

Co-Ni/FeMn 双层膜中磁化强度对交换偏置的影响*

周仕明¹⁾ 李合印²⁾ 宋金涛³⁾

¹⁾ (复旦大学应用表面国家重点实验室和复旦大学物理系,上海 200433)

²⁾ (复旦大学光科学与工程系,上海 200433)

³⁾ (复旦大学理科图书馆,上海 200433)

(2001 年 3 月 5 日收到,2001 年 10 月 4 日收到修改稿)

固定 Co-Ni/FeMn 双层膜中反铁磁层的厚度,改变 Co-Ni 铁磁层的成分来调节磁化强度,从而研究铁磁层的饱和磁化强度对 Co-Ni/FeMn 双层膜中交换偏置的影响.研究表明,Co-Ni/FeMn 界面的交换耦合能 U 不是一个常量,而是随 $(M_{\text{FM}})^2$ 的增加而线性增加.其原因是铁磁层磁矩通过界面相互作用在反铁磁层中形成的局域交换磁场,在磁场冷却时影响反铁磁层的自旋结构或磁畴结构及双层膜中的交换偏置.

关键词:交换偏置,磁化强度

PACC: 7570, 7560E, 7530G, 7530E

1. 引言

交换偏置不但具有丰富的物理内涵,而且在自旋阀巨磁电阻器件及磁记录领域具有重要的应用价值,因而引起了人们的广泛关注^[1].所谓交换偏置,是指铁磁(FM)/反铁磁(AFM)双层膜系统经过磁场冷却以后,其磁滞回线偏离了原点,同时伴有明显的矫顽力 H_c 的增强,偏移量的大小称交换偏置场 H_e .这一现象早在二十世纪 50 年代首先在部分氧化的 Co 颗粒中观察到^[2].已有的研究表明,FM/AFM 薄膜的交换偏置特性取决于薄膜的组成材料以及它们的厚度和微结构、温度、样品的制备工艺条件^[3-6].FM/AFM 薄膜中单位面积的自由能密度可以用下式表示:

$$E = U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}}) - t_{\text{FM}} M_{\text{FM}} \cdot H, \quad (1)$$

式中忽略 FM 层及 AFM 层内部的相互作用.(1)式等号右端第二项为铁磁层的 Zeeman 能, M_{FM} 和 t_{FM} 分别为 FM 层的磁化强度和厚度,第一项为 FM/AFM 界面上 FM 层自旋 S_{FM} 与 AFM 层自旋 S_{AFM} 的相互作用能,交换偏置场一般可表示为

$$H_e = |U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}})| / t_{\text{FM}} M_{\text{FM}}. \quad (2)$$

很显然,对于一定的 FM 和 AFM 界面,交换偏置场

H_e 正比于 t_{FM}^{-1} ,这在很多理论和实验研究中都得到了很好的证明^[3].交换能 $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}})$ 是一个非常关键的量,对于给定的 FM/AFM 双层膜,如果知道铁磁层的磁化强度,可以通过 $H_e - t_{\text{FM}}^{-1}$ 曲线的斜率来确定.

对于交换偏置现象,Meiklejohn 和 Bean^[2] 早期提出了如下的理论模型,假定交换偏置是纯粹的界面交换作用所致,且 FM 层的自旋反向时 AFM 层的自旋结构基本不变.根据海森堡相互作用,对于立方结构的 FM/AFM 双层膜则有 $H_e = 2J_{\text{ex}} S_{\text{FM}} \cdot S_{\text{AFM}} / a^2 t_{\text{FM}} M_{\text{FM}}$,其中 J_{ex} 为 FM 与 AFM 界面自旋 S_{FM} 与 S_{AFM} 之间的等效交换作用常量.且由于 $M_{\text{FM}} \propto NgS_{\text{FM}} \mu_B$,因此有 $H_e = CJ_{\text{ex}} / t_{\text{FM}}$,如果等效交换作用常量 J_{ex} 不变,则 H_e 应当与 M_{FM} 无关. Mauri 等^[7] 提出了 AFM 层内形成畴壁模型,当 AFM 层的厚度比 FM 层的大时,在 FM 层磁化反向过程中,在界面处 AFM 层内自旋趋向螺旋结构排列,即形成畴壁,其中交换耦合能的最大值下降为 AFM 层的畴壁能 $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}}) = 2(AK)^2$,其中 A 为 AFM 层的交换积分常量, K 为各向异性常量.在此模型中界面交换能应与 M_{FM} 无关.上述的模型中都没有考虑磁场冷却过程中 AFM 层内基态自旋结构或磁畴结构的改变.

