# 两步法制备的自旋阀巨磁电阻效应研究\*

卢正hi<sup>1</sup>) 柴春 $h^2$ <sup>1</sup> 赖武hi<sup>1</sup>

1(中国科学院物理研究所,凝聚态物理中心和磁学国家重点实验室,北京 100080)

2(北京科技大学应用科学学院,北京 100083)

(1998年12月24日收到;1999年5月17日收到修改稿)

采用新的磁控溅射两步法沉积自旋阀多层膜,不仅交换耦合作用大大增强,而且可以提高磁电阻比值和降低 层间耦合作用.得到磁电阻比值~2.6%,交换耦合场~28 kA/m,层间耦合场~0.1 kA/m.自旋阀的下部(缓冲层 (Ta)/自由层(NiFe)/中间隔离层(Cu))在低氩气压下沉积、上部(被钉扎层(NiFe)/反铁磁钉扎层(FeMn)/覆盖层 (Ta))则在高氩气压下沉积.前者保证了自旋阀具有强(111)晶体织构,平整的NiFe/Cu界面和致密的Cu层,抑制 了层间耦合作用,后者则促进小尺寸磁畴生长和增加NiFe/FeMn间有效界面反铁磁交换耦合,大大提高了交换耦 合钉扎作用.

PACC: 7376; 7570

### 1 引 言

由磁性金属膜与非磁性金属膜交叠而成的周期 性金属多层膜中,表现出所谓巨磁电阻(GMR)效 应<sup>[1]</sup>引起广泛研究.现已证明,磁性层/非磁性层 界面上,传导电子的自旋相关散射是GMR效应的 主要机制<sup>2]</sup>.但是这种结构的饱和磁场较高(室温 下最低也要8×10<sup>3</sup> A/m 左右).Dieny等<sup>[3]</sup>提出的 GMR 自旋阀多层膜,将饱和磁场降至几十个 A/m, 率先进入实用化.尽管磁电阻比值不大,但是灵敏度 仍很高.目前,物理过程和材料制备都围绕这些问题 研究<sup>[4]</sup>.

GMR 自旋阀多层膜的结构是 :缓冲层( Ta ) 自 由层( NiFe ) 中间隔离层( Cu ) 被钉扎层( NiFe ) 反 铁磁钉扎层( FeMn ) 覆盖层( Ta ). 其中,磁电阻功 能区是由三明治 NiFe/Cu/NiFe 组成. 为达到高的 磁电阻( MR )比值,需要有清晰的界面. 另一方面, 希望 Ta 层、FeMn 层的分流越小越好<sup>51</sup>. 对于 Cu 层 厚度 大于 2.5 nm 时,自由层与被钉扎层间的 RKKY 振荡耦合作用可以忽略,其层间耦合作用主 要来源于"橘子皮"效应的铁磁耦合. 界面越平滑,层 间耦合作用越弱<sup>6,71</sup>. 钉扎区 NiFe/FeMn 则需要尽 可能高的钉扎交换耦合场. 为此目的,要求 FeMn 有 fcc(111)晶体织构,同时钉扎场与NiFe/FeMn的界面状态有关<sup>[8]</sup>.关于铁磁/反铁磁界面交换耦合的研究材料方面,除FeMn外,NiMn,CrMn,PdMn,NiO及CoO材料均有广泛研究<sup>[9]</sup>.

本文采用两步沉积法来优化自旋阀的磁电阻效 应、层间耦合作用和交换耦合作用.自旋阀多层膜是 在两种不同的氩气压下连续沉积而成.Park 等<sup>51</sup>提 出类似的方法,改进自旋阀的磁电阻效应和层间耦 合作用,但未涉及交换耦合作用.而交换耦合作用是 自旋阀能否得到应用的关键问题.我们发现,通过在 不同氩气压下沉积自旋阀各层薄膜,控制各层薄膜 的微织构及各界面状态,不仅可以改进巨磁电阻效 应和层间耦合作用,而且交换耦合作用得到明显增 强.我们对上述性能的物理机制进行了讨论.

