

具有分隔层 Bi 的反铁磁/铁磁双层薄膜间的 短程交换耦合^{*}

李明华^{1,2)} 于广华²⁾ 何 珂¹⁾ 朱逢吾²⁾ 赖武彦¹⁾

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系, 北京 100083)

(2002 年 2 月 26 日收到, 2002 年 5 月 20 日收到修改稿)

用磁控溅射方法制备了 $\text{NiFe}_1/\text{FeMn}/\text{Bi}/\text{NiFe}_2$ 薄膜, 研究了反铁磁薄膜 FeMn 与铁磁薄膜 NiFe_1 及 NiFe_2 间的交换偏置场 H_{ex} 相对于分隔层 Bi 厚度的变化. 发现随分隔层 Bi 厚度的增加, FeMn 与 NiFe_1 间的交换偏置场 H_{ex} 几乎不变, FeMn 与 NiFe_2 间的交换偏置场 H_{ex} 急剧减小. 当 Bi 的厚度超过 0.6 nm 时, FeMn 与 NiFe_2 之间的交换偏置场从 6.925 下降为 $0.876\text{ kA}\cdot\text{m}^{-1}$. X 射线光电子能谱 (XPS) 分析表明, 沉积在 FeMn/ NiFe_2 界面的 Bi 并没有全部停留在界面处, 至少有部分偏聚到 NiFe_2 层表面.

关键词: 交换偏置, 分隔层, 织构, XPS

PACC: 7550, 7170G

1. 引 言

1986 年 Grunberg 等^[1]发现在 Fe/Cr/Fe 三层膜结构中, 当 Cr 层取适当厚度时, 两铁磁层的磁矩彼此呈反平行排列, 即所谓的反铁磁耦合. 1988 年 Fert 等^[2]在研究 Fe/Cr 超晶格的电子输运性质时, 发现当 Cr 层厚度为 0.9 nm 时, 相邻铁磁层磁矩彼此反平行排列. 若施加外磁场可以克服层间反铁磁耦合, 使相邻铁磁层的磁矩平行排列, 同时电阻率有很大下降, 导致了巨磁电阻 (GMR) 现象的发现. 此后不久 Parkin 等^[3]发现了在铁磁层 (FM) 与非磁性层 (NM) 交替生长的多层膜中, 当改变非磁性层厚度时, 层间交换耦合存在长程振荡效应. 系统地研究了以 3d 金属 Fe, Co, Ni 及其合金作为 FM 层的 FM/NM/FM 结构 (其中作为 NM 层的金属有 3d, 4d, 5d 金属和贵金属), 这种经过 NM 层的交换耦合随 NM 层厚度的变化而振荡的现象被证明是普遍的^[4,5].

在巨磁电阻研究过程中, 反铁磁层 (AFM) 铁磁层 (FM) 双层膜间的交换耦合作用是一个非常重要的研究课题^[6,7]. 对照上面所述在 FM/NM/FM 系统中

相邻 FM 层磁矩间的交换耦合随 NM 层厚度变化的研究, 最近也研究了在反铁磁层 (AFM) 非磁层 (NM) 铁磁层 (FM) 三层膜结构中 AFM 层与 FM 层之间的交换耦合. 反铁磁材料大致有两类, 一类为氧化物材料, 另一类为锰系合金. Gokemeijer 等^[8]选用氧化物材料 CoO 作反铁磁层, FM 层 NiFe 和 AFM 层 CoO 被非磁性层 Cu, Ag, Au 分开. 这种经过 NM 分隔层的 AFM 与 FM 之间的交换耦合 (也称为交换偏置) 被认为是一种长程作用. Mewes 等^[9]则选用 Mn 合金作为反铁磁材料, 报道了在 NiFe/Cu/FeMn 和 NiFe/Cr/FeMn 三层膜中随 NM 层厚度变化交换偏置场存在着振荡现象. 此外, Thomas 等^[10]在 IrMn/NM/CoFe 中发现衰减长度 L 很小, 他们推测这是由于 NM 层材料中的针孔效应造成的. 到目前为止, 只研究了几种 AFM/NM/FM 材料, AFM/FM 间的交换耦合是长程作用还是短程作用以及是否存在着振荡现象是目前需要研究的问题. 为了更广泛地研究 AFM/NM/FM 系统中交换耦合的本质, 我们研究了 Ta/ $\text{NiFe}_1/\text{FeMn}/\text{Bi}/\text{NiFe}_2/\text{Ta}$ 多层膜. 我们将 Bi 沉积在 FeMn/ NiFe_2 界面而不是 $\text{NiFe}_1/\text{FeMn}$ 界面, 一方面是由于 FeMn 层必需沉积在 fcc 相的种子层才能形成

* 国家自然科学基金重大项目 (批准号: 19890310) 资助的课题.

