

Ni-FeCr 多层膜的磁各向异性和自旋波谱

陈慧余 罗有泉

中国科学技术大学物理系, 合肥, 230026

1990年8月21日收到

Ni-FeCr 多层膜采用直流溅射法制备。由拟合铁磁一致共振场的角度关系确定它们具有单轴磁各向异性。各向异性可表示为: $E_K = K_1 \sin^2\theta + K_2 \sin^4\theta$, 其中 $K_2/K_1 \approx 0.59$ 。然而, 表面模的特性揭示这些多层膜表面和界面的各向异性并非单轴型。我们认为这源于在表面和界面的交换耦合作用。

PACC: 7570; 7530G; 7530D

一、引 言

近年来磁性多层膜的研究引起人们极大的兴趣。由于在界面两侧的原子相互扩散, 或以各种方式结合生成亚稳相, 都将影响膜的结构和磁性^[1,2]。磁性类型不同的金属或合金交替沉积的多层膜可通过磁结构的变化改变磁性^[3,4]。除此之外, 在多层膜界层的交换耦合特性也可被利用于改善膜材料或器件的性能^[5,6]。目前已有多种性能优异且有广泛应用前景的多层膜问世。如兼有高记录速度和高记录密度的磁头、磁介质、磁光存储器件、自偏场磁阻器件以及高质量的表面声波延迟线等。

本文采用铁磁共振法, 辅以磁化曲线和磁阻各向异性测量, 研究 Ni-FeCr, 铁磁性反铁磁性层交替沉积的多层膜的磁各向异性, 包括膜体内和表面或界面的磁各向异性。实验发现体内与界面磁各向异性有所不同。我们认为表面或界面的磁各向异性与界面层间的交换耦合作用有关。包括不同金属层间的交换耦合以及金属与其表面氧化层间的交换耦合。

二、实 验

采用多靶直流溅射装置, 在玻璃基片上交替沉积 Ni 膜和 FeCr 合金膜, 基片面积为 $2\text{cm} \times 2\text{cm}$ 。预真空度为 $(3-5) \times 10^{-5}\text{Torr}$, 充氩气, 氩气压为 $(2-3) \times 10^{-2}\text{Torr}$ 。靶与基片间距为 4cm 。两种材料的溅射率均约为 $1\text{\AA}/\text{s}$, 膜厚由溅射时间控制, 用称重法检测。膜的晶体结构用转靶 X 射线衍射仪分析。磁化曲线和饱和磁化强度用磁秤测量, 其中磁场强度为样品中心位置的场值。直流磁阻特性采用四端引线法测量, 在多层膜表面溅射四个银电极, 供焊引线。铁磁共振谱用 ER-200D-SRC 型顺磁共振谱仪测量。微波

频率为 9.49—9.80GHz. 直流磁场与膜面法向间夹角为 θ_H , 通过附设转动样品架可连续调节, 转角精度为 1° .

所用样品的层数和每层的厚度在表 1 中给出.

表 1 Ni-FeCr 多层膜的层数和厚度

样品编号	层 数		每层溅射时间 (min)		每层厚度($\text{\AA}$)	
	Ni	FeCr	Ni	FeCr	Ni	FeCr
1	1	0	120	0	5200	0
2	8	8	15	2	650	86
3	2	1	20	2	980	86
4	8	9	5	2	210	86

三、实验结果

样品和溅射靶的 X 射线衍射谱见图 1. 多层膜中 Ni 和 FeCr 合金两类层都具有面心立方结构, 点阵常数分别为 $3.524 \text{\AA}$ 和 $3.601 \text{\AA}$, 与溅射靶材料相近, 膜面沿(111)择优取向. 在所有多层膜中 Ni 层的(111)面衍射强度都远大于(200)面. 与溅射靶相反.

