

## 退火对 IrMn 基磁隧道结多层膜热稳定性的影响\*

闫静 祁先进 王寅岗†

(南京航空航天大学材料科学与技术学院, 南京 210016)

(2010年9月28日收到; 2010年11月29日收到修改稿)

采用磁控溅射方法制备了结构为 IrMn/CoFe/AlO<sub>x</sub>/CoFe 的磁性隧道结多层膜, 样品置于真空磁场中进行退火处理. 将在不同温度退火的磁隧道结结构多层膜置于负饱和场中等待, 研究退火温度对样品热稳定性的影响. 结果表明: 退火提高了多层膜反铁磁层的单轴各向异性, 增加了样品的交换偏置; 随着负饱和场等待时间的延长, 被钉扎层的磁滞回线向正场偏移, 交换偏置单调减小, 但退火减弱了这种趋势.

**关键词:** 磁隧道结, 交换偏置, 磁化反转

**PACS:** 81.40.Rs, 75.70.-i

## 1. 引言

磁性隧道结具有饱和磁场低、工作磁场小、灵敏度高等优点, 在高密度读出磁头、磁随机存取存储器和磁传感器等自旋电子器件上有着广泛的应用前景<sup>[1-3]</sup>. 对于目前应用广泛的钉扎结构隧道结, 其核心是铁磁(FM)/反铁磁(AFM)间的交换偏置效应. 交换偏置效应是 Meiklejohn 和 Bean<sup>[4]</sup>于 1956 年在 CoO/Co 颗粒中首次发现的. 所谓交换偏置是指磁性薄膜体系在外磁场中从高于反铁磁的奈尔温度冷却到低温后, 铁磁层的磁滞回线沿磁场方向偏离原点, 同时, 伴随着矫顽力的增强. 目前, 该效应被广泛应用于巨磁电阻自旋阀结构和磁性隧道结结构多层膜中.

基于隧道结结构多层膜的磁敏器件在其加工制备及使用过程中通常都要先经过一定温度的退火处理, 而这样的热处理一般都会改变 FM/AFM 双层膜的界面性质, 从而改变 FM/AFM 间交换耦合的强弱, 影响其热稳定性. 因此, 研究隧道结结构多层膜的热稳定性十分重要. 近年来, 许多学者研究了 FM/AFM 双层膜、自旋阀多层膜及隧道结多层膜的热磁稳定性能. Qi 等<sup>[5]</sup>研究了 CoFe/IrMn 双层膜的热稳定性, 将样品在多个温度下进行负饱和场等待时磁滞回线向正场方向移动, 交换偏置单调减小,

并且随温度的升高而加速. Chai 等<sup>[6]</sup>研究了 FeMn 顶钉扎自旋阀的热稳定性, 真空退火对自旋阀的性质有影响, 在不同退火温度下原子的扩散机制发生了变化. 不少学者研究了磁隧道结的隧穿磁电阻(TMR)随退火温度的变化<sup>[7-9]</sup>, 研究发现, 低于 573 K 时, 由于界面结构的改善及势垒层的均匀化, TMR 随退火温度的升高而升高, 而在高于 573 K 时, 由于 Mn 元素的扩散, TMR 随退火温度升高急剧下降. 作者至今还未见关于通过负场等待实验研究退火对磁性隧道结热稳定性影响的报道. 本文通过将不同退火温度的磁隧道结结构多层膜在负饱和场中进行等待, 研究退火温度对样品热稳定性的影响.

## 2. 实验方法

利用 MPS-4000-HC2 型高真空磁控溅射设备在自然氧化的硅衬底上制备了 IrMn/CoFe/AlO<sub>x</sub>/CoFe 磁性隧道结多层膜, 其结构、成分和各层厚度为 Ta (5 nm)/Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub> (12 nm)/Co<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> (5 nm)/AlO<sub>x</sub> (0.8 nm)/Co<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> (5 nm)/Ta (8 nm). 为了防止样品在空气中被氧化, 在多层膜上沉积了一层厚度为 8 nm 的 Ta 作为保护层. 溅射的主要参数如下: 本底真空优于  $5 \times 10^{-7}$  Pa, 采用  $7 \times 10^{-2}$  Pa 的高纯氩气作为工作气体, 溅射功率为 120 W, 生长速率控制在 0.03—0.12 nm/s, 沉积时在平行于膜面方向加有 8

\* 国家自然科学基金(批准号:50671048)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: yingang.wang@nuaa.edu.cn

kA/m 外加磁场,以诱导出一个易磁化方向. 然后将样品在真空条件下分别加热到 533, 548 K, 在 240 kA/m 的磁场中保温 1 h.

