

$(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 作为种子层对 NiFe/FeMn 交换偏置的影响*

滕 蛟¹⁾²⁾ 蔡建旺¹⁾ 熊小涛²⁾ 赖武彦¹⁾ 朱逢吾²⁾

¹⁾中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室,北京 100080)

²⁾北京科技大学材料物理与化学系,北京 100083)

(2002 年 4 月 4 日收到,2002 年 5 月 10 日收到修改稿)

采用一种新的种子层材料 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$, 通过改变种子层中 Cr 原子的含量,使得在其上生长的 NiFe/FeMn 双层膜的织构和晶粒尺寸产生极大的差异,系统研究了 NiFe/FeMn 双层膜中 FeMn 晶粒尺寸和织构对交换偏置的影响.实验结果表明,在 FeMn 的 γ 相(111)织构较好的前提下,交换偏置场的大小与织构的差异没有关系;FeMn 的晶粒尺寸对交换偏置场有很大影响,较小的反铁磁层晶粒对交换偏置场有利,过大的反铁磁层晶粒不利于交换偏置场.将 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{0.5}\text{Cr}_{0.5}$ 与传统的种子层材料 Ta 进行了对比,发现前者具有很多优点,是一种可能替代 Ta 的新型种子层材料.

关键词:交换偏置,晶粒尺寸,织构,种子层

PACC: 7550

1. 引 言

铁磁(FM)与反铁磁(AF)材料之间的交换偏置现象是 20 世纪 50 年代前的一个重要发现^[1].这一现象的具体表现是,当 FM/AF 双层膜升温至奈尔温度以上再在磁场中冷却,或者 FM/AF 双层膜在磁场中生长,其磁滞回线中心在所加外磁场方向偏离零磁场,同时矫顽力也显著增强.磁滞回线中心偏移量的大小定义为交换偏置场(H_{ex}).近十年来,交换偏置现象被广泛地应用于巨磁电阻(GMR)自旋阀多层膜中,在信息存储技术中有着重要的应用^[2].深刻理解 FM/AF 交换偏置的物理机理,并由此提高其性能是当前凝聚态物理磁学领域的研究热点.到目前为止,尽管提出过多种不同的理论模型来理解 FM/AF 体系交换偏置的微观机理,但这些模型都只能解释某一些特定 FM/AF 体系或交换偏置现象的某一方面.

与铁磁层紧邻的反铁磁层界面磁矩的补偿或者未补偿是交换偏置的中心议题之一,虽然不同体系

或甚至同一体系但不同实验者有时给出相互矛盾的结果,但越来越多的细致研究表明,对于理想的磁矩完全补偿的反铁磁界面,由于反铁磁的 spin-flop 垂直界面耦合作用仅导致矫顽力的增强^[3];交换偏置从本质上来来自于反铁磁界面的未补偿磁矩^[4,5],不管这些未补偿磁矩是反铁磁的内禀磁结构引起还是由于界面的缺陷或粗糙所造成.因此,对于一定的 FM/AF 体系,界面的粗糙度、界面缺陷、反铁磁材料的取向织构及其晶体尺寸等是影响交换偏置场大小的重要因素.Néel 曾经指出,反铁磁界面的净的未补偿总磁矩随着反铁磁晶粒的减小而增加,反比于反铁磁的晶粒尺度^[6].Takano 等^[7]确实发现 CoO/NiFe 双层膜的 H_{ex} 随着 CoO 晶粒的增加以反比于 CoO 晶粒尺度的规律下降.尽管如此,这一实验的不足之处在于 CoO 的晶粒的改变(从 10 增至 40nm)是通过改变 CoO 反铁磁层的厚度(从 10 到 300nm)而获取的.事实上,当反铁磁厚度达到一定的临界厚度后,许多实验者都发现 H_{ex} 随着反铁磁层厚度的增加而减小,并且有人认为,这是由于随着反铁磁层厚度的改变,反铁磁的磁畴结构也发生变化所致^[8,9].