反铁磁的 γ 相(在 $\text{NiFe}_1/\text{FeMn}$ 界面沉积少量的分隔层 Bi 会破坏 $\gamma\text{-FeMn}$ 的形成);另一方面, $\text{NiFe}_1/\text{FeMn}$ 界面沉积非磁性层会破坏的 FeMn 反铁磁畴的形成.为了避免上述两种不利因素,我们将 Bi 沉积在 $\text{FeMn}/\text{NiFe}_{\text{II}}$ 界面.

2. 实验方法

采用直流(DC)磁控溅射方法制备样品.在本文中,我们在 Ta 上沉积了 11nm 的 NiFe 以诱发 γ 相的 FeMn .在相同条件下在经过严格清洗的 $\text{Si}(100)$ 基片上依次沉积各层薄膜, $\text{Ta}(8\text{nm})/\text{NiFe}_1(11\text{nm})/\text{FeMn}(16\text{nm})/\text{Bi}(x)/\text{NiFe}_{\text{II}}(8\text{nm})/\text{Ta}(6\text{nm})$.其中 x 为 Bi 的溅射厚度.薄膜制备室本底真空优于 2×10^{-5} Pa.溅射中 Ar 气压为 0.5 Pa.各种材料(Ta, NiFe , FeMn)的溅射速率大约为 $0.11\text{nm} \cdot \text{s}^{-1}$, Bi 的溅射速率大约为 $0.04\text{nm} \cdot \text{s}^{-1}$.膜厚度通过溅射时间控制.在溅射过程中,基片两边加有平行于膜面的磁场约 $20\text{kA} \cdot \text{m}^{-1}$,以产生一个平行于外场的易磁化方向.基片水冷.

用 x 射线衍射(XRD)研究薄膜的织构;用振动样品磁强计(VSM)测量磁滞回线以确定交换偏置场和矫顽力的大小;用 x 射线光电子能谱(XPS)研究原子浓度分布.

3. 实验结果与讨论

我们系统地研究了 $\text{Ta}(8\text{nm})/\text{NiFe}_1(11\text{nm})/\text{FeMn}(16\text{nm})/\text{Bi}/\text{NiFe}_{\text{II}}(8\text{nm})/\text{Ta}(6\text{nm})$ 薄膜的磁性.用 VSM 分别测试沉积了不同厚度 Bi 的薄膜的磁滞回线,由磁滞回线可得到交换偏置场.不仅 FeMn 与 NiFe_{II} 能产生交换耦合作用, NiFe_1 层与邻近的 FeMn 层也会产生交换耦合作用.底部 NiFe_1 层的厚度为 11 nm,顶部 NiFe_{II} 层的厚度为 8 nm, NiFe_1 层的磁化强度约为顶部 NiFe_{II} 层的 1.37 倍. H_{ex1} 和 H_{ex2} 被分别定义为 $\text{NiFe}_1/\text{FeMn}$ 和 $\text{FeMn}/\text{NiFe}_{\text{II}}$ 的交换偏置场,没有沉积 Bi 时的 H_{ex1} 和 H_{ex2} 分别为 6.925 和 $9.162\text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$,因此两者的交换偏置场可以被分开.图 1 为交换偏置场 H_{ex} 随分隔层 Bi 沉积的变化关系曲线.从图 1 中可以看出,随着 Bi 厚度的增加 H_{ex1} 交换偏置场的大小在误差范围内基本没变,保持在 $10.348\text{—}11.144\text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ 之间.交换偏置场 H_{ex2}

随着 Bi 厚度的增加急剧下降并趋于平滑.当插层 Bi 的厚度 $d_{\text{Bi}} = 0.2\text{ nm}$ 时,交换偏置场 $H_{\text{ex2}}/H_{\text{ex0}} = 51.8\%$,其中 H_{ex0} 为 $\text{FeMn}/\text{NiFe}_{\text{II}}$ ($d_{\text{Bi}} = 0\text{ nm}$)双层膜的交换偏置 $6.925\text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$;当 $d_{\text{Bi}} = 0.4\text{ nm}$ 时,交换偏置场 $H_{\text{ex2}}/H_{\text{ex0}} = 19.5\%$;当 $d_{\text{Bi}} = 0.6\text{ nm}$ 时,交换偏置场下降为 $0.876\text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$,且随着 Bi 厚度的增加交换偏置场基本不变.这个结果表明被非磁性层分隔的 $\text{FeMn}/\text{NiFe}_{\text{II}}$ 间的交换耦合是一种短程作用.