1[#] Ni 单层膜样品的铁磁共振谱见图 2. 磁场与膜面法向间夹角 $\theta_H \geq 20^\circ$ 时, 仅有一致共振模 (波矢 $k^2 = 0$) 被激励. 当 $\theta_H < 20^\circ$ 时, 还有非一致共振自旋波体模 ($k^2 > 0$), 对应的共振场值低于一致共振. $\theta_H \leq 4^\circ$ 有三个体模, $4^\circ < \theta_H < 12^\circ$ 体模减少一个, $\theta_H > 12^\circ$ 则仅剩一个体模. 除体模外, 在一致共振场右侧的高场区, 还有非一致共振自旋波表面模 ($k^2 < 0$) 出现. 它们的强度较体模弱. 该模的个数也随 θ_H 增大而减少, 到 $\theta_H > 8^\circ$ 时完全消失.

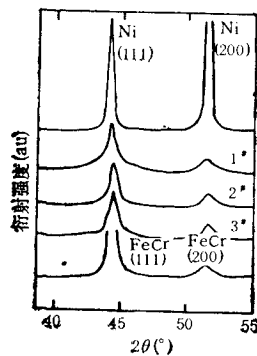


图 1 Ni-FeCr 多层膜和靶材料的 X 射线衍射谱

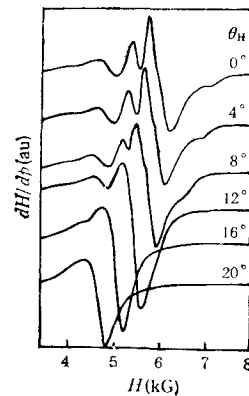


图 2 1[#]样品, Ni 单层膜的自旋波谱

图 3 是 Ni-FeCr 多层膜的自旋波谱. 图 3(a)中 2[#] 样品的谱也包括三类模. 2[#] 样品中 8 层 Ni 的总厚度与 1[#] 样品一样, 而每层的厚度较薄, 其体模的强度较 1[#] 样品弱. 图 3(b)中 3[#] 样品的谱中没有体模. 该样品两层 Ni 被一层薄的 FeCr 隔开. 每层 Ni 厚于 2[#] 样品. 2[#], 3[#] 样品多层膜的自旋波谱中, 表面模的强度都较高. 据此我们认为表面

模除在膜两表面,在多个界面内也可能被激励。值得注意的是:在磁场方位角($\theta_H, 90^\circ$)和($\theta_H, -90^\circ$)两个不同情况下,测得的自旋波谱很不一样。在图3中,方位($\theta_H, 90^\circ$)简记作 θ_H , ($\theta_H, -90^\circ$)记作 $-\theta_H$ 。根据图3中实测的自旋波谱所作的共振场值与磁场方位角的关系绘于图4。其中还包括根据多层膜具有单轴磁晶各向异性计算的一致共振场的角度关系曲线。图4中脚标“u”表示一致共振模,“v”表示体模,“s”表示表面模。易见一致共振模和体模共振场的角度关系属单轴各向异性型。至于表面模则并非单轴型。当 H 方位角为 $+\theta_H$ 和 $-\theta_H$ 两不同值时,不仅共振场值不相等,表面模个数也可能不一样。例如3#样品(图3(b),4(b))中 $\theta_H = -6^\circ$ 时有三个表面模,而 $\theta_H = +6^\circ$ 时有四个表面模,它们所对应的共振场值的差别也很明显。

