

分子束外延生长 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜的交换偏置*

敬 超¹⁾ 金晓峰²⁾ 董国胜²⁾ 龚小燕¹⁾ 郁黎明¹⁾ 郑卫民³⁾

¹⁾ 上海大学物理系, 上海 200436)

²⁾ 复旦大学应用表面物理国家重点实验室, 上海 200433)

³⁾ 中国科学院上海技术物理研究所红外物理实验室, 上海 200083)

(2000 年 5 月 1 日收到)

利用表面磁光克尔效应和铁磁共振对分子束外延生长的 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜的交换偏置场和矫顽力进行了研究. 实验结果表明, 当反铁磁层厚度小于 5.5 nm 时, 不出现交换偏置, 而当大于这一厚度时, 出现交换偏置, 大约在 7 nm 时, 达到极大值. 随着反铁磁层厚度的继续增大, 偏置场和矫顽力随 Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚的增大而下降. 铁磁共振实验结果表明样品的磁性存在单向各向异性. 并对上述结果进行了讨论.

关键词: 分子束外延, Fe/Fe₅₀Mn₅₀, 双层膜, 交换偏置

PACC: 6855 8115

1 引 言

铁磁/反铁磁的交换耦合(exchange coupling)也称交换偏置(exchange biasing), 这一现象早在五十年代由 Meiklejohn 和 Bean 在反铁磁 CoO 外壳包裹着的铁磁单畴 Co 颗粒材料中发现^[1, 2]. 当反铁磁层在尼尔温度以下, 铁磁与反铁磁层之间的交换耦合相互作用就表现出来: 铁磁层的磁滞回线相对于正常的零场对称的磁滞回线发生偏离, 就好像是对铁磁材料外加一个磁场, 使磁滞回线偏离零磁场, 因此, 这种现象常被称为交换偏置. 最近几年来, 铁磁/反铁磁耦合相互作用这一现象被广泛应用于自旋阀中而引起了人们的广泛关注^[3]. 然而对于铁磁和反铁磁耦合的相互作用机制尚不是很清楚, 人们普遍接受的观点是这种铁磁反铁磁耦合来源于界面之间的短程相互作用. 文献^[4]研究了 FeMn/Ni₈₀Fe₂₀ 交换耦合相互作用来源于界面, 研究结果认为在反铁磁膜层很薄的情况下(< 10 nm), 这种交换耦合作用消失是由于反铁磁的 FeMn 合金层与铁磁层之间的互扩散引起的, 尽管还没有可靠的实验数据来证实这一点, 而随着膜厚的增加, 交换耦合作用突然出现并且随着膜厚的增加, 交换偏置场逐渐减小, 则认为这是由于 FeMn 合金结构相变引起的, 即随着膜厚

的增加 FeMn 由反铁磁的 γ 相转变为铁磁的 α 相. 最近的研究认为^[5], 在膜层很薄的情况下, FeMn 反铁磁层具有较低的磁晶各向异性, 因此, 当加外场时, 反铁磁层的磁矩随外场旋转, 不表现出交换耦合作用, 随着膜厚的增加, 磁晶各向异性增加, 引起交换耦合作用, 再进一步增加 FeMn 厚度, 由于膜的均匀性提高, 矫顽力降低, 偏置场随之减小. 但这些解释也只是猜测, 需要更进一步的实验给予证实. 最近的研究结果还认为在反铁磁薄膜极薄的情况下不表现交换耦合相互作用是一种有限尺度效应(finite size scaling effect)^[6], 而随着膜厚的增加, 交换耦合的减弱则是来自于界面之间的长程相互作用^[7]. 总而言之, 尽管铁磁反铁磁耦合已经被广泛地应用于自旋阀结构中, 但是对它的微观相互作用机制的认识还不统一, 有待于进一步开展这方面的工作.

