

CoFeB/ AlO_x /Ta 及 AlO_x /CoFeB/Ta 结构中垂直易磁化效应的研究*

陈希¹⁾ 刘厚方²⁾ 韩秀峰²⁾ 姬扬^{1)†}

1) (中国科学院半导体研究所, 超晶格与微结构国家重点实验室, 北京 100083)

2) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(2013年3月15日收到; 2013年4月25日收到修改稿)

本文详细研究了在不同氧化层和铁磁层厚度情况下, 底层 CoFeB/ AlO_x /Ta 结构和顶层 AlO_x /CoFeB/Ta 结构中的垂直磁各向异性. 在底层 CoFeB/ AlO_x /Ta 结构中观察到了垂直磁化的磁滞回线, 证明了其垂直易磁化效应的存在; 而在顶层 AlO_x /CoFeB/Ta 结构中却没有观察到类似的磁滞回线. 对这种对称结构中的非对称现象进行了分析. 研究还发现不同的氧化层和铁磁层厚度均会影响层间界面相互作用的强度, 从而导致结构的垂直磁化曲线矫顽力大小发生改变. 这项研究将对基于 AlO_x 氧化层垂直磁隧道结的研制具有重要的意义.

关键词: 垂直磁各向异性, 磁隧道结, 随机存储器

PACS: 75.30.Gw 75.60.Ej 75.75.-c

DOI: 10.7498/aps.62.137501

1 引言

与传统的面内磁隧道结 (in-plane magnetic tunnel junctions) 结构相比, 垂直磁性隧道结 (perpendicular anisotropy magnetic tunnel junctions) 结构由于具有更高的热稳定性和更低的开关电压, 已成为新一代磁随机存储器 (magnetic random access memory devices, MRAM) 研发领域中的热点^[1-3]. 作为垂直磁隧道结中的核心结构, 垂直磁各向异性结构 (perpendicular magnetic anisotropy structures) 也因此得到了人们广泛的关注.

目前为人们所熟知的垂直面磁化材料主要有 Co/(Pt,Pd) 多层膜^[4], (Co,Fe)Pt 合金^[5], (Gd,Tb)FeCo 稀土合金^[6] 及 Co/Ni 多层膜^[7] 等. 但是它们都不是制备磁随机存储器的理想材料, 因为它们无法同时满足磁随机存储器制备所需要的高磁阻率、高磁各向异性以及低开关电流的条件. 最近 Ohno 研究组在 CoFeB/MgO/CoFeB 三明治结

构中发现了很强的垂直磁各型向异性效应^[8], 他们认为其来源于铁磁层和氧化层之间的界面相互作用. 基于此结构制备出的垂直磁隧道结中的开关时间和开关电压分别达到了 0.1 ms 和 1 V, 完全符合新一代次随机存储器的要求. 这种三明治结构中的垂直易磁化效应也随后得到了人们的广泛关注, 人们系统地研究了可能影响这种垂直易磁化效应的因素, 包括铁磁层的厚度、氧化层的厚度、盖帽层的组分、退火温度等^[9-11]. 但是, 目前还很少有人对产生这种易磁化效应的内在机理进行深入的研究, 也很少有人关注除 MgO 之外的其他氧化物结构. 除了 MgO 之外, AlO_x 也是一种很好的可作为隧穿层势垒的氧化物材料.

在本文的工作中, 我们利用磁光测量的方法详细地研究了以 Ta 作为保护覆盖层的底层 CoFeB/ AlO_x /Ta 结构及顶层 AlO_x /CoFeB/Ta 结构中的垂直易磁化现象. 我们的研究表明, 该类结构中的垂直易磁化信号主要来源于底层 CoFeB/ AlO_x /Ta 结构, 通过分析我们认为这是由

* 国家自然科学基金 (批准号: 91021022)、国家重点基础研究发展计划 (973 计划) (批准号: 2009CB929301, 2010CB934400) 和国家自然科学基金重点项目 (批准号: 10934009) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jiyang@semi.ac.cn

于底层 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{Ta}$ 结构和顶层 $\text{AlO}_x/\text{CoFeB}/\text{Ta}$ 结构中氧化层与铁磁层界面出的原子是按照不同方式来进行排列所导致的. 同时我们还研究了铁磁层和氧化层厚度的变化对结构中垂直易磁化效应的调制作用.