### 2 样品制备和测量方法

采用4靶、8基片磁控溅射台制备 I 和 II 两个 系列的自旋阀样品,连续在(100)硅片上依次沉积/ Ta(10 nm)/Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub>(10 nm)/Cu(3 nm)/Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub>(5 nm)/Fe<sub>50</sub>Mn<sub>50</sub>(12 nm)/Ta(6 nm)薄膜.工艺条件: 本底真空 2.5×10<sup>-5</sup> Pa,用射频溅射方法沉积 Ta 层,用直流磁控溅射方法沉积 NiFe Cu 和 FeMn 层. Ta NiFe 和 FeMn 的沉积速率大约为 0.2 nm/s Cu

<sup>\*</sup> 中国科学院基金( 批准号 :KJ951-A1-401 )和国家自然科学基金( 批准号 :19890310 )资助的课题.

的沉积速率大约为 0.1 nm/s. 沉积时在基片上外加 16 kA/m 的均匀磁场 ,用来感生自由层的单轴磁各 向异性和排列 FeMn 反铁磁层的钉扎方向. I 系列 样品是自旋阀所有层( Ta/NiFe/Cu/NiFe/FeMn/ Ta )在同一氩气压下沉积 ,其氩气压取值分别为 0.4 0.5 0.6 0.72 0.82 0.93 ,1.1 ,1.4 Pa. Ⅱ系列 样品是自旋阀下部( Ta/NiFe/Cu )在 0.4 Pa 的低氩 气压下沉积 ,上部( NiFe/FeMn/Ta )在另一氩气压 下沉积 ,取值分别为 0.4 ,0.47 ,0.56 ,0.66 ,0.76 , 0.83 0.94 ,1.2 Pa.

自旋阀的矫顽力( $H_c$ ) 层间耦合场( $H_{cf}$ ) 交換 耦合场( $H_{ex}$ )和磁化强度( $M_s$ )等磁学性能用梯度磁 强计测量.采用标准的四端法测量磁输运特性,外磁 场沿着自由层易磁化轴和钉扎场方向,并与电流方 向垂直.在赫姆霍兹线圈产生的扫描( $-4 \times 10^3$ —4 ×10<sup>3</sup> A/m)下,测量低场下的磁电阻曲线,在电磁 铁产生的扫场( $-8 \times 10^4$ —8×10<sup>4</sup> A/m)下,测量高 场下的磁电阻曲线.用高角 X 射线衍射(XRD)研究 自旋阀的晶体结构,用原子力显微镜(AFM)研究表 面形貌.

### 3 实验结果与讨论

图1为I系列自旋阀样品的高角 X 射线衍射 谱.从图中看出,低氩气压下,FeMn,Cu和 NiFe 有 强(111)晶体织构.随着氩气压的上升,FeMn,Cu 和 NiFe 的(111)衍射峰强度不断减弱,并且 FeMn



图1 I系列自旋阀样品高角 X射线衍射谱, I-1, I-2, I-3, I-4, I-5, I-6 对应于氩气压分别为 0.4, 0.6, 0.72, 0.93, 1.1, I.4 Pa

和 Cu 的(111)衍射峰在高氩气压下消失. Ⅲ系列样品的高角 X 射线衍射谱如图 2 所示. 从图中看出, FeMn,Cu 和 NiFe 的(111)衍射峰强度随上部氩气压变化不明显,FeMn,Cu 和 NiFe 始终具有强(111) 晶体织构.



图 2 II系列自旋阀样品高角 X 射线衍射谱, I-1, I-2, I-3, I-4, I-5, I-6 对应于上部氩气压分别为 0.4, 0.56, 0.76, 0.83, 0.94, I.2 Pa

