

研究快讯

Fe/Al₂O₃/Fe 隧道结特性分析^{*}

刘存业^{1,2)} 徐庆宇¹⁾ 倪 刚¹⁾ 桑 海¹⁾ 都有为¹⁾

¹⁾ 南京大学固体微结构国家重点实验室, 南京 210093)

²⁾ 西南师范大学物理学系, 重庆 400715)

(2000 年 3 月 20 日收到, 2000 年 5 月 2 日收到修改稿)

用离子束溅射方法制备磁性隧道结(MTJ). 研究 MTJ 样品的隧道结磁电阻(TMR)效应. 用 X 射线光电子能谱分析了 MTJ 的软、硬磁层和非磁层及其界面的化学组成与微结构. 研究了 MTJ 的微结构对氧化铝势垒高度与有效宽度和 TMR 效应的影响.

关键词: 磁性隧道结, X 射线光电子能谱, 隧道结磁电阻

PACC: 7570, 3280F, 7360

1 引 言

凝聚态物质的物理特性主要受制于电子的行为. 电子是电荷和自旋的双重载体^[1,2], 磁性隧道结(MTJ)的特性是电子的双重功能的具体展现.

MTJ 源于研究半导体隧道结技术. 1975 年 Julliere 等人^[3]就在 Fe/Ge/Fe 的隧道结中发现了低温下(4.2 K)14% 的磁电阻(MR)效应, 并且具有良好的低场特性. 1982 年 Maekana 等人^[4]利用电子自旋-极化隧穿理论解释了 MTJ 的磁致电阻效应. 类似于磁性超晶格和多层膜、颗粒膜中非磁性层的影响^[1,5], MTJ 中的非磁性层厚度及微结构对隧道结磁电阻(TMR)效应起关键作用. 隧道结 MTR 效应和磁性多层膜与颗粒膜的巨磁电阻(GMR)效应的双峰曲线图形形状各异, 人们用相邻铁磁层磁矩的平行与反平行所导致的电子自旋相关散射对 TMR 和 GMR 效应作唯象解释^[6-12], 研究磁性多层膜的界面和膜体对电子自旋相关散射的贡献^[13-15], 表明了电子自旋对介观物质特性的决定作用.

目前国内外有不少研究组在进行 MTJ 的制备与性能研究, 一般采用溅射镀膜或分子束外延技术制备样品. 隧道结的势垒层有的采用半导体材料, 更多的是采用金属氧化物材料^[4,7-9]. 我们利用离子束溅射技术制备 MTJ 样品, 优化了基板旋转和加

热处理技术, 提高了硬、软电极的以及绝缘势垒的膜层与界面的平整度. 本文利用 X 射线光电子能谱(XPS)分析等技术手段对 Fe/Al₂O₃/Fe 隧道结的膜层与界面微结构、电导特性与磁电阻和 MTJ 的磁化反转机理进行探索.

2 实验研究

利用多靶高真空离子束溅射装置制备了 Fe/Al₂O₃/Fe 隧道结样品. 用单晶硅片的(111)面作为样品基板, 用高纯度的铁板和铝板作为溅射靶材料. 溅射衬底和靶材料均按照严格的清洗步骤进行处理.

样品基板安装在旋转样品架上, 样品制备期间溅射腔的背景真空为 8×10^{-5} Pa. 用高纯度 Ar 气作为溅射气体, 溅射压强为 2×10^{-2} Pa. 第一电极(Fe 膜)的溅射厚度为 100 nm, 接着溅射约 7 nm 的铝膜, 然后将样品置于室温下空气中氧化处理. 铝薄膜经过氧化生成氧化铝以后, 再将样品放入真空腔, 在上述同等条件下溅射一层厚度为 100 nm 的 Fe 膜. 溅射第一电极的衬底温度为 523 K.

