

退火对 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜 巨磁电阻效应的影响*

徐庆宇 倪 刚 桑 海 都有为

(南京大学固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 8 月 18 日收到修改稿)

采用多靶离子束溅射镀膜机制备了一系列不同退火温度的 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ (体积百分数) 颗粒膜样品, 发现样品的巨磁电阻效应随着退火温度 T_a 的升高而单调下降. 应用磁力显微镜对样品的磁结构进行了观测, 发现随着退火温度的升高, 近邻的 Co 颗粒的磁矩倾向于平行排列, 形成磁畴结构, 从而导致 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜巨磁电阻效应单调下降.

PACC: 7360H; 7570K; 4490

1 引 言

自从 Fe/Cr 和 Co/Cu 多层膜^[1,2]、 Co-Cu 颗粒膜^[3-5] 中发现巨磁电阻效应以来, 已对各种材料的巨磁电阻效应进行了广泛而深入的研究. 对于铁磁金属 (如 Fe, Co, Ni 等) 嵌入非磁介质 (如 Ag, Al_2O_3 , SiO_2 等) 的颗粒膜, 由于其具有并不太低的巨磁电阻效应, 以及易于制备而引起广泛的兴趣. 对于铁磁金属嵌入非磁金属介质, 如 Co-Ag 颗粒膜, 其巨磁电阻随着退火温度的升高先升高再下降, 存在一个最佳退火温度. 但是对 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜巨磁电阻效应的研究中却发现, 样品的巨磁电阻效应随着退火温度的升高而单调下降, 不存在一个最佳退火温度. 本文通过磁力显微镜对 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 退火样品的磁畴结构进行了观察, 并对这一现象作出解释.

2 样品制备与测量

采用北京科学仪器开发公司生产的 LJ-3 型多靶离子束溅射镀膜机制备 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜. 将 SiO_2 片贴在 Co 靶上而形成复合靶, 通过改变贴在 Co 靶上的 SiO_2 片的数量和位置来调控样品中 Co 和 SiO_2 的体积百分比. $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜沉积在玻璃基片上, 膜厚大约 200 nm. Co-SiO_2 颗粒膜中 Co 的体积百分数含量采用 EDAX PV-9100 X 射线能谱仪 (EDS) 测量. 所有的磁电阻测量中, 电流都沿着膜面. 样品的磁结构采用 Nanoscope III a

* 国家自然科学基金 (批准号: 19890310(4)), 国家攀登计划 (纳米材料科学) (批准号: NMS-07) 和江苏省自然科学基金 (批准号: BK97039) 资助的课题.

型多模扫描探针显微镜(SPM)观测,硅探针上镀了一层 Co,探针沿针方向磁化.

3 实验结果及讨论

图 1 为 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜样品的巨磁电阻随退火温度 T_a 变化的关系. 由于在磁场平行于电流和膜面时与磁场垂直于电流和膜面时, $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜的电阻随磁场变化曲线是不一样的, 所以我们测量了这两种情况下的磁电阻效应随退火温度的变化关系. 从图 1 可以清楚地看出, 在这两种情况下, 随着退火温度的升高, 样品的磁电阻效应都单调下降, 不存在一个最佳退火温度.

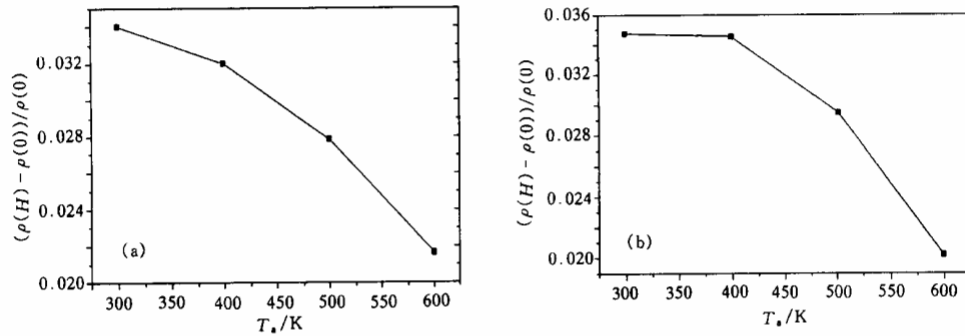


图 1 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜的巨磁电阻与退火温度的关系 (a) 外场 H 平行于膜面和电流, (b) 外场 H 垂直于膜面和电流, $H = 7.2 \times 10^5 \text{ A/m}$

图 2 显示了样品的磁畴结构随着退火温度 T_a 的升高而变化. 图 2 中亮和暗的区域分别代表不同的磁畴. 在未退火样品中没有观测到明显的畴结构; 随着退火温度的升高, 样品的畴结构变得越来越清晰, 在 500 K 时最清晰; 将退火温度继续提高后, 样品的畴结构又变得模糊了. 通过对退火样品的 TEM 观测^[6], 发现颗粒膜中的 Co 颗粒尺寸基本不随退火温度的提高而增大, 这可能的原因是: 由于在颗粒膜中 Co 颗粒为晶态而 SiO_2 为非晶, Co 与 SiO_2 之间没有共相, 因而退火对样品中两相分离影响很小; 且包在 Co 颗粒周围的非晶 SiO_2 阻碍了 Co 颗粒的运动和合并, 导致 Co 颗粒尺寸不随退火温度的提高而长大.

TEM 观测到 Co 颗粒尺寸大约为 1—2 nm^[6], 而从图 2 上可看出, 磁畴的尺寸大约为 10—20 nm, 远大于 Co 颗粒的尺寸. 这可能是由于退火有利于 Co 颗粒的晶化, 使 Co 颗粒的磁晶各向异性更强烈. 在退火过程中, 由于 Co 颗粒间的磁相互作用还要满足系统的静磁能最低, 从而形成尺度远大于 Co 颗粒的畴结构, 在每个畴内 Co 颗粒磁矩倾向于平行排列. 巨磁电阻与相邻磁矩夹角 ϕ 有关,

$$[\Delta R/R]_{\max} \propto -[\cos\phi_0 - \cos\phi_s],$$

其中 ϕ_0 为相邻磁矩在零场下的夹角, 而 ϕ_s 为加外场下的夹角^[7]. 由于相邻的 Co 颗粒磁矩随着退火温度的升高倾向于平行排列, ϕ_s 随着退火温度的升高而减小, 从而使 $-[\cos\phi_0 - \cos\phi_s]$ 值减小, 最终导致样品的巨磁电阻随着退火温度的升高而减小. 当退火

温度高于 500 K 时,可能由于退火温度很高,在 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜中 Co 的还原性大于 Si 的还原性,因而 Co 颗粒表面的 Co 将置换出 SiO_2 中的 Si. 这