2 实验测量

我们的样品均是在 $\text{Si}(100)/\text{SiO}_2$ 衬底上, 外加 0.5T 横向磁场下, 利用磁控溅射的方法制备而成的. 通过在样品生长过程中以一定的速度移动样品源上的挡板, 我们成功的制备出了厚度连续变化的楔形样品. 楔形样品能够使我们在变化样品厚度进行测量时, 保证样品具有更好的一致性和均匀性.

MRAM 随机存储器中的核心结构 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{CoFeB}$ 三明治结构可以看作是由顶层 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{Ta}$ 结构和底层 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{Ta}$ 结构构成. 我们对两种结构分别进行了制备. 其各层样品厚度为 $\text{Ta}(5)/\text{AlO}_x(1)/\text{CoFeB}(0.4\text{—}1.6)/\text{Ta}(3)$ 以及 $\text{Ta}(5)/\text{CoFeB}(0.4\text{—}1.6)/\text{AlO}_x(1)/\text{Ta}(3)$, 其中括号中数字的单位为 nm. 整块样品的尺寸为 $2\text{ cm} \times 5\text{ cm}$, 5 cm 所对应的长边为厚度的楔形变化边, 这样我们便可以根据样品的不同位置来标定样品铁磁层的厚度. 样品结构示意图如图 1(a) 所示. 我们还制备

了一组不同 AlO_x 层厚度的样品. 氧化层的厚度变化可能会直接影响我们所制备样品的层间交换相互作用的强弱, 将对样品的垂直易磁化效应产生一定的调制作用, 这种调制的效果对于存储器的设计和制备十分关键^[12]. 这是由于氧化层厚度与磁隧道结中的自旋耦合效应关系密切, 利用氧化层厚度变化实现铁磁层间自旋耦合调制的技术已经被成功应用于存储器的读写磁头之中^[13]. 因此, 改变氧化层厚度从而对铁磁层间的自旋耦合效应以及铁磁层与氧化层之间的交换相互作用进行有机整合, 就非常重要.

在我们的实验中, 不同 AlO_x 层的厚度分别被选取为 1 nm, 1.5 nm 和 2 nm. 样品磁滞回线的测量是通过磁光克尔 (magneto-optical Kerr effect, MOKE) 测量的方法得到的. 磁光测量的测量原理是通过探测激光偏振面旋转角度的大小来表征样品磁矩垂直面分量的大小, 其可以帮助我们测量样品上任意局部的垂直面磁矩大小, 其测量局部的范围尺寸完全由激光光斑的大小决定 (一般直径为 $100\ \mu\text{m}$), 而其他的磁矩测试技术, 像振动磁强计 (vibrating sample magnetometer) 或者相干量子干涉仪 (superconductivity quantum interference device), 则只能测量整块样品磁矩大小, 不适于应用于楔形样品的研究^[14]. 我们的测试光路图如图 1(b) 所示.