对 MTJ 样品进行了电导特性测量, 磁致 TMR 效应测量, Fe/Al₂O₃ 界面微结构测量和各个膜层的化学组分测量等. 测量结果表明: MTJ 的氧化铝势垒层厚度和质量对样品的 TMR 效应影响很大, 界

^{*} 国家 973 项目基金(批准号: G1999064508)资助的课题.

面层的粗糙性也是重要因素.

3 结果与讨论

3.1 MTJ 的电导曲线分析

隧道结的电导特性 $G(V)$ 是 MTJ 质量性能表征的主要手段之一^[3]. 图 1 中的曲线 A 是溅射 Al 薄膜后自然氧化的 $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ 隧道结样品 $G(V)$ 曲线, 溅射第一电极的衬底温度为 523 K; 曲线 B 是 $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{FeNi}$ 型玻璃衬底上(室温下)溅射隧道结

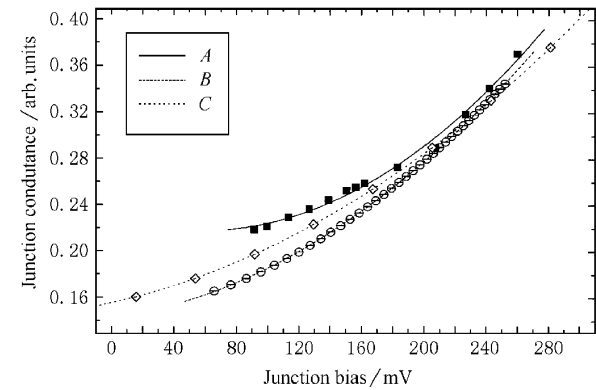


图 1 隧道结电导曲线 A 为室温下氧化的氧化铝层, 曲线 B 为真空等离子体氧化铝层, 曲线 C 为文献 [7] 所测试的电导曲线

$G(V)$ 曲线, 溅射 Al 薄膜后在真空腔内用氧等离子体进行氧化的样品; C 是 Moodera 等人^[7]在玻璃衬底(77 K)上利用真空蒸发沉积法制备的 $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ 隧道结样品 $G(V)$ 曲线. 由测量数据拟合的曲线 A 得到 TMJ 样品电导与隧道结电压的关系:

$$G(V) = A_1 + A_2 V + A_3 V^2, \quad (1)$$

其中 $A_1 = 0.229$, $A_2 = -4.167 \times 10^{-4}$, $A_3 = 3.633 \times 10^{-6}$. 由 $G(V)$ 曲线的分析可以看出, TMJ 电导与电压的关系是一种二次曲线, 对曲线 B 和 C 的分析结果具有与 (1) 式相同的形式, 与文献 [7] 的分析结果符合. 但由于衬底材料和溅射温度不同, $G(V)$ 曲线的各项的系数存在差异. 测量数据和拟合结果表明隧道结的电导源于结势垒层, 或者说 MTJ 的电导是结隧穿电子输运电荷的结果.

3.2 GMR 图形对称性分析

图 2 是 $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ 隧道结样品的 TMR 效应曲线, 图中左、右侧纵坐标分别表示样品的 TMR 比

值和磁电阻测量数据, TMR 比值约为 6%. TMR 曲线显示的双峰中心位置关于 $H=0$ 轴对称, 第一电极的磁矩反转磁场约为 ± 54 Oe, 第二电极的磁矩反转磁场约为 ± 100 Oe. 这与金属磁性多层膜的磁致电阻的双峰特征相似. Pratt 等人^[16]对 $\text{Ag}(2\text{—}60\text{ nm})/\text{Co}(6\text{—}15\text{ nm})$ 多层膜所测试的 CIP-MR 曲线也具有类似的对称特性.