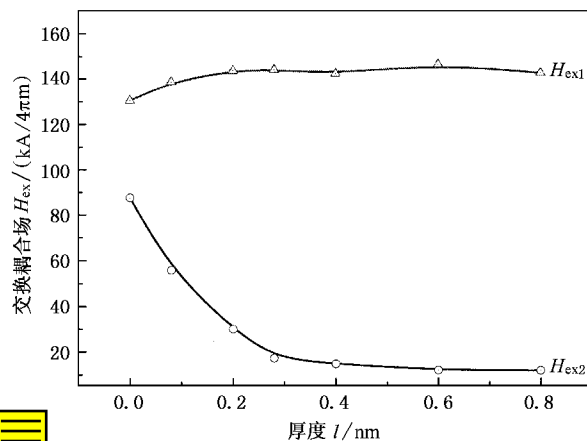


图 1 交换偏置场 H_{ex} 随分隔层 Bi 厚度 l 的变化关系

一般认为,为获得较大的交换偏置场,要求 FeMn 有好的 γ 相(111)织构.在不同的缓冲层上沉积 NiFe 膜时具有不同的 $\text{NiFe}(111)$ 织构分布^[11,12].使用缓冲层可获得好的(111)取向 NiFe 膜,我们以 Ta 作为缓冲层.另一方面, $\text{FeMn}(111)$ 面的原子排列和 $\text{NiFe}(111)$ 面的原子排列非常匹配,当 FeMn 沉积在良好(111)取向的 NiFe 膜上时能形成很强的 γ 相 $\text{FeMn}(111)$ 衍射峰.

在 $\text{FeMn}/\text{NiFe}_{\text{II}}$ 界面沉积大量的 Bi,交换偏置场也没下降为 0.为了解释其原因我们分析了 Bi 在 NiFe 中的分布.利用 XPS 测量表面不同深度的元素信息.在 Si 衬底上沉积 $\text{Ta}(10\text{ nm})/\text{NiFe}_1(11\text{ nm})/\text{FeMn}(16\text{ nm})/\text{Bi}(x\text{ nm})/\text{NiFe}_{\text{II}}(7\text{ nm})$,其中 Bi 的厚度分别为 0.2, 0.6, 2nm.样品沉积后被立即送入 MICROLAB MK II 型 x 射线光电子能谱仪中.对以上样品进行变角 XPS 分析,以测量不同深度的信息. XPS 的探测深度 d 与光电子出射角、光电子的非弹性散射平均自由程 λ 的关系为: $d = 3\lambda \sin\alpha$ ^[13]. λ 值可由 Tanuma 等^[14]编的 31 种物质的光电子非弹性散射平均自由程获得.出射角从 15° 变到 90° ,对应探测深度为 0.6—2.3 nm^[15,16].显然,即使 $\alpha = 90^\circ$ 也只能

得到表面 2.3 nm 附近的 XPS 信息,并不会获得 FeMn/NiFe_{II} 界面处 Bi 有关的信息. 图 2 为插 Bi 0.8 nm 时 Bi 的高分辨 XPS 谱及拟合图谱.(图 2 中峰 1 的结合能 157.00eV 对应单质 Bi;峰 2 结合能对应 158.72eV 对应 + 3 价的 Bi.峰 3 和峰 4 分别为单质 Bi 和 + 3 价 Bi 的 4f_{5/2} 峰).图 3 为各种插 Bi 厚度时 Bi 和 Ni 的原子个数比 $n_{\text{Bi}}/n_{\text{Ni}}$ 与光电子出射角的关系,其中 a, b, c 分别对应 0.2 0.6 0.8 nm. XPS 结果表明,随光电子出射角的增加,即随样品表面的探测深度的加深,在样品表面得到的 Bi4f 峰强度逐渐减小.随光电子出射角的增加,Bi 和 Ni 的原子个数比 $n_{\text{Bi}}/n_{\text{Ni}}$ 逐渐减小(见图 3).这说明在 FeMn/NiFe 界面的 Bi 偏聚到 NiFe 的表面.随插层 Bi 厚度的增加,在表面得到的 Bi4f 峰强度逐渐增大.当插 Bi 为 0.2 nm 时,从 Bi4f 的电子结合能可知 Bi 原子全部被氧化为 Bi₂O₃,随插层 Bi 厚度的增加,逐渐出现单质 Bi.以上结果说明沉积在 FeMn/NiFe_{II} 界面的 Bi 并没有完全停留在界面处,至少有一部分偏聚到 NiFe 层表面,并且插入的 Bi 越多,在 NiFe 层上面偏聚的就越多.

