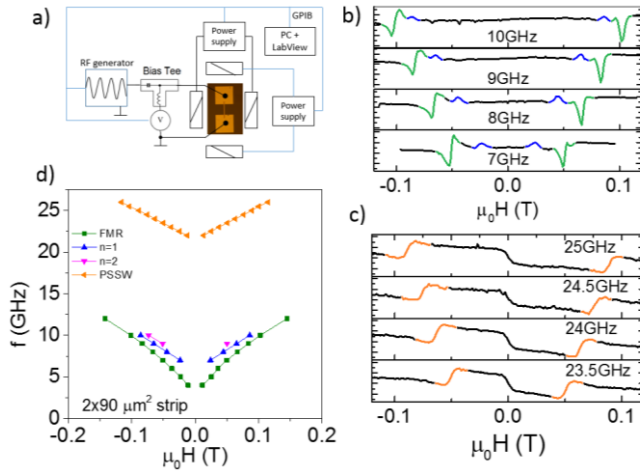


Fig. 4. a) Experimental setup for SDE measurement, b) uniform FMR and quantized SSW spectra for on $2 \times 90 \mu\text{m}^2$ NiFe stripe, c) Relation of dispersion with additional PSSW lines, d) PSSW spectra.

NiFe strips with dimensions of $2 \times 90 \mu\text{m}^2$ were patterned by electron beam lithography and ion beam etching. At both ends of NiFe strips $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ gold pads were prepared to contact strips with the RF probes. 10mW of RF power was delivered to the stripe, and the DC voltage signals of the FMR and SSW were measured during magnetic field sweeping. Examples of the FMR and SSW spectra from 7GHz to 10GHz are shown in Fig.4.b. While the examples of the perpendicular standing spin wave (PSSW) spectra, observed above 20 GHz, are shown on Fig.4.c. The frequency dispersion relations of the uniform FMR mode and two modes of higher frequency correspond to the quantized number n of SSW modes derived from the dipole-dipole interaction [19,20] are shown on Fig.4d. The high frequency dispersion relation of the PSSW modes can be also understood in terms of dipol-dipol interaction for rectangular confined stripe [19].

IV. CONCLUSIONS

We have compared PIMM, SNA and SDE microwave detection methods using FMR modes from NiFe film and NiFe AMR stripe. The table below presents damping parameter obtained from discussed experiments.

TABLE I. COMPARISON OF DAMPING PARAMETERS DETERMINED FROM PIMM, SNA AND SDE METHODS

Method/Sample	α
PIMM/film	0.0109 ± 0.0006
SNA/film	0.01201 ± 0.00075
SDE/stripe $2 \times 90 \mu\text{m}^2$	0.0099 ± 0.0014

Both inductive methods PIMM and SNA give similar damping factor. In case of magnetoresistive SDE method on patterned device, the damping is slightly smaller, thanks a higher effective uniaxial anisotropy from the shape of device which eliminates magnetization dispersions and inhomogeneities in

the ferromagnetic stripe. Nevertheless, this method allows us to observe the higher frequency modes in the systems such as higher order quantized SSW.

ACKNOWLEDGMENTS

The project was supported by Polish National Science Center Grant No. DEC-2012/04/M/ST7/00799, and AGH-UST Dean's grant No. 15.11.230.198. WS acknowledges Polish National Center for Research and Development grant No. LIDER/467/L-6/14/NCBR/2015.