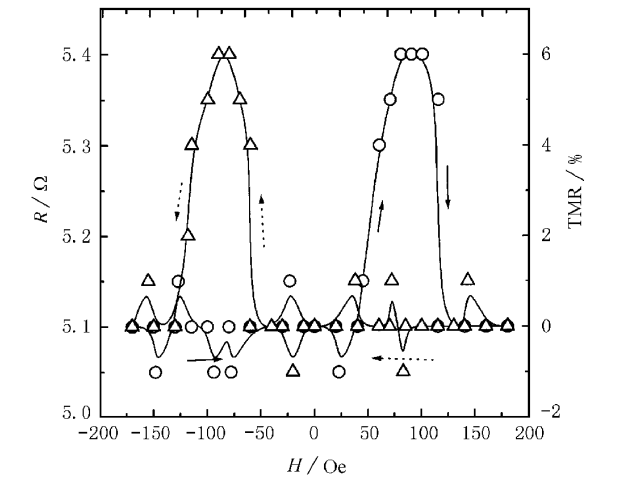


图 2 $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ 隧道结样品的 GMR 效应曲线 (1 Oe = 79.578 A/m)

从图 2 的 $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe}$ 隧道结样品的 TMR 效应曲线还可以看出, 单个 TMR 峰本身关于 H 轴并不对称, 这表明 MTJ 与金属多层膜磁特性的差异. 在文献 [7] 中研究 $\text{CoFe}(8\text{—}15\text{ nm})/\text{Al}_2\text{O}_3(1.2\text{—}2.0\text{ nm})/\text{Co}(8\text{—}25\text{ nm})$ 隧道结 TMR 效应时也表明了不对称的特征. 这是由于制备氧化铝薄膜时导致氧离子可能穿过 Al 膜达到第一电极铁磁 (FM) 层表面, 生成 Fe 的氧化物, 形成铁的反铁磁 (AF) 氧化层. 在 AF/FM 界面显示交换各向异性, 影响了电极磁矩反转磁化过程, 破坏了 TMR 峰形的对称性.

TMR 峰形的不对称也可能与界面微结构差异以及势垒层中含有金属离子杂质有关^[7].

3.3 MTJ 界面微结构与 TMR 效应分析

图 3 是 MTJ 样品的 X 射线光电子能谱 (XPS) 测试结果, 表明了 MTJ 样品中三种化学成分 (Fe, Al, O) 含量随表面深度的变化.

图 3(b) 和 (c) 分别是氧化铝势垒界面和内部的 XPS 数据, 它显示了 Al 和 Al_2O_3 的含量对比. 图中用两条平行于 Y 轴的实线划分出软铁磁层 L_1 , 非磁性层 L_0 和硬铁磁层 L_2 , 用四条平行与 Y 轴虚线

