

СТРУКТУРА, ФАЗОВЫЕ ПРЕВРАЩЕНИЯ И ДИФFUЗИЯ

УДК 669.25'231

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ ИОНАМИ He⁺ НА ШИРИНУ ИНТЕРФЕЙСОВ В ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ Co/Pt ТЕРАГЕРЦОВЫХ СПИНТРОННЫХ ИСТОЧНИКАХ

© 2025 г. И. А. Антонов^{a, b, *}, Р. В. Горев^a, Ю. А. Дудин^b, Е. А. Караштин^a, Д. С. Королев^b,
И. Ю. Пашенькин^a, М. В. Сапожников^{a, b}, П. А. Юнин^{a, b}

^aИнститут физики микроструктур РАН, ул. Академическая, 7, д. Афонино, Нижегородская обл., 603087 Россия

^bНижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, пр-т Гагарина, 23,
Нижний Новгород, 603600 Россия

*e-mail: ivan.antonov@sci-phys.ru

Поступила в редакцию 09.10.2024 г.

После доработки 02.12.2024 г.

Принята к публикации 11.12.2024 г.

Экспериментально исследована структурная модификация границ раздела слоев в двухслойных Co/Pt-спинтронных терагерцовых эмиттерах при облучении ионами He⁺ с флюенсами от 10¹⁴ до 10¹⁶ см⁻². С помощью неразрушающего метода малоугловой рентгеновской рефлектометрии был обнаружен рост ширины интерфейса Co/Pt от 1.2 нм (исходный образец) до 1.9 нм. Экспериментальные данные находятся в хорошем соответствии с результатами моделирования с использованием программы SRIM. Проведенные магнитооптические измерения показали, что образцы сохраняют свои магнитные свойства при всех флюенсах. Полученные результаты могут быть использованы для увеличения эффективности терагерцовой генерации в таких структурах.

Ключевые слова: терагерцовое излучение, спинтронные эмиттеры, Co/Pt, ионное облучение, магнитооптические свойства, рентгеновская рефлектометрия, интерфейсы, магнитные структуры, тонкие пленки

DOI: 10.31857/S0015323025020072, EDN: AYXDGA

ВВЕДЕНИЕ

Задача генерации электромагнитного излучения в терагерцовом диапазоне частот весьма актуальна [1]. Наряду с нелинейными кристаллами и фотопроводящими полупроводниковыми антеннами многослойные магнитные структуры “ферромагнетик/тяжелый металл”, такие как Co/Pt, рассматриваются в качестве перспективных источников терагерцового излучения [2, 3]. Механизм генерации основан на конверсии импульсов спинового тока, возбуждаемого фемтосекундными лазерными импульсами, в импульсы электрического тока, благодаря спин-орбитальному рассеянию. Эффективность конверсии оптической накачки в терагерцовую генерацию зависит от состава слоев, их толщины, и как было показано в ряде работ, от структуры интерфейса. При этом было продемонстрировано, что формирование на интерфейсе Co/Pt переходного слоя Co_xPt_{1-x} с переменным составом увеличивает эффективность

конверсии [4–6]. Авторы данных работ объясняют наблюдаемый эффект уменьшением спинового сопротивления на размытой границе между слоями. Другой известный граничный эффект в слоях “ферромагнетик/тяжелый металл” – взаимодействие Дзялошинского–Мория, которое также обусловлено спин-орбитальным рассеянием, возрастает при облучении структур Co/Pt и Co/W ионами гелия и достигает максимума при флюенсе ~10¹⁵ см⁻² [7]. Поэтому другое возможное объяснение увеличения эффективности терагерцовой генерации – возрастание спин-орбитального взаимодействия в перемешанных слоях, а значит, и величины конверсии спинового тока в электрический. Кроме того, известно, что ионное облучение многослойных магнитных пленок влияет на их магнитные свойства [8–10]. Это также связано с перемешиванием атомов на интерфейсе [11–13].