REFERENCES

- [1] S. Miwa, S. Ishibashi, H. Tomita, T. Nozaki, E. Tamura, K. Ando, N. Mizuochi, T. Saruya, H. Kubota, and K. Yakushiji, "Highly sensitive nanoscale spin-torque diode," *Nature materials*, vol. 13, no. 1, pp. 50–56, 2014.
- [2] L. H. Bai, Y. S. Gui, A. Wirthmann, E. Recksiedler, N. Mecking, C.-M. Hu, Z. H. Chen, and S. C. Shen, "The rf magnetic-field vector detector based on the spin rectification effect," *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 3, p. 032504, 2008.
- [3] M. Harder, Z. X. Cao, Y. S. Gui, X. L. Fan, and C.-M. Hu, "Analysis of the line shape of electrically detected ferromagnetic resonance," *Physical Review B*, vol. 84, no. 5, p. 054423, 2011.
- [4] J. Kleinlein, B. Ocker, and G. Schmidt, "Using giant magneto resistance stripes to efficiently generate direct voltage signals from alternating current excitations," *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 15, p. 153507, 2014.
- [5] C. Wang, Y.-T. Cui, J. Z. Sun, J. A. Katine, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, "Sensitivity of spin-torque diodes for frequency-tunable resonant microwave detection," *Journal of Applied Physics*, vol. 106, no. 5, p. 053905, 2009.
- [6] S. Ziętek, P. Ogrodnik, M. Frankowski, J. Chęciński, P. Wiśniowski, W. Skowroński, J. Wrona, T. Stobiecki, A. Żywczyk, and J. Barnaś, "Rectification of radio-frequency current in a giant-magnetoresistance spin valve," *Physical Review B*, vol. 91, no. 1, p. 014430, 2015.
- [7] S. Kaka, M. R. Puffall, W. H. Rippard, T. J. Silva, S. E. Russek, and J. A. Katine, "Mutual phase-locking of microwave spin torque nano-oscillators," *Nature*, vol. 437, no. 7057, pp. 389–392, 2005.
- [8] S. I. Kiselev, J. C. Sankey, I. N. Krivorotov, N. C. Emley, R. J. Schoelkopf, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, "Microwave oscillations of a nanomagnet driven by a spin-polarized current," *Nature*, vol. 425, no. 6956, pp. 380–383, 2003.
- [9] A. Wirthmann, X. Fan, Y. S. Gui, K. Martens, G. Williams, J. Dietrich, G. E. Bridges, and C.-M. Hu, "Direct phase probing and mapping via spintronic michelson interferometry," *Physical review letters*, vol. 105, no. 1, p. 017202, 2010.
- [10] A. Yamaguchi, H. Miyajima, S. Kasai, and T. Ono, "Self-homodyne rf demodulator using a ferromagnetic nanowire," *Applied physics letters*, vol. 90, no. 21, p. 212505, 2007.
- [11] X. Fan, S. Kim, X. Kou, J. Kolodzey, H. Zhang, and J. Q. Xiao, "Microwave phase detection with a magnetic tunnel junction," *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 21, p. 212501, 2010.
- [12] M. Dabek and P. Wisniowski, "Dynamic response of tunneling magnetoresistance sensors to nanosecond current step," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 232, pp. 148–150, 2015.
- [13] P. Wiśniowski, M. Dabek, S. Cardoso, and P. P. Freitas, "Magnetic field sensing characteristics of MgO based tunneling magnetoresistance devices with Co 40 Fe 40 B 20 and Co 60 Fe 20 B 20 electrodes," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 202, pp. 64–68, 2013.
- [14] S. S. Kalarickal, P. Krivosik, M. Wu, C. E. Patton, M. L. Schneider, P. Kabos, T. J. Silva, and J. P. Nibarger, "Ferromagnetic resonance linewidth in metallic thin films: Comparison of measurement methods," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, no. 9, p. 093909, 2006.
- [15] S. Serrano-Guisan, K. Rott, G. Reiss, and H. W. Schumacher, "Inductive and magneto-resistive measurements of Gilbert damping in Ni81Fe19 thin films and microstructures," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 41, no. 16, p. 164015, 2008.
- [16] M. Cecot, J. Wrona, J. Kanak, S. Ziętek, W. Skowronski, A. Żywczyk, M. Czapkiewicz, and T. Stobiecki, "Magnetic Properties and Magnetization Dynamics of Magnetic Tunnel Junction Bottom Electrode With Different