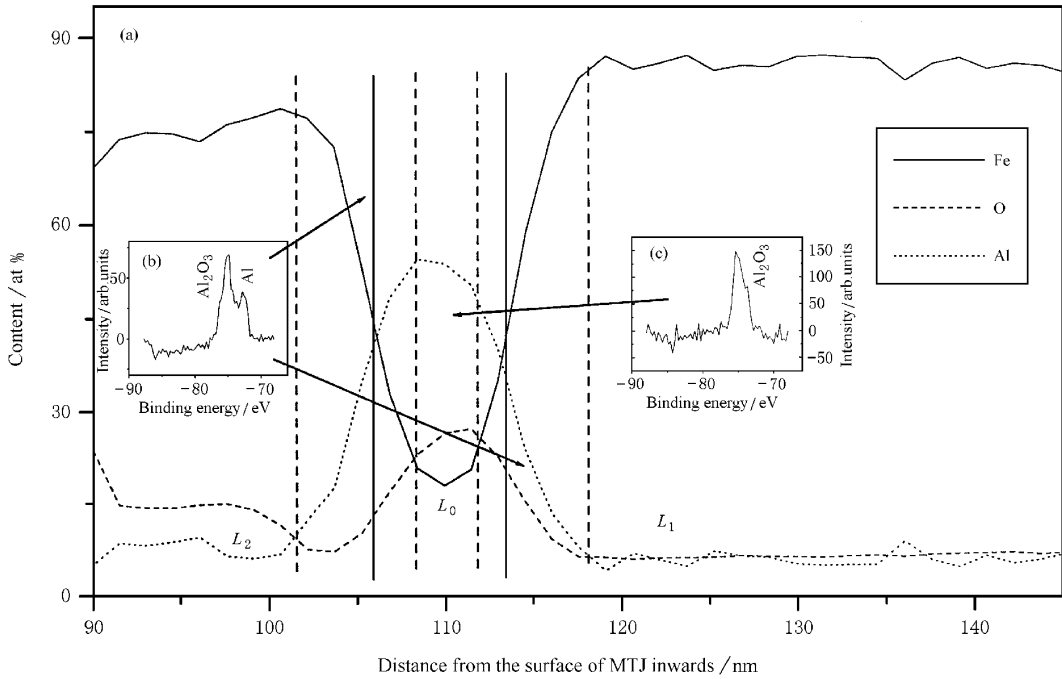


图 3 (a)隧道结样品 XPS 测量数据和结构示意图 插图(b)与(c)分别表示界面和势垒层内部的 XPS 图谱 , L_1 , L_2 , L_0 依次表示第一、二电极和绝缘层

划分出 Fe ,Al ,O 在两个界面互扩散的过度层.由图 3(a)可以看出 ,组成 MTJ 的三种元素在电极与势垒层的界面处呈现互相混合状态 ,这是由于溅射 Al 膜和等离子体氧化导致三种元素互扩散 ,在界面附近形成一个明显的比较厚的过渡层 ,其中包括 Fe ,Al 及其氧化物的物相成分.在表示 Fe 含量的曲线谷点 ,几乎不含 Fe 的 Al₂O₃ 层的厚度约为 4 nm.这也是减弱 GMR 效应的因素之一.

对 MTJ 作原子力显微镜分析表明 ,直接沉积于 Si(111)面上的硬磁电极层面比较平整 ,它与 Al₂O₃ 的界面粗糙度(平均法计算)约为 0.23 nm.沉积于 Al₂O₃ 膜层上软磁电极膜面平整度降低 ,它与 Al₂O₃ 的界面粗糙度约 0.76 nm. Al₂O₃ 势垒表面的最大起伏约为 4.3 nm ,这表明氧化铝不平整的膜面降低了有效绝缘厚度.

分析 MTJ 样品的伏安特性($I-V$)曲线(文中未列出)可知 ,在低电压区 $I-V$ 曲线为线性 ,随着电压升高 $I-V$ 曲线呈现非线性特征 , $I-V$ 曲线的拟合分析与 Simmons^[17]理论符合.拟合计算得到氧化铝势垒的有效宽度约为 1.7 nm ,高度约为 2.5 eV.分析表明 :由于氧化铝绝缘层与铁磁层之间存在互扩散和界面的粗糙性 ,氧化铝势垒的有效宽度小于膜层的厚度.

关于 MTJ 的研究一般集中于 TMR 的唯象机制^[3-9] ,如传导电子的自旋相关散射 ,电荷运输的双体电子模型 ,体散射与界面散射等 ,对于 MTJ 电极的磁矩反转机理较少涉及.对 MTJ 样品的三层膜分析可以看出 ,MTJ 样品的硬磁电极是在加温条件下直接沉积在 Si 单晶平面 ,膜层是致密的纳米多晶结构(晶粒平均尺寸约为 6 nm).软磁电极是在室温下沉积于氧化铝粗糙的无序结构表面 ,膜层为疏松的非晶结构.从 XPS 分析的 Fe 含量随膜层厚度变化数据可以确认膜层致密度 ,后者约为前者的 90%.两种铁电极因不同的微结构导致矫顽力差异 ,在周期变化的外磁场作用下 ,软、硬铁磁层依次发生磁矩反转 ,两者磁矩依次呈现平行和反平行状态 ,隧道结样品表现出 TMR 效应.

