

Fe/Si 多层膜的层间耦合与界面扩散^{*}

倪 经^{1, B)} 蔡建旺¹⁾ 赵见高¹⁾ 颜世申²⁾ 梅良模²⁾ 朱世富³⁾

¹⁾中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室, 北京 100080)

²⁾山东大学物理与微电子学院, 济南 250100)

³⁾四川大学材料科学与工程系, 成都 610064)

(2003 年 12 月 19 日收到, 2004 年 4 月 6 日收到修改稿)

对以本征 Si 及重掺杂 p 型和 n 型 Si 作为中间层的 Fe/Si 多层膜的层间耦合进行研究, 并通过退火, 增大 Fe/Si 之间的扩散, 分析界面扩散对层间耦合的影响. 实验结果表明, 层状结构良好的制备态的多层膜, Fe/Si 之间也存在一定程度的扩散, 它是影响层间耦合的主要因素, 远远超过了半导体意义上的重掺杂, 使不同种类的 Si 作为中间层的层间耦合基本一致. 进一步还发现, 在一定范围内增大 Fe/Si 之间的扩散, 即使多层膜的层状结构已经有了相当的退化, Fe/Si 多层膜的反铁磁耦合强度基本保持不变.

关键词: Fe/Si 多层膜, 层间耦合, 界面扩散

PACC: 7550B

1. 引 言

上世纪 80 年代, Grunberg 等人在 Fe/Cr/Fe 三明治结构中发现反铁磁层间耦合^[1]及 Baibich 等人在 Fe/Cr 多层膜中发现巨磁电阻(GMR)效应开拓了磁学研究的新领域^[2, 3]. 此后, 研究磁性金属多层膜的层间耦合, 成为凝聚态物理中的热点之一. 人们很快观察到“磁性金属/非磁性金属”多层膜的层间耦合随非磁过渡金属厚度振荡变化对大多数非磁过渡金属元素差不多是一种普遍现象. 目前, 人们普遍认为, 层间耦合乃是铁磁层使与之接触的非磁金属的传导电子极化, 这些极化电子与另一铁磁层相互作用所致. 基于此, 所有理论模型最终都殊途同归^[4-8], 合理地解释了所有实验现象. 除了非磁金属中间层外, 半导体作为中间层是否也具有类似的现象, 自然而然引起人们的兴趣. 事实上, Toscano 等人^[9]在上世纪 90 年代初, 就研究了 Fe/Si/Fe 三明治结构的磁性, 并观察到 Fe 层之间的反铁磁耦合. 紧接着, Fullerton 等人^[10]在 Fe/Si 多层膜中也观察到类似的层间耦合现象. 可是, 对于 Fe/Si 多层膜层间耦合的理解却要困难得多. 至今, 主要有两种观点: 1) 中间层 Si 是窄能带半导体, 层间耦合由于半导体的载流子所致, 耦合强度与载流子浓度密切相关; 2)

Fe/Si 之间很容易发生化学反应, 形成合金或各类 FeSi 化合物, Fe/Si 多层膜的界面存在严重的相互扩散, 而 Fe/Si 扩散形成 CsCl 结构的金属性化合物, 此化合物引起层间耦合^[11]. 随着自旋电子学的兴起, Fe/Si 多层膜作为铁磁体与半导体相结合的典型, 自然依旧受到人们的关注^[12, 13].

本文研究了以重掺杂 p 型和 n 型及本征 Si 作为中间层的 Fe/Si 多层膜的层间耦合, 并通过退火增大 Fe/Si 间的扩散来检验其对层间耦合的影响. 研究表明, 对于 Fe/Si 多层膜的层间耦合, 界面扩散的影响占主导地位, 它甚至已经远远超过半导体通常意义上的掺杂, 并且还发现在一定范围内增大 Fe/Si 之间的扩散, Fe/Si 多层膜的反铁磁耦合强度基本保持不变.