* 国家自然科学基金(批准号:1017404)上海市应用物理研究中心基金(批准号:99JC14003)资助的课题.

交换偏置场的产生通常需要一个磁场冷却过程(把样品放在外磁场中,并将其温度从高于 AFM 层的奈尔温度 T_N 到低于 T_N 的某一温度),磁场冷却的目的是使 FM 层的磁矩平行排列,通过 FM 层与 AFM 层自旋之间的相互作用,在 AFM 中诱导单向各向异性.显然单向各向异性的方向取决于 FM 层的磁化方向,而不是冷却场的方向^[8,9].除了 Fe/FeF₂ 薄膜以外^[10],常规的磁场冷却过程中(冷却场远大于饱和场),交换场的大小与磁场冷却时外磁场的大小无关.例如,Py/CoO 薄膜中,外磁场从 200 变化到 50000kA/m,交换偏置场的大小并没有太大的变化^[11].这是由于 Py 铁磁层的磁化强度在这一外场区域内的变化很小.通过界面的相互作用,FM 层的磁矩在 AFM 内产生局域交换磁场,该局域磁场在磁场冷却过程中影响了 AFM 自旋结构,从而对交换偏置产生影响.事实上,最近的一些实验表明,在 FM/AFM 双层膜中反铁磁表面的自旋排列或磁畴受到相邻铁磁层磁性的影响^[12,13].因此研究磁化强度对交换能 $|U(S_{FM}, S_{AFM})|$ 的影响将有助于更加深刻了解交换偏置的机理.由于 $|U(S_{FM}, S_{AFM})|$ 中包含 FM/AFM 界面相互作用,因此选择合适 FM 层材料与 AFM 层材料是非常重要的.例如在普通的 FM/CoO (FM = Fe, Co, Ni 等)双层膜中,已经发现 FM 层的磁化强度对交换偏置的影响^[14].我们用磁控溅射设备制备了各种劈形-FM/均匀-Fe_{0.50}Mn_{0.50}(15.0 nm)双层膜,其中 FM = Ni, permalloy, Ni₅₀Fe₅₀, Co, Fe. FeMn 靶为商用靶,且在沉积过程中加了一个外磁场来诱导单轴各向异性.在 FM/FeMn 双层膜中也发现交换耦合能随 FM 磁化强度而变化,如图 1 所示.但是铁磁层 (bcc Fe, fcc Ni, fcc permalloy) 和反铁磁层 (CoO, NiO, FeMn) 具有不同的晶格结构,很难直接严格地说明问题.

在本文中,固定 FM/AF 双层膜中 AFM 层厚度,改变 FM 层的成分即磁化强度来研究 $|U(S_{FM}, S_{AFM})|$ 的特性.由于 $|U(S_{FM}, S_{AFM})|$ 中包含 FM/AFM 界面相互作用,因此选择合适 FM 层材料与 AFM 层材料是非常重要的.它们必须具有相同的晶格结构及晶格取向,且界面应具有较好的晶格结构匹配.已有的一些工作表明,在 Co 的含量小于 70 at% 时,Co-Ni 合金呈现 fcc 结构,其晶格常量随成分近似线性地变化,从 Co_{0.06}Ni_{0.94} 的 0.3524nm 到 Co_{0.64}Ni_{0.36} 的 0.3536nm,其相对变化很小,约为 0.34%^[15].由此可见,fcc 相的 Co-Ni 合金与反铁磁材料 Fe_{0.50}Mn_{0.50}