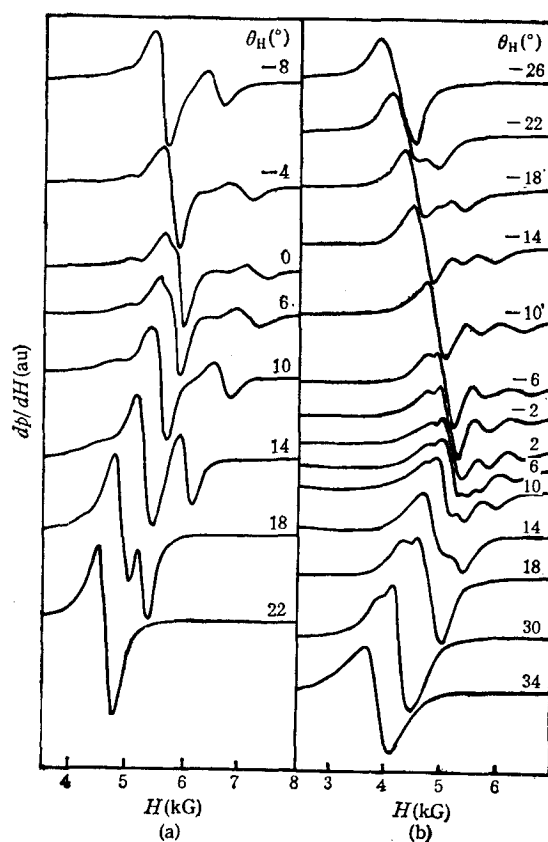


图3 Ni-FeCr 多层膜的自旋波谱
(a) 为 2#样品; (b) 为 3#样品

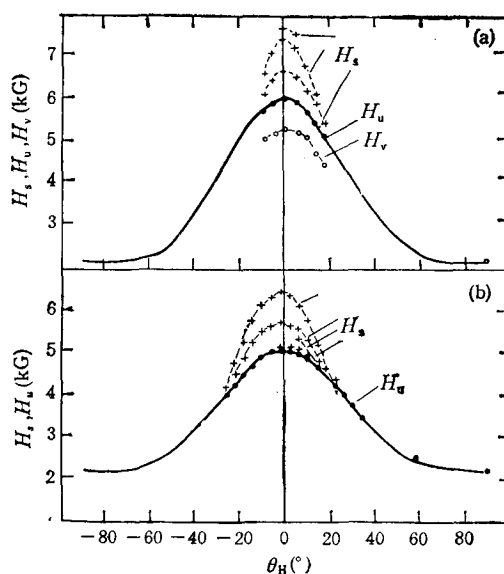


图4 一致共振与非一致共振表面模和体模的共振场 H_u, H_s 和 H_v 与 θ_H 的关系 (a) 为 2#样品; (b) 为 3#样品; 实线为计算曲线

四、讨 论

设膜面为 xy 面,外加直流磁场 H 在 yz 面内与膜面法向 z 轴成 θ_H 角,微波场 h 沿 x 轴,磁化强度 M 的方位角为 (θ, φ) 。自旋波共振的色散关系为^[7]

$$(\omega/\gamma)^2 = ((1/M_s \sin^2 \theta) \partial^2 E / \partial \varphi^2 + 2Ak^2/M_s)((1/M_s) \partial^2 E / \partial \theta^2 + 2Ak^2/M_s) - ((1/M_s \sin \theta) \partial^2 E / \partial \theta \partial \varphi)^2, \quad (1)$$

式中 E 为总能量包括静磁能 $E_H = -\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}$, 退磁场能 $E_d = 2\pi M_s^2 \cos^2 \theta$ 和磁晶各向异性能 E_K . 至于 E_K 不少作者研究单层或多层薄膜样品都取最简单的单轴各向异性表达式 $E_K = K_1 \sin^2 \theta$. 我们事先试用过, 发现 θ_H 稍大, 计算结果就较大地偏离实验值. 于是取

$$E_K = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta. \quad (2)$$

根据总能最低条件导出磁矩的平衡位置 (θ, φ) . 再利用 $\theta - \theta_H$ 很小条件导出如下的色散关系:

$$(\omega/\gamma)^2 = [H + K_a \cos 2\theta + 4K_2(\sin^2 2\theta - \sin^2 \theta) + 2Ak^2/M_s] \cdot [H + K_a \cos^2 \theta + K_2 \sin^2 2\theta + 2Ak^2/M_s], \quad (3)$$

式中 $K_a = 2K_1/M_s - 4\pi M_s$.