本文报道的工作是首先采用分子束外延方法在 GaAs(001) 表面生长了单晶结构的 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜, 之后利用磁光克尔效应研究了这一双层膜的铁磁/反铁磁层之间的交换耦合相互作用. 实验发现, 在室温下, 当 Fe₅₀Mn₅₀ 的厚度小于 5.5 nm 时, 这一双层膜不存在交换耦合作用, 而当这一反铁磁层的厚度大于 5.5 nm 时, 铁磁反铁磁耦合相互作用突然出现, 并随着膜厚的增加交换偏置场和矫顽力逐渐减小. 随着反铁磁层厚度继续增大, 交换耦合作用

* 国家自然科学基金(批准号: 19625410, 19734002)和上海市自然科学基金资助的课题.

减弱,即偏置场 H_E 与反铁磁层厚度成反比关系.本文对这些物理现象进行了分析讨论.

2 实验方法

实验是在一台磁性金属分子束外延生长设备上完成的,有关这一系统的详细介绍可参考文献 [8].为了研究铁磁/反铁磁耦合随反铁磁层厚度的变化规律,Fe₅₀Mn₅₀反铁磁层采用劈形装置进行生长,其装置示意图如图 1 所示.

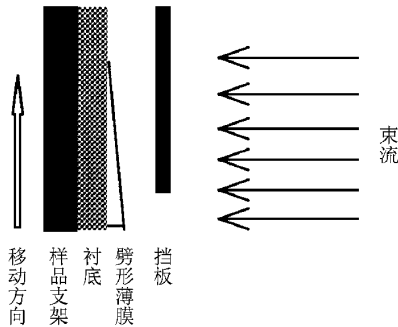


图 1 分子束外延方法生长劈形 Fe₅₀Mn₅₀反铁磁层的装置示意图(样品架相对于挡板移动速率为 0.344 mm/min)

它是在蒸发源与样品衬底之间加一挡板,通过挡板上下移动来生长从薄到厚连续变化的外延膜,这一生长方式最主要的优点在于它可以在同样的生长条件下得到不同厚度的外延膜,这样便于进行比较研究,不会因为生长条件的差异而使可比性失去意义.生长室的本底真空度优于 3×10^{-8} Pa,蒸发过程中真空度优于 3×10^{-7} Pa. 掺铟的 n 型 GaAs (001)衬底经过常规清洗后,再利用“511”(浓硫酸:双氧水:去离子水=5:1:1 体积比)腐蚀剂在 60℃ 温度下腐蚀 3 min,去掉表面的氧化层,然后放入真空系统.之后,衬底加热至 550℃ 进行表面脱氧处理,可获得清晰的 RHEED 图样.蒸发所用的 Fe 源和 Mn 源的纯度都为 99.99%. Fe_xMn_{1-x}合金膜采用共蒸发的方法.由 Fe 和 Mn 的蒸发速率定出它们在合金膜中所占的比例;由总的蒸发速率和生长时间来定出膜的厚度.蒸发速率由石英晶体振荡器定标. Fe₅₀Mn₅₀反铁磁合金层采用劈形生长装置,Fe, Mn 的蒸发速率分别为 0.13 nm/min 和 0.12 nm/min,即 Fe, Mn 比例接近 1:1,控制劈形装置中挡板的移动速率来实现劈形结构,挡板的移动速率为 0.344 mm/min,共生长 48 min.故 Fe₅₀Mn₅₀劈形的长度为

16.5 mm,其厚度由 0 nm 连续变化到 12 nm.此后,移开挡板,关闭 Mn 源,将 Fe 的蒸发速率提高到 0.16 nm/min,在劈形 Fe₅₀Mn₅₀上生长厚度 5 nm 的纯 Fe 膜.为了防止暴露大气后 Fe 膜氧化,再在 Fe 膜上加约 2 nm Mn 的覆盖层.为了得到具有单晶结构的 Fe₅₀Mn₅₀反铁磁合金层,选择适当的外延生长温度条件,控制衬底温度,在整个生长过程中对衬底加热并维持在大约 130℃ 左右的生长温度.磁性测量采用自制的表面磁光 Kerr 效应(SMOKE)进行,实验装置参见文献 [9].