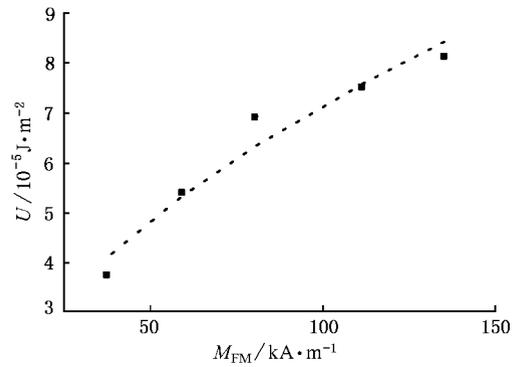


图 1 磁控溅射法制备的 FM/FeMn 双层膜中 U 随 M_{FM} 而变化.不同的磁化强度分别对应于 Ni, permalloy, Ni₅₀Fe₅₀, Co, Fe.其中交换偏置能是通过 $H_e - t_{FM}^{-1}$ 曲线的斜率来确定的.■为实验结果,虚线为 $U \propto \sqrt{M}$ 的拟合结果

(0.367nm)的晶格常量十分接近.fcc 相的 Co-Ni 合金呈现很强的铁磁性,其平均原子磁矩也随着合金成分近似地线性变化^[16],如图 2 所示.由于 Co-Ni/FeMn 薄膜中,Co-Ni 合金与 FeMn 都有相同的 fcc 结构和(111)晶向,而且可以很方便地通过改变 Co-Ni 成分来调节 FM 层磁化强度,因此选择 Co-Ni/FeMn 来研究 $|U(S_{FM}, S_{AFM})|$ 特性是非常理想的材料^[17].

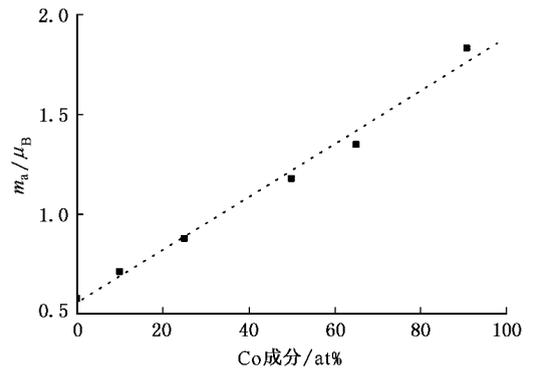


图 2 fcc 相 $Co_{1-x}Ni_x$ 合金的平均原子磁矩随合金成分的变化^[15] 虚线为线性拟合结果

2. 实 验

形状为 10cm × 0.5cm 的样品 $Co_{1-x}Ni_x/Fe_{0.50}Mn_{0.50}$ 是在一台计算机控制的多功能磁控溅射设备上完成的,本底真空优于 7×10^{-5} Pa,溅射时 Ar 压为 0.7Pa.在 Si 衬底与 FeMn 层之间溅射一层 Cu (30nm)缓冲层来诱导反铁磁层 FeMn 的(111)晶向,通过 Co 和 Ni 靶共溅射办法生长 $Co_{1-x}Ni_x$ 合金层,

Co 与 Ni 的含量沿样品长边方向有一个梯度分布, 在 10cm 长的范围内其成分从 $\text{Co}_{0.64}\text{Ni}_{0.36}$ 线性变化到 $\text{Co}_{0.06}\text{Ni}_{0.94}$. 最后在样品最上面沉积一层 30nm 厚度 Cu 层以防止氧化, 上述各种材料的溅射速率介于 $0.1\text{--}0.3\text{nm}\cdot\text{s}^{-1}$ 之间. 对于 Co-Ni/FeMn 系列, FeMn 靶通过实验室采用高温退火烧结的方法自制的. 分别用扫描电子显微镜、振动样品磁强计 (VSM) 及 α -台阶仪来确定 Co-Ni 单层厚膜的成分、磁化强度及厚度分布, 然后确定 Co-Ni/FeMn 双层膜中 Co-Ni 层的相应分布.