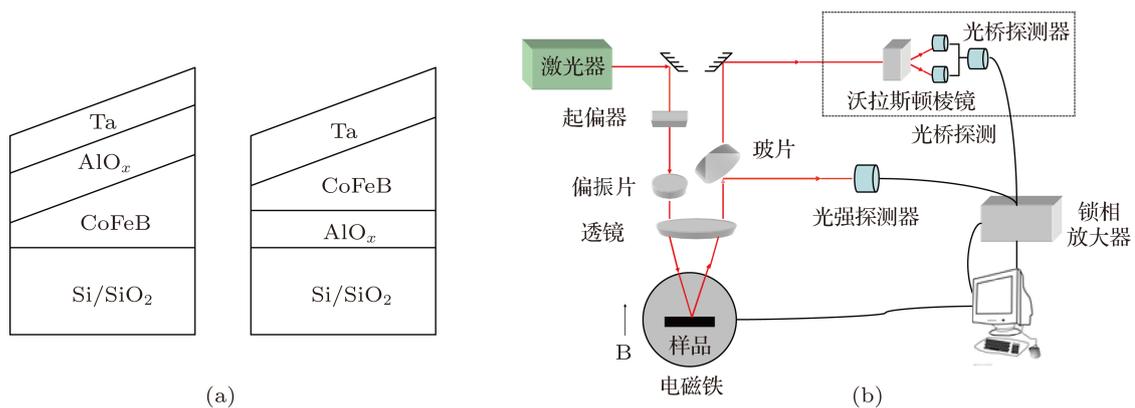


图 1 (a) 底层 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{Ta}$ 结构和顶层 $\text{AlO}_x/\text{CoFeB}/\text{Ta}$ 结构楔形样品的结构示意图; (b) 磁光克尔测量示意图 (我们采用的光源是非线性光纤激光器, 探测激光波长为 700 nm, 经过起偏器和旋光镜之后汇聚于样品表面. 偏振面的旋转通过光桥探测器经锁相放大后测量得到. 外磁场通过直流电磁线圈提供, 其可提供的磁场范围为 $-500\text{ Gs}\text{—}500\text{ Gs}$ ($1\text{ Gs} = 10^4\text{ T}$))

3 实验结果及分析

图 2 所示便为我们在不同铁磁层厚度的底层 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{Ta}$ 结构和顶层 $\text{AlO}_x/\text{CoFeB}/\text{Ta}$ 结构楔形样品中所测得的磁滞回线, 样品的氧化层厚度

均为 1 nm. 在底层 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x/\text{Ta}$ 结构中, 我们在铁磁层厚度 0.6 nm—1 nm 的范围内观测到了近似于矩形的磁滞回线, 证明了所报道的 CoFeB/MgO 结构中垂直面磁各向异性也存在于我们所制备的 $\text{CoFeB}/\text{AlO}_x$ 结构之中^[15]. 随铁磁层厚度变化,

样品矫顽力的大小变化范围约为 6 Gs—15 Gs, 在 CoFeB 厚度为 0.8 nm 附近矫顽力达到最大值, 小于在 CoFeB/MgO 结构中所报道的结果 [8–10]. 而在所报道的类似其他结构中, 譬如 CoFeB/Pt 或 CoFe/Pt 中, 垂直面矫顽力的大小一般要达到 30 Gs 以上 [16]. 这就证明了, 在利用 CoFeB/AlO_x 结构制备的磁隧道结中, 将有可能实现更低能耗和更加便捷的控制.

但是在顶层 AlO_x/CoFeB/Ta 结构中我们却没有观测到类似的磁滞回线信号, 测量结果显示了在这种对称结构中存在着非对称的效应, 我们认为这种非对称效应主要来源于两种结构不同的生长顺

序. 在底层 CoFeB/AlO_x/Ta 结构中我们首先生长的是 CoFeB, 这时表面原子的排布方式是按照表面能最低的原则来排布的, 即与氧化层接触的是表面能最小的原子. 而在 AlO_x/CoFeB/Ta 顶层结构中就不一样了, 由于首先生长的是 AlO_x, 再在 AlO_x 薄膜上生长 CoFeB, 那么与氧化层接触的原子便是与 AlO_x 层结合能最大的原子 [17]. 根据相关文献报道 [18], 超薄类似 CoFeB 结构中垂直各向异性主要来源于铁磁层与氧化层的界面相互作用, 而与氧化层所接触的原子不同必将导致其界面效应的差异, 从而使得我们制备的顶层结构与底层结构显现出完全不同的磁学特性.