* 国家自然科学基金重大项目(批准号:19890310)资助的课题.

最近 Mauri 等^[10]在对坡莫合金(以下简称 NiFe)薄膜的各向异性磁电阻(AMR)效应进行研究时发现,以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 为种子层的 NiFe 薄膜在 Cr 的原子百分比为 40% 附近出现了非常强的(111)织构和大晶粒现象,使 NiFe 膜在厚度较小的情况下也具有较大的 AMR 值.这种新的种子层材料有可能被应用到 FM/AF 双层膜系统,例如: NiFe/FeMn 双层膜.众所周知,FeMn 合金通常具有 bcc 结构,是非磁性的,反铁磁的 FeMn 只有在 γ 相,即 fcc 结构才出现,而 γ -FeMn 为亚稳相.通常将 FeMn 薄膜生长在具有 fcc 结构且晶格常量相近的 Cu 或 NiFe 薄膜之上,使之同构生长以诱发 FeMn 的 γ 相,因而对于 NiFe/FeMn 双层膜交换作用体系, NiFe 膜层的织构和晶粒大小将直接影响 γ -FeMn 的织构和晶粒尺度.通常人们采用 Ta 作为种子层以使 NiFe 和 FeMn 同时获得较强的(111)织构,从而得到较大的交换偏置场^[11-13].本文将研究以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 为种子层,通过调整种子层中 Cr 的原子百分比来控制 NiFe 薄膜织构和晶粒尺寸,从而使 γ 相的 FeMn 的(111)织构强弱和晶粒尺寸大小产生差异,以澄清反铁磁的织构和晶粒大小是如何影响交换偏置场的,同时,我们将系统地比较以 Ta 和 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 作为种子层对 NiFe/FeMn 的交换耦合的影响.

2. 实 验

实验样品采用直流磁控溅射方法制备.磁控溅射设备共有 4 个靶位,基片通水冷却.使用合金靶 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 、 $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ 制备 NiFe、FeMn 薄膜;在 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 靶表面对称放置形状规整的 Cr 片,通过调整 Cr 片的数量来获得 Cr 原子百分比含量从 33.5% 至 59.8% 的 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 薄膜.溅射系统本底真空优于 4×10^{-5} Pa,工作介质 Ar 气压为 0.5 Pa.各种靶材的溅射速率分别测定,它们的范围在 $0.1 \text{ nm} \cdot \text{s}^{-1}$ 左右.在基片位置沿平行膜面方向施加有约 36 kA/m 的磁场.整个实验过程中,制备了两类多层膜:

$(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ (d nm)/NiFe(10nm)/FeMn(15nm) ($(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ (10nm))

Ta(d nm)/NiFe(10nm)/FeMn(15nm)/Ta(10nm), 其中 $x = 33.5\%$, 38% , 42.5% , 45.7% , 50.4% , 55.1% , 59.8% ; $d = 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 8, 12.5, 25 \text{ nm}$.用于磁性测试和 x 射线衍射样品均采用盖玻片作为基片,用于原子力测试样品则生长在表面氧化的硅

片上,氧化层的厚度约为 500nm.

$(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 层 Cr 的原子百分比由相同条件下制备的约 300nm 厚度的单层膜通过电感耦合等离子体发射光谱(ICP-AES)分析获得;用振动样品磁强计(VSM)在室温下测量了样品的磁滞回线,得到交换偏场(H_{ex})和矫顽力(H_c);样品的织构、结晶性通过 x 射线衍射进行分析, x 射线的光源采用 $\text{Cu } K\alpha$, 功率为 $150 \text{ mA} \times 40 \text{ kV}$;用原子力显微镜测量样品的粗糙度和面内晶粒尺寸,并得到了其三维显微模拟图像.