一致共振模 $k^2 = 0$, 易求得

$$\theta_H = \theta = 0^\circ \text{ 时,}$$

$$(\omega/\gamma)^2 = (H_\perp + K_a)^2; \quad (4)$$

$$\theta_H = \theta = \pi/2 \text{ 时,}$$

$$(\omega/\gamma)^2 = H_\parallel(H_\parallel - K_a - 4K_2). \quad (5)$$

上面 $H_\perp$ 和 $H_\parallel$ 分别为静磁场与膜面法向垂直和平行时的共振场值.

利用 $H_\perp$ 和 $H_\parallel$ 的测量数据, 饱和磁化强度 M_s 参照磁秤测试值. 并设 $K_2 = CK_1$, 其中 C 为待定系数. 根据(4),(5)式可推出 K_1 值. 取 $C = 0.59$ 所用的拟合参量和计算的 K_1 值列于表 2. 计算的一致共振场值 H_θ 与 θ_H 的关系, 在图 4 中用实线表示, 易见实验点基本都落在计算曲线上.

表 2 铁磁共振试验拟合参数以及磁晶各向异性常数计算值

样品编号	$H_\perp$ (G)	$H_\parallel$ (G)	M_s (G)	K_1 (erg/cm)
1#	2019	5946	450	4.79×10^3
2#	1977	5876	460	5.26×10^3
3#	2217	5086	320	1.97×10^3
4#	2482	3882	140	4.11×10^4

为了验证上述多层膜磁各向异性模型的真实性的真实性. 利用表 2 中列出的 K_1 值以及 $K_2 = 0.59K_1$ 写出 E_K 的表达式, 推导磁化曲线, 而后与实测结果进行比较. 以 2# 样品为例: 根据磁阻各向异性测量结果估算在退磁状态有 81% 的畴取向平行膜面, 外加垂直膜的磁场, 磁化过程若以转动磁化方式完成, 则易导出磁化方程. 当外磁场强度为 H 时, 磁化矢量与膜面法向间的夹角为 θ , 满足下述方程:

$$\sin \theta = 0, \quad (6a)$$

$$\cos^3 \theta + ((4\pi M_s^2 - 2K_1 - 4K_2)/4K_2) \cos \theta - M_s H / 4K_2 = 0. \quad (6b)$$

方程(6b)的解 $|\cos \theta| < 1$ 是稳定的. 对应磁化强度 $M = M_s \cos \theta$. 外加磁场足够大, 使(6b)式的解 $|\cos \theta| \geq 1$ 时, (6a)式的解才是稳定的, 即对应饱和磁化状态.

2# 样品在外加垂直膜面的外磁场时, 实测的磁化曲线和计算的结果, 见图 5. 易见两

者符合得较好。

2. 自旋波表面模($k^2 < 0$)

Spalek 等人^[6]研究磁性单层膜的自旋波表面模时, 引入一项附加的表面各向异性能

$$E_s = -K_s \cos^2 \theta, \quad (7)$$

式中 K_s 为表面磁各向异性常数。

表面模满足如下边界条件:

$$\partial_n m_n + p m_n = 0, \quad (8a)$$

$$\partial_n m_\perp + q m_\perp = 0, \quad (8b)$$

式中 m_θ 和 m_φ 为磁化强度的微波分量, A 为交换积分, ∂_n 为法向微分算符, p 和 q 为等效钉扎参量。

表面模波矢 k_s 的允许值与等效钉扎参量 p 有如下关系:

$$\tan(k_s L) = k_s(-p_1 + p_2)/(k_s^2 + p_1 p_2), \quad (9)$$

式中 L 为膜厚。一般情况 $p_1 \neq p_2$, 由于表面各向异性常数 K_s 或两个表面磁化强度的法向微分 $\partial_n M$ 值都可能不同。在这种非对称的边界条件下可预期有两个表面模。当 $p_1 = p_2$ 且表面模与一致共振场值之差 $(H_s - H_u)$ 较小时有

$$\alpha = [(H_s - H_u) \cos(\theta - \theta_H)]^{1/2} = (2|K_s|/AM_s)[\cos 2\theta - A \partial_n M / K_s M_s]. \quad (10)$$