3. 结果与讨论

由于需要通过改变 Co-Ni 合金成分来调节铁磁层的磁化强度 M_{FM} , 我们适当调整 Ni 靶和 Co 靶的溅射速率, 以达到铁磁层的 M_{FM} 与样品位置呈线性关系目的. 图 3(a) 表明测量的磁化强度 M_{FM} 与成分变化的梯度方向位置 z 的关系, 数据的拟合结果表明磁化强度与 z 的关系可以用 $M_{\text{FM}} = (45 + az + bz^2)$ kA/m 来描述, 其中 $a = 6.0\text{cm}^{-1}$, $b = -0.17\text{cm}^{-2}$. 同时我们也注意到, 随着 Co-Ni 成分变化的同时铁磁层的厚度也发生了变化, 图 3(b) 表示铁磁层厚度 t_{FM} 与样品梯度方向位置 z 的关系. 从图 3(b) 上可以看出, 在含 Ni 较多的一端 $\text{Co}_{0.06}\text{Ni}_{0.94}$ ($z \approx 0$) 的厚度 t_{FM} 比含 Co 较多的一端 $\text{Co}_{0.64}\text{Ni}_{0.36}$ ($z \approx 10\text{cm}$) 多 25%. 沿梯度方向样品被分成许多小片 (0.3cm 长), 每个小样品的厚度和成分近似认为是常数 (分别小于 3%), 所有的小样品均被放在外场中温度从 420K

降到室温进行磁场冷却以诱导单向各向异性, 外场的大小为 $398\text{kA}\cdot\text{m}^{-1}$, 方向沿膜面且垂直于梯度方向. 用 VSM 测量样品在室温下的磁滞回线.

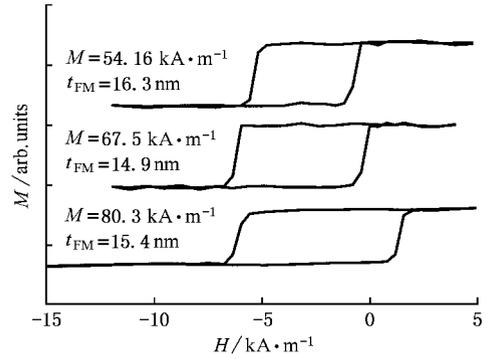


图 4 几个典型 Co-Ni/FeMn 双层膜样品的磁滞回线 分别给出相应的铁磁层的磁化强度和厚度

图 4 表示不同 M_{FM} 情况下的 Co-Ni/FeMn 双层膜的磁滞回线, 从图 4 上可以看出, 交换偏置场 H_e 和矫顽力 H_c 都随铁磁层磁化强度 M_{FM} 的变化而系统地变化. 在 Meiklejohn 和 Bean 提出的模型中, 我们有 $H_e = CJ_{\text{ex}}/t_{\text{FM}}^{[2]}$, 如果 AF 层的自旋结构不变的话, $H_e t_{\text{FM}}$ 的积应当为一与 M_{FM} 无关的常量. 然而图 5 (a) 的实验结果表明, $H_e t_{\text{FM}}$ 随 M_{FM} 增大而减少.

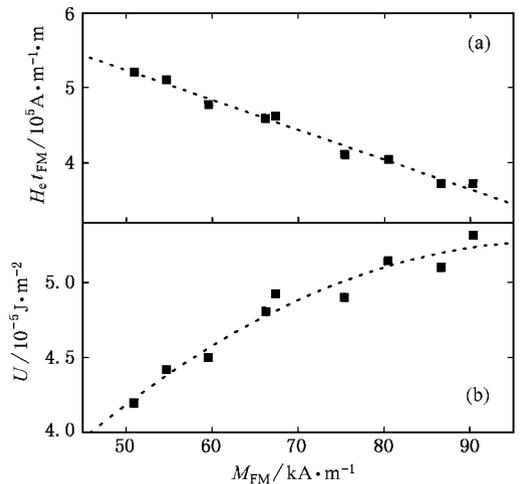


图 5 Co-Ni/FeMn 双层膜中 $H_e t_{\text{FM}}$ (a) 和 U (b) 随 M_{FM} 而变化 ■ 为实验结果 拟合结果耦合能 $U \propto \sqrt{M_{\text{FM}}}$

许多的微磁学计算表明, AF 在界面附近的自旋结构随 FM 层内磁化反转而变化, 形成平行于界面的畴壁. Mauri 等提出的模型中, $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}}) = (\chi AK)^2$. 在此模型中 $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}})$ 应与 M_{FM} 无