3. 结果和讨论

为了研究反铁磁的织构和晶粒等因素对 NiFe/FeMn 系统交换偏置场影响,制备了如下系列样品:

基片 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ (12.5nm)/NiFe(10nm)/FeMn(15nm) ($(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ (10nm)), 其中 $x = 33.5\%$, 38% , 42.5% , 45.7% , 50.4% , 55.1% , 59.8% 为原子百分比.分别测量了这些样品的磁滞回线,得到它们的交换偏置场.

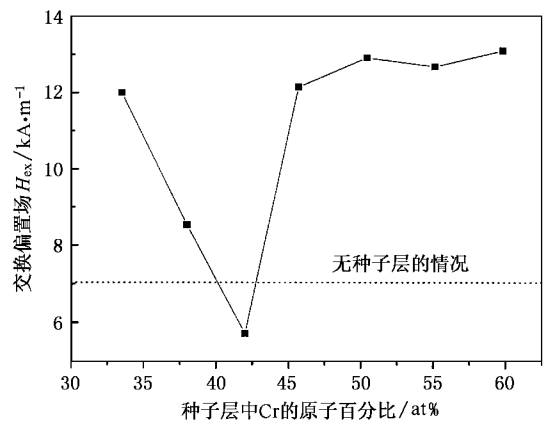


图1 交换偏置场 H_{ex} 随种子层中 Cr 的原子百分比的变化关系.横虚线为 NiFe/FeMn 直接生长在基片上时其交换偏置场的值

图1为 NiFe/FeMn 系统的交换偏置场 H_{ex} 随种子层中 Cr 的原子百分比的变化曲线.图1中下方的横虚线对应的是没有种子层时, NiFe/FeMn 系统的交换偏置场.从图1可以看到,没有种子层的 NiFe/FeMn 系统的交换偏置场较小,随着 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 种子层的介入,当 Cr 的原子百分比为 33.5% 时,该系统的交换偏置场有了很大增强,随着 Cr 含量的增加,交换偏置场开始明显下降,在 Cr 的原子百分比为 42.5% 时达到最小,这时 H_{ex} 甚至低于没有种

子层时的值,此后随着 Cr 的含量的增加, H_{ex} 迅速变大,在 Cr 的百分含量为 45.7% 时恢复到 33.5% 时的水平,随着 Cr 含量的进一步增大, H_{ex} 略有提高,但基本保持平稳。

Mauri 等^[10]的实验结果显示当 Cr 的原子百分比为 40% 左右时,以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 为种子层的 NiFe 薄膜会出现将强烈 (111) 织构和大晶粒现象,但 NiFe/FeMn 的交换偏置场此时却出现了大幅度的下降,两者之间必有联系.我们对没有种子层及种子层中 Cr 的原子百分比分别为 33.5%, 38%, 42.5%, 50.4% 等 5 个典型样品作了 x 射线衍射,在相同条件下从 35° 到 55° 对其按步进方式进行 2θ - θ 扫描,所得结果示于图 2.