在室温下,采用 HH10 型振动样品磁强计测量样品的磁滞回线并得到交换偏置场  $H_{ex}$ . 磁场扫描范围为  $-64 \sim +64$  kA/m, 扫描速率保持在 240 A/m · s. 测量时外加磁场方向与薄膜生长过程中外加磁场的方向一致,即平行或反平行于易磁化方向. 分别采用透射电子显微镜和原子力显微镜来测试样品的截面和表面形貌.

### 3. 结果及讨论

图 1 为不同退火温度的磁性隧道结多层膜样品在室温下测量的被钉扎层的磁滞回线,图中  $M$  和  $M_s$  分别为样品的磁化强度和饱和磁化强度,经比较后可以看出,随着退火温度的升高,被钉扎层的回线向左侧偏移,交换偏置增大,矫顽力减小. 我们知道,样品退火是在真空强磁场(240 kA/m)中进行的,温度和强磁场提高了样品 AFM 层的单轴各向异性<sup>[10]</sup>,对被钉扎层的钉扎作用增强,从正场转向负场的过程中,其磁化反转需要更大的磁场强度,所以回线前支向左侧偏移;负场转向正场的过程中,经过退火之后 FM 层的自旋反转所需的磁场更小,更容易反转,所以回线后支也向左侧偏移. 同时,后支的偏移量明显大于前支的偏移量,反映了这两支回线在转换场中磁化反转的不对称性,这是因为磁滞回线的上升阶段和下降阶段反向畴成核位置及畴壁运动的不对称性,间接表明了 AFM 的自旋参与了铁磁层的磁化反转过程.

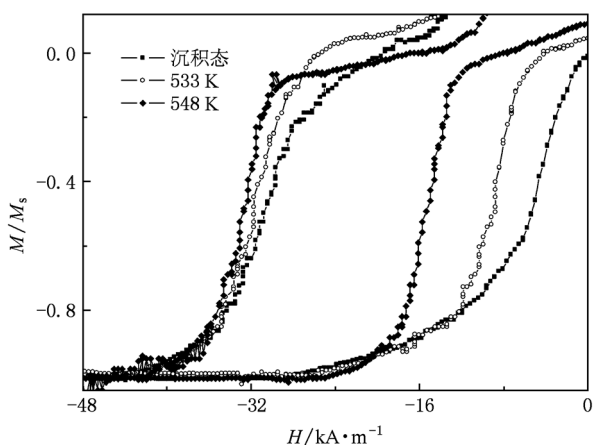


图 1 不同退火温度的磁隧道结室温下测得的磁滞回线(被钉扎层部分)

为进一步研究隧道结的界面形貌变化对其性能的影响,采用原子力显微镜观察了三个样品的表面形貌. 在同一气压下连续沉积,采用磁控溅射方法沉积薄膜时,在一定厚度内多层膜是连续共格生长的,这样当界面离表面不是很远时,通常认为表面的形貌近似为界面形貌<sup>[11]</sup>. 如图 2 所示,各退火温度所对应的样品表面的均方根粗糙度  $R_{RMS}$  分别为 0.969, 0.853 和 0.772 nm, 随着退火温度的升高,  $R_{RMS}$  呈降低趋势. 一般情况下,交换偏置场随粗糙度的降低而增加<sup>[12,13]</sup>. 粗糙度降低,界面缺陷密度减少,从而导致了矫顽力的减小<sup>[14]</sup>.

图 3 所示为 548 K 下退火得到的磁性隧道结多层膜样品在负饱和场中通过不同的等待时间  $t$  后,室温下测量得到的磁滞回线. 从图 3 可以看出,随着等待时间  $t$  的增加,自由层的前支回线和后支回线均不发生偏移,说明负场等待对自由层的磁化反转没有影响. 而被钉扎层的回线的前支和后支均向右偏移,说明被钉扎层的交换偏置场  $H_{ex}$  随着负场中等待时间  $t$  的增加而减小,而矫顽力  $H_c$  基本不变.