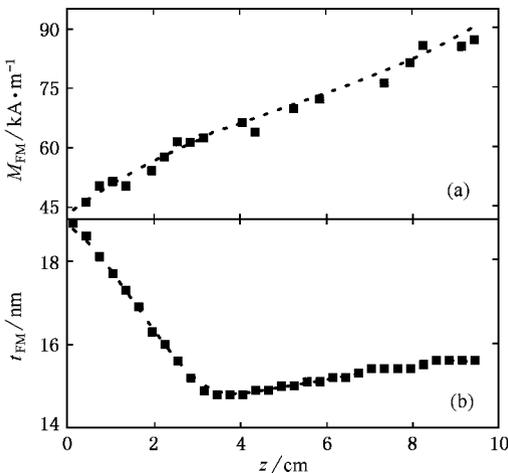


图 3 Co-Ni(t_{FM})FeMn 双层膜中铁磁层的磁化强度 (a) 及膜厚 (b) 随沿 z 方向的移动挡板方向位置的变化而变化

关^[6]. 然而图 5(b)表明, 当 M_{FM} 从 600 改变到 1200 kAm^{-1} 时 $\Delta\sigma$ 增加了 30%. 近来, 在 CoO-FM 双层膜系列中也发现了交换耦合能与 M_{FM} 有关的现象^[14]. 然而, 上述理论模型都忽略了磁场冷却过程. 事实上, 由于 FM 层的局域交换场严重影响 AF 自旋或磁畴结构^[11, 12], 因此 AF 层内自旋或磁畴结构和交换耦合能都将受磁化强度 M_{FM} 的影响. 图 5(b)所示交换耦合能 $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}}) = \alpha(M_{\text{FM}})^2$. 这就清楚地表明了对于给定的 AFM 材料, FM/AFM 双层膜的界面耦合能与 FM 层的磁化强度 M_{FM} 有关. 由于在 FeMn 构成的双层膜中室温 H_e 和 H_c 都与 t_{FM}^{-1} 存在线性关系^[18], 可以推算出 $t_{\text{FM}} = 15 \text{ nm}$ 时不同磁化强度样品所对应的交换偏置场 H_e 和矫顽力 H_c . 结果如图 5 所示. 从图 5 中看出, H_e 随 M_{FM} 的增加而单调递减, 与图 5 交换耦合能 U 的变化趋势相反.

在 Co-Ni/FeMn 双层膜中, 虽然当冷却时铁磁层的磁化强度 $M_{\text{cool}} (= M_{\text{FM}})$ 随 Co-Ni 层中 Co 含量增加而随之增加时, 交换能按 $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}}) = \alpha\sqrt{M_{\text{FM}}}$ 关系增加, 但是由于方程 $H_e t_{\text{FM}} = U/M_{\text{FM}}$ 中磁化强度 M_{FM} 也随着含量而线性增加, 所以有 $H_e t_{\text{FM}} = \alpha/\sqrt{M_{\text{FM}}}$. 因此在 Co-Ni/FeMn 双层膜中随着磁化强度的增加, 界面耦合能增加而偏置场却减少. Co-Ni 合金层晶格常量随其成分的变化很小, 因此可以认为交换偏置的变化是由磁场冷却时铁磁层内磁化强度的变化引起的. 对于 Co-Ni/FeMn 双层膜, 磁场冷却时铁磁层处于单畴状态, 其磁化强度对交换偏置的

影响是因为通过界面相互作用, 即铁磁层产生的局域交换场影响着反铁磁层内自旋或磁畴结构. 一些理论模型也提出了假设, 认为反铁磁层内的自旋偏离了原来的易轴方向^[19]. Ohldag 等^[11, 12]在 Co/NiO 及 FeCo/NiO 系统中从实验上发现铁磁层改变了 NiO 表面的自旋结构或磁畴结构, 因此我们的实验结果进一步证实了上述的理论预言或实验结果. 图 5 及图 1 的实验结果进一步说明以 FeMn 为基的双层膜中界面交换能近似与 $\sqrt{M_{\text{FM}}}$ 成正比关系. 由于图 1 中双层膜采用了商用靶, 交换能明显比 Co-Ni/FeMn 体系中的要大.

