

磁控溅射 Fe/Mo 多层膜的巨磁电阻 及层间耦合*

阎明朗 王亦中 赖武彦

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(1994 年 5 月 13 日收到)

研究了 DC/RF 磁控溅射 Fe/Mo 多层膜的磁电阻特性。在反铁磁性耦合的样品中, 观察到了磁电阻比率约为 12% 的巨磁电阻效应。当 Mo 层厚度改变时, 还观察到了周期约为 1.0—1.2 nm 的层间耦合振荡。另外, Fe/Mo 多层膜的磁电阻比率不仅随 Mo 层厚度改变出现振荡, 而且与 Fe 层厚度的改变也有着很强的依赖关系。

PACC: 7360D; 7570

1 引 言

近年来发现, 磁性金属和非磁性金属交替沉积构成的多层膜系统中, 相邻磁性层通过非磁性层的耦合可呈现出磁矩平行排列的铁磁性耦合态或磁矩反平行排列的反铁磁性耦合态。零磁场下具有反铁磁性耦合的多层膜, 只要给其面内施加足够大的磁场, 相邻磁性层的磁矩就会由反平行排列向平行排列发生变化, 并引起多层膜电阻值的大幅度下降, 即产生所谓的“巨磁电阻”(giant magnetoresistance) 效应。Fe/Cr, Fe/Cu, Co/Cu 和 Cu/Ru 等是目前大家比较熟悉的系统^[1-4]。在这些系统中, 由于各个元素的 d 能带填充不同, 它们的磁电阻比率差别相当大, 比如在低温下, Fe/Cr 系统的磁电阻比率已超过 120%^[1], Fe/Cu 系统的磁电阻比率却仅有 12%^[2], 而 Co/Ru 系统的磁电阻比率就更小, 不超过 7%^[4]。

对于层间耦合问题的研究发现, 如果固定磁性层厚度, 改变非磁性层的厚度, 很多系统相邻磁性层之间都会出现铁磁性耦合和反铁磁性耦合的振荡现象。振荡周期约在 1.1—2.1 nm 之间^[4]。由于这种振荡周期比 RKKY 相互作用所期望的值要大得多, 又引起了很多理论研究工作者的极大兴趣。但迄今为止, 以 Fe 为磁性层, 层间耦合以及巨磁电阻的理论和实验研究, 大多都集中在以 3d 过渡元素为非磁性层的系统中, 而对 4d 过渡元素为非磁性层的系统, 以及磁性层厚度改变对层间耦合作用和磁电阻的研究却不多。目前, 仅有 Fe/Ag 及 Fe/Mo 系统被报道过。在 Fe/Ag 系统中, Unguris 等已经观察到了层间耦合振荡^[5], 巨磁电阻也被 Yu 等^[6]观察到。可是在 Fe/Mo 系统中, 仅观察到的是层间铁磁性和反铁磁性耦合的振荡^[8,9], 而与反铁磁性耦合密切相关的巨磁电阻迄今尚

* 国家自然科学基金、磁学国家重点实验室资助的课题, 并得到北京市中关村地区联合分析测试中心部分资助。

未被观察到。

本文研究了磁控溅射 Fe/Mo 多层膜的磁电阻 (magneto resistance) 特性。在 Fe/Mo 多层膜中, 观察到了巨磁电阻以及磁电阻比率随 Mo 层厚度改变出现的振荡。这个振荡行为与 Fe/Mo 系统中所观察到的克尔效应振荡一致。另外, Fe/Mo 多层膜的磁电阻比率不仅随 Mo 层厚度改变出现振荡, 而且与 Fe 层厚度的改变也有着很强的依赖关系。