- Buffer Layers,” *Magnetics, IEEE Transactions on*, vol. 51, no. 11, pp. 1–4, 2015.
- [17] A. A. Tulapurkar, Y. Suzuki, A. Fukushima, H. Kubota, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Jayaprawira, N. Watanabe, and S. Yuasa, “Spin-torque diode effect in magnetic tunnel junctions,” *Nature*, vol. 438, no. 7066, pp. 339–342, 2005.
- [18] W. Skowroński, M. Czapkiewicz, M. Frankowski, J. Wrona, T. Stobiecki, G. Reiss, K. Chalapat, G. S. Paraoanu, and S. van Dijken, “Influence of MgO tunnel barrier thickness on spin-transfer ferromagnetic resonance and torque in magnetic tunnel junctions,” *Physical Review B*, vol. 87, no. 9, p. 094419, 2013.
- [19] K. Y. Guslienko, S. O. Demokritov, B. Hillebrands, and A. N. Slavin, “Effective dipolar boundary conditions for dynamic magnetization in thin magnetic stripes,” *Physical Review B*, vol. 66, no. 13, p. 132402, 2002.
- [20] A. Yamaguchi, K. Motoi, H. Miyajima, and Y. Nakatani, “Magnetic field dependence of rectification radio frequency current flowing through a single layered ferromagnetic wire,” *Journal of Applied Physics*, vol. 105, no. 7, p. 07D301, 2009.

BIBLIOGRAFIA

- [1] S. Ikegawa, F. B. Mancoff, J. Janesky and S. Aggarwal, 'Magnetoresistive random access memory: Present and future', *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 67, no. 4, pp. 1407–1419, 2020.
- [2] S. Bhatti, R. Sbiaa, A. Hirohata, H. Ohno, S. Fukami and S. Piramanayagam, 'Spintronics based random access memory: A review', *Materials Today*, vol. 20, no. 9, pp. 530–548, 2017.
- [3] C. Zhang, Y. Takeuchi, S. Fukami and H. Ohno, 'Field-free and sub-ns magnetization switching of magnetic tunnel junctions by combining spin-transfer torque and spin-orbit torque', *Applied Physics Letters*, vol. 118, no. 9, p. 092406, 2021.
- [4] K. Garello, F. Yasin, S. Couet, L. Souriau, J. Swerts, S. Rao, S. Van Beek, W. Kim, E. Liu, S. Kundu *et al.*, 'Sot-mram 300nm integration for low power and ultrafast embedded memories', in *2018 IEEE Symposium on VLSI Circuits*, IEEE, 2018, pp. 81–82.
- [5] W. Skowroński, P. Wiśniowski, T. Stobiecki, S. Cardoso, P. P. Freitas and S. van Dijken, 'Magnetic field sensor with voltage-tunable sensing properties', *Applied Physics Letters*, vol. 101, no. 19, p. 192401, 2012.
- [6] A. M. Deac, A. Fukushima, H. Kubota, H. Maehara, Y. Suzuki, S. Yuasa, Y. Nagamine, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira and N. Watanabe, 'Bias-driven high-power microwave emission from mgo-based tunnel magnetoresistance devices', *Nature Physics*, vol. 4, no. 10, pp. 803–809, 2008.
- [7] W. Skowroński, J. Chęciński, S. Ziętek, K. Yakushiji and S. Yuasa, 'Microwave magnetic field modulation of spin torque oscillator based on perpendicular magnetic tunnel junctions', *Scientific reports*, vol. 9, no. 1, pp. 1–6, 2019.
- [8] P. Muduli, R. Sharma, D. Tiwari, N. Sisodia, A. Houshang, O. Heinonen and J. Åkerman, 'Microwave oscillators and detectors based on magnetic tunnel junctions', in *Emerging Non-Volatile Memory Technologies*, Springer, 2021, pp. 3–44.
- [9] J. Hirsch, 'Spin hall effect', *Physical review letters*, vol. 83, no. 9, p. 1834, 1999.
- [10] J. Sinova, S. O. Valenzuela, J. Wunderlich, C. Back and T. Jungwirth, 'Spin hall effects', *Reviews of modern physics*, vol. 87, no. 4, p. 1213, 2015.
- [11] S. S. M. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant and S.-H. Yang, 'Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with mgo (100) tunnel barriers', *Nature materials*, vol. 3, no. 12, pp. 862–867, 2004.
- [12] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki and K. Ando, 'Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal fe/mgo/fe magnetic tunnel junctions', *Nature materials*, vol. 3, no. 12, pp. 868–871, 2004.
- [13] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura and H. Ohno, 'Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 k by suppression of ta diffusion in co fe b/ mg o/ co fe b pseudo-spin-valves annealed at high temperature', *Applied Physics Letters*, vol. 93, no. 8, p. 082508, 2008.
- [14] C.-F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. Tseng, D. Ralph and R. Buhrman, 'Spin transfer torque devices utilizing the giant spin hall effect of tungsten', *Applied Physics Letters*, vol. 101, no. 12, p. 122404, 2012.