我们知道,  $H_{ex}$  与负场等待时间的变化关系是由 AFM 层的自旋通过热激活反转实现的<sup>[15]</sup>. 当外磁场从正饱和方向转到负饱和方向时,被钉扎的 FM 层的自旋随着磁场方向反转,由于 AFM 层具有较大的各向异性,使得 AFM 层的自旋保持在原来的方向上,此时体系处于亚稳态. 当薄膜在负饱和方向等待时,由于 FM 与 AFM 之间的交换耦合作用,使得 AFM 层的自旋从亚稳态向稳定态转变,从而降低了 AFM 层的各向异性,即减弱了 AFM 层的钉扎作用,从而增大了被钉扎的 FM 层的磁矩沿后支曲线反转的能垒,使得磁滞回线的后支曲线向零场偏移. 同理,因为在正向饱和场中未停留,将有部分已经反转的 AFM 层的自旋未发生反转,与初始的钉扎作用相比,同样减弱了 AFM 层的钉扎作用,即降低了被钉扎的 FM 层的磁矩反转的能垒,从而使得磁滞回线的前支曲线也向零场偏移. 文献[16,17]指出,如果在正向饱和场中的等待时间是在负向饱和场中等待时间的三倍,则磁滞回线的所有前支曲线都重合,说明在这种情况下 AFM 层的自旋可以完全回到了初始状态. 此点进一步证明了交换偏置与 FM/AFM 界面的自旋相关.

图 4 给出了不同退火温度的磁隧道结结构多层膜在进行负饱和场等待后,交换偏置场  $H_{ex}$  随等待时间  $t$  的变化曲线. 从图 4 可以清楚地看到,随着退火

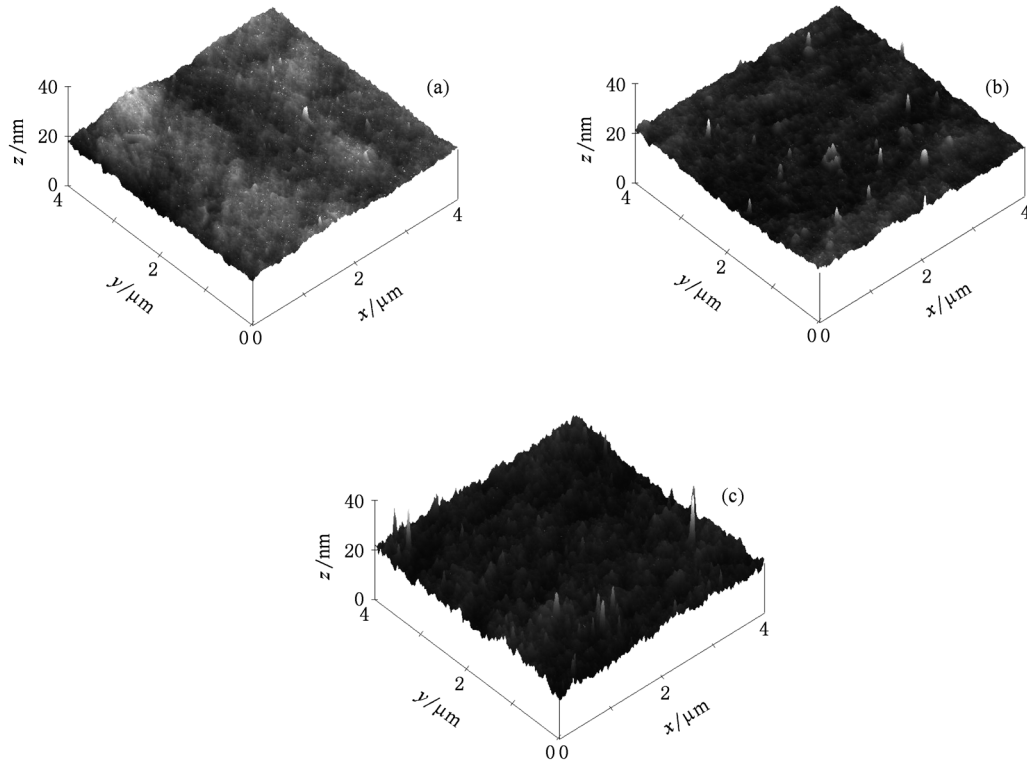


图2 原子力显微镜测得的不同退火温度磁性隧道结的表面形貌 (a) 沉积态,  $R_{\text{RMS}} = 0.969 \text{ nm}$ ; (b) 533 K 退火样品,  $R_{\text{RMS}} = 0.853 \text{ nm}$ ; (c) 548 K 退火样品,  $R_{\text{RMS}} = 0.772 \text{ nm}$