3 实验结果及讨论

图 2 是利用磁光克尔效应测得的随 Fe₅₀Mn₅₀厚度变化的 Fe/Fe₅₀Mn₅₀双层膜的磁滞回线,磁场的方向沿膜面内 Fe 的 $[1\bar{1}0]$ 磁化方向.由图 2 可以看出,当 Fe₅₀Mn₅₀反铁磁层厚度为 5 nm 时,双层膜的磁滞回线对于零磁场是对称的(图 2(a)),即磁滞回线没有向某一方向发生偏置.而随着反铁磁层厚度的增加,表现出铁磁与反铁磁的交换耦合相互作用,磁滞回线偏离零场对称移向右方,即所谓的交换偏置(图 2(b)).

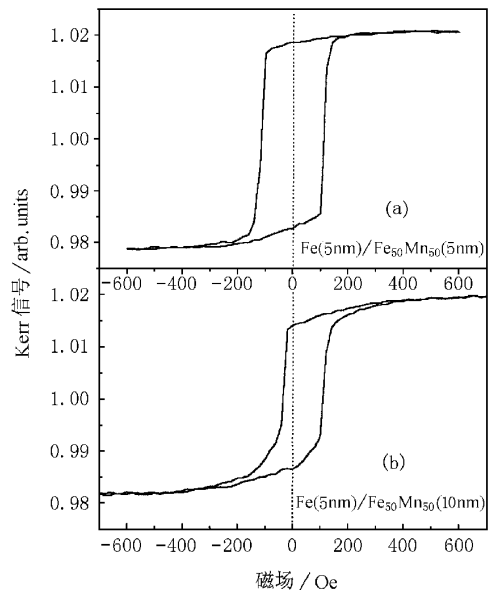


图 2 利用磁光克尔效应测得的磁滞回线 (a) Fe₅₀Mn₅₀反铁磁层厚度为 5 nm 时的正常磁滞回线 (b) Fe₅₀Mn₅₀反铁磁层厚度为 10 nm 时产生偏置的反常磁滞回线

为了研究 Fe/Fe₅₀Mn₅₀双层膜的交换耦合相互作用,我们首先应给出交换偏置场 (H_E) 以及矫顽力

(H_C)的定义, H_E 和 H_C 分别由磁滞回线上磁化强度为零,也就是对应于图2中磁光克尔信号为零时左右二个磁场大小(分别表示为 H_{left} , H_{right})所确定,即 $H_E=(H_{left}+H_{right})/2$; $H_C=|H_{left}-H_{right}|/2$.这与大家对 H_E 和 H_C 的定义是完全一致的^[10].

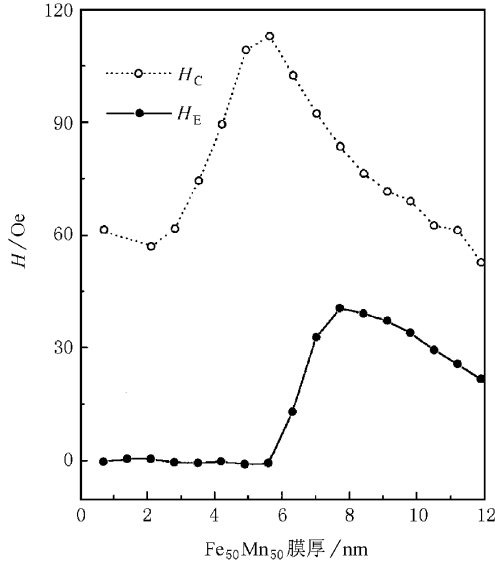


图3 交换偏置场(H_E)和矫顽力(H_C)随反铁磁层 $Fe_{50}Mn_{50}$ 厚度的变化曲线(磁场沿 Fe 的 $[1\bar{1}0]$ 方向)