- [15] Q. Hao, W. Chen and G. Xiao, 'Beta (β) tungsten thin films: Structure, electron transport, and giant spin hall effect', *Applied Physics Letters*, vol. 106, no. 18, p. 182 403, 2015.
- [16] K. Morrison, 'Diffraction techniques', in *Characterisation Methods in Solid State and Materials Science*, ser. 2053-2563, IOP Publishing, 2019, 3–1 to 3–46, ISBN: 978-0-7503-1383-4. DOI: [10.1088/2053-2563/ab2df5ch3](https://doi.org/10.1088/2053-2563/ab2df5ch3). [Online]. Available: <http://dx.doi.org/10.1088/2053-2563/ab2df5ch3>.
- [17] J. Hoszowska, A. Freund, E. Boller, J. Sellschop, G. Level, J. Härtwig, R. Burns, M. Rebak and J. Baruchel, 'Characterization of synthetic diamond crystals by spatially resolved rocking curve measurements', *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 34, no. 10A, A47, 2001.
- [18] L. Yao, S. Inkinen and S. Van Dijken, 'Direct observation of oxygen vacancy-driven structural and resistive phase transitions in $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ ', *Nature communications*, vol. 8, no. 1, pp. 1–9, 2017.
- [19] D. O. Klenov and S. Stemmer, 'Contributions to the contrast in experimental high-angle annular dark-field images', *Ultramicroscopy*, vol. 106, no. 10, pp. 889–901, 2006.
- [20] B. Heinrich, 'Spin relaxation in magnetic metallic layers and multilayers', in *Ultrathin Magnetic Structures III*, Springer, 2005, pp. 143–210.
- [21] B. Heinrich, J. Cochran and R. Hasegawa, 'Fmr linebroadening in metals due to two-magnon scattering', *Journal of Applied Physics*, vol. 57, no. 8, pp. 3690–3692, 1985.
- [22] A. B. Kos, T. J. Silva and P. Kabos, 'Pulsed inductive microwave magnetometer', *Review of scientific instruments*, vol. 73, no. 10, pp. 3563–3569, 2002.
- [23] S. Ziętek, M. Cecot, W. Skowroński and T. Stobiecki, 'Magnetization dynamics of nife film and anisotropic magnetoresistance device: Comparison of microwave detection methods', in *2016 21st International Conference on Microwave, Radar and Wireless Communications (MIKON)*, IEEE, 2016, pp. 1–4.
- [24] T. Miyazaki and N. Tezuka, 'Giant magnetic tunneling effect in $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ junction', *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 139, no. 3, pp. L231–L234, 1995.
- [25] S. Yuasa and D. Djayaprawira, 'Giant tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO (0 0 1) barrier', *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 40, no. 21, R337, 2007.
- [26] J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, H. Takahashi and H. Ohno, 'Dependence of giant tunnel magnetoresistance of sputtered $\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$ magnetic tunnel junctions on MgO barrier thickness and annealing temperature', *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 44, no. 4L, p. L587, 2005.
- [27] W. Butler, X.-G. Zhang, T. Schulthess and J. MacLaren, 'Spin-dependent tunneling conductance of $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$ sandwiches', *Physical Review B*, vol. 63, no. 5, p. 054 416, 2001.
- [28] J. Nowak and J. Rafteruskiewicz, 'Spin dependent electron tunneling between ferromagnetic films', *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 109, no. 1, pp. 79–90, 1992.
- [29] N. F. Mott, 'The electrical conductivity of transition metals', *Proceedings of the Royal Society of London. Series A-Mathematical and Physical Sciences*, vol. 153, no. 880, pp. 699–717, 1936.
- [30] M. Julliere, 'Tunneling between ferromagnetic films', *Physics letters A*, vol. 54, no. 3, pp. 225–226, 1975.