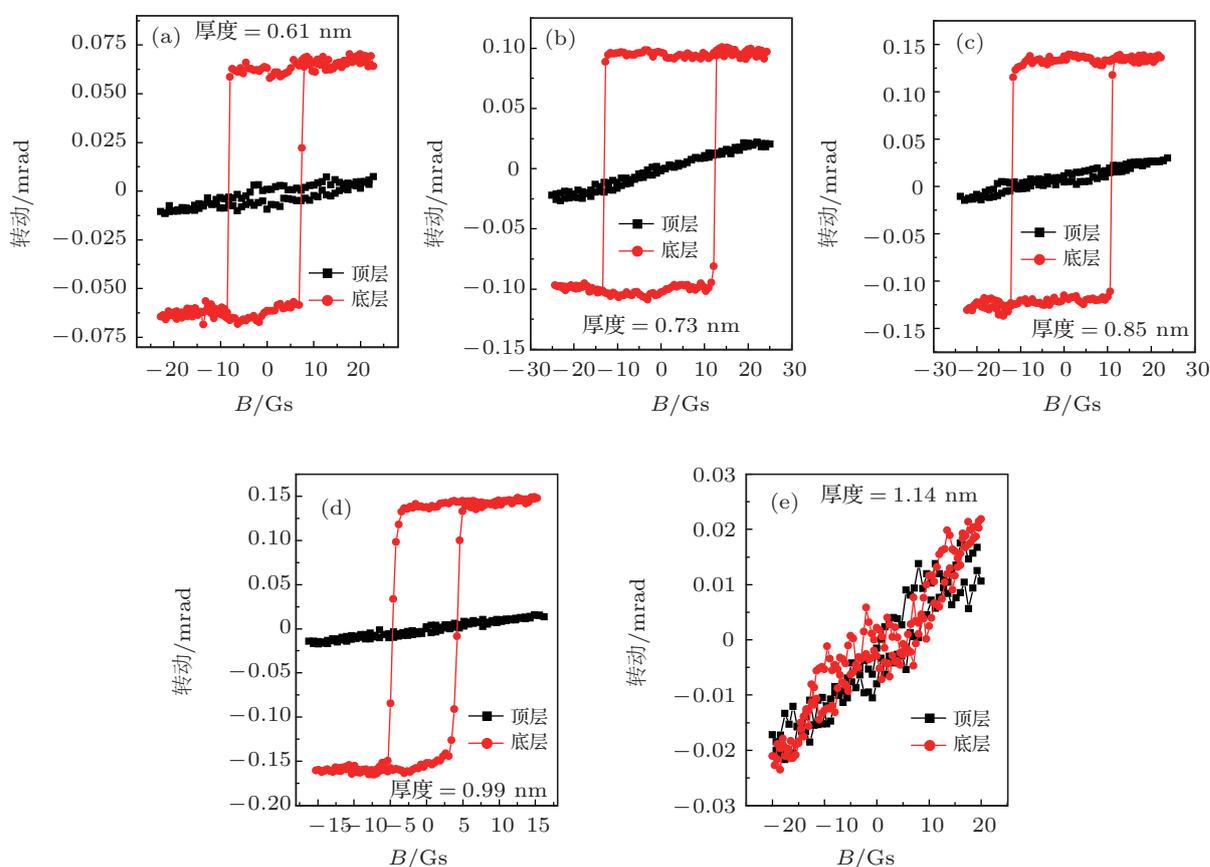


图 2 不同铁磁层厚度条件下底层 CoFeB/AlO_x/Ta 结构和顶层 AlO_x/CoFeB/Ta 结构垂直面 MOKE 信号, 其中 AlO_x 层厚度为 1 nm, CoFeB 层厚度分别为 0.61 nm, 0.73 nm, 0.85 nm, 0.99 nm, 1.14 nm(a)—(e). 在底层结构中我们观测到了明显的垂直磁各向异性效应而在顶层结构中我们却没有观测到类似的结果

图 3 所示为我们在底层结构中变化铁磁层的厚度, 进行了更为详细的测量. 图 4 为根据图 3 种测量结果所得到的样品垂直面矫顽力大小随铁磁层厚度的变化关系. 从图中我们可以看出, 样品的垂直矫顽力随 CoFeB 厚度的增加显现出了先增加后减小的趋势. 这是由于该垂直各向异性效应主要

来源于铁磁层与氧化层之间的界面相互作用, 而当 CoFeB 厚度小于 0.5 nm 时, 此时从原则上来说衬底上只覆盖了约两个原子层的 CoFeB, 样品会由铁磁相向超顺磁相转变, 因此不再显现出垂直易磁化效应; 随着 CoFeB 膜厚的增加, 成膜的厚度越来越厚, 样品逐渐转变为铁磁相, CoFeB 层与氧化层进行界

面相互作用的强度也逐渐增强,样品的易磁化轴逐渐翻转至垂直样品表面的方向;而随着铁磁层厚度的继续增加,原子层间的界面相互作用将会逐渐减弱,当铁磁层厚度增加到 1.1 nm 时,垂直面易磁化

效应完全消失,样品的易磁化轴又重新翻转回面内.因此,矫顽力峰值的出现应该是由铁磁层厚度增加所导致的界面相互作用减弱效应和超顺磁相变效应相互竞争的结果.