2 样品制备与测量

Fe/Mo 多层膜样品采用 DC/RF 溅射方式, 在微机控制的磁控溅射台上制备。溅射系统本底真空度优于 3×10^{-5} Pa, 溅射气压为 0.5 Pa。Fe 靶和 Mo 靶功率分别选 30 和 40 W, 基片为通水冷却的盖玻片。抽一次真空制备同一 Fe 层厚度, 不同 Mo 层厚度或同一 Mo 层厚度, 不同 Fe 层厚度的 8 个样品。多层膜各单层厚度根据沉积速率由溅射时间控制。沉积速率是这样确定的, 首先固定和制备多层膜相同的溅射条件, 改变沉积时间, 制备出一系列不同厚度的 Fe 膜和 Mo 膜。然后用台阶仪测出各个样品的厚度, 台阶仪的准确度可精确到 ± 1 nm。分别作出 Fe 膜和 Mo 膜的厚度与沉积时间的关系, 再从这个关系曲线上确定沉积速率。多层膜的调制周期用 X 射线小角衍射确定, 磁特性用振动样品磁强计测量。磁电阻测量采用四探针法, 测量时外加磁场平行膜面并且与电流方向垂直。磁电阻定义为 $\Delta R/R = (R_H - R_s)/R_s$, 其中 R_H 和 R_s 分别为外加磁场时多层膜的电阻和饱和时多层膜的电阻。

3 结果与讨论

首先, 用 X 射线小角衍射分析, 证实 Fe/Mo 多层膜样品周期结构的完整性。小角衍射峰来自于多层膜周期结构的衍射, 衍射峰的级数越多, 强度越大, 多层膜的周期结构就完美。小角衍射峰之间的峰则来自于界面的干涉, 干涉峰越多, 界面也就越清晰。我们制备的样品都有一至三级小角衍射峰^[10], 表明样品都存在着层状周期结构。从小角衍射峰位置所确定的调制周期与我们预先设定的周期相比是一致的, 误差小于 5%。Petroff 等^[11]在研究 Fe/Cr 多层膜的巨磁电阻时认为, 与自旋相关的电子散射来自清晰界面的相对贡献较小, 磁电阻也较小。适当的界面粗糙度有利于增强 Fe/Cr 多层膜的磁电阻。根据他们的实验结果以及相应的理论分析, 我们认为, 对于 Fe/Mo 多层膜系统, 适当的界面粗糙度也可能有利于巨磁电阻的出现。因此制备了界面比较粗糙的 Fe/Mo 多层膜样品。尽管目前不能从小角衍射的数据定量得出界面的粗糙度, 从干涉峰的强度和数目定性分析表明, 我们制备的 Fe/Mo 多层膜样品比 Brubaker 等^[9]制备的样品界面要粗糙。高级超晶格的消失也表明 Fe 层和 Mo 层的界面多少有些混合。有关界面粗糙度的详细讨论将在另文中发表。

图 1 给出 Fe/Mo 多层膜样品磁电阻随外磁场的变化曲线。从图 1 中看到, Fe/Mo 多层膜磁电阻随外磁场的变化与 Fe/Cr, Fe/Cu 系统相似。当 Mo 层厚度为 1.1 nm 时, 磁电阻比率在 4.2 K 时约 12%。这个值与 Fe/Cu 系统相当^[12]。Mo 层厚度为 2.2 和 3.5 nm 时, 磁电阻比率分别约为 7% 和 4%。根据文献[12]所给出的关系 $J = H_s M_s t_{Fe} / 4$,

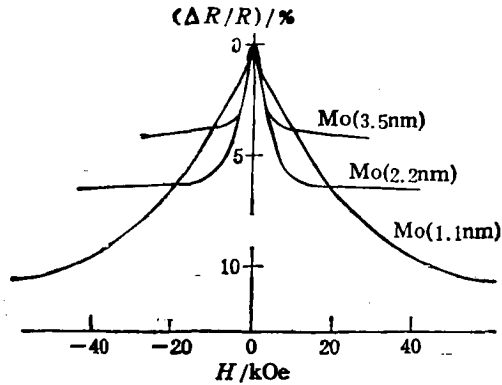


图1 温度为 4.2 K 时, $\text{Fe}(6.0\text{nm})/[\text{Fe}(1.0\text{nm})/\text{Mo}(t\text{nm})]_n$ 多层膜样品磁电阻随外磁场的变化曲线 $\text{Fe}(6.0\text{nm})$ 表示厚度为 6.0 nm 的 Fe 缓冲层; $\text{Fe}(1.0\text{nm})$ 表示 Fe 的厚度固定为 1.0 nm; t 表示 Mo 层的厚度, 分别为 1.1, 2.2 和 3.5 nm, 30 表示 Fe 和 Mo 的重复周期