图3是利用磁光克尔效应测得磁滞回线后根据上式所得的矫顽力和偏置场随 $Fe/Fe_{50}Mn_{50}$ 双层膜中反铁磁层厚度的变化而变化的关系曲线,测量时磁场沿膜面内 Fe 的 $[1\bar{1}0]$ 方向.由图3可以看出,当 $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚小于5.5 nm时, H_E 为零,即在这一反铁磁膜厚区域内,铁磁层和反铁磁层不存在交换耦合相互作用,而当大于这一膜厚时,出现交换耦合相互作用,大约在7 nm时,达到极大值.随着 $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚的继续增大, H_E 反而下降.矫顽力随 $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚的增大表现出同样的变化趋势; $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚小于3 nm时 H_C 约为60 Oe,大于此值, H_C 逐渐增大, $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚增大到5.5 nm时, H_C 达到极大值(110 Oe), $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚继续增加, H_C 出现下降趋势.

为了对上述实验现象作出解释,我们根据文献^[11]界面的单位面积能量可以表示为

$$E = -HMt_F \cos\theta_F + K_F t_F \cos^2\theta_F + K_{AF} t_{AF} \sin^2\theta_{AF} - J_K \cos(\theta_F - \theta_{AF}), \quad (1)$$

式中 H 为外加磁场,方向沿各向异性轴(铁磁层和反铁磁层各向异性轴在同一方向); θ_F , θ_{AF} 分别代表

铁磁层和反铁磁层磁化强度相对于磁场方向的角度; t_F , t_{AF} , K_F , K_{AF} 分别代表铁磁层和反铁磁层的厚度和磁晶各向异性常数; J_K 是交换耦合能.

随着反铁磁层厚度的增加出现交换偏置,可以根据(1)式得到:如果在反铁磁层比较薄的情况下, J_K 大于 $K_{AF}t_{AF}$,为了保持界面能最小,那么,应保持(1)式最后一项($-J_K \cos(\theta_F - \theta_{AF})$)最小,即要求 $\cos(\theta_F - \theta_{AF})$ 为1,即 $\theta_F - \theta_{AF}$ 等于零,这就意味界面处的反铁磁层的磁矩随铁磁层一同反转,不表现出交换偏置;当随着反铁磁层膜厚的增加, $K_{AF}t_{AF}$ 大于 J_K ,同样,为了保持能量最低, θ_{AF} 与 θ_F 基本上无关,即反铁磁层的界面磁矩不随铁磁层的磁矩翻转,表现出交换偏置.

根据上式,发生交换耦合时的反铁磁临界厚度为^[12]

$$t_{AF} = t_{cr} = J_K / K_{AF}. \quad (2)$$

当反铁磁层膜厚 $t_{AF} > t_{cr}$ 时,反铁磁层磁晶各向异性常数可以表示为

$$K_{AF} = H_E M (t_F / t_{cr}). \quad (3)$$

对于上述实验结果,我们根据(3)式计算了反铁磁层的磁晶各向异性常数,如表1所示.应该指出,沿测量方向的反铁磁层的各向异性常数与其膜面上所生长的铁磁层的材料无关,但从表1可以看出,根据文献^[11]所得的反铁磁层的各向异性常数比我们的实验所得结果大3倍以上.这一差异,我们认为前者是在薄膜的生长过程中外加磁场诱导的各向异性,磁场分别为2 kOe^[11]和251 Oe(20 kA/m)^[5].而我们的实验是在不加磁场的情况下得到单晶 $Fe/Fe_{50}Mn_{50}$ 双层膜.由此认为从文献上所得的结果比我们的实验结果偏大是完全正常的,因此,利用上述理论能够解释我们所得出现交换耦合时反铁磁层的临界厚度.

表1 $Fe_{50}Mn_{50}$ 反铁磁层的各向异性常数值值的比较

双层膜	各向异性常数 (K_{AF}) (erg/cm ³)	文献
$Fe_{50}Mn_{50}/Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)	1.35×10^5	[11]
$Fe_{50}Mn_{50}/Ni_{80}Fe_{20}$ (7 nm)	1.63×10^5	[5]
$Fe_{50}Mn_{50}/Ni_{80}Fe_{20}$ (3.2 nm)	1.72×10^5	[5]
$Fe_{50}Mn_{50}/Fe$ (5 nm)	0.48×10^5	

当 $Fe_{50}Mn_{50}$ 反铁磁层膜厚达到7 nm时,交换偏置场(H_E)达到极大值(约45 Oe); $Fe_{50}Mn_{50}$ 厚度增加, H_E 值与 $Fe_{50}Mn_{50}$ 膜厚呈反比关系.显然利用上述的简单理论模型难于给出解释,这一现象还有待

进一步深入分析研究.