Целью данной работы было установить влияние ионного облучения гелием на уширение интерфейсов в двухслойных структурах Co/Pt и

на изменение их магнитооптических характеристик, а также возможность использования этой методики в целях увеличения эффективности спинтронных эмиттеров. Такой подход для создания спинтронных источников ТГц-излучения ранее не применялся. Технически он более простой по сравнению с изготовлением переходных слоев [4–6], однако может дать существенные изменения свойств тонкопленочных структур [7–9, 11]. Для ТГц-эмиттеров наиболее важным параметром, который может быть модифицирован при облучении гелием, является спин-зависимый кондактанс на границе Co и Pt, который определяет эффективность инжекции спина из ферромагнетика в немагнитный металл и, как следствие, мощность излучаемого ТГц-сигнала [14]. Этот параметр определяется свойствами интерфейса, в частности, его шириной. Для установления величины уширения при облучении ионами гелия структур Co/Pt в данной работе была разработана методика исследований, сочетающая экспериментальную диагностику неразрушающим методом малоугловой рентгеновской рефлектометрии (МУРР) и моделирование процесса ионного облучения в программе SRIM.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Двухслойные структуры Co/Pt изготавливали методом магнетронного распыления [15] в атмосфере Ar (давление $4 \cdot 10^{-3}$ Торр) при комнатной температуре в вакуумной установке ВУП-5М. В качестве подложки использовали стекло размером $22 \times 22 \text{ mm}^2$ с шероховатостью поверхности около 0.3 нм по данным атомно-силовой микроскопии. Сначала на подложку осаждали слой Co толщиной около 2 нм, на который затем осаждали слой Pt толщиной 3 нм. Параметры облучения были выбраны исходя из результатов предыдущих опытов по модификации поверхностного взаимодействия Дзялошинского–Мория [7]. Использование легких ионов гелия обосновывается тем, что позволяет проводить модификацию интерфейсов после осаждения с минимальным влиянием на свойства отдельных слоев в структуре и пренебрежимо малым распылением тяжелых атомов мишени. Образец разделяли на четыре части, которые подвергали ионному облучению с флюенсами 10^{14} , 10^{15} и 10^{16} см^{-2} при энергии ионов гелия 30 кэВ, одна часть служила образцом сравнения. Облучение проводили на установке ионно-лучевой имплантации ИЛУ-3 с плотностью тока 1 мкА/см^2 . Температура образца при облучении не превышала 40°C .

Структурные исследования проводили методом МУРР на рентгеновском дифрактометре Bruker D8 Discover (оборудование ЦКП “Физика

и технология микро- и наноструктур” ИФМ РАН). Для определения структурных параметров решали обратную задачу метода МУРР путем варьирования параметров пробной модели: плотности и толщины слоев, ширины интерфейсов между ними. Расчет модельной кривой рефлектометрии и ее подгонка к экспериментальной проводили с использованием программного комплекса DIFFRAC.Leptos [16]. Плотности слоев Co и Pt оказались близки к табличным и не варьировались при подгонке. Для моделирования переходных слоев использовали функцию ошибок для гауссового распределения со стандартным отклонением σ . Одновременно проводили моделирование процесса ионного облучения двухслойных структур Co/Pt в программном комплексе SRIM [17]. При моделировании использовали параметры, полученные методом МУРР для исходного образца. Результаты моделирования в SRIM представляли собой графики распределения перемещенных атомов, которые затем пересчитывали в графики концентраций с учетом флюенса, а потом и в графики плотности для удобства сравнения с данными МУРР. Ширину интерфейса на полученных графиках определяли по интервалу глубин Δz , на котором значение плотности на интерфейсе изменяется в пределах 16–84% от величины перепада плотностей между Co и Pt, что соответствует значению 2σ для функции ошибок.