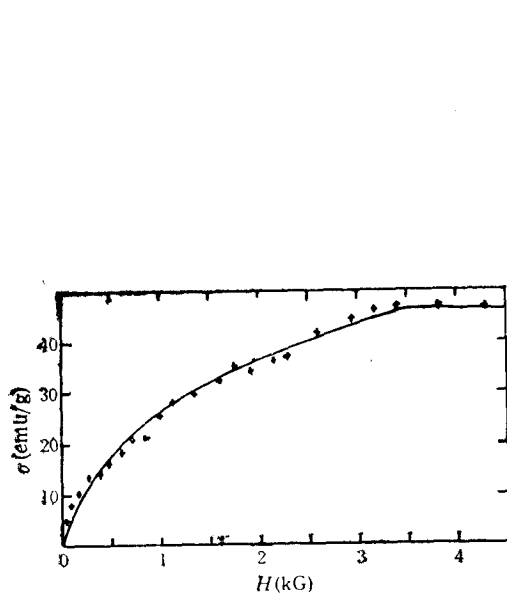


图5 2#样品外加磁场垂直膜面的磁化曲线
实线为计算曲线

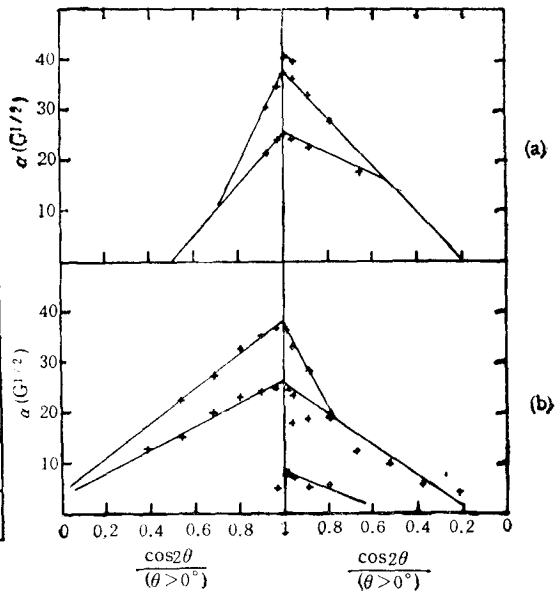


图6 $\alpha = [(H_s - H_u) \cos(\theta - \theta_H)]^{1/2}$ 与 $\cos 2\theta$ 的关系 (a) 为 2#样品; (b) 为 3#样品

我们认为引用上述单层膜的自旋波表面模的理论于多层膜, 不仅应考虑附加的表面磁各向异性, 还应考虑界面的磁各向异性。表面模也可能在界面被激励。2# 和 3# 样品的 $\alpha - \cos 2\theta$ 关系见图 6, 这两个样品有两个以上的表面模。各个表面模的 $\alpha - \cos 2\theta$ 线基本满足方程(10), 它是一条直线。值得注意的是 $\theta > 0^\circ$ 和 $\theta < 0^\circ$ 两种情况下, 该直线的斜率不相等。这一实验结果明确地表明, 表面或界面的磁各向异性并非单轴型, 除与方位角

θ 有关外, 还与另一方位角 φ 有关。界面金属层间的交换耦合以及表面金属与其表面氧化层间的交换耦合作用对表面模的影响不能忽略。如果引入交换能:

$$E_{ex} = - \sum_{i,j} A_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j,$$