为了研究表面/界面形貌对交换耦合和层间耦 合的影响,我们用 AFM 研究了三明治 S(1000 )/Ta (10 nm )/NiFe(12 nm )/FeMn(12 nm )的表面形貌, 如图 3 所示. 样品(a)和样品(b)分别在 0.4 Pa 和 1.2 Pa 沉积而成. 样品(c)采用两步法沉积,下部(Ta (10 nm )/NiFe(7 nm ))在 0.4 Pa 低气压下沉积,上 部(NiFe(5 nm )/FeMn(12 nm ))在 1.2 Pa 高气压下 沉积. 样品(a)(b)和(c)的方均根粗糙度( $R_{ms}$ )分 别为 0.572 nm ,1.2 nm 和 0.462 nm ,晶粒尺寸分别 约为 60.8 nm ,68.8 nm 和 36.4 nm. 上述实验表明, 方均根粗糙度( $R_{ms}$ )随氩气压升高而增加,而样品 (c)保持低的粗糙度和小的晶粒尺寸.这说明薄膜表 面形貌与衬底层的核化和生长密切相关.

薄膜微结构随氩气压变化是由于到达基片上粒子的能量分布变化引起的<sup>[10]</sup>.在低氩气压下,溅射出的粒子在途中碰撞次数少,到达基片表面时能量高,它在薄膜表面容易向周围扩散.同时,由于氩离子在低气压下的平均自由程长,氩离子不断碰击薄膜表面.因此,在低气压下,薄膜表面光滑、致密,起伏度小,有利于薄膜沿(111)方向生长,但容易引起界面成分互混,如图 1、图 3(a)所示.随着氩气压的

上升,溅射出的粒子在途中与氩离子碰撞次数增多, 到达基片时的能量有所降低,它在薄膜表面不易向 周围扩散,由于氩离子的平均自由程变短,氩离子碰

nm 6.88 34 0.0 0.6 0.8 0.4 ..... 0.6 0.2 0.4 0.2 /an 0 n (a)

击薄膜表面次数减少.根据薄膜生长模型<sup>11]</sup>,薄膜 易形成带有空位的纤维状结构.这时薄膜结构变得 疏松,界面起伏增加,薄膜(111)峰值强度减弱,如





(c)



图 3 不同氩气压下三明治 Ta/NiFe/FeMn 的原子力像 (a)0.4 Pa (b)1.2 Pa (c)0.4 Pa/1.2 Pa



图 1、图 3(b)所示.对于 II 系列样品,下部是在低氩 气压下沉积而成,自由层(NiFe)有强(111)晶体织 构,而 FeMn 钉扎层的(111)织构取决于自由层的 (111)织构<sup>12]</sup>.因而,随着上部沉积氩气压的上升, FeMr(111)峰值强度变化不大,如图 2 所示.

I系列自旋阀样品高场下的磁电阻曲线如图 4 所示.随着氩气压的上升,薄膜面电阻和磁电阻比值 由小增大,但当氩气压大于 0.82 Pa 时,磁电阻比值 开始减小.交换耦合场(H<sub>ex</sub>)随着氩气压的增加而 减弱.从图中看出,低氩气压下,随着外磁场的变化, 磁电阻主要处于高、低两值状态,表明两铁磁层的磁 化矢量基本上处于平行或反平行状态.低场下的磁 电阻测量曲线表明,这时的两铁磁层的层间耦合作 用较弱.当氩气压大于 0.82 Pa 时,磁电阻曲线不再 保持水平的台阶,台阶现象逐渐消失,两铁磁层的磁 化矢量不再处于平行或反平行状态,交换耦合场明 显降低.同时,低场下磁电阻测量曲线表明铁磁层的 层间耦合作用明显增强,如图 5 所示.

Ⅱ系列自旋阀样品高场下的磁电阻曲线如图 6 所示.随着上部氩气压的上升,薄膜面电阻由小增 大,磁电阻值有所增加.交换耦合场(*H*<sub>ex</sub>)随着上部 氩气压的增加而增强.从图中看出,不管上部氩气压 怎样变化,随着外磁场的变化,磁电阻主要处于高、 低两值状态,表明两铁磁层的磁化矢量基本上处于 平行或反平行状态.同时,低场下磁电阻测量曲线表 明两铁磁层的层间耦合作用始终较弱,如图 5 所示.



