

Co/Cu₉₂Mn₈/Co 结构中的 低场巨磁电阻研究*

王 辉¹⁾²⁾ 曹 嵘¹⁾ 郑卫民³⁾ 金庆原¹⁾ 夏宇兴²⁾ 李富铭¹⁾

1)(复旦大学物理系, 三束材料改性国家重点实验室, 上海 200433)

2)(上海交通大学应用物理系, 上海 200030)

3)(中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

祝向荣 沈鸿烈

(中国科学院上海冶金研究所信息功能材料国家重点实验室, 上海 200050)

金晓峰

(复旦大学应用表面物理国家重点实验室, 上海 200433)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 7 月 25 日收到修改稿)

对三明治结构的 Co/Cu/Co 和 Co/Cu₉₂Mn₈/Co 系列的巨磁电阻效应进行了研究, 发现两者的巨磁电阻均随中介层厚度作周期性振荡, 但是接近反相. 作为与 Co/Cu/Co 系统的比较, 发现若在 Cu 基中稀释 Mn 原子, 巨磁电阻随外磁场变化的曲线会有非常大的改变, 同时饱和场或开关场也有较大的下降. 这意味着有可能为 Co/Cu 金属多层膜的巨磁电阻的实用化研究开辟出一条新的思路.

PACC: 7550; 7215

1 引 言

自发现相邻磁性层通过非磁性层的反铁磁耦合^[1]以及 Fe/Cr, Co/Cu 等金属多层膜中存在巨磁电阻(GMR)效应^[2-4]以来, 不同多层膜系统振荡的层间耦合和巨磁电阻研究在过去 10 多年中引起了人们的极大兴趣, 至今仍是磁学界的一个研究热点. 从实用角度看, 低饱和场的巨磁电阻更以其潜在的应用前景和巨大的市场潜力, 引起了人们的广泛关注. 低场自旋阀型和隧道结型巨磁电阻目前已取得相当进展^[5-7]. 但是金属多层膜中合金型巨磁电阻的研究却鲜见报道.

Co/Cu 系列是目前金属多层膜巨磁电阻研究中得到巨磁电阻值较大的一个系统, 也是研究较多的一个系统. 目前之所以未能投入应用, 主要是其饱和场太大. 如果能在保持相对高的巨磁电阻值的同时, 降低其饱和场/开关场, 对于实际应用而言无疑是具有重要意义. 在 Co/Cu 系列中利用磁性层掺杂降低饱和场的工作已有报道, Zhou 等^[8]利用

* 国家自然科学基金(批准号: 19674012)、上海市科技发展基金(批准号: 98ZA14014)和上海市应用物理中心资助的课题.

CoAl 合金作为磁性层,在 Co-Al/Cu 多层膜中发现这种系统的饱和场比 Co/Cu 系列的要低许多,虽然巨磁电阻有所降低,但是其灵敏度却有很大的提高.非磁性层的掺杂将如何影响巨磁电阻行为也是人们想了解的问题.实际上,美国海军实验室的 Daughton 小组曾在这方面做过许多工作,他们曾用与 Cu 有关的合金(CuNi, CuZn^[9]和 CuAg^[10])作为非磁层对巨磁电阻进行过研究,但是他们不是针对低场行为的.本文报道用 CuMn 合金作为中介层取代 Cu 层后,巨磁电阻发生大的行为变化.

2 实 验

系列样品为 Co(2.0 nm)/CuMn(d_{CuMn})/Co(2.0 nm),作为不同中介层的比较,我们同时制备系列样品 Co(2.0 nm)/Cu(d_{Cu})/Co(2.0 nm).两个系列均采用磁控溅射制备,保持 Co 层厚度 2.0 nm 固定不变,中间层厚度从 0.6 到 4.0 nm 变化.实验时本底真空度为 4.6×10^{-5} Pa,溅射时的 Ar 气压为 0.3 Pa. CuMn 合金膜采用 Cu 和 Mn 复合靶,即把体积和形状完全相同的一些 Mn 小立方体颗粒均匀摆放在 Cu 靶的溅射区域上(这样制备的样品可以避免合金型靶材因为 Cu 和 Mn 的溅射率不同而导致溅射成分的不稳定),通过直流溅射获得. Co 和 CuMn 的沉积速率分别为 0.08 和 0.1 nm/s. 为了研究缓冲层对样品磁电阻 MR 的影响,我们又重复了某些样品,并沉积了 5 nm 厚的 Fe 缓冲层. CuMn 合金膜的成分由 X 射线光电子谱(XPS)和扫描电子显微镜-能量色散 X 射线(SEM-EDX)确定,结构由大角 X 射线衍射测定,样品的 $M-H$ 回线由表面磁光克尔效应(SMOKE)谱仪和振动样品磁强计(VSM)测定,其中 SMOKE 测量中使用的激光波长为 632.8 nm,光斑直径为 0.3 mm,入射角为 15°,测量精度为 0.1 毫度,最大磁场为 1.6×10^5 A/m.