其中 $\mathbf{S}_i$ 表示铁磁性 Ni 层内电子的自旋矢量, $\mathbf{S}_j$ 为反铁磁性 FeCr 合金层内电子或表面氧化层内, 电子的自旋矢量。Ni 层沿 (111) 面择优取向, [111] 为其易磁化轴, 即 $\mathbf{S}_i$ 沿 [111] 轴, 如果 $\mathbf{S}$ 取向不沿 z 轴, 则随 $\mathbf{S}_i$ 转向外场方向 E_{ex} 就将与 φ_H 有关。只要考虑交换耦合作用, 就不难解释表面模的非单轴各向异性。

综上所述 2#, 3# 样品多层膜, 由于表面和界面存在交换耦合作用, 表面模与一致共振模有不同的角度关系。这种差异对铁磁性 Ni 层厚度更薄的 4# 样品, 表现得更加突出。如图 7 所示。当 $\theta_H = 0^\circ$ 时, 一致共振场值最大, 而表面模共振场值有两个极大值都不在 $\theta_H = 0^\circ$ 位置。虽然一致共振场的角度关系仍保持单轴各向异性型。但表面模则表现为明显的非单轴各向异性。

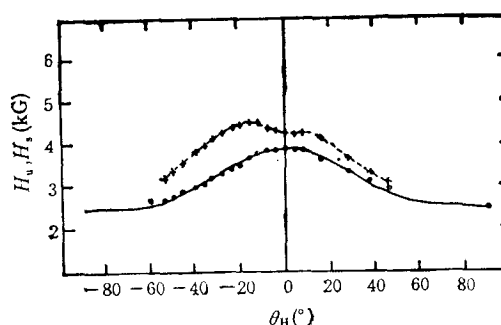


图 7 4# 样品一致共振场和表面模共振场值的角度关系 实线为计算结果

五、结 论

由拟合 Ni-FeCr 多层膜的一致共振场的角度关系, 确定膜体内铁磁性 Ni 层具有单轴各异性, 磁晶各向异性能: $E_K = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta$, 其中 $K_2/K_1 \approx 0.59$ 。

自旋波表面模共振场值的角度关系为非单轴各向异性, 它源于界面金属层间的交换耦合, 以及表面金属及其外面氧化层间的交换耦合起了重要的作用。

本工作中 X 射线衍射谱以及铁磁共振自旋波谱是本校结构分析开放研究实验室王昌燧、瞿保钧和徐云华等同志协助测量的, 在此表示感谢。

- [1] M. Komuro *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **Mag-23**(1987), 3701.
- [2] F. J. A. Den Broeder, *J. Appl. Phys.*, **60**(1986), 3381.
- [3] A. Kokubu *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **Mag-23** (1987), 2692.
- [4] J. Numazawa *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **Mag-23**(1987), 2476.
- [5] L. A. Pearey *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **Mag-23**(1987), 3716.
- [6] W. C. Cain *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **Mag-25**(1988), 2609.
- [7] L. J. Maksymowicz *et al.*, *J. Magn. Magn. Mat.*, **73**(1988), 11.
- [8] J. Spalek *et al.*, *Solid State Commun.*, **15**(1974), 559.

MAGNETIC ANISOTROPY AND SPIN SPECTRA IN Ni-FeCr MULTILAYER FILMS

CHEN HUI-YU LUO YOU-QUAN

Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei, 230026

(Received 21 August 1990)

ABSTRACT

Ni-FeCr multilayer films were prepared by diode sputtering technique. These multilayer films exhibit magnetic uniaxial anisotropy that is shown by fitting the angular dependence of ferromagnetic uniform resonance field. The anisotropy energy could be expressed by $E_K = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta$, where $K_2/K_1 \approx 0.59$. However the behavior of surface mode suggests that the surface and interface anisotropy of these multilayer films is not of the uniaxial type. We consider that is caused by the exchange coupling at the surface and interface.

PACC: 7570; 7530G; 7530D