隧道结的 TMR 效应与多层膜或颗粒膜的 GMR 效应具有类似的磁矩反转机制.峰形对称性和膜层的磁矩结构分布有关 ,因而受到膜层和界面的微结构有关^[7] ,对于 MTJ 作为介观材料可能存在类单畴磁矩分组分步反转机制将作进一步探索.

[1] Jan-wang Cai et al. , *Progress in Physics* , 17(1997) , 119 (in Chinese) [蔡建旺、赵见高、詹文山、沈保根 , *物理学进展* , 17(1997) , 119].

- [2] P. M. Tedrow , R. Meservey , *Phys. Rev. Lett.* , **26** (1971) , 193 .
- [3] M. Julliere , *Phys. Lett.* , **54A** (1975) , 225 .
- [4] S. Maekana , U. Gafvert , *IEEE Transactions on magnetics* , **18** (1982) , 707 .
- [5] S. S. P. Parin , *Phys. Rev. Lett.* , **71** (1993) , 1641 .
- [6] J. C. Slonczewski , *Phys. Rev.* , **B39** (1989) , 6995 .
- [7] J. S. Moodera , L. R. Kinder , *J. Appl. Phys.* , **79** (1996) , 4724 .
- [8] S. S. P. Parin , K. S. Moon , K. E. Pettit *et al.* , *Appl. Phys. Lett.* , **75** (1999) , 541 .
- [9] H. Chen , Q. Y. Xu , G. Ni *et al.* , *J. Appl. Phys.* , **85** (1999) , 5798 .
- [10] Zhi-hong Wang *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **48** (1999) , 757 (in Chinese) [王志宏、蔡建旺、沈保根等 , 物理学报 , **48** (1999) , 757] .
- [11] T. Zhu *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **48** (1999) , 763 (in Chinese) [朱涛、王荫君 , 物理学报 , **48** (1999) , 763] .
- [12] A. Barthelemy , V. Cros , J. L. Duvial *et al.* , *Nanostructured Materials* , **6** (1995) , 217 .
- [13] K. Q. Hood , L. M. Falicov , *Phys. Rev.* , **B46** (1992) , 8287 .
- [14] Ping-bo Zhao *et al.* , *Acta Physica Sinica* , **45** (1996) , 1191 (in Chinese) [赵平波、李伯臧、蒲富格 , 物理学报 , **45** (7) , (1996) , 1191] .
- [15] C. Tiusan , T. Dimoponds , M. Hehn *et al.* , *Phys. Rev.* , **B61** (2000) , 580 .
- [16] W. P. Pratt , Jr. S. F. Lee , J. M. Slaughter , *et al.* , *Phys. Rev. Lett.* , **66** (1991) , 3060 .
- [17] J. G. Simmons , *Journal of Applied Physics* , **34** (1963) , 1793 .

STUDING ON ELECTROMAGNETIC CHARACTERS OF Fe/Al₂O₃/Fe TUNNELING JUNCTIONS *

LIU CUN-YE¹⁾²⁾ XU QING-YU¹⁾ NI GANG¹⁾ SANG HAI¹⁾ DU YOU-WEI¹⁾

¹⁾(National Laboratory of Solid State Microstructures , Nanjing University , Nanjing 210093 , China)

²⁾(Department of Physics , Southwest China Normal University , Chongqing 400715 , China)

(Received 20 March 2000 ; revised manuscript received 2 May 2000)

ABSTRACT

Using ion-beam-sputtering technique , Fe/Al₂O₃/Fe magnetic tunneling junctions (MTJ) were fabricated . Tunneling magnetoresistance (TMR) effect of MTJ samples has been successfully studied . The chemical composition and the microstructural characteristics of hard-and soft-magnetic layers , insulating layer , and interface of MTJ were analyzed by X-ray photoelectron spectroscopy and Atomic force microscopy . The dependence of MR effect on microstructure , chemical composition , conductance , and *I-V* characteristic of the samples are also discussed .

Keywords : magnetic tunneling junction , X-ray photoelectron spectroscopy , tunneling magnetoresistance

PACC : 7570 , 3280F , 7360