- [31] P. Paluskar, J. Attema, G. de Wijs, S Fiddy, E Snoeck, J. Kohlhepp, H. Swagten, R. de Groot and B Koopmans, 'Spin tunneling in junctions with disordered ferromagnets', *Physical review letters*, vol. 100, no. 5, p. 057 205, 2008.
- [32] I. Žutić, J. Fabian and S. D. Sarma, 'Spintronics: Fundamentals and applications', *Reviews of modern physics*, vol. 76, no. 2, p. 323, 2004.
- [33] J. S. Moodera, E. F. Gallagher, K. Robinson and J. Nowak, 'Optimum tunnel barrier in ferromagnetic–insulator–ferromagnetic tunneling structures', *Applied Physics Letters*, vol. 70, no. 22, pp. 3050–3050, 1997.
- [34] D. Wang, C. Nordman, J. M. Daughton, Z. Qian and J. Fink, '70% tmr at room temperature for sdt sandwich junctions with cofeb as free and reference layers', *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 40, no. 4, pp. 2269–2271, 2004.
- [35] Y. Tserkovnyak, A. Brataas and G. E. Bauer, 'Enhanced gilbert damping in thin ferromagnetic films', *Physical review letters*, vol. 88, no. 11, p. 117 601, 2002.
- [36] W. Skowroński, T. Stobiecki, J. Wrona, K. Rott, A. Thomas, G. Reiss and S. van Dijken, 'Interlayer exchange coupling and current induced magnetization switching in magnetic tunnel junctions with mgo wedge barrier', *Journal of Applied Physics*, vol. 107, no. 9, p. 093 917, 2010.
- [37] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura and H. Ohno, 'A perpendicular-anisotropy cofeb–mgo magnetic tunnel junction', *Nature materials*, vol. 9, no. 9, pp. 721–724, 2010.
- [38] B. Jinnai, K. Watanabe, S. Fukami and H. Ohno, 'Scaling magnetic tunnel junction down to single-digit nanometers—challenges and prospects', *Applied Physics Letters*, vol. 116, no. 16, p. 160 501, 2020.
- [39] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. M. Lee, F. Matsukura, Y. Ohno, T. Hanyu and H. Ohno, 'Magnetic tunnel junctions for spintronic memories and beyond', *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 54, no. 5, pp. 991–1002, 2007.
- [40] J. Smit, 'The spontaneous hall effect in ferromagnetics ii', *Physica*, vol. 24, no. 1-5, pp. 39–51, 1958.
- [41] L. Berger, 'Side-jump mechanism for the hall effect of ferromagnets', *Physical Review B*, vol. 2, no. 11, p. 4559, 1970.
- [42] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova and T. Jungwirth, 'Experimental observation of the spin-hall effect in a two-dimensional spin-orbit coupled semiconductor system', *Physical review letters*, vol. 94, no. 4, p. 047 204, 2005.
- [43] X. Tao, Q. Liu, B. Miao, R. Yu, Z. Feng, L. Sun, B. You, J. Du, K. Chen, S. Zhang *et al.*, 'Self-consistent determination of spin hall angle and spin diffusion length in pt and pd: The role of the interface spin loss', *Science advances*, vol. 4, no. 6, eaat1670, 2018.
- [44] M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi and H. Ohno, 'Quantitative characterization of the spin-orbit torque using harmonic hall voltage measurements', *Physical Review B*, vol. 89, no. 14, p. 144 425, 2014.
- [45] L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. Tseng, D. Ralph and R. Buhrman, 'Spin-torque switching with the giant spin hall effect of tantalum', *Science*, vol. 336, no. 6081, pp. 555–558, 2012.
- [46] G. Allen, S. Manipatruni, D. E. Nikonov, M. Doczy and I. A. Young, 'Experimental demonstration of the coexistence of spin hall and rashba effects in β - tantalum/ferromagnet bilayers', *Physical Review B*, vol. 91, no. 14, p. 144 412, 2015.