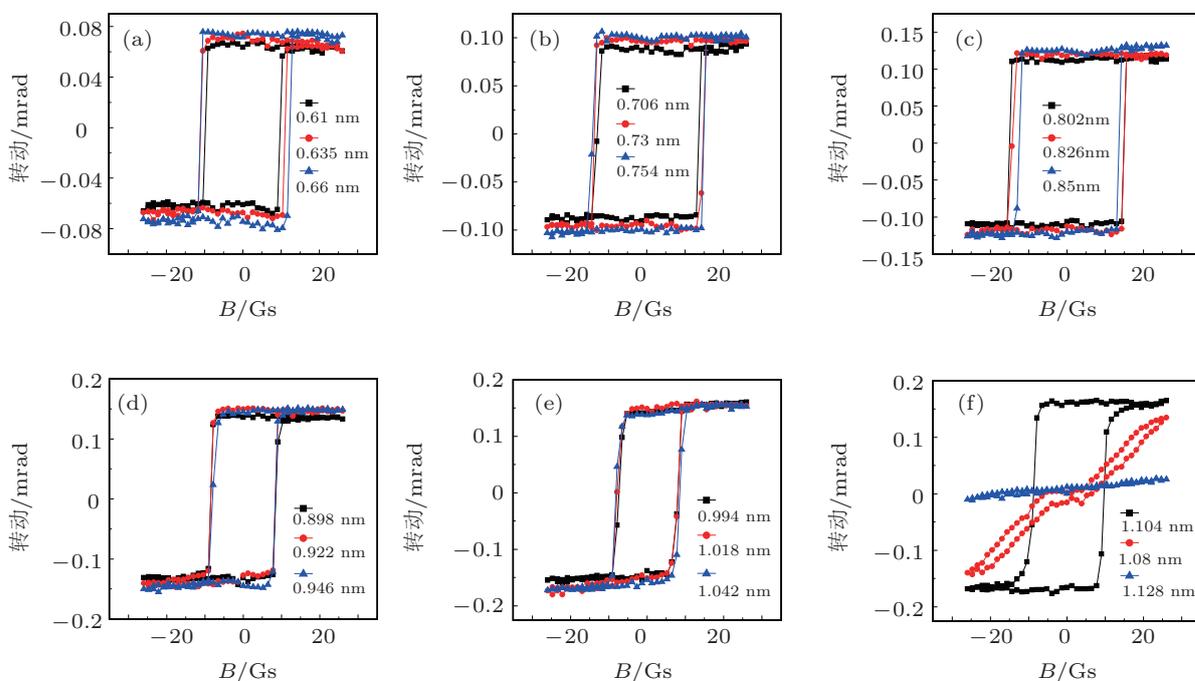


图3 CoFeB/ AlO_x 底层结构中不同 CoFeB 厚度处所测得的磁滞回线.每一幅小图对应于一块 4 mm 的样品中不同位置处的磁滞回线.在 CoFeB 层厚度超过 1.1 nm 时,该垂直磁各向异性效应逐渐消失

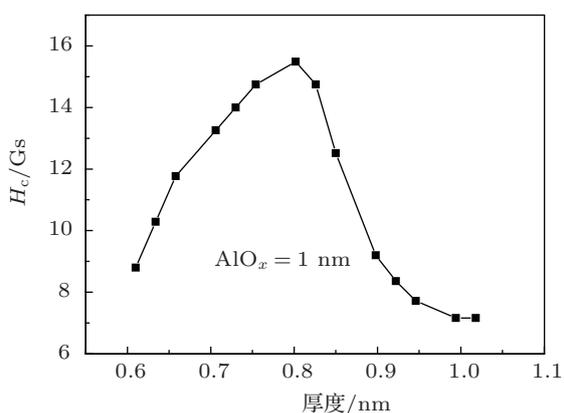


图4 CoFeB/ AlO_x 底层结构中垂直面矫顽力的大小随铁磁层厚度的变化曲线.随着铁磁层厚度的增加,界面相互作用逐渐减弱,同时样品由超顺磁相向铁磁相转变,这两种效应相互竞争的结果使得样品在铁磁层厚度为 0.8 nm 时垂直面矫顽力达到最大值

至此,我们详细地观测并研究了在 CoFeB/ AlO_x 结构中垂直各向异性效应与 CoFeB 厚度的关系.根据相关文献的报道^[16-17],在 CoFeB/MgO 结构中,除了铁磁层的厚度以外,氧化层的厚度的

变化也会对该界面效应产生显著的影响.为了系统地研究不同因素对该界面效应的影响,我们根据图 1(a) 中的样品结构制备了 AlO_x 厚度分别为 1.5 nm 和 2 nm 的楔形 CoFeB/ AlO_x 结构,并进行了与上文中相同的测量.