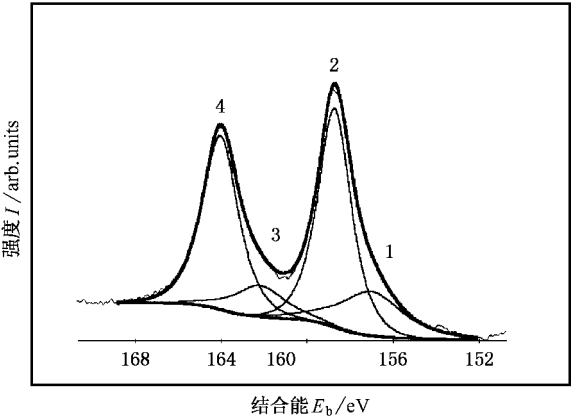


图 2 分隔层 Bi 的厚度为 0.8 nm 时 Bi 的高分辨 XPS 谱及拟合图谱

Egelhoff 等^[17,18]在研究以 NiO 为钉扎层的自旋阀多层膜时,发现 Pb, In, Au 等金属可用做表面活性剂.这些金属具有很强的表面扩散能力,而且表面自由能较低.当在它们上面沉积表面能较高的元素时,它们能“漂浮”到上层元素表面.这样可降低系统总的表面能和界面能.根据 Mejey 等^[19]的计算,298K 时 Bi 的比表面自由焓为 0.3182 J·m⁻²,明显低于 Ni 和 Fe 的比表面自由焓分别为 2.364 和 2.939 J·m⁻².Bi⁺上浮”到 NiFe 表面可以降低体系的表面能.

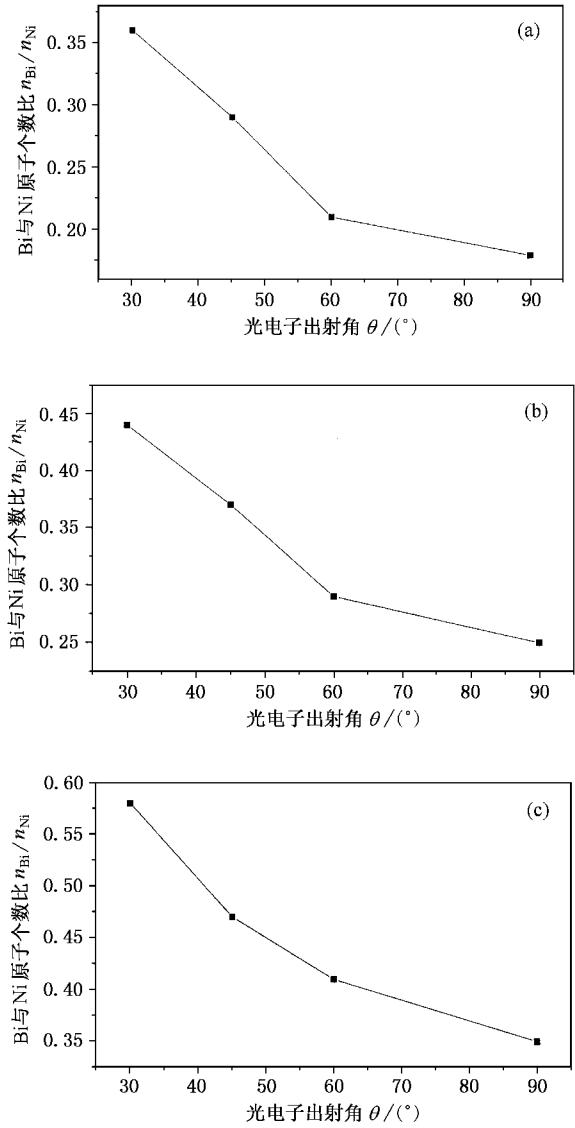


图 3 分隔层 Bi 厚度不同时 Bi 和 Ni 的原子个数比 $n_{\text{Bi}}/n_{\text{Ni}}$ 与光电子出射角的关系 (a)(b)(c) 分别对应 0.2 0.6 0.8nm