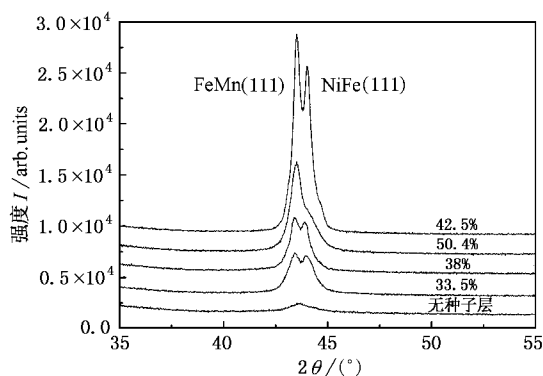


图 2 几个典型样品的 x 射线 2θ - θ 衍射谱

从图 2 中可以看到,没有种子层的样品仅出现一个宽而弱的峰,从峰的位置来判断,这个峰是 NiFe(111) 峰和 FeMn(111) 峰的叠加,说明 FeMn 形成了 γ 相,但其 (111) 织构较差且晶粒不大.其较小的交换偏置场似乎与较差的 (111) 织构相关.当 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 种子层介入后,每个样品都出现了较强的 NiFe(111) 峰和 FeMn(111) 峰.其中 Cr 百分含量为 42.5% 的样品衍射峰最强,比其他样品的衍射峰强了几倍,但是其交换偏置场最小;Cr 百分含量为 50.4% 的样品交换偏置场最大,其衍射峰强度在 4 个以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 为种子层的样品中却处于第二;交换偏置场较大的两个样品(Cr 百分含量分别为 50.4%、33.5%)的交换偏置场值相差不大,衍射峰强度却相差一倍.这些结果说明在 FeMn(111) 织构较好的情况下,交换偏置场的大小与 FeMn 薄膜的织构的差异没有明显关系.另一方面,根据 FeMn(111) 峰的半峰宽,计算出 4 个以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 为种子层的样品的反铁磁层的沿生长

方向的相干长度,具体见表 1.

表 1 不同样品反铁磁层的相干长度

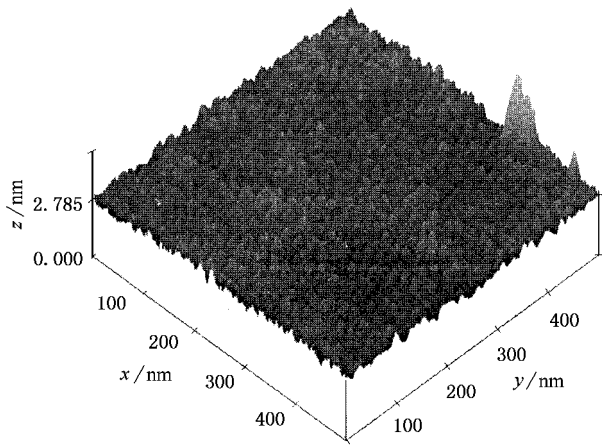
样品中 Cr 的原子百分比/at%	33.5	38	42.5	50.4
相干长度 l/nm	12	16.5	17	13

可以发现,交换偏置场较大的两个样品相干长度较小(比 FeMn 层的厚度稍微小一些),而交换偏置场较小的两个样品其相干长度较大(比 FeMn 层的厚度稍微大一些).相干长度反映着 FeMn 晶粒大小,如果样品的界面粗糙度没有因种子层中 Cr 的含量而变化,交换偏置场的大小则更依赖于反铁磁的晶粒尺度.为此我们对样品做了原子力测试,得到其面内晶粒尺寸和粗糙度.

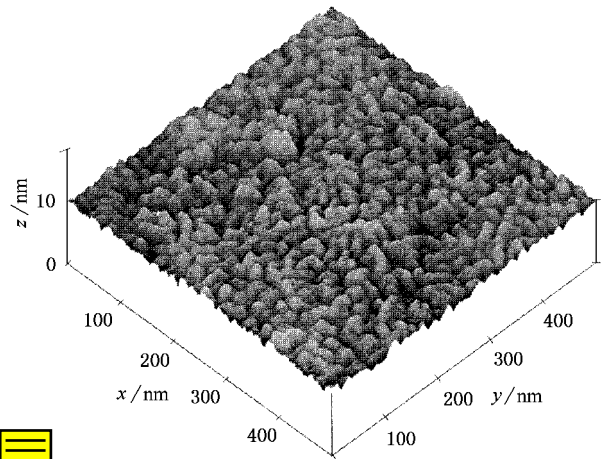
在表面氧化的硅片上生长 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ (12.5nm)/NiFe(10nm)/FeMn(15nm) 三层膜,其表面可以模拟 NiFe/FeMn 的界面,它的平整情况反应了界面的粗糙度.原子力显微镜观测的结果表明,所有样品的表面粗糙度都在 0.2—0.3nm,表明界面非常光滑.种子层中 Cr 的原子百分比含量的变化没有引起界面粗糙度的变化.但是,随着 Cr 的原子百分比含量的变化,FeMn 的晶粒大小发生了显著变化.对于交换偏置场较大的样品,FeMn 晶粒较小,交换偏置场较小的样品,FeMn 晶粒较大.Cr 的原子百分比为 42.5% 的样品的交换偏置场最小,FeMn 晶粒最大,约为 21nm,这个数值与 Mauri 等的结果是一致的,而对于 Cr 的含量为 50.4% 的样品,FeMn 的面内晶粒最小,仅为 16nm 左右.图 3 为 Cr 的原子百分比分别为 42.5% 和 50.4% 的两个典型样品的原子力三维图像,可见两者面内晶粒大小有明显区别.