Исследование петель гистерезиса намагничивания пленок проводили методами оптической магнитометрии путем измерения меридионального магнитооптического эффекта Керра в геометрии скрещенных поляризаторов. Источником излучения служил высокостабилизированный He–Ne-лазер ($\lambda = 632 \text{ нм}$) с модуляцией угла линейной поляризации в ячейке Фарадея. Синхронное детектирование мощности отраженного от образца и прошедшего через анализатор излучения проводили с использованием синхронного детектора SRC-830 (Stanford Research Systems). Поскольку образцы являются ультратонкими пленками, измеренные зависимости угла поворота плоскости поляризации от приложенного магнитного поля по форме и параметрам подобны петлям намагничивания образцов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Измеренная и рассчитанная кривые МУРР для исходной структуры Co/Pt приведены на рис. 1а. Наилучшее совпадение наблюдается при следующих подгоночных параметрах: $h(\text{Pt}) = 3 \text{ нм}$; $h(\text{Co}) = 2.2 \text{ нм}$; $\sigma(\text{air/Pt}) = 0.2 \text{ нм}$; $\sigma(\text{Pt/Co}) = 0.6 \text{ нм}$; $\sigma(\text{Co/glass}) = 0.3 \text{ нм}$. Аналогичные

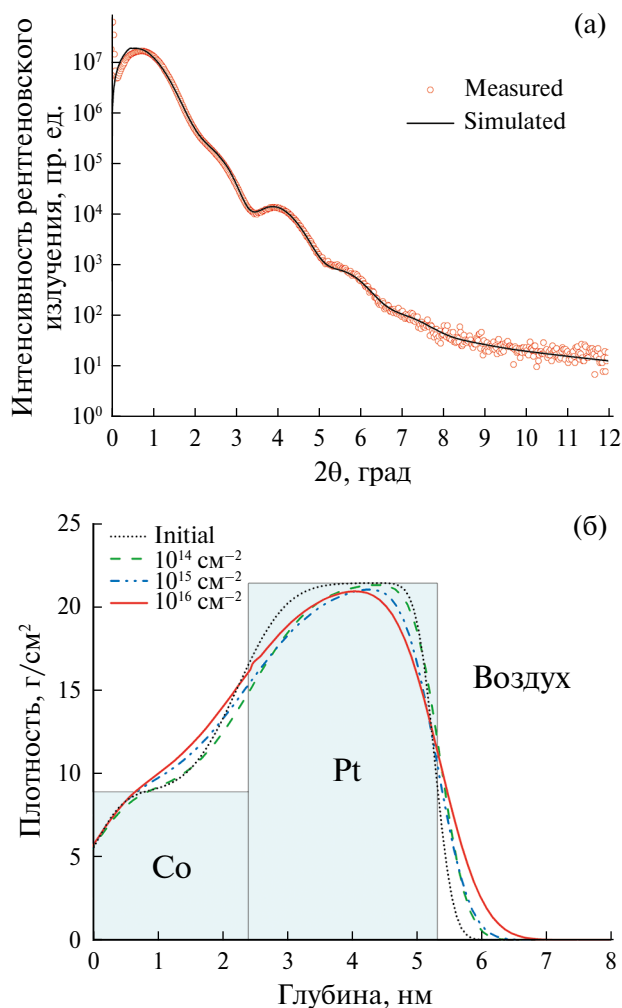


Рис. 1. Экспериментальная и смоделированная кривые МУРР для необлученной двухслойной структуры Co/Pt (а); расположение слоев в структуре Co/Pt и профили плотности, полученные на основе данных МУРР (б).

Таблица 1. Шероховатость интерфейсов σ , определенная методом МУРР для структуры Co/Pt, облученной разными флюенсами He^+

Флюенс, см ⁻²	σ (воздух/Pt), ± 0.1 нм	σ (Pt/Co), ± 0.1 нм	σ (Co/стекло), ± 0.1 нм
Исходная	0.2	0.6	0.3
10^{14}	0.3	0.7	0.4
10^{15}	0.4	0.8	0.4
10^{16}	0.5	1	0.5

измерения были проведены для структур, облученных флюенсами 10^{14} , 10^{15} и 10^{16} см⁻², соответствующие профили плотностей, представлены на рис. 1б. Видно, что ширина интерфейсов возрастает с увеличением флюенса ионов He^+ . Значения параметров σ , определенных по данным МУРР для всех интерфейсов в структурах, приведены в табл. 1.