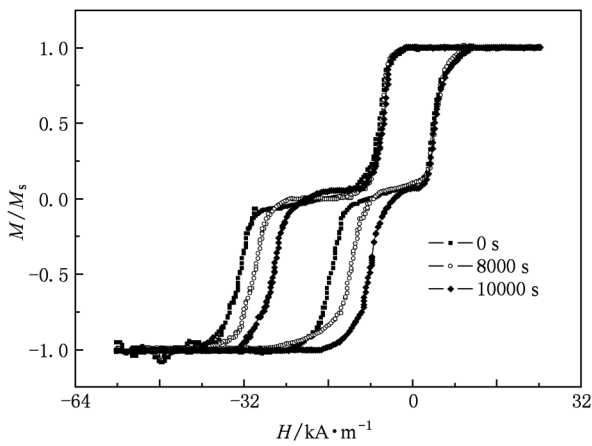


图3 在负饱和场中通过不同等待时间后磁隧道结多层膜(548 K 退火)在室温下测得的磁滞回线

温度的升高,被钉扎层的交换偏置场增大.由以上所述可知,这是因为磁场退火提高了隧道结结构多层膜中 AFM 层的单轴各向异性.首先,在给定退火温度下,在负饱和场中等待时,  $H_{\text{ex}}$  单调减小.其次,在负饱和场等待的初期,  $H_{\text{ex}}$  的减小速率较快,随后逐渐减慢.

$H_{\text{ex}}$  的减小一般是因为 AFM 层的磁化反转.通

常情况下,AFM 磁畴(单个或多个晶粒)要发生反转,必须越过一定的能垒<sup>[18]</sup>.我们认为,AFM 层中磁畴尺寸存在分布,所以其磁化反转的能垒也存在分布,而对于一定组织结构的多层膜材料,AFM 磁畴反转的能垒分布是一定的,被钉扎的 FM 层在负饱和场等待的时间越长,发生反转的 AFM 磁畴就越多,  $H_{\text{ex}}$  就越小.因此,随着在负饱和场中等待时间的延长,  $H_{\text{ex}}$  呈现出单调减小的趋势.

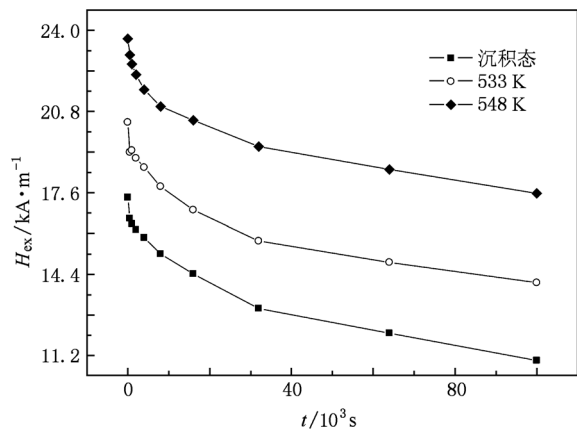


图4 室温下交换偏置场随磁隧道结结构多层膜在负饱和场中等待时间的变化关系

较小的 AFM 磁畴反转所需越过的能垒较低,根据热激活反转原理,较小的 AFM 磁畴比大磁畴更容易反转. 因而 AFM 小磁畴的数目将随着等待时间的延长而逐渐减少,AFM 磁畴的磁化反转也愈加困难. 此外,磁畴的反转包括形核和长大两个过程,而施加反转场时形核可优先发生在多层膜的缺陷附近,比如空位处<sup>[19]</sup>. 随着等待时间的延长,原先可用于形核的缺陷数目也将逐渐减少. 基于以上两点原因,在负饱和场等待的初期, $H_{ex}$  的减小速率较快,随后逐渐减慢.