4. 结 论

在 NiFe_I/FeMn/Bi/NiFe_{II} 系统中 FeMn/NiFe_{II} 的交换偏置场 H_{ex2} 随分隔层 Bi 的沉积厚度增加而下降,当厚度超过 0.6 nm 时交换偏置场下降到 0.876 kA·m⁻¹. XPS 分析表明,沉积在 FeMn/NiFe_{II} 界面的 Bi 并不是全部停留在界面处,至少有部分 Bi 偏聚到 NiFe_{II} 表面.我们认为 Mn 系 AFM 与 FM 合金之间的交换耦合是短程作用.

- [1] Grunberg P , Schreiber R , Pang Y *et al* 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 2442
- [2] Baich M N , Broto J M , Fert A *et al* 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [3] Parkin S S P , More N and Roche K P 1990 *Phys. Rev. Lett.* **60** 2304
- [4] Petroff F , Barthelemy A , Mosca D H *et al* 1991 *Phys. Rev. B* **44** 5353
- [5] Yan M L , Lai W Y and Wang Y Z 1995 *J. Appl. Phys.* **74** 1816
- Yu C T , Lai W Y , Yan M L *et al* 1995 *Phys. Rev. B* **52** 1123
- [6] Wang S F , Wang Z C and Zhou Z C 1998 *Chin. Phys. Lett.* **7** 529
- [7] Zhao T Y , Dan Z S , Shen B G and Zhao J G 1998 *Chin. Phys. Lett.* **7** 613
- [8] Gokemeijer N J , Ambrose T and Chien C L 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 4270
- [9] Mewes T , Roos B F P , Demokritov S O and Hillebrands B 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 5064
- [10] Thomas L , Kellock A J and Parkin S S P 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 5061
- [11] Tang C and Lee K 1982 *J. Appl. Phys.* **53** 2605
- [12] Hwang C , Geiss R H and Howard J K 1988 *J. Appl. Phys.* **64** 6115
- [13] Atanassova E , Dimitrova T and Koprijanarova 1995 *J. Appl. Surf. Sci.* **84** 193
- [14] Tanuma S , Powell C J and Penn D R 1998 *Surf. Anal.* **11** 577
- [15] Jiang H W , Li M H , Yu G H , Zhu F W and Zheng Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1366 (in Chinese) [姜宏伟、李明华、于广华、朱逢吾、郑 鹞 2002 物理学报 **51** 1366]
- [16] 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]
- [17] Egelhoff W F , Chen P J , Powell C J , Stikes M D , McMichael R D , Lin C L , Sivertsen J M , Judy J H , Takano K and Berkowitz A E 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 5183
- [18] Chopra H D , Repetski E J , Brown H J , Chen P J , Swartzendruber L J and Egelhoff W F 2000 *Acta. Mater.* **48** 3501
- [19] Mejevy L Z and Giber J 1982 *Jap. J. Appl. Phys.* **21** 156

Short-range exchange coupling in the AFM/FM bilayers with a spacer layer^{*}

Li Ming-Hua¹⁾²⁾ Yu Guang-Hua²⁾ He Ke¹⁾ Zhu Feng-Wu²⁾ Lai Wu-Yan¹⁾

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

²⁾Department of Material Physics , Beijing University of Science and Technology , Beijing 100083 , China)

(Received 26 February 2002 ; revised manuscript received 20 May 2002)

Abstract

The NiFe_I/FeMn/Bi/NiFe_{II} films were prepared by magnetron sputtering. The Bi thickness dependences of H_{ex} between antiferromagnetic FeMn film and both ferromagnetic NiFe_I film and NiFe_{II} film were studied systematically. With the increase of the thickness of the Bi film , the exchange bias field H_{exI} between the FeMn and NiFe_I is almost invariable ; however H_{ex2} between FeMn and NiFe_{II} decreases dramatically. H_{ex2} decreases from 6.925 to 0.876 kA·m⁻¹ while Bi film thickness is larger than 0.6 nm. Bi atoms do not stay fully at the interface between FeMn and NiFe_{II} but at least partially segregate onto the NiFe_{II} surface.

Keywords : exchange bias field , spacer layer , texture , XPS

PACC : 7550 , 7170G

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