3 结果及讨论

3.1 CuMn 合金膜的成分、结构及磁性特征

CuMn 合金膜的成分由 XPS 和 SEM-EDX 确定,两者测试结果基本接近, Mn 和 Cu 的原子比为 8:92. 为了了解 Cu 中 Mn 的结构,我们又测定了单层 Cu₉₂Mn₈ 合金膜的大角 X 射线衍射,未发现 Mn 原子的特征谱,初步认定为由于 Mn 原子含量不高, Mn 原子已溶于 Cu 结构中. 图 1 是单层 Cu₉₂Mn₈ 合金膜的 X 射线大角衍射谱. X 射线衍射谱显示,单层 Cu₉₂Mn₈ 合金膜具有 Cu(111), Cu(200), Cu(220)和 Cu(311)多晶结构. SEM 测试显示 Cu₉₂Mn₈ 合金膜的表面构成非常均匀,没有出现大的颗粒状形成物;另外,用 XPS 溅射剥离方法对不同位置 CuMn 合金膜的成分进行了测量,发现 Mn 原子在 Cu 基中分布非常均匀. 单层 CuMn 合金膜由 VSM 测定其 $M-H$ 曲线,结果为一条直线,说明该 CuMn 合金膜未显示磁性. SMOKE 测量得到同样结果.

3.2 磁电阻研究

图 2 是 Co(2.0 nm)/Cu(d_{Cu})/Co(2.0 nm)系列和 Co(2.0 nm)/Cu₉₂Mn₈(d_{CuMn})/Co

(2.0 nm)系列样品的磁电阻随 d_{Cu} 或 d_{CuMn} 变化的曲线. 从周期性的振荡曲线上可以看出, 随着中介层 Cu 或 $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ 厚度的变化, 相邻 Co 层之间都存在着铁磁 \rightarrow 反铁磁交换耦合的交替变化, 这是间接交换耦合的特征.

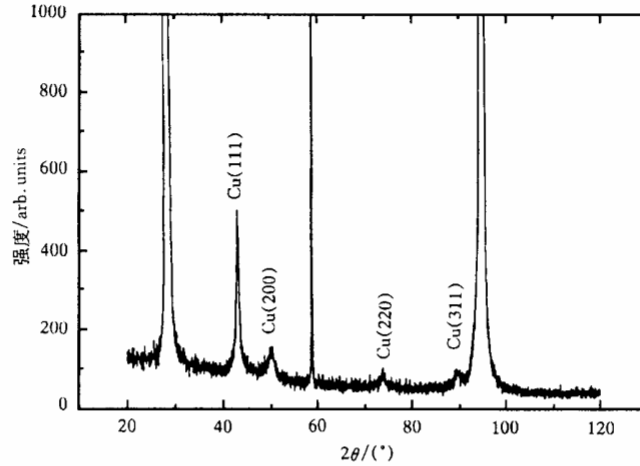


图 1 单层 $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ 合金膜的 X 射线大角衍射谱

Co/Cu/Co 系列的峰位分别出现在 0.7, 1.6 和 2.6 nm 处, 峰值大小分别为 4.2%, 2.9% 和 3.1%, 振荡周期约为 1.0 nm; 但是 Co/ $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ /Co 系列有明显的峰位移动, 其峰位分别出现在 1.2, 2.2 和 3.1 nm 处, 峰值大小分别为 2.8%, 1.4% 和 1.5%, 振荡周期也约为 1.0 nm, 与 Co/Cu/Co 系列的周期类似. 但是其振荡峰的宽度比 Co/Cu/Co 系列要宽, 表明对于形成相邻 Co 层的磁化强度的反平行排列, 间隔层厚度在这里不是非常敏感的因素. 此外, 两种系列的磁电阻值随 Cu 层的厚度虽然作周期性振荡, 但其峰值高度的轨迹不是常见的双曲线, 这可能与制备工艺有关.