交换偏置  $H_{ex}$  与负饱和场中等待时间  $t$  的关系可以采用 Xi 等<sup>[19]</sup> 提出的理论模型来解释,该模型定性描述了 AFM 层的磁畴形核和长大过程,并通过定量计算建立了交换偏置场与 AFM 畴生长之间的关系. AFM 层的磁结构变化是施加反转场后磁畴形核和长大的结果,而 AFM 层中磁结构的变化宏观表现在偏置系统的交换偏置场中,所以,交换偏置的弛豫是由 AFM 层中磁畴的形核概率和长大的

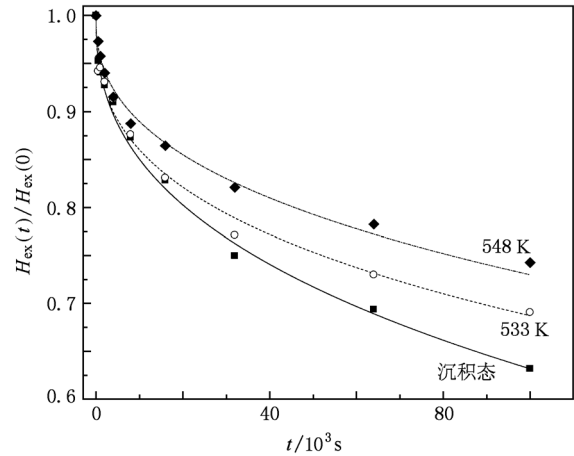


图5 室温下归一化交换偏置场随磁隧道结结构多层膜在负饱和场中等待时间的变化关系

特点决定的. 交换偏置场  $H_{ex}$  可表示为

$$H_{ex}(t) = H_{ex}(0) \{2\exp[-(t/\tau_D)^\sigma] - 1\}. \quad (1)$$

这里  $\tau_D$  为交换偏置场  $H_{ex}$  的特征弛豫时间,  $\tau_D$  越大

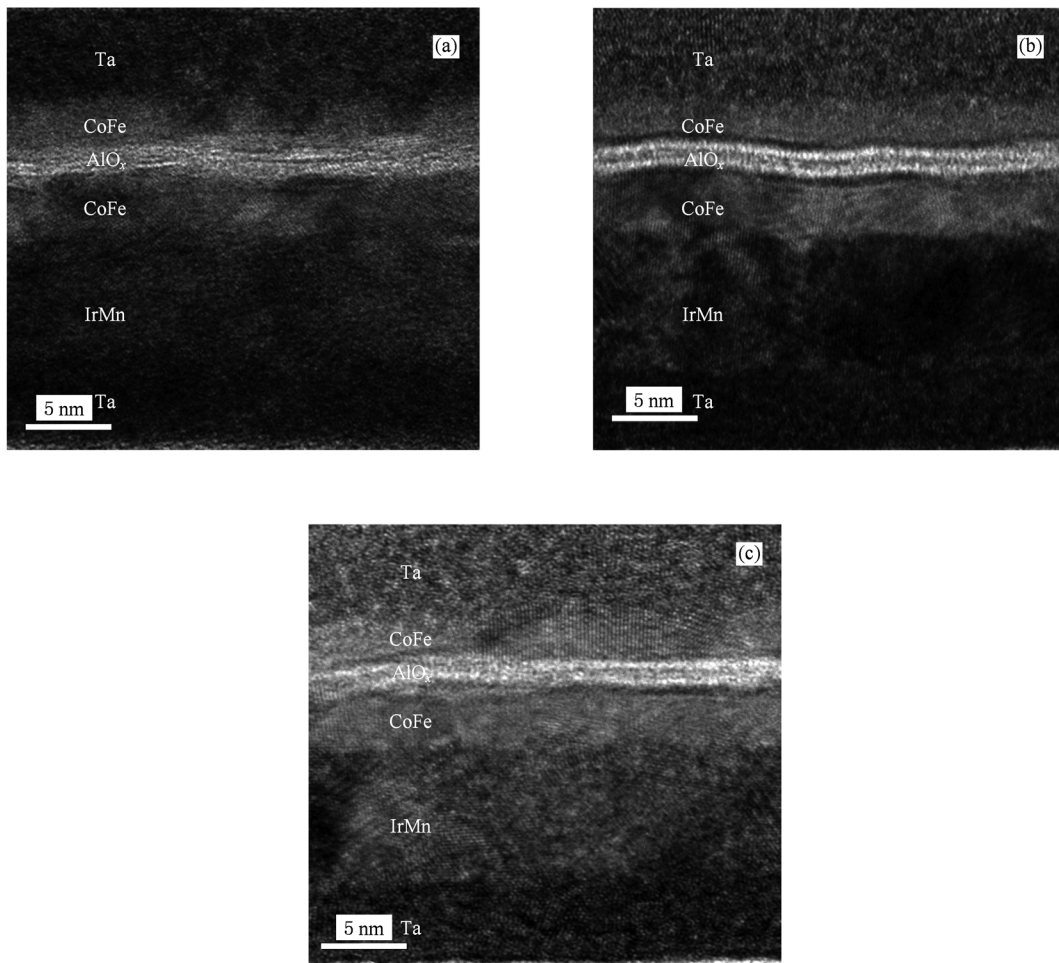


图6 不同退火温度下样品的 HRTEM 截面像 (a)沉积态样品,(b)533 K 退火样品,(c)548 K 退火样品

表明薄膜的热稳定性越好;  $\sigma$  为幂指数,  $\sigma$  的不同取值反映了 AFM 层中磁畴形核和长大的不同特征. 当  $\sigma = 1$  时, AFM 磁畴以恒定的速率反转; 当  $0 < \sigma < 1$  时, 一旦作用了外场后, 反向磁畴将立即形核; 当  $\sigma > 1$  时, 则反向磁畴以恒定的速率形核. 为方便拟合, (1) 式可以表示为

$$\frac{H_{\text{ex}}(t)}{H_{\text{ex}}(0)} = 2\exp[-(t/\tau_D)^\sigma] - 1. \quad (2)$$