从图 3 还可以看出,随着反铁磁层厚度的增加,矫顽力 H_C 也从 60 Oe 变化到极大值,约为 110 Oe;膜厚进一步增加, H_C 降低.这一变化现象,可以作如下解释,即在没有出现交换耦合之前,在外场作用下,反铁磁层界面处的磁矩与铁磁层的磁矩一同转动,具有较低的 H_C .随着反铁磁层厚度的增加,出现交换偏置,即反铁磁层的磁矩不随着铁磁层的磁矩转动,这势必增大 H_C ;反铁磁层厚度继续增加,交换偏置变弱, H_C 随之减小.

为了进一步证实 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜存在单向各向异性的交换偏置,我们还研究了样品不同方向的 H_E 和 H_C ,即让样品在膜面内旋转 360°.测出 H_E 和 H_C 随角度的变化曲线,如图 4 所示.很显然,样品的磁性表现出单向各向异性,在相对于 Fe [110] 旋转 45° 约至 250° 的范围内, H_E 为正,即磁滞回线向右偏置,在其余角度范围内, H_E 为负值,磁滞回线向左偏置.表现出非常明显的单向各向异性.另外,我们也进行了铁磁共振(FMR)的测量,其实验结果如图 5 所示. Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜中 Fe 膜的共振场随面内旋转角度的变化曲线可以看出,在相对于 Fe [110] 旋转 180° 的位置,即对应于 Fe [110] 方向,产生共振时的磁场最大,表现出单向各向异性.从此图还可以看出,样品的各向异性是具有四度对称的磁晶各向异性与单向各向异性的叠加.

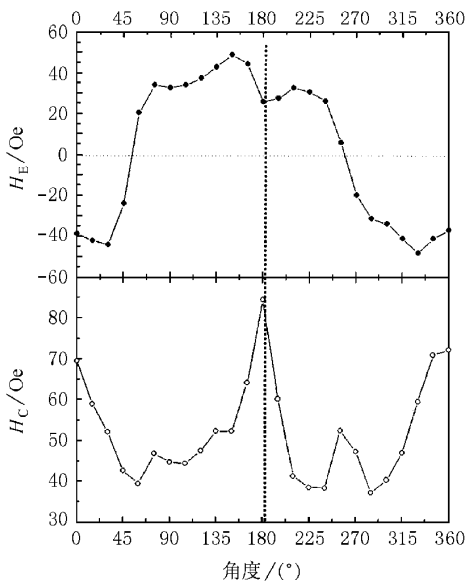


图 4 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜在膜面内相对于 Fe[110] 方向旋转 360° 所测得的实验曲线