Полученные результаты качественно совпадают с данными, полученными ранее методом просвечивающей электронной микроскопии для периодических многослойных структур Co/Pt [18]. Отличие использованного метода МУРР заключается в том, что он является неразрушающим, исключает влияние пробоподготовки на результат и позволяет относительно легко получить количественную оценку эффекта уширения интерфейсов в таких структурах. Однако существенным недостатком метода МУРР является ограниченная информативность анализа в случае дальнейшего усложнения структуры (увеличение количества слоев и интерфейсов). В таком случае решение обратной задачи будет затруднено и может давать неоднозначные или неадекватные количественные результаты. Поэтому для независимой оценки воздействия ионного облучения на ширину интерфейсов в таких структурах была реализована методика с использованием моделирования атомного перемешивания в программном комплексе SRIM.

Смещение атомов кобальта и платины и их перераспределение при облучении флюенсом 10^{16} см⁻² рассчитывали в пакете SRIM, результаты приведены на рис. 2а. Облучение приводит к формированию области перемешивания на границе. Переход от концентраций смещенных атомов к профилям плотности делали в следующем приближении. Считали, что пересечение интерфейс атомы кобальта заменили изначально находившиеся там атомы платины и наоборот. Поэтому плотность вблизи интерфейса в простом приближении оценивали как $\rho = (\rho_{\text{Co}} \cdot n_{\text{Co}} + \rho_{\text{Pt}} \cdot n_{\text{Pt}}) / (n_{\text{Co}} + n_{\text{Pt}})$. Эффект различного флюенса заключается в росте концентрации перешедших интерфейс атомов, т. е. увеличению доли кобальта в платине и платины в кобальте, что уменьшает плотность слоя платины вблизи интерфейса и увеличивает плотность слоя кобальта, т. е. приводит к наблюдаемому эффекту уширению интерфейса. Таким образом, SRIM дает оценку дополнительного уширения интерфейсов, вызванного именно ионно-индуцированным перемешиванием. Для учета исходной шероховатости была проведена свертка полученных в SRIM профилей плотности с гауссианом с параметром σ , определенным по данным МУРР для необлученной структуры. На рис. 2б построены профили плотности на интерфейсе Co/Pt для флюенсов облучения 10^{14} и 10^{16} см⁻². Количественное сравнение ширины интерфейсов Co/Pt (величина $\Delta z = 2\sigma$), полученной методом МУРР и при моделировании в SRIM (табл. 2), показывает хорошее совпадение эксперимента и моделирования.

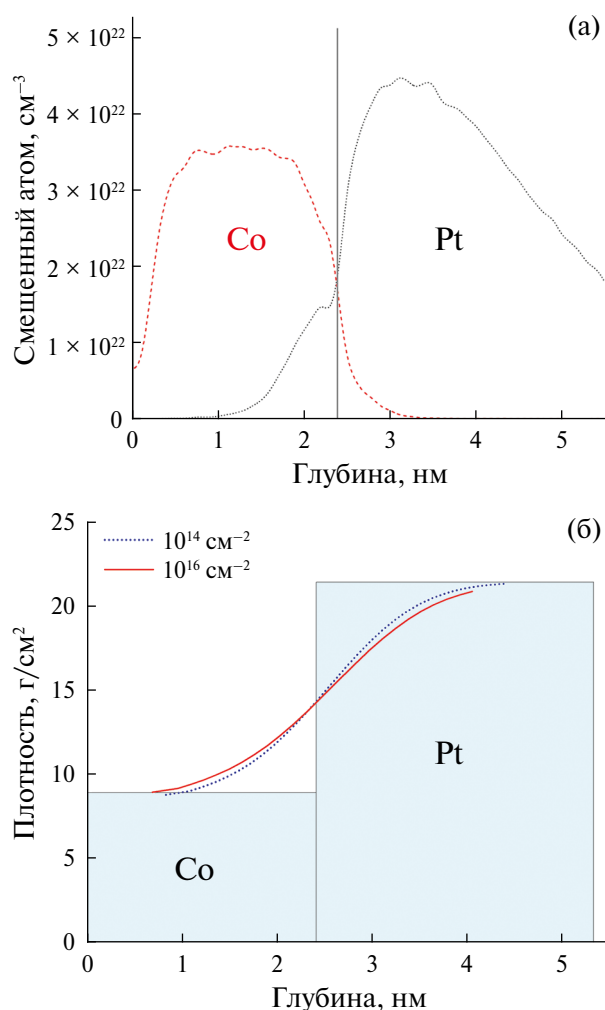


Рис. 2. Смоделированное в программном комплексе SRIM распределение атомов Co и Pt, перемещенных под действием ионного облучения при флюенсе ионов He 10^{16} см^{-2} (а); фрагмент профилей плотности на интерфейсе Pt/Co для флюенсов ионов He 10^{14} и 10^{16} см^{-2} , определенных из расчетов SRIM (б).