根据测量的结果,我们得到了在不同厚度的 AlO_x 层结构中垂直矫顽力 H_c 大小与 CoFeB 厚度的关系,如图 5 所示.在三种 AlO_x 厚度的样品中我们均观测到了垂直面的易磁化现象,并且随 CoFeB 厚度的增加其垂直面矫顽力大小均显现出了先增加后减小的趋势,只是其峰值的位置随 AlO_x 厚度的增加变得越来越靠近更薄的 CoFeB 层,分别对应的 CoFeB 层厚度为 0.8 nm, 0.72 nm 和 0.65 nm.随氧化层厚度的增加,样品垂直面矫顽力也变得越来越小,峰值矫顽力分别为 15 Gs, 14 Gs 和 11 Gs,说明同铁磁层一样,氧化层厚度的增加也将减弱原子层间的界面相互作用.在氧化层厚度不同的三组样品中,垂直易磁化效应都是在铁磁层厚度增加到 1.1 nm 左右时消失的.在 0.6 nm—1.1 nm 铁磁层厚

度的范围内样品都保持了很好的垂直磁各向异性,而在氧化层厚度为 2 nm 的样品中当铁磁层厚度大于 0.75 nm 时样品的垂直面矫顽力大小几乎保持不变.

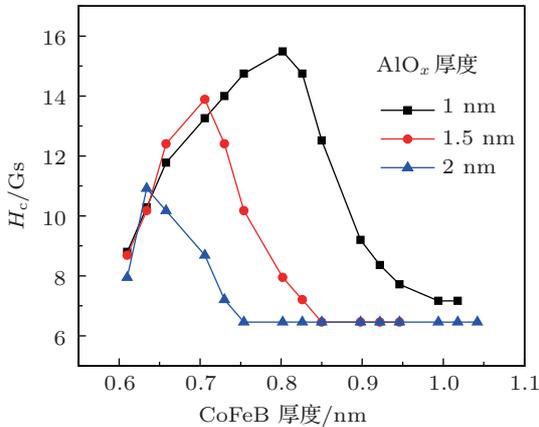


图5 不同氧化层厚度条件下, CoFeB/ AlO_x 底层结构中垂直面矫顽力的大小随铁磁层厚度的变化曲线

实验结果表明,无论是铁磁层厚的改变还是氧化层厚度的改变,都对 CoFeB/ AlO_x /Ta 结构中的垂直易磁化效应有着明显调制效果,因此样品厚度应该是垂直磁随机存储器制备中需要首先考虑的因素. 我们可以通过对样品厚度进行改变实现对存储单元矫顽力大小和隧穿磁阻的调节设计,以满足不同存储器的工作需求.

4 结论

我们系统地研究了不同铁磁层和氧化层厚度的样品中 CoFeB/ AlO_x 结构的垂直磁各向异性. 我们首先确认垂直易磁化效应仅来源于 CoFeB/ AlO_x 底层结构中铁磁层与氧化层的界面相互作用;而在 AlO_x /CoFeB 顶层结构中我们并没有观测到垂直易磁化现象,这是由于在这两种结构中铁磁层界面处的原子是按照不同能量方式进行排列所导致的.

利用楔形薄膜生长技术,我们验证了氧化层厚度为 1 nm 的样品中垂直磁各向异性效应出现的范围为 CoFeB 厚度 0.6 nm—1.1 nm;样品的垂直矫顽力随 CoFeB 厚度的增加显现出了先增加后减小的趋势,矫顽力的大小变化范围约为 6 Gs—15 Gs,最大矫顽力对应的铁磁层厚度约为 0.8 nm. 如此微小的矫顽力将非常适合于发展诸如 MRAM, TMR 磁头和其他磁敏传感器等磁阻器件. 我们还进一步研究了氧化层厚度的变化对样品垂直磁各向异性效应的影响,我们研究了氧化层厚度分别为 1 nm, 1.5 nm 和 2 nm 的楔形铁磁层样品. 我们观测到随着氧化层厚度的增加,样品中的最大矫顽力出现了减小的趋势,且对应的铁磁层厚度也越来越薄. 对样品厚度与垂直磁各向异性规律的掌握将有望进行高性能垂直磁性隧道结的研制奠定基础.