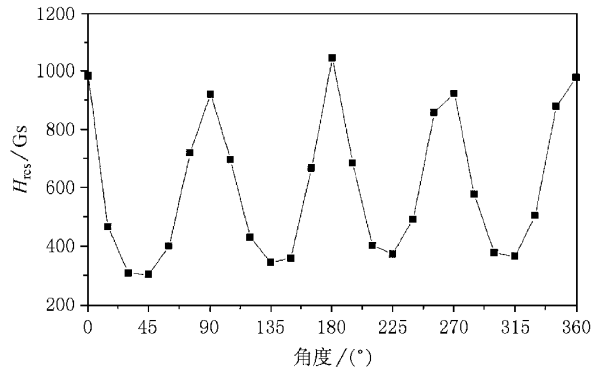


图 5 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜的铁磁共振实验结果

4 结 论

采用分子束外延方法在 GaAs(001) 表面生长了单晶结构的 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜,并利用磁光克尔效应对其交换偏置相互作用随反铁磁 Fe₅₀Mn₅₀ 层厚度的变化进行了系统的研究,实验结果表明,当 Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚小于 5.5 nm 时,不出现交换偏置,而当大于这一膜厚时,出现交换偏置;大约在 7 nm 时,交换偏置场达到极大值.随着 Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚的继续增大,交换偏置场反而下降.矫顽力随 Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚的增大表现出同样的变化趋势:Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚小于 3 nm 时,矫顽力约为 60 Oe,大于此值,矫顽力逐渐增大,Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚增大到 5.5 nm 时, H_C 达到极大值(110 Oe).Fe₅₀Mn₅₀ 膜厚继续增加, H_C 出现下降趋势.铁磁共振实验结果表明样品存在单向各向异性.这正是 Fe/Fe₅₀Mn₅₀ 双层膜具有交换偏置现象的体现.

- [1] W. H. Meiklejohn, C. P. Bean, *Phys. Rev.*, **102**(1956),1413.
- [2] W. H. Meiklejohn, C. P. Bean, *Phys. Rev.*, **105**(1957),904.
- [3] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, D. Mauri, *Phys. Rev.*, **B43**(1991),1297.
- [4] C. Tsang, N. Heiman, Kenneth Lee, *J. Appl. Phys.*, **52**(1981)2471.
- [5] R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **148**(1995),300.
- [6] T. Ambrose, C. L. Chien *J. Appl. Phys.*, **83**(1998),6822.
- [7] N. J. Gokemeijer, T. Ambrose, C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, **79**(1997)A270.
- [8] X. G. Zhu *et al.*, *Chinese Journal of Semiconductors*, **14**(1993),719 [in Chinese] 朱兴国等, *半导体学报*, **14**(1993),719].

- [9] W. R. Zhu *et al.* , *Vacuum Science and Technology* , **17** (1997) , 243(in Chinese) 朱为荣等 , *真空科学与技术* , **17** (1997) 243]
- [10] T. Ambrose , C. L. Chien , *J. Appl. Phys.* , **83**(1998) , 7222.
- [11] Daniele Mauri , Eric Kay , David Scholl , J. Kent Howard , *J Appl. Phys.* **62**(1987) , 2929.
- [12] W. H. Meiklejohn , *J. Appl. Phys.* **33**(1962) , 1328.

EXCHANGE BIASING IN MOLECULAR-BEAM-EPITAXY-GROWN Fe/Fe₅₀Mn₅₀ BILAYERS *

JING CHAO¹⁾ JIN XIAO-FENG²⁾ DONG GUO-SHENG²⁾ GONG XIAO-YAN¹⁾ YU LI-MING¹⁾ ZHENG WEI-MIN³⁾

¹⁾ *Department of Physics , Shanghai University , Shanghai 200436 , China)*

²⁾ *State Key Laboratory of Surface Physics , Fudan University , Shanghai 200433 , China)*

³⁾ *State Key Laboratory for Infrared Physics , Shanghai Institute of Technical Physics , Chinese Academy of Sciences , Shanghai 200083 , China)*

(Received 1 May 2000)

ABSTRACT

Exchange biasing and coercive field of molecular-beam-epitaxy-grown Fe/Fe₅₀Mn₅₀ bilayers have been investigated by Surface Magneto-optical Kerr Effect (SMOKE) and ferromagnetic resonance measurements. The results indicate that there is no exchange biasing when the thickness of antiferromagnetic layer is less than 5.5 nm. The exchange biasing appears when the thickness of antiferromagnetic layer is greater than 5.5 nm and the maximum value is reached when the thickness is about 7 nm. Exchange biasing and coercive field decrease with further increase of the thickness of the antiferromagnetic layer. The ferromagnetic resonance measurement results show that there exists unidirectional anisotropy. The above results are discussed in the paper.

Keywords : MBE , Fe/Fe₅₀Mn₅₀ , Bilayer , Exchange biasing

PACC : 6855 8115

* Project supported by the National Nature Science Foundation of China (Grand Nos. 19625410 , 19734002) and the Nature Science Foundation of Shanghai.