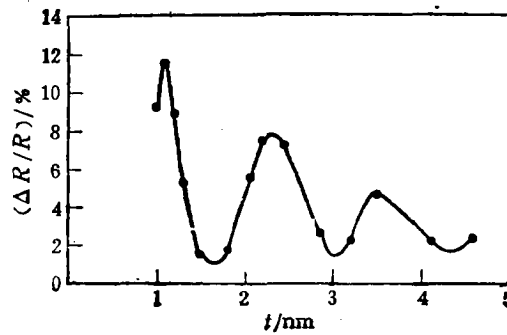


图2 温度为 4.2 K 时, $\text{Fe}(6.0\text{nm})/[\text{Fe}(1.0\text{nm})/\text{Mo}(t\text{nm})]_n$ 多层膜样品磁电阻比率随 Mo 层厚度改变的关系 峰值是反铁磁性耦合态, 表示巨磁电阻与 Mo 层厚度的关系

估计了层间耦合强度 J , 式中 H_s 为饱和场, 数值从磁电阻曲线上确定^[2,4,12], M_s 和 t_F 分别为 Fe 层的饱和磁化强度和厚度。当 Fe 层厚度 t_F 固定为 1.0 nm, Mo 层厚度为 1.1 nm 时, 耦合强度约为 $2.02 \text{ erg} \cdot \text{cm}^{-2}$, 这个值比 Fe/Cu 系统的耦合强度几乎大一个数量级^[2], 而与 Co/Ru 系统是同一个数量级^[4]。如此大的耦合强度不可能是磁性层间的静磁耦合。Mo 层厚度为 2.2 和 3.5 nm 时, 耦合强度分别约为 0.5 和 $0.16 \text{ erg} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。也就是说, 在 Mo 层厚度为 3.5 nm 时, 反铁磁性耦合强度仅为 Mo 层厚度为 1.1 nm 时耦合强度的 1/12。这种耦合强度的急剧下降表明反铁磁性耦合与 Mo 层厚度有着强烈的依赖关系。

图 2 是 Fe/Mo 多层膜样品磁电阻比率随 Mo 层厚度改变的关系曲线。从图 2 中看出, 磁电阻比率随 Mo 层厚度改变出现振荡, 其振荡行为与在 Fe/Mo 多层膜中所观察到的克尔效应振荡一致^[9], 周期为 1.0—1.2 nm。这种磁电阻比率的振荡行为被认为是层间交换耦合常数的振荡, 即磁性层间反铁磁性耦合与铁磁性耦合相互交替变换的结果。磁性层间反铁磁性耦合对应磁电阻比率的峰值, 而铁磁性耦合则对应磁电阻比率的谷值。在 Mo 层厚度为 0.8—4.6 nm 的范围, 如果只考虑反铁磁性耦合态(峰值)磁电阻比率的行为, 我们看到, 磁电阻比率随 Mo 层厚度增加急剧下降。这种行为在 Co/Cu, Co/Ru 系统中已经观察到^[3,4]。根据 Camley 等^[13]的理论, 引起磁电阻比率急剧下降的原因是较厚的非磁层减弱了磁层间的反铁磁性耦合强度, 使相邻磁性层的磁矩混乱排列。当非磁性层的厚度相当或大于电子平均自由程时, 与自旋相关的散射在非磁性层界面部分地失去耦合, 即太厚的非磁层抑制了在其两个界面电子所受到的自旋相关散射^[14]。再来看铁磁性耦合的半周期(谷点), 从图 2 中发现, 磁电阻比率都比较小。这个行为完全不同于 Fe/Cu, Co/Cu 等系统^[2,9]。在 Fe/Cu 及 Co/Cu 系统中, Petroff^[2] 和 Mosca^[9]等认为, 当 Cu 层厚度增加时, 磁性层之间的反铁磁性耦合和铁磁性耦合强度都减弱, 这时磁性层之