[1] Mangin S, Ravelosona D, Katine J A, Carey M J, Terris B D, Eric E F 2006 *Nature Mater.* **5** 210
 [2] Meng H, Wang J P 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 172506
 [3] Kou S P, Lu R, Liang J Q 2003 *Chin. Phys. Lett.* **19** 1525
 [4] Kim G, Sakuraba Y, Oogane M, Ando Y, Miyazaki T 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 172502
 [5] Ding Y, Judy J H, Wang J P 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 10J117
 [6] Nishimura N, Hirai T, Koganei A, Ikeda T, Okano K, Sekiguchi Y, Osada Y 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 5246
 [7] Mizunuma K, Ikeda S, Park J H, Yamamoto H, Gan H D, Miura K, Hasegawa H, Hayakawa J, Matsukura F, Ohno H 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 232516
 [8] Ikeda S, Miura K, Yamamoto H, Mizunuma K, Gan H D, Endo M, Kanai S, Hayakawa J, Matsukura F, Ohno H 2010 *Nature Mater.* **9** 721
 [9] Wang W X, Yang Y, Naganuma H, Ando Y, Yu R C, Han X F 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 012502
 [10] Worledge D C, Hu G, Abraham D W, Sun J Z, Trouilloud P L, Nowak J, Brown S, Gaidis M C, O'Sullivan E J, Robertazzi R P 2011 *Appl.*

Phys. Lett. **98** 022501
 [11] Cheng C W, Feng W, Chern G, Lee C M, Wu T 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 033916
 [12] Chen Y T, Wu J W 2011 *J. Alloy. Compd.* **509** 9246
 [13] Yamanouchi M, Koizumi R, Ikeda S, Sato H, Mizunuma K, Miura K, Gan H D, Matsukura F, Ohno H 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 07C712
 [14] Spoddig D, Köhler U, Haak M, Kneppel M, Schmitte T, Westphalen A, Theis-Bröhl K, Meckenstock R, You D, Pelzl J 2008 *Superlattices Microstruct.* **43** 180
 [15] Hirose Y, Hitosugi T, Kasai J, Furubayashi Y, Nakajima K, Chikyow T, Konuma S, Shimada T, Hasegawa T 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 042503
 [16] Liu N, Wang H, Zhu T 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 167594 (in Chinese) [刘娜, 王海, 朱涛 2012 物理学报 **61** 167594]
 [17] Ma Q L 2011 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: Graduate University of Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [马勤礼 2011 博士学位论文 (北京: 中国科学院研究生院)]
 [18] Endo M, Kanai S, Ikeda S, Matsukura F, Ohno H 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 212503

The research of the perpendicular magnetic anisotropy in CoFeB/ AlO_x /Ta and AlO_x /CoFeB/Ta structures*

Chen Xi¹⁾ Liu Hou-Fang²⁾ Han Xiu-Feng²⁾ Ji Yang¹⁾†

1) (*The State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

2) (*Beijing National Laboratory of Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

(Received 15 March 2013; revised manuscript received 25 April 2013)

Abstract

The perpendicular magnetic anisotropy (PMA) of the CoFeB/ AlO_x /Ta structure and the AlO_x /CoFeB/Ta structure with different thicknesses of both CoFeB and AlO_x is studied. Magnetization curves show that the CoFeB/ AlO_x /Ta structure has a clear perpendicular magnetic easy axis while the AlO_x /CoFeB/Ta structure does not. The cause of the asymmetrical phenomenon in the symmetric structures is analyzed. Dependence of the perpendicular coercivities on the thicknesses of CoFeB and AlO_x shows that both of them can affect the strength of the PMA originating from the interfacial interaction. This work will be meaningful for the fabrication of the AlO_x -based perpendicular magnetic tunnel junctions.

Keywords: perpendicular magnetic anisotropy, magnetic tunnel junctions, magnetic random access memory

PACS: 75.30.Gw 75.60.Ej 75.75.-c

DOI: 10.7498/aps.62.137501

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 91021022), the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2009CB929301, 2010CB934400), and the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10934009).

† Corresponding author. E-mail: jiyang@semi.ac.cn