Таблица 2. Ширина интерфейсов Δz (2σ), определенная методом МУРР и полученная в результате моделирования в программном комплексе SRIM, для структуры Co/Pt, облученной разными флюенсами He^+

Флюенс, см^{-2}	Ширина интерфейса Co/Pt (МУРР), $\pm 0.1 \text{ нм}$	Ширина интерфейса Co/Pt (SRIM), $\pm 0.1 \text{ нм}$
Исходная	1.2	Была принята равной исходной МУРР
10^{14}	1.5	1.6
10^{15}	1.7	1.7
10^{16}	1.9	1.9

Магнитооптические измерения петель намагничивания образцов подтвердили сохранение магнитных свойств пленок Co/Pt при всех

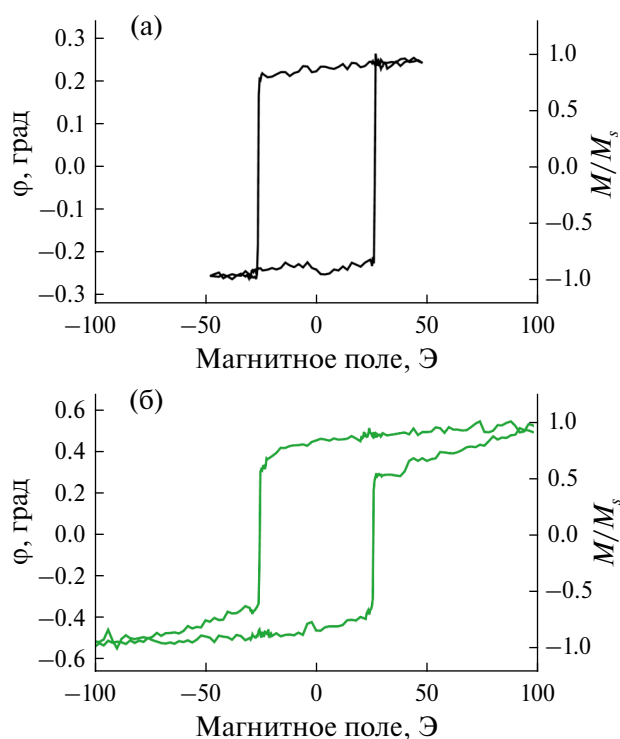


Рис. 3. Зависимость угла поворота плоскости поляризации от приложенного магнитного поля при отражении света от исходной структуры Co/Pt (а) и структуры, облученной ионами He^+ с флюенсом 10^{16} см^{-2} (б).

дозах облучения. Тем не менее наблюдается определенное изменение формы петли магнитного гистерезиса при больших флюенсах. Зависимость угла поворота плоскости поляризации от приложенного магнитного поля при отражении света от исходной структуры Co/Pt и облученной с флюенсом 10^{16} см^{-2} приведены на рис. 3. Поскольку для наших образцов они совпадают с кривыми намагничивания, на правой вертикальной оси приведены значения намагниченности в относительных единицах.

При этом при дозах по 10^{15} см^{-2} включительно петли практически не изменяются (и поэтому не приведены на рисунке) и совпадают с петлями намагничивания исходного образца. Видно, что поле, необходимое для намагничивания структуры до насыщения, заметно возрастает с увеличением флюенса, что говорит о возникновении неоднородных магнитных состояний при перемешивании в результате возникновения неоднородностей (дефектов) при больших флюенсах. Также можно заметить, что с увеличением флюенса ионов He^+ увеличивается величина магнитооптического вращения. Это может быть обусловлено ростом эффективной величины спин-орбитального взаимодействия в результате перемешивания слоев. Можно надеяться на изменение эффективности генерации