2. 实 验

样品在 GP560B 型直流磁控溅射系统上生长. 此生长系统有 4 个靶位, 16 个基片位. 系统的本底真空优于 5.0×10^{-5} Pa, 膜的生长是在 0.5 Pa 的高纯 Ar 气下进行. 溅射靶采用高纯 Fe(99.9%)、高纯本征 Si(99.999%)、重掺杂 p 型和 n 型 Si(电阻率小于 $0.01 \Omega \text{cm}$) 及高纯 Ta(99.9%). 各靶溅射速率分别为: Fe 靶 0.087 nm/s, Si 靶 0.079 nm/s, Ta 靶 0.085 nm/s.

^{*} 国家重点基础研究专项基金资助的课题.

s. 基片采用 7059 康宁玻璃盖玻片. 所有 Fe/Si 多层膜生长在 5.0nm 的 Ta 缓冲层上,并用 3.0nm 的 Ta 层覆盖,以防止氧化. 具体结构为 :Ta(5.0nm) [Fe(3.0nm)Si(x nm)]₈/Ta(3.0nm),其中 x 表示 Si 层的厚度,18 表示 Fe/Si 单元重复数.

样品热处理在优于 2.0×10^{-4} Pa 的真空中进行. 退火温度分别为 150°C 和 260°C,保温时间为 30min. 样品结构通过 x 射线大角和小角衍射给出,所用仪器为 Rigaku 公司的 RINT 2000 SERIES x 射线衍射仪,x 射线源采用 Cu 靶 $K\alpha$ 线,扫描方式为步进,步长为 0.02° ,等待时间为 2s. 磁性测量采用美国 ADE 公司的 DMS MODEL 4 HF 振动样品磁强计 (VSM),其最大测量磁场为 2.13T.

3. 实验结果与讨论

测量了所有样品制备态室温下的磁滞回线,图 1 给出样品 Ta(5.0nm) [Fe(3.0nm)Si(x nm)]₈/Ta(3.0nm)的剩磁比 (M_r/M_s)和饱和场 (H_s)与 Si 层厚度的关系. 这里的 Si 是本征 Si,以下如无特别说明, Si 就指本征 Si.

从图 1 可以看出,反铁磁层间耦合在 0.6—

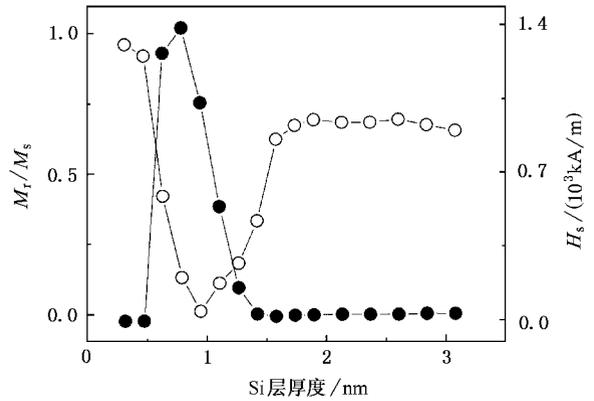


图 1 样品 Ta(5.0nm) [Fe(3.0nm)Si(x nm)]₈/Ta(3.0nm)的剩磁比 (M_r/M_s) (○) 和饱和场 (H_s) (●) 随 Si 层厚度 x 的变化曲线

1.5nm 之间出现,这时样品的剩磁比较小,而饱和场较大,当 Si 层厚度为 0.9nm 左右时,相邻 Fe 层的磁矩几乎完全反平行,剩磁比接近零,而饱和场达到极大值,说明反铁磁耦合最强,这与 Fullerton 等人^[10]的结果一致. 有意思的是,无论是重掺杂的 p 型 Si 还是重掺杂的 n 型 Si,其剩磁比和饱和场随 Si 层厚度的变化与本征 Si 的情形完全一样,亦即不同的载流子浓度与类型似乎完全不影响相邻 Fe 层之间的