4. 结 论

通过改变 Co-Ni 铁磁层的成分, 我们系统地研究了铁磁层的饱和磁化强度对 Co-Ni/FeMn 双层膜中交换偏置的影响, 其中 FeMn 反铁磁层厚度固定为 15.0 nm 不变. 实验结果表明, 界面耦合能 $U(S_{\text{FM}}, S_{\text{AFM}})$ 并不是常量, 而正比于 $\sqrt{M_{\text{FM}}}$. 这是因为 Co-Ni 铁磁层中磁矩在反铁磁层内形成的局域交换场, 在磁场冷却时影响反铁磁层自旋结构, 其作用随着 FM 层磁化强度的增加而增加. 另外, 还研究了铁磁层的磁化状态对交换偏置的影响.

该工作的实验部分得到美国霍普金斯大学材料科学和工程中心的支持. 在撰写过程中得到翟宏如教授的有益帮助. 特此向他们致谢.

- [1] Dieny B, Speriou V S, Parkin S S P, Gurney B A, Wilhoit D R and Mauri D 1991 *Phys. Rev. B* **43** 1297
Kools J C S 1996 *IEEE Trans. Magn.* **32** 3165
- [2] Meiklejohn W H and Bean C P 1956 *Phys. Rev.* **102** 1413
- [3] Nogues J and Schuller I K 1999 *J. Magn. Mater.* **192** 203
- [4] Tang Y J *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 997 (in Chinese) 唐俊俊等 2000 物理学报 **49** 997]
- [5] Jungblut R, Coehorn R, Johnson M T, Sauer C, van der Zaag P J, Ball A R, Rijks T G S M, de Stegge J and Reinders A 1995 *J. Magn. Mater.* **148** 300
- [6] Nakatani R, Hoshino K, Noguchi S and Sugita Y 1994 *Jpn. J. Appl. Phys.* **33** 133
- [7] Mauri D, Siegmann H C, Bagus P S and Kay E 1987 *J. Appl. Phys.* **62** 3047
- [8] Tong H C, Qian C, Miloslavsky L, Funada S, Shi X, Liu F and Dey S 2000 *J. Magn. Mater.* **209** 56

- [9] Yang F Y and Chien C L 2001 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2597
- [10] Nogues J, Morellon L, Leighton C, Ibarra M R and Schuller I K 2000 *Phys. Rev. B* **61** R6455
- [11] Ambrose T and Chien C L 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 7222
- [12] Ohldag H, Scholl A, Nolting F, Anders S, Hillebrecht F U and Stohr J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2878
- [13] Zhu W, Seve L, Sears R, Sinkovic B and Parkin S S P 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5389
- [14] Parker F T, Takano K and Berkowitz A E 2000 *Phys. Rev. B* **61** R866
- [15] Schumann F O, Wu S Z, Mankey G J, Willis R F 1997 *Phys. Rev. B* **56** 2668
- [16] 1991 *Magnetic Properties of Metals*, ed H P J Wijn (New York: Springer-Verlag) p32
- [17] Zhou S M and Chien C L 2001 *Phys. Rev. B* **63** 1066404

- [18] Lin T , Tsang C , Rontana R E and Howard J K 1995 *IEEE Trans . Magn .* **31** 2585
- [19] Koon N C 1997 *Phys . Rev . Lett .* **78** 4865

Effect of magnetization on exchange biasing in Co-Ni/FeMn bilayers *

Zhou Shi-Ming¹⁾ Li He-Yin²⁾ Song Jin-Tao³⁾

¹⁾ (State Key Laboratory of Surface Physics Laboratory and Department of Physics , Fudan University , Shanghai 200433 , China)

²⁾ (Department of Optics Science and Engineering , Fudan University , Shanghai 200433 , China)

³⁾ (Library of Science , Fudan University , Shanghai 200433 , China)

(Received 5 March 2001 ; revised manuscript received 4 October 2001)

Abstract

In this paper , we have studied the effect of saturation magnetization of ferromagnetic layers on the exchange biasing in ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers. The magnetization is modified by varying the composition of Co-Ni layers in Co-Ni/FeMn (15.0nm) bilayers. The exchange coupling energy U is not constant but varies as $c (M_{\text{FM}})^{1/2}$. This is because the local magnetic field from the ferromagnetic layer dictates the spin structure of the antiferromagnetic layer during field cooling.

Keywords : exchange biasing , magnetization

PACC : 7570 , 7560E , 7530G , 7530E

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 1017404) and by the Shanghai Research Center for Applied Physics , China (Grant No. 99JC14003).