间的磁矩已不再是完全反平行或平行排列,而是相对混乱排列。其结果表现为在反铁磁性耦合态时,磁电阻比率相对减小,在铁磁性耦合态时,磁电阻比率相对增加。而在 Fe/Mo 系统中,磁电阻比率在铁磁性耦合态时都比较小,这表明与 Mo 层厚度的依赖关系较弱,可能是磁性层间的铁磁性耦合比较强所致。由于相邻 Fe 层的磁矩可能完全平行排列,磁化时相邻磁性层磁矩不发生相对变化,在 Fe 层内部及界面仅发生某一种自旋的电子散射,而另一种自旋的电子不受到散射,所以铁磁性耦合态磁电阻比率相对都比较小。

决定磁电阻大小的主要因素不仅是非磁性层的厚度,而且磁性层的厚度也是一个不可忽略的参数。把 Mo 层厚度固定为 1.1 nm,改变 Fe 层厚度,对 Fe/Mo 多层膜磁电阻特性进行分析发现,磁电阻比率对 Fe 层厚度改变也有着明显的依赖关系。图 3 给出 Fe/Mo 多层膜磁电阻比率随 Fe 层厚度的变化关系,饱和场 H_s 随 Fe 层厚度的变化关系也

同时在图 3 中给出。从图 3 中看出,在 Fe 层厚度为 1.0 nm 左右时,磁电阻比率最大,约为 12%。无论将 Fe 层厚度增加或减小,磁电阻比率都呈下降趋势。当 Fe 层厚度超过 1.5 nm 时,磁电阻比率约为 2%,并且基本不再随 Fe 层厚度增加发生变化。另外,随着 Fe 层厚度增加,饱和场 H_s 则呈下降趋势。

理论分析认为巨磁电阻效应基于磁性层和非磁性层界面上电子自旋相关的散射和电子的平均自由程。Barthelemy 等^[4]用半经典理论成功地解释了 Fe/Cr 及 Co/Ru 系统的巨磁电阻随非磁性层的变化。对于巨磁电阻随磁性层的变化关系他们也作了预计。在 Fe/Mo 多层膜中,这方面的实验研究最近才刚刚开始。有待进一步深入探讨。

4 结 语

用磁控溅射法制备了 Fe/Mo 多层膜,研究了界面粗糙度、Fe 层厚度改变及 Mo 层厚度改变对 Fe/Mo 多层膜巨磁电阻的影响。温度为 4 K 时,在反铁磁性耦合的 Fe/Mo 多层膜中,观察到了磁电阻比率约为 12% 的巨磁电阻效应。Mo 层厚度改变时,相邻磁性层出现反铁磁性耦合和铁磁性耦合的振荡,振荡周期为 1.0—1.2 nm。Fe 层厚度为 1.0 nm 时,磁电阻比率达到最大。Fe/Mo 系统出现巨磁电阻的关键是,适当的界面粗糙度和减薄 Fe 层厚度。来自清晰界面对与自旋相关电子散射的相对贡献比较小,磁电阻比率就较小。较厚的 Fe 层厚度限定了电子所能穿越界面的相对数目,减少了电子所受