图 5 [,]]系列自旋阀样品的自由层矫顽力 H<sub>cl</sub>、层间耦合场 H<sub>cl</sub>和交换耦合场 H<sub>cx</sub>随氩气压的变化曲线

GMR 比值不仅与自旋相关的界面散射有关, 而且与各层的分流作用有关.低气压下,薄膜面电阻 小,由于 Cu和 FeMn 分流作用,GMR 比值小.随着 氩气压的上升,Cu和 FeMn 的分流作用减弱,GMR 比值增大.对于 I 系列样品,在高氩气压下,层间耦



图 6 II 系列自旋阀样品高场下的磁电阻曲线, I-1, I-2, I-3, I-4, I-5, I-6 对应于上部氩气压分别为 0.4, 0.56, 0.76, 0.83, 0.94, I.2 Pa

合增强,交换耦合作用减弱,两铁磁层的相对转动减小磁电阻比值变小.相反,II系列样品在高氩气压下,仍有弱的层间耦合和强交换耦合作用,GMR曲线保持很好的水平台阶.

对于 Cu 层厚度大于 2.5 nm 时,自由层与被钉 扎层的层间耦合作用主要来源于"橘子皮"效应的铁 磁耦合<sup>[6]</sup>.根据 Neel 的计算<sup>[13]</sup>",橘子皮"效应引起 的层间耦合场为  $H_{cf} = \frac{\pi^2}{\sqrt{2}} \left( \frac{\hbar^2}{\lambda t_f} \right) M_p e^{-2\pi \sqrt{2t} c_u / \lambda}$ .这里 假定界面为正弦性起伏, h 为波幅,  $\lambda$  为波长,  $M_p$  为 被钉扎层的饱和磁化矢量,  $t_f$  为自由层厚度.从式中 可以看出,波幅 h 越大, 层间耦合作用越强.低氩气 压下,薄膜致密,界面平整、起伏度小.由"橘子皮"效 应引起的铁磁层间耦合较弱.随着氩气压的上升, 界 面起伏增加,层间耦合作用逐渐增加,如图 5 所示. 对于 II 系列样品,下部在低氩气压下沉积,自由层、 Cu 层致密、NiFe/Cu, Cu/NiFe 界面平整、起伏度小. 因此,不管上部氩气压怎样变化,层间耦合作用始终 较弱.

被钉扎层 NiFe 与反铁磁钉扎层 FeMn 的交换 耦合场 Haw不仅取决于 FeMn( 111 )峰值强度,而且 也与 NiFe/FeMn 界面状况有关. 对于 T 系列样品, 随着氩气压的上升 FeMm 111 )峰强度减弱 ,导致交 换耦合场 Haa不断减小,如图 5 所示.相对而言,对 于 || 系列样品,随着上部沉积氩气压的上升,FeMn 始终保持强(111)晶体织构,由于被钉扎层 NiFe 和 钉扎层 FeMn 在高氩气压沉积,入射粒子能量低, NiFe/FeMn 界面成分互混小,且晶粒尺寸小,如图 3 (c)所示.根据 Malozemoff 提出的交换耦合随机场 模型<sup>[14]</sup>,交换耦合场  $H_{ex} \propto z J/2 M_{p} t_{p} \alpha L$ ,这里  $M_{p}$ 和  $t_n$  分别为被钉扎层的磁化矢量和厚度  $t_z$  是序单 位数 ,J 是原子界面交换系数 ,α 是原子间距 ,L 是 畴尺寸大小.由于交换耦合在晶粒边界受到破坏 因 而,易在反铁磁晶粒边界形成畴壁,当上部在高氩气 压沉积时,NiFe/FeMn 界面成分互混小,则有效界 面交换系数 z1 大,且小尺寸晶粒导致小尺寸磁畴. 因此 总的交换耦合作用大大增强.