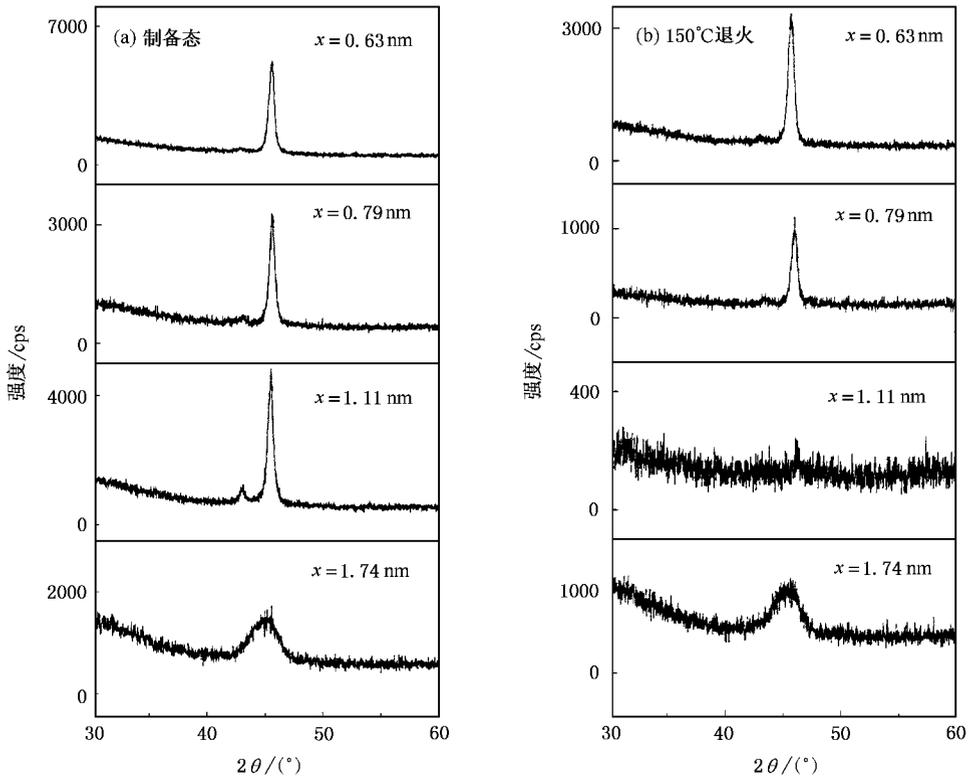


图 2 退火前后样品 Ta(5.0nm) [Fe(3.0nm)Si(x nm)]₈/Ta(3.0nm)的大角 x 射线衍射谱图

磁相互作用.

测量了样品的 x 射线衍射谱,以便弄清楚究竟有没有微结构方面的因素可以理解以上的结果. 所有 x 射线衍射结果表明, p 型、n 型 Si 与本征 Si 对应的多层膜的结果完全一样. 图 2(a) 为部分典型本征 Si 的多层膜样品的大角 x 射线衍射谱,由上至下, Si 层厚度为 0.63, 0.79, 1.11 和 1.74 nm. 可以看到,当 Si 层厚度在 0.63 至 1.11 nm 时,样品出现一个较强的衍射主峰,它来自 Fe(110),同时,在该峰的左侧还出现一个小的衍射峰,而随 Si 层厚度进一步增加,该小的衍射峰变强,同时峰位靠近主峰,显然,这个小的衍射峰来自超晶格的卫星峰,说明多层膜有较好的层状结构,并且 Si 层是晶态的;随 Si 层厚度进一步增加至 1.74 nm 时,Fe 的(110)衍射峰变得又弱又宽,同时卫星峰也消失,说明 Fe 的晶粒尺度变小,结晶性变差,而 Si 成为非晶态. 仔细检查多层膜的 Fe(110)峰位,发现 Si 的厚度为 0.63, 0.79, 1.11 和 1.74 nm 时,多层膜的 Fe(110)峰的 2θ 角分别为 45.34° , 45.48° , 45.42° 和 45.64° ,比块体 Fe 的(110)晶面的衍射峰对应的 44.68° 要大一些,并且 Si 层越厚,偏移越大. 我们知道多层膜成膜过程所产生的内部张应力有可能使多层膜的 Fe(110)峰位比块体材料的大,然而 Fe 峰位的移动并没有随 Si 层变厚时 Fe 层结晶性的变差与 Si 层成为非晶态而减小,所以内应力应当不是 Fe 衍射峰位移的主要原因. 另一方面, Si 原子比 Fe 原子小,当 Si 进入 Fe 的晶格,会使 Fe 的晶格常数变小, 2θ 角变大. 如果 Fe 原子朝 Si 层的扩散量比 p 型、n 型 Si 掺杂量还要大得多,自然 Fe/Si 多层膜的层间耦合看不出与 Si 是否掺杂或掺杂类型有关.