以上实验结果表明在 NiFe/FeMn 体系中,FeMn 的 γ 相和较好的 (111) 织构是产生较大交换偏置场的必要条件,但在此基础上,织构的差异对交换偏置场的大小并无明显影响,FeMn 的晶粒尺寸才是影响交换偏置场的重要因素.依据 Néel 的理论预言^[6],从本质上而言,反铁磁晶粒尺寸的变化,改变了反铁磁界面未补偿磁矩,从而影响交换偏置场的大小.

$(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ 作为一种新的种子层,具有多重可调性,当 Cr 的原子百分比含量约为 50% 时,在 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{0.5}\text{Cr}_{0.5}$ 上生长的 NiFe/FeMn 双层膜,FeMn 层具有较好的织构和较小的晶粒以及非常平整的界面,交换偏置场较理想.作为本文的最后一部分,将它与传统的种子层材料 Ta 分别作为种子层,在不同的厚度下在其上生长了 NiFe/FeMn 双层膜,



(a) Cr 的原子百分含量为 50.4%



(b) Cr 的原子百分含量为 42.5%

图 3 种子层中不同 Cr 含量时 NiFe/FeMn 系统的表面原子力显微镜图

比较了双层膜的钉扎性能. 图 4 是以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 和 Ta 作为种子层时 NiFe/FeMn 系统的 H_{ex} 随种子层厚度的关系. 从图 4 可以看到, 以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 为种子层和以 Ta 为种子层, 交换偏置场随着种子层厚度的变化趋势是一致的. 但是, 以 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 为种子层的样品, 钉扎效果稍好于以 Ta 为种子层的样品, 其最大交换偏置场提高 7%. 需要

特别指出的是, 两者所需要的临界厚度 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 比 Ta 小了近 2nm, 而在此厚度下, 交换偏置场提高了 20%, 且 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 本身电阻率较 Ta 为大, 这时种子层的分流较小, 将导致自旋阀 GMR 值的提高. 此外 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 在 300°C 时与 NiFe 之间基本无扩散, 此温度下 Ta 与 NiFe 有较严重的扩散^[10]. 可见 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 与 Ta 相比有诸多优点, 是一种可能替代 Ta 的种子层材料.

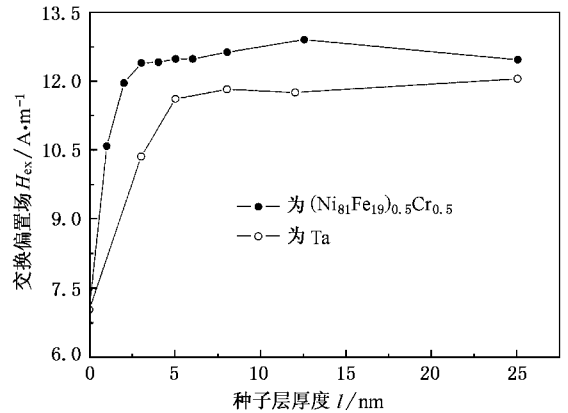


图 4 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 与 Ta 作为种子层时 NiFe/FeMn 双层膜的交换偏置场的对比