терагерцового излучения облученными структурами. Экспериментальная проверка данного утверждения выходит за рамки данной работы и будет выполнена в дальнейших исследованиях.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в данной работе показано, что облучение ионами гелия позволяет уширять интерфейс в структурах “ферромагнетик/тяжелый металл”, таких как Co/Pt, используемых в качестве спинтронных эмиттеров терагерцового излучения. Факт уширения подтвержден экспериментально неразрушающим методом МУРР, а также с помощью моделирования в SRIM. Оценки дополнительного вклада ионно-индуцированного уширения совпадают количественно, что позволяет использовать методику моделирования и для более сложных структур, когда применение метода МУРР малоинформативно.

Показано, что в двухслойных структурах Co/Pt с ростом флюенса ионов гелия растет как ширина интерфейсов, так и величина магнитооптического вращения. Полученные результаты позволяют ожидать, что изменения структурных и магнитооптических характеристик облученных структур спинтронных эмиттеров могут привести к изменению мощности генерируемого ими терагерцового излучения.

Финансирование: работа выполнена при поддержке гранта Российского Научного Фонда (проект № 23-22-00295 <https://rscf.ru/project/23-22-00295/>, ФГБНУ “Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова Российской академии наук”, Нижегородская обл.).

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Zhang X.-C., Xu J. Introduction to THz Wave Photonics. New York: Springer, 2010. P. 246.
2. Bull C., Hewett S.M., Ji R., Lin C.H., Thomson T., Graham D.M., Nutter P.A. Spintronic terahertz emitters: Status and prospects from a materials perspective // APL Materials. 2021. V. 9. Iss. 9. P. 090701.
3. Buryakov A.M., Gorbatoва A.V., Avdeev P.Y., Lebedeva E.D., Brekhov K.A., Ovchinnikov A.V., Gusev N.S., Karashtin E.A., Sapozhnikov M.V., Mishina E.D., Tiercelin N., Preobrazhensky V.L. Efficient Co/Pt THz spintronic emitter with tunable polarization // Appl. Phys. Lett. 2023. V. 123. Iss. 8. P. 082404.
4. Li G., Medapalli R., Mikhaylovskiy R.V., Spada F.E., Rasing Th., Fullerton E.E., Kimel A.V. THz emission from Co/Pt bilayers with varied roughness, crystal structure, and interface intermixing // Phys. Rev. Mater. 2019. V. 3. Iss. 8. P. 084115.
5. Scheuer L., Ruhwedel M., Karfaridis D., Vasileiadis I.G., Sokoluk D., Torosyan G., Vourlias G., Dimitrakopoulos G.P., Rahm M., Hillebrands B., Kehagias Th., Beigang R., Papaioannou E.Th. THz emission from Fe/Pt spintronic emitters with L1₀-FePt alloyed interface // iScience. 2022. V. 25. Iss. 5. P. 104319.
6. Шелухин Л.А., Кузикова А.В., Телегин А.В., Бессонов В.Д., Калашникова А.М. Влияние интерфейса на генерацию пикосекундных импульсов ТГц-излучения в спинтронных эмиттерах / Сб. Нанопизика и нанoeлектроника 2024, труды XXVIII международного симпозиума (ИПФ РАН, Н. Новгород, 2024). Т. 1. С. 420–421.
7. Гусев Н.С., Дудин Ю.А., Садовников А.В., Сапожников М.В. Модификация поверхностного взаимодействия Дзялошинского–Мория в пленках Co/тяжелый металл при облучении ионами гелия // ФТТ. 2021. Т. 63. № 9. С. 1263–1267.
8. Kowacz M., Matczak M., Schmidt M., Stobiecki F., Kuświk P. Correlation between anisotropy and concentration profiles of Ir/Co/Pt system modified by Ga⁺ bombardment with different energies // J. Magn. Magn. Mater. 2023. V. 587. P. 171271.
9. Калентьева И.Л., Данилов Ю.А., Дорохин М.В., Дудин Ю.А., Здоревейцев А.В., Кудрин А.В., Темиряева М.П., Темиряев А.Г., Никитов С.А., Садовников А.В. Модифицирование магнитных свойств сплава CoPt путем ионного облучения // ФТТ. 2019. Т. 61. № 9. С. 1694–1699.
10. Гущина Н.В., Шаломов К.В., Овчинников В.В., Банникова Н.С., Миляев М.А. Радиационная стабильность сверхрешеток Fe/Cr и CoFe/Cu при облучении ионами аргона (E = 10 кэВ) // ФММ. 2020. Т. 121. № 12. С. 1271–1277.
11. Mazalski P., Kurant Z., Syeklo I., Dobrogowski W., Fassbender J., Wawro A., Maziewski A. Ion irradiation driven changes of magnetic anisotropy in ultrathin Co films sandwiched between Au or Pt covers // J. Magn. Magn. Mater. 2019. V. 479. P. 332–336.
12. Pelizzo M.G., Corso A.J., Santi G., Hübner R., Garoli D. Dependence of the damage in optical metal/dielectric coatings on the energy of ions in irradiation experiments for space qualification // Sci. Reports. 2021. V. 11. P. 3429.
13. Воробьев В.Л., Гладышева В.С., Быков П.В., Быстров С.Г., Климова И.Н., Сюгаев А.В., Колотов А.А., Баянкин В.Я. Влияние поочередного облучения ионами O⁺ и N⁺ на состав, структуру и электрохимические свойства сплава системы Ti–Al–V // ФММ. 2024. Т. 125. № 5. С. 603–613.
14. Ezhevskii A.A., Guseinov D.V., Soukhorukov A.V., Averina N.I., Kalinina E.A., Yurasov D.V., Karashtin E.A. Impact of spin-flip scattering on spin current and inverse Spin-Hall effect in silicon doped by bismuth, antimony or phosphorus // Physica B: Condensed Matter. 2024. V. 674. P. 415551.