- [47] G. W. Kim, D. D. Cuong, Y. J. Kim, I. H. Cha, T. Kim, M. H. Lee, O. Lee, H. Baik, S. C. Hong, S. H. Rhim *et al.*, 'Spin-orbit torque engineering in β -w/cofeb heterostructures with w-ta or w-v alloy layers between β -w and cofeb', *NPG Asia Materials*, vol. 13, no. 1, pp. 1–9, 2021.
- [48] M. Yamanouchi, L. Chen, J. Kim, M. Hayashi, H. Sato, S. Fukami, S. Ikeda, F. Matsukura and H. Ohno, 'Three terminal magnetic tunnel junction utilizing the spin hall effect of iridium-doped copper', *Applied Physics Letters*, vol. 102, no. 21, p. 212 408, 2013.
- [49] Y. Niimi, M. Morota, D. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert and Y. Otani, 'Extrinsic spin hall effect induced by iridium impurities in copper', *Physical review letters*, vol. 106, no. 12, p. 126 601, 2011.
- [50] K.-U. Demasius, T. Phung, W. Zhang, B. P. Hughes, S.-H. Yang, A. Kellock, W. Han, A. Pushp and S. S. Parkin, 'Enhanced spin-orbit torques by oxygen incorporation in tungsten films', *Nature communications*, vol. 7, no. 1, pp. 1–7, 2016.
- [51] P. Laczkowski, Y. Fu, H. Yang, J.-C. Rojas-Sánchez, P. Noel, V. Pham, G. Zahnd, C. Deranlot, S. Collin, C. Bouard *et al.*, 'Large enhancement of the spin hall effect in au by side-jump scattering on ta impurities', *Physical Review B*, vol. 96, no. 14, p. 140 405, 2017.
- [52] M. Dc, R. Grassi, J.-Y. Chen, M. Jamali, D. Reifsnyder Hickey, D. Zhang, Z. Zhao, H. Li, P. Quarterman, Y. Lv *et al.*, 'Room-temperature high spin-orbit torque due to quantum confinement in sputtered bixse (1-x) films', *Nature materials*, vol. 17, no. 9, pp. 800–807, 2018.
- [53] Y. Wang, D. Zhu, Y. Wu, Y. Yang, J. Yu, R. Ramaswamy, R. Mishra, S. Shi, M. Elyasi, K.-L. Teo *et al.*, 'Room temperature magnetization switching in topological insulator-ferromagnet heterostructures by spin-orbit torques', *Nature communications*, vol. 8, no. 1, pp. 1–6, 2017.
- [54] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard and D. D. Awschalom, 'Observation of the spin hall effect in semiconductors', *science*, vol. 306, no. 5703, pp. 1910–1913, 2004.
- [55] I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl and P. Gambardella, 'Perpendicular switching of a single ferromagnetic layer induced by in-plane current injection', *Nature*, vol. 476, no. 7359, pp. 189–193, 2011.
- [56] Y.-C. Lau, D. Betto, K. Rode, J. Coey and P. Stamenov, 'Spin-orbit torque switching without an external field using interlayer exchange coupling', *Nature nanotechnology*, vol. 11, no. 9, pp. 758–762, 2016.
- [57] N. Sato, F. Xue, R. M. White, C. Bi and S. X. Wang, 'Two-terminal spin-orbit torque magnetoresistive random access memory', *Nature Electronics*, vol. 1, no. 9, pp. 508–511, 2018.
- [58] M. Wang, W. Cai, D. Zhu, Z. Wang, J. Kan, Z. Zhao, K. Cao, Z. Wang, Y. Zhang, T. Zhang *et al.*, 'Field-free switching of a perpendicular magnetic tunnel junction through the interplay of spin-orbit and spin-transfer torques', *Nature electronics*, vol. 1, no. 11, pp. 582–588, 2018.
- [59] C. Song, R. Zhang, L. Liao, Y. Zhou, X. Zhou, R. Chen, Y. You, X. Chen and F. Pan, 'Spin-orbit torques: Materials, mechanisms, performances, and potential applications', *Progress in Materials Science*, vol. 118, p. 100 761, 2021.
- [60] U. H. Pi, K. Won, J. Y. Bae, S. C. Lee, Y. J. Cho, K. S. Kim and S. Seo, 'Tilting of the spin orientation induced by rashba effect in ferromagnetic metal layer', *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 16, p. 162 507, 2010.