磁电阻第一峰值为 2.8% ($d_{\text{CuMn}} = 1.2$ nm), 比 Co/Cu/Co 系列的第一峰值略小, 但使其从反平行状态到平行状态的开关场要比 Co/Cu/Co 系列小许多. 图 3 分别是 Co/Cu/Co 系列和 Co/ $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ /Co 系列第一峰样品的 MR-H 曲线, 可以看出它们的 MR-H 曲线有很大的区别, 后者是双峰结构(这种结构常见于不完全耦合), 而前者则是典型的耦合型的钟型结构. 从图 3 可以看出, 使其从磁化强度平行排列的状态到磁化强度反平行排列的状态只需 2.4 kA/m 的外场, 而此种情况对 Co/Cu/Co 系列而言, 大概需要 80 kA/m 的外场, 后者比前者小许多. 另外, 两者的 MR-H 曲线形状也有非常大的不同, Co/ $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ /Co 系列的 MR-H 曲线非常陡峭(峰值附近), 而 Co/Cu/Co 系列却比较平缓. 因此, Co/ $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ /Co 系统的灵敏度要比 Co/Cu/Co 系统的灵敏度大得多.

Cu 中掺 Mn 有如此之大的磁电阻行为变化, 这有两个可能的原因: (1) 与 $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ 的结构有关. 在这种结构中 Mn 原子充当一种媒介, 它可以减弱相邻 Co 层之间的反铁磁耦合. 但是, 到目前为止没有证据证明这种含量的 $\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$ 合金能表现出磁学的特性, 仅有文献指出这种含量的合金($\text{Cu}_{92}\text{Mn}_8$)是一种自旋玻璃态^[11]. (2) 与两个 Co 层的不同局域

开关场(或者不同矫顽力)有关,其磁电阻随外场的变化曲线似乎说明了这一点.因为只有磁性层的局域开关场不同(或者矫顽力不同),才有可能导致如此尖锐的双峰结构.相同厚度的 Co 层具有不同的矫顽力可能来自每层的 Co 具有不同的界面状况,如下面的 Co 层具有和 Si 衬底的界面,而上层的 Co 就没有.

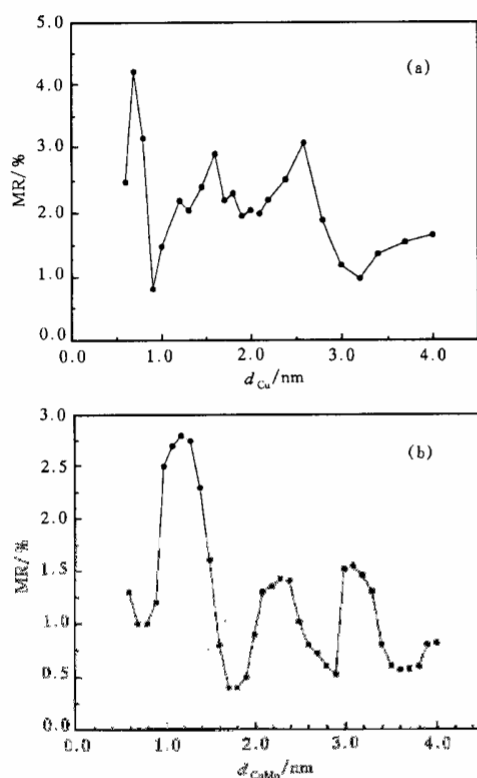


图2 Co(2.0 nm)/Cu(d_{Cu})/Co(2.0 nm)(a)和 Co(2.0 nm)/Cu₉₂Mn₈(d_{CoMn})/Co(2.0 nm)(b)的MR随中介层厚度变化曲线