我们知道,退火过程将增大 Fe, Si 之间的扩散,退火温度越高,扩散越强. 因此通过退火温度,可以控制 Fe, Si 间的扩散程度. 测量这些样品的磁性,就可分析出扩散对层间耦合的影响.

图 2(b) 为与 (a) 相对应的样品经过 150°C 退火处理后的大角 x 射线衍射谱. 从图 2(b) 可以看出,所有样品的衍射峰强度均大幅度减弱, Si 层厚度为 1.11 nm 对应的多层膜的衍射峰甚至基本消失,而原有的超晶格卫星峰全部消失,说明多层膜经过退火后层状结构变差. 检查 Fe(110)的峰位,与 Si 层厚度 0.63, 0.79 和 1.74 nm 相对应的 2θ 角分别为 45.46° , 45.88° 和 46.42° . 与制备态样品的数据比较,退火后的 2θ 角进一步增大.

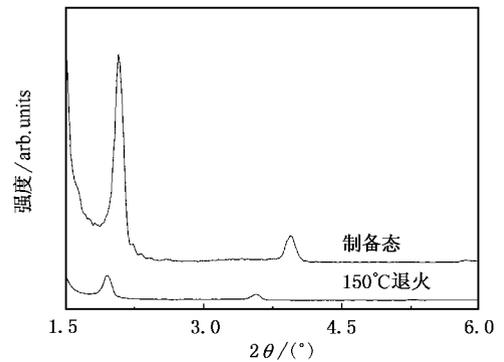


图3 退火前后样品 $\text{Ta}(5.0\text{nm})[\text{Fe}(3.0\text{nm})/\text{Si}(1.9\text{nm})]_8/\text{Ta}(3.0\text{nm})$ 的小角 x 射线衍射谱图

为了进一步了解退火对多层膜微结构的影响,还测量了样品在制备态和 150°C 退火之后的小角 x 射线衍射谱. 图 3 为 Si 层厚度为 1.9 nm 时的小角 x 射线衍射谱. 从图 3 可以看出,制备态的 Fe(3.0 nm)/Si(1.9 nm) 多层膜有非常强的前二级衍射峰,从这些衍射峰的位置,计算了多层膜的调制结构周期,计算结果与设定值相当符合;经过退火处理后,Fe(3.0 nm)/Si(1.9 nm) 多层膜的第一、二级衍射峰的强度明显减弱,此外,可以发现衍射峰的位置明显左移,说明调制周期有所增加. 这一结果进一步说明我们的多层膜样品在制备态具有非常好的层状结构,而退火过程确实增加了 Fe, Si 之间的扩散,使其层状结构变差.

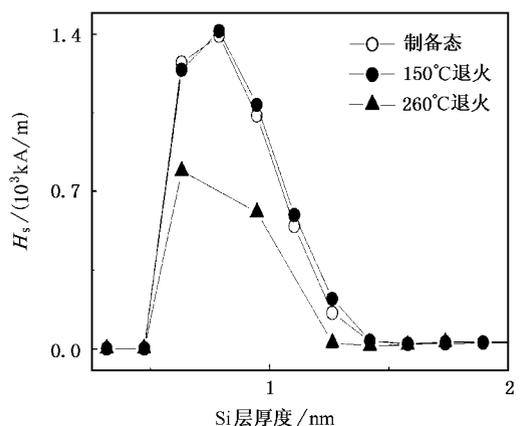


图4 退火前后样品 $\text{Ta}(5.0\text{nm})[\text{Fe}(3.0\text{nm})/\text{Si}(x\text{nm})]_8/\text{Ta}(3.0\text{nm})$ 的饱和场 (H_s) 随 Si 层厚度 x 的变化曲线