15. Федотов И.А., Пашенькин И.Ю., Скороходов Е.В., Гусев Н.С. Изготовление субмикронных туннельных магниторезистивных контактов CoFeB/MgO/CoFeB с использованием резистивной маски HSQ/PMMA // ФММ. 2024. Т. 125. № 2. С. 138–143.
16. Del Rio S.M., Ulyanenko A. LEPTOS: a universal software for x-ray reflectivity and diffraction // Proc. of SPIE. 2004. V. 5536. P. 1–15.
17. Ziegler J.F., Biersak J.P., Ziegler M.D. SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter. Chester: SRIM Co., 2008. P. 405.
18. Татарский Д.А., Гусев Н.С., Михайловский В.Ю., Петров Ю.В., Гусев С.А. Управление магнитными свойствами многослойных периодических структур на основе Co/Pt // ЖТФ. 2019. Т. 89. № 11. P. 1674–1679.

EFFECT OF He⁺ ION IRRADIATION ON INTERFACE WIDTH IN THIN-FILM Co/Pt TERAHERTZ SPINTRONIC SOURCES

I. A. Antonov^{1,2,*}, R. V. Gorev¹, Yu. A. Dudin², E. A. Karashtin¹, D. S. Korolev²,
I. Yu. Pashenkin¹, M. V. Sapozhnikov^{1,2}, and P. A. Yunin^{1,2}

¹*Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, Afonino, Nizhny Novgorod region, 603087 Russia*

²*N.I. Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod, Nizhny Novgorod, 603600 Russia*

**e-mail: ivan.antonov@sci-phys.ru*

In this work, we experimentally studied the structural modification of the interfaces in bilayer Co/Pt spintronic terahertz emitters under irradiation with He⁺ ions with a fluence of up to 10¹⁶ cm⁻². Using the non-destructive method of small-angle X-ray reflectometry, an increase in the Co/Pt interface width from 1.2 nm (initial sample) to 1.9 nm under irradiation with He⁺ with a fluence of 10¹⁶ cm⁻² was detected. The experimental data are in good agreement with the results of modeling using SRIM. The magneto-optical measurements showed that the samples retain their magnetic properties at all fluences. The results can be used to increase the efficiency of terahertz generation in such structures.

Keywords: spintronic emitters, Co/Pt, ion irradiation, magneto-optical properties, X-ray reflectometry, interfaces, magnetic structures, thin films