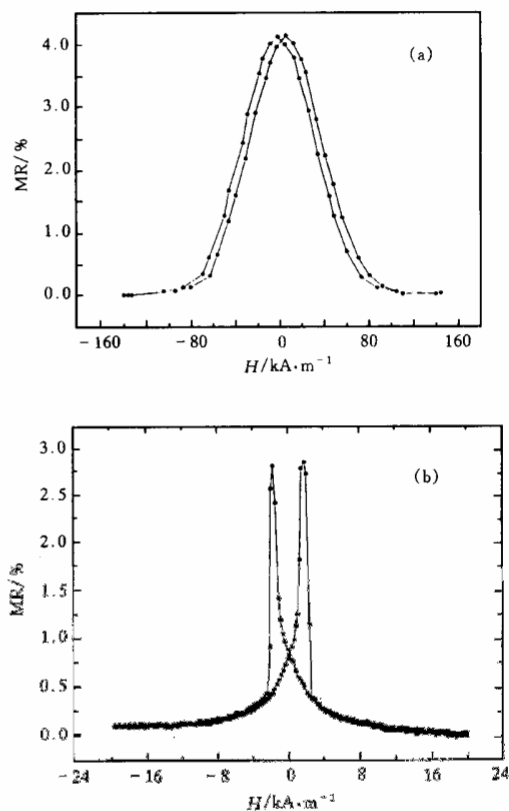


图3 Co/Cu/Co系列(a)和Co/Cu₉₂Mn₈/Co系列(b)第一峰样品的MR-H曲线

为了进行对比,我们又制备了带有Fe缓冲层的Co/Cu₉₂Mn₈/Co的系列样品,Fe缓冲层的厚度为5 nm,作用是使衬底更光滑、平整.图4是加Fe缓冲层的对应振荡第一峰值的样品Fe(5.0 nm)/Co(2.0 nm)/Cu₉₂Mn₈(1.2 nm)/Co(2.0 nm)的MR-H曲线.

我们发现,增加了Fe缓冲层后,第一峰值样品的巨磁电阻从2.8%增加到3.8%.MR-H曲线的形状稍有改变,但仍然很陡峭,仍保留开关场机制,但是开关场增大到3.2 kA/m,说明界面的变化会引起MR-H曲线的一些变化.

为了进一步了解从Co/Cu/Co系列到Co/Cu₉₂Mn₈/Co系列巨磁电阻行为的巨大变化,我们分别对Co/Cu/Co和Co/Cu₉₂Mn₈(1.2 nm)/Co第一峰值样品进行了SMOKE测量(或许用交流梯度场磁强计能进行更准确的测量,这方面的工作有待进一步加强),发现

Co/Cu₉₂Mn₈(1.2 nm)/Co 第一峰值样品的回线上明显出现两个台阶(见图 5), 正好分别对应其 MR-*H* 回线的双峰位置. 而 Co/Cu/Co 第一峰值样品的回线上却没有发现台阶. 台阶是由于两磁性层具有不同的矫顽力(H_c)引起的. Co/Cu₉₂Mn₈(1.2 nm)/Co 系列样品普遍存在这个现象, 这与它的两个 Co 层具有不同的界面状况有关.