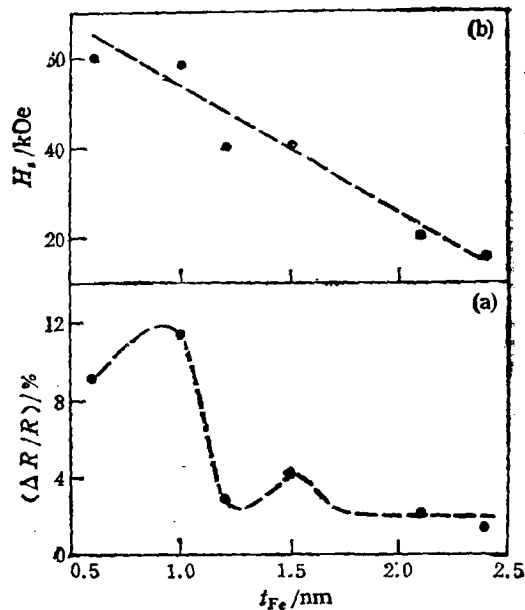


图3 温度为 4.2 K 时, Fe(6.0 nm)/[Fe(t_{Fe} nm)/Mo(1.1 nm)]₁₀ 多层膜 (a) 磁电阻比率和 (b) 饱和场 H_s 随 Fe 层厚度的变化关系

散射的相对次数,所以磁电阻比率也就较小。

作者对章综先生的关心和支持表示衷心的感谢。

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 2742.
- [2] F. Petroff, A. Barthelemy, D. H. Mosca, D. K. Lottis, A. Fert, P. A. Schroed W. P. Pratt, Jr., R. Loloee and S. Lequien, *Phys. Rev.*, **B44**(1991), 5355.
- [3] D. H. Mosca, F. Petroff, A. Fert, P. A. Schroeder, W. P. Pratt, Jr. and R. Laloee, *J. Magn. Magn. Mater.*, **94**(1991) L1.
- [4] S. S. P. Parkin, N. More and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 2304.
- [5] S. S. P. Parkin, R. Bhadra and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.*, **66**(1991), 2125.
- [6] J. Unguris, R. J. Celotta and D. T. Pridce, *J. Magn. Magn. Mater.*, **127**(1991), 205.
- [7] Chengtao YU, Shuxiang LI, Minglang YAN, Wanjun KU, Lin YIN, Yizhong WANG and Wuyan LAI, *Chinese Science Bulletin*, **39**(1994), 1680.
- [8] Z. Q. Qiu, J. Pearson and S. D. Bader, *J. Appl. Phys.*, **73**(1993), 5765.
- [9] Mary. E. Brubaker, J. E. Mattson, C. H. Sowers and S. D. Bader, *Appl. Phys. Lett.*, **58**(1991), 2306.
- [10] Minglang YAN, Wanjun KU, Shihui GE, Shuxiang LI, Chengtao YU, Lin YIN, Yizhong WANG and Wuyan LAI, *Chinese Science Bulletin*. (in press).
- [11] F. Petroff, A. Barthelemy, A. Hamzic, A. Fert, P. Etienne, S. Lequien and G. Creuzet, *J. Magn. Magn. Mat.*, **93**(1991), 95.
- [12] A. Barthelemy, A. Fert, M. N. Baibich, F. Petroff, P. Etienne, R. Cabanel, S. Lequien and F. Nguyen Van Dau, *J. Appl. Phys.*, **67**(1990), 5908.
- [13] R. E. Camley and J. Barnas, *Phys. Rev. Lett.*, **63**(1989), 664.
- [14] A. Barthelemy and A. Fert, *Phys. Rev.*, **B43**(1991), 13124.

GIANT MAGNETORESISTANCE AND INTERLAYER COUPLING IN MAGNETRON SPUTTERED Fe/Mo MULTILAYERS

YAN MING-LANG WANG YI-ZHONG LAI WU-YAN

(Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing 100080)

(Received 13 May 1994)

ABSTRACT

We have investigated the magnetoresistance of Fe/Mo multilayers prepared by DC/RF magnetron sputtering. A giant magnetoresistance with MR ratio about 12% at 4.2 K is observed in the samples with an antiferromagnetic interlayer coupling, and an oscillatory magnetic coupling is also observed as varying Mo layer thickness. Adjacent ferromagnetic Fe layers couple across the non-magnetic Mo layers ferro- or anti-ferromagnetically with a period about 1.0 to 1.2 nm. Of particular interests are that MR ratio is not only oscillatory as a function of Mo spacer thickness, but also closely related to Fe layer thickness.

PACC: 7360D; 7570