图 4 为样品在制备态、 150°C 和 260°C 退火后饱和场 (H_s) 与 Si 层厚度的关系. 从图 4 可以看出, 150°C 退火的样品饱和场不但没有由于多层膜层状

结构的退化及 Fe, Si 扩散的加剧而减小, 反而增大了少许(约 1.4%), 磁测量中, 我们发现 150°C 退火后的样品的饱和磁矩稍有减小. 相邻 Fe 层之间的耦合强度为 $J = -Mt_F H_S/4$, M , t_F 和 H_S 分别为铁磁层的饱和磁化强度、厚度及饱和场, 计算结果表明 150°C 退火后, Fe 层间的耦合强度基本没有变化. 从图 4 还可以看到, 260°C 退火的样品饱和场则大大降低, 由于 Si 对 Fe 层的大量严重扩散, 使其饱和磁化强度也差不多下降了 20%, 这时 Fe 层间的耦合强度大大下降.

4. 结 论

本文研究了 Fe/Si 多层膜的层间耦合, 发现制备态的样品具有非常好的层状结构, 但 Fe, Si 原子之间还是有一定程度的扩散, 它对 Fe 层间耦合的影响占主导地位, 超过了半导体意义上的重掺杂. 还发现在一定范围内增大 Fe, Si 之间的扩散, 虽然多层膜的层状结构已经有了相当的退化, 但 Fe/Si 多层膜的反铁磁耦合强度基本保持不变.

- [1] Grunberg P, Schreiber R, Pang Y, Brodsky M B and Sowers H 1986 *Phys. Rev. Lett.* **57** 2442
- [2] Baibich M N, Broto J M and Fert A 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [3] Su R and Liu F Q 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2325 [in Chinese] 苏润、刘凤琴 2002 物理学报 **51** 2325
- [4] Totlang K, Fucks P and Grobli J C 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 2487
- [5] Bruno P 1993 *J. Magn. Magn. Mater.* **121** 248
- [6] Barnas J 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **111** 1215
- [7] Coehoorn R 1991 *Phys. Rev. B* **44** 9331
- [8] Zhang Z R et al 2002 *Chin. Phys.* **11** 629
- [9] Toscano S, Briner B, Hopster H and Landolt M 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **114** L6
- [10] Fullerton E E, Mattson J E, Lee S R, Sowers C H and Huang Y Y 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **117** L301
- [11] Wang H 2002 *PhD Thesis* Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences [in Chinese] 王海 2002 博士学位论文(中国科学院物理研究所)
- [12] Waler P, Hunziker M and Landolt M 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 95
- [13] Wang H, Tang Y J and Li X 2002 *Chin. Phys.* **11** 183

The antiferromagnetic coupling and interface diffusion in Fe/Si multilayers *

Ni Jing^{1)B)} Cai Jian-Wang¹⁾ Zhao Jian-Gao¹⁾ Yan Shi-Shen²⁾ Mei Liang-Mo²⁾ Zhu Shi-Fu³⁾

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

²⁾(School of Physics and Microelectronics, Shandong University, Jinan 250100, China)

³⁾(Department of Materials Science and Engineering, Sichuan University, Chengdu 610064, China)

(Received 19 December 2003; revised manuscript received 6 April 2004)

Abstract

The antiferromagnetic coupling in Fe/Si multilayers was investigated with spacers varying from pure Si to heavy-doped n-type and p-type Si. It was found that interlayer diffusion between Fe and Si occurred even though the multilayers showed well-defined layer structure, and the diffusion dominated the heavy-doped Si, which made no difference at all for the antiferromagnetic coupling with different type of Si. Furthermore, the antiferromagnetic coupling in Fe/Si multilayers still goes on while the diffusion between Fe and Si layers enhanced and the layer structure was degraded to some extent after annealing.

Keywords: Fe/Si multilayers, antiferromagnetic coupling, interface diffusion

PACC: 7550B