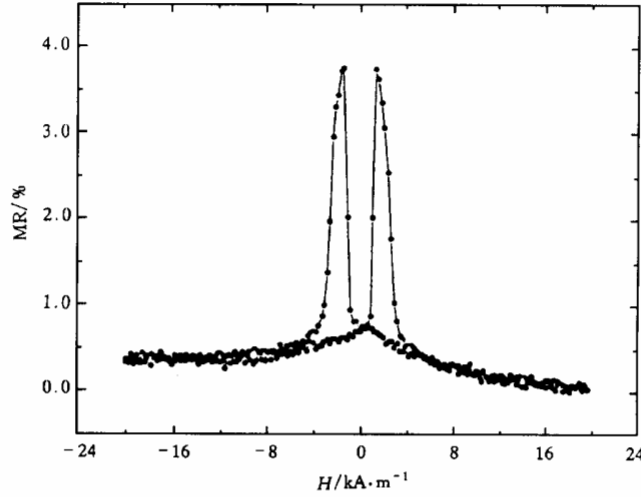


图 4 Fe(5.0 nm)/Co(2.0 nm)/Cu₉₂Mn₈(1.2 nm)/Co(2.0 nm)的 MR-*H* 曲线

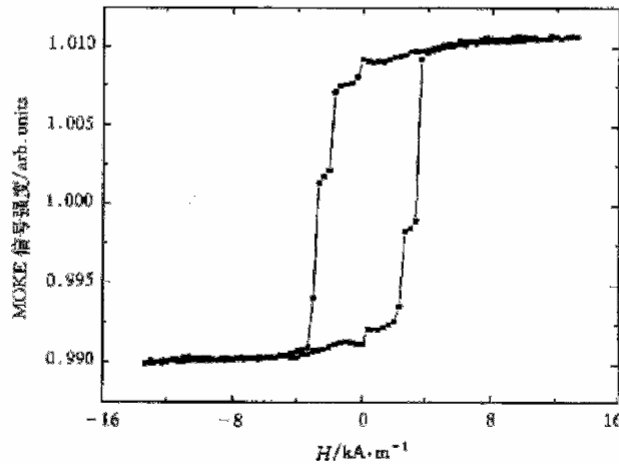


图 5 Co/Cu₉₂Mn₈/Co 系列第一峰样品的 SMOKE 回线

Co/Cu₉₂Mn₈/Co 夹层膜中的巨磁电阻表现出以下奇异现象:一方面其磁电阻随非磁层厚度的周期振荡,反映出它具有间接交换耦合特点,另一个方面 MR-*H* 回线的尖锐双峰结构又显示出它具有局域开关场特点(由相邻的两个 Co 层具有不同的矫顽力引起的).基于这两个特点,我们认为 Co/Cu₉₂Mn₈/Co 的巨磁电阻效应可能来自这两个方面的共同作用.特别是如果反铁磁交换耦合不是很强的情况下,那么在夹层结构中不同矫顽力

引起的开关场机制就可能会表现出来.

为了确切了解掺 Mn 后交换场的行为变化, 还需作进一步的实验对比. 例如, 使两 Co 层具有不同的厚度或者使用自旋钉扎层等可能是比较有效的方法, 我们正在进行这类实验研究.

4 结 论

在对 Cu₉₂Mn₈ 合金为中介层的巨磁电阻研究中, 我们得到了一个非常有意义的结果: 在 Co/中介层/Co 结构中, 以 Cu₉₂Mn₈ 合金替代 Cu 层后, 巨磁电阻行为发生了很大变化, 饱和场/开关场降低了约一个数量级, 而系统仍保持相当高的巨磁电阻值. 这意味着我们有可能为 Co/Cu 金属多层膜巨磁电阻的实用化研究开辟出一条新的思路.

- [1] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsk, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.*, **57**(1986), 2442.
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 2472.
- [3] S. S. P. Parkin, R. Bhadra, K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.*, **66**(1991), 2152.
- [4] A. Barthélémy, A. Fert, M. N. Baibich, S. Hadjoudj, F. Petroff, P. Eitenne, R. Cabanel, S. Lequien, F. Nguyen Van Dau, G. Creuzet, *J. Appl. Phys.*, **67**(1990), 5908.
- [5] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, D. Mauri, *Phys. Rev.*, **B43**(1991), 1297.
- [6] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.*, **74**(1995), 3273.
- [7] C. H. Shang, G. P. Berera, J. S. Moodera, *Appl. Phys. Lett.*, **72**(1998), 605.
- [8] S. M. Zhou, L. Y. Chen, W. M. Zheng, W. R. Zhu, Y. Wang, Y. D. Wang, Y. X. Zheng, Q. Y. Jin, Y. H. Qian, *Appl. Phys. Lett.*, **69**(1996), 127.
- [9] J. M. Daughton, P. A. Bade, M. L. Jenson, M. M. M. Rahmati, *IEEE Trans. Magn.*, **28**(1992), 2488.
- [10] J. M. Daughton, *IEEE Trans. Magn.*, **30**(1994), 364.
- [11] A. Gavrin, J. R. Childress, C. L. Chien, B. Martinez, M. B. Salamon, *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 2438.

LOW FIELD GIANT MAGNETORESISTANCE BEHAVIOR IN Co/Cu₉₂Mn₈/Co STRUCTURES*

WANG HUI^{a)b)} CAO RONG^{a)} ZHENG WEI-MIN^{c)} JIN QING-YUAN^{a)} XIA YU-XING^{b)} LI FU-MING^{a)}

a) (*Department of Physics and State Key Laboratory for Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams, Fudan University, Shanghai 200433*)

b) (*Department of Applied Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030*)

c) (*State Key Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083*)

ZHU XIANG-RONG SHEN HONG-LIE

(*State Key Laboratory of Functional Materials for Informatics, Shanghai Institute of Metallurgy, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050*)

JIN XIAO-FENG

(*State Key Laboratory for Surface Physics, Fudan University, Shanghai 200433*)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 25 July 1999)

ABSTRACT

The giant magnetoresistance (GMR) effects in sandwiched Co/Cu/Co and Co/CuMn/Co structures have been investigated. The GMR oscillates with the spacer thickness for both cases, but nearly antiphased. With diluted Mn atoms in the Cu spacer, the GMR curve as a function of the magnetic field changes a lot, and the saturation/switching field for GMR can be reduced greatly compared with that in Co/Cu/Co systems. This may suggest one way to obtain a highly sensitive GMR.

PACC: 7550; 7215

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19674012), the Foundation for Development of Science and Technology of Shanghai (Grant No. 98ZA14014), and the Shanghai Research Centre of Applied Physics, China.