能对各层薄膜的微结构和界面状态极为敏感,我们 可以通过调整溅射氯气压来改变薄膜的微结构 当 所有自旋阀薄膜在低氩气压沉积时、薄膜有强(111) 晶体织构、结构致密、界面光滑,铁磁层的层间耦合 作用弱,但由于分流作用和界面互混,巨磁电阻效应 有所降低,当所有自旋阀薄膜在较高氩气压沉积时, 薄膜的(111)峰值强度降低、界面互混减少,巨磁电 阻效应增加 但铁磁层的层间耦合增加 铁磁层和反 铁磁层的交换耦合减弱,进一步升高氩气压,巨磁电 阻效应降低.实验发现,可以分层优化薄膜生长条 件 达到同时提高自旋阀多层膜几种重要参数性能. 当自旋阀下部(Ta/NiFe/Cu)在低氩气压沉积、上部 (NiFe/FeMn/Ta)在高气压沉积时,薄膜具有强 (111) 晶体织构,并且界面互混减小,不仅可以提高 巨磁电阻效应和降低铁磁层的层间耦合作用,而且 铁磁层和反铁磁层间的交换耦合作用得到明显增 强.我们得到 磁电阻比值~2.6% 交换耦合层~28 kA/m 层间耦合场~0.1 kA/m.

#### 作者感谢尹林实验师在高真空溅射技术上的帮助.

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne G. Creuzet, A. Friederich J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472.
- [2] S. S. P. Parkin , Phys. Rev. Lett. ,71(1993),1641.
- [3] B. Dieny J. Magn. Magn. Mat. ,136 (1994) 335.
- [4] J.C.S.Kools, IEEE Trans. Magn. 32 (1996) 3165.
- [5] C. M. Park, K. H. Shin, IEEE Trans. Magn., 34(1998), 1423.
- [6] J.C. S. Kool, Th. G. S. M. Rijks, A. E. M. De Veirman, R. Coehoorn, *IEEE Trans. Magn.* 31(1995), 3918.
- [7] G. Choe, A. Tsoukatos, S. Gupta, *IEEE Trans. Magn.*, 34 (1998) 867.
- [8] G. Choe , A. Tsoukatos , Appl. Phys. Lett. , 70(1997), 1766.
- [9] M Jimbo J. Magn. Soc. Jpn. 22(1998),12.
- [10] J.C.S.Kools J. Appl. Phys. 77 (1995) 2993.
- [11] G. S. Bales, A. Zangwill, J. Vac. Sci. Technol., A9(1991), 145.
- [12] G. Choe S. Gupta ,IEEE Trans. Magn. 33 (1997) 3691.
- [13] L. Neel C. R. Acad. Sci. 255(1962),1676.
- [14] A. P. Malozemoff J. Appl. Phys. 63 (1988) 3874.

### 4 结 论

Ta/NiFe/Cu/NiFe/FeMn/Ta 自旋阀多层膜性

## GIANT MAGNETORESISTANCE EFFECT IN SPIN VALVE MULTILAYERS BY TWO-STEP SPUTTER DEPOSITION

LU ZHENG-QI<sup>1</sup>) CHAI CHUN-LIN<sup>2</sup>) LAI WU-YAN<sup>1</sup>)

<sup>1</sup> Centre for Condensed Matter Physics ,State Key Laboratory for Magnetism and Institute of Physics , Chinese Academy of Science ,Beijing 100080 )
<sup>2</sup> (School of Applied Science ,Beijing University of Science and Technology ,Beijing 100083 ) (Received 24 December 1998 ; revised manuscript received 17 May 1999 )

#### Abstract

Spin valve multilayers were prepared by a new two-step magnetron sputtering procedure. It is found that the exchange coupling is strongly enhanced the giant magnetoresistance (GMR) is improved and the interlayer coupling is reduced. A GMR of 2.6% an exchange coupling field of 28 kA/m and an interlayer coupling field of 0.1 kA/m were obtained. Lower layers (Ta/NiFe/Cu) were deposited at a lower argon pressure ,while upper layers (NiFe/FeMn/Ta) were deposited at a higher argon pressure. The former promoted stronger (111) textures of NiFe Cu ,FeMn while maintaining smooth interface and dense Cu film ,resulting in a reduction in interlayer coupling. The latter promoted the growth in a small magnetic domain size and an increase in the effective interfacial exchange coupling ,resulting in a high exchange coupling field.

PACC: 7376; 7570

<sup>\*</sup> Project supported by the Foundation of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. KJ-A1-401) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19890310).