- [61] K. Garello, I. M. Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin and P. Gambardella, 'Symmetry and magnitude of spin-orbit torques in ferromagnetic heterostructures', *Nature nanotechnology*, vol. 8, no. 8, pp. 587–593, 2013.
- [62] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani and H. Ohno, 'Layer thickness dependence of the current-induced effective field vector in ta | cofeb | mgo', *Nature materials*, vol. 12, no. 3, pp. 240–245, 2013.
- [63] A. Manchon, J. Železný, I. M. Miron, T. Jungwirth, J. Sinova, A. Thiaville, K. Garello and P. Gambardella, 'Current-induced spin-orbit torques in ferromagnetic and anti-ferromagnetic systems', *Reviews of Modern Physics*, vol. 91, no. 3, p. 035 004, 2019.
- [64] C. O. Avci, K. Garello, C. Nistor, S. Godey, B. Ballesteros, A. Mugarza, A. Barla, M. Valvidares, E. Pellegrin, A. Ghosh *et al.*, 'Fieldlike and antidamping spin-orbit torques in as-grown and annealed ta/cofeb/mgo layers', *Physical Review B*, vol. 89, no. 21, p. 214 419, 2014.
- [65] A. Crépieux and P. Bruno, 'Theory of the anomalous hall effect from the kubo formula and the dirac equation', *Physical Review B*, vol. 64, no. 1, p. 014 416, 2001.
- [66] T. Pareek and P Bruno, 'Spin and charge transport in the presence of spin-orbit interaction', *Pramana*, vol. 58, no. 2, pp. 293–311, 2002.
- [67] D. Hou, Z Qiu, K Harii, Y Kajiwara, K.-C. Uchida, Y Fujikawa, H Nakayama, T Yoshino, T An, K. Ando *et al.*, 'Interface induced inverse spin hall effect in bis-muth/permalloy bilayer', *Applied Physics Letters*, vol. 101, no. 4, p. 042 403, 2012.
- [68] K. Gupta, R. J. Wesselink, R. Liu, Z. Yuan and P. J. Kelly, 'Disorder dependence of interface spin memory loss', *Physical review letters*, vol. 124, no. 8, p. 087 702, 2020.