4. 结 论

采用一种新的种子层材料 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$. 通过改变其中 Cr 的成份实现了对 NiFe/FeMn 双层膜系统中反铁磁层的晶粒尺寸和织构的调控, 对 NiFe/FeMn 体系的交换偏置机理进行了研究. 实验结果表明, 1) 在 FeMn 的 γ 相的 (111) 织构较好的前提下, 织构的差异对交换偏置场的大小没有明显影响; 2) FeMn 的晶粒尺寸对交换偏置场有很大影响. 随着晶粒尺寸的增大, 交换偏置场明显下降, 过大的晶粒尺寸不利于 FeMn 对 NiFe 的钉扎; 3) 作为种子层材料 $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{\lambda-x}\text{Cr}_x$ 比 Ta 有诸多优点, 是一种可能替代 Ta 的优良种子层材料.

[1] Meiklejohn W H and Bean C P 1956 *Phys. Rev.* **102** 1423 ;
Meiklejohn W H and Bean C P 1957 *Phys. Rev.* **105** 904
[2] Fontana R E , McDonald S A , Santini H A and Tsang C 1999 *IEEE Trans. Magn.* **35** 806

[3] Schulthess T C and Butler W H 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 4516
[4] Gökemeijer N J , Penn R L , Vehlen D R and Chien C L 2001 *Phys. Rev. B* **63** 174422
[5] Takano K , Kodama R H , Berkowitz A E , Cao W and Thomas G

- 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 1130
- [6] Néel L 1988 *Selected Works of Louis Néel* ed. by N Kurti (New York :Gordon and Breach) p469
- [7] Takano K , Kodama R H , Berkowitz A E , Cao W and Thomas G 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 6888
- [8] Ambrose T and Chien C L 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 6822
- [9] Sang H , Du Y W and Chien C L 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 4931
- [10] Lee W Y , Toney M F and Mauri D 2000 *IEEE Trans. Magn.* **36** 381
- [11] Choe G and Gupta S 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 1766
- [12] Fujiwara H , Nishioka K , Hou C , Parker M R , Gangopadhyay S and Metzger R 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 6286
- [13] Li M H , Yu G H , Jiang H W , Cai J W and Zhu F W 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2230 (in Chinese) [李明华、于广华、姜宏伟、蔡建旺、朱逢吾 2001 物理学报 **50** 2230]

The influence of $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ seed layer on the exchange bias of NiFe/FeMn bilayers *

Teng Jiao^{1,2)} Cai Jian-Wang¹⁾ Xiong Xiao-Tao²⁾ Lai Wu-Yan¹⁾ Zhu Feng-Wu²⁾

¹⁾(State Key Laboratory of Magnetism , Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)

²⁾(Department of Materials Physics and Chemistry , Beijing University of Science and Technology , Beijing 100083 , China)

(Received 4 April 2002 ; revised manuscript received 10 May 2002)

Abstract

A thin $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$ seed layer was employed to alter the crystallinity and grain size of NiFe/FeMn bilayers through varying Cr content , and the effect of the crystallinity and grain size on the exchange bias of NiFe/FeMn has been investigated. It has been found that , the interface of NiFe/FeMn is quite smooth for the films grown on the seed layer of $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$, and the difference of the crystallinity of FeMn layer is not the cause of the variation in the exchange bias field once a well textured FeMn layer is achieved. On the other hand , the exchange bias field depends strongly on the grain size of the FeMn layer , i. e. the exchange bias decreases rapidly with the increase of FeMn grain size , which is consistent with Néel 's theoretical prediction. Finally $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{0.5}\text{Cr}_{0.5}$ has been compared with Ta as the seed layer of NiFe/FeMn films from the aspects of exchange bias , thermal stability and electric resistivity. It has been shown that the former has more merits , and could be a promising seed layer in the future.

Keywords : exchange bias , crystallinity , grain size , seed layer

PACC : 7550

* Project supported by the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19890310).