对图 4 中的实验数据进行归一化处理, 将不同退火条件下所有  $H_{\text{ex}}$  值均除以  $H_{\text{ex}}(0)$ , 得到归一化的  $H_{\text{ex}}$  值, 并通过 (2) 式拟合得到不同退火温度下样品的  $H_{\text{ex}}$  随负饱和场等待时间  $t$  的变化关系. 从图 5 可以看出, 实验结果与理论结果符合很好, 这也表明文献 [19] 的模型可较好地解释本文的实验数据. 图 5 中三条曲线所对应的  $\sigma$  值分别为 0.417, 0.407 和 0.370. 虽然  $\sigma$  值不尽相同, 但均介于 0 与 1 之间, 在这种情况下一旦作用了反向饱和磁场, AFM 反向磁畴将立即形核. 同时通过计算可以得出, 对于沉积态、533 K 退火和 548 K 退火的样品, 弛豫时间  $\tau_D$  分别为  $4.556 \times 10^6$ ,  $1.149 \times 10^7$  和  $1.201 \times 10^7$  s. 随着退火温度的升高, 弛豫时间  $\tau_D$  逐渐变长, 说明退火减弱了  $H_{\text{ex}}$  随负饱和场等待时间增加而减小的趋势, 从而使得隧道结结构多层膜的热稳定性得到提高.

图 6 所示为三个样品的高分辨透射电子显微

镜 (HRTEM) 截面像, 结合图 2 可知, 磁场退火后, AFM 层中晶粒尺寸略微变大, FM/AFM 界面粗糙度减小, 导致了可用于反向畴形核的缺陷位置减少, AFM 层磁矩反转的能垒提高, 所以, 反向畴形核和长大过程比退火之前进行得更加缓慢,  $H_{\text{ex}}$  随负场等待时间增加而减小的趋势减弱, 热稳定性得到改善.

## 4. 结 论

本文研究了退火对 IrMn/CoFe/AlO<sub>x</sub>/CoFe 磁性隧道结多层膜热稳定性的影响. 研究表明, 退火提高了多层膜反铁磁层的单轴各向异性, 使得样品中的交换偏置增加. 负饱和场等待时, 被钉扎层的磁滞回线向正场方向移动,  $H_{\text{ex}}$  单调减小,  $H_{\text{ex}}$  的减小是由 AFM 层的反转引起的, 它可以看作是 AFM 磁畴在一定能垒之上的热激活反转过程. 退火后, 样品中 AFM 层的晶粒尺寸略微长大, 导致缺陷减少, AFM 磁畴反转的能垒提高, 使得反向畴的形核与长大过程困难, 磁化反转变慢,  $H_{\text{ex}}$  随负场等待时间增加而减小的趋势减弱. 将实验结果与文献 [19] 的理论模型进行拟合, 结果表明, 退火后弛豫时间  $\tau_D$  变长, 热稳定性提高.

- [1] Victora R H, Chen X 2010 *IEEE Trans. Magn.* **46** 702
- [2] Lee K, Kang S H 2010 *IEEE Trans. Magn.* **46** 1537
- [3] Cao J, Freitas P P 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 09E712
- [4] Meiklejohn W H, Bean C P 1956 *Phys. Rev.* **102** 1413
- [5] Qi X J, Wang Y G, Zhou G H, Li Z Q, Guo M 2010 *Chin. Phys. B* **19** 037503
- [6] Chai C L, Teng J, Yu G H, Zhu F W, Lai W Y, Xiao J M 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1846 (in Chinese) [柴春林、滕蛟、于广华、朱逢吾、赖武彦、肖纪美 2002 物理学报 **51** 1846]
- [7] Li F F, Sharif R, Jiang L X, Zhang X Q, Han X F, Wang Y, Zhang Z 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 113710
- [8] Ma Q L, Feng J F, Feng G, Oguz K, Han X F, Coey J M D 2010 *J. Magn. Magn. Mater.* **322** 108
- [9] Feng Y Q, Hou L N, Zhu T, Yao S D, Zhan W S 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4340 (in Chinese) [冯玉清、侯利娜、朱涛、姚淑德、詹文山 2005 物理学报 **54** 4340]
- [10] Li H H, Freitas P P, Wang Z J, Sousa J B, Gogol P, Chapman J 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 6904
- [11] Park C M, Min K L, Shin K H 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 6228
- [12] Shen J X, Kief M T 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 5008
- [13] Nascimento V P, Passamani E C, Alvarenga A D, Pelegrini F, Biondo A, Saitovitch E B 2008 *J. Magn. Magn. Mater.* **320** e272
- [14] Km J V, Stamps R L 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2785
- [15] Wang Y G, Petford-Long A K 2004 *J. Magn. Magn. Mater.* **279** 82
- [16] Hughes T, O'Grady K, Laidler H, Chantrell R W 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **235** 329
- [17] Hughes T, Laidler H, O'Grady K 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 5585
- [18] Vallejo-Fernandez G, Fernandez-outon L E, O'Grady K 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 07C101
- [19] Xi H W, Franzen S, Mao S, White R M 2007 *Phys. Rev. B* **75** 014434

## Influence of annealing on thermal stability of IrMn-based magnetic tunnel junctions<sup>\*</sup>

Yan Jing Qi Xian-Jin Wang Yin-Gang<sup>†</sup>

(College of Materials Science and Technology, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

(Received 28 September 2010; revised manuscript received 29 November 2010)

### Abstract

The magnetic tunnel junction with a structure of IrMn/CoFe/ $\text{AlO}_x$ /CoFe is deposited by magnetron sputtering and annealed at different temperatures in a magnetic field of parallel to the orienting field. Vibrating sample magnetometer is used to record the magnetic hysteresis loop at room temperature, and scanning probe microscope is used to record the interface morphology. The influence of annealing on thermal stability of the magnetic tunnel junction is investigated by holding the film in its negative saturation field. After annealing, the exchange bias increases due to the enhancement of unidirectional anisotropy of antiferromagnetic layer. The recoil loop of the pinned ferromagnetic layer shifts towards the positive field, and the exchange bias field decreases monotonically, with the film held in a negative saturation field, whereas annealing reduces the reduction speed of  $H_{\text{ex}}$ .

**Keywords:** magnetic tunnel junction, exchange bias, magnetization reversal

**PACS:** 81.40.Rs, 75.70.-i

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50671048).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: yingang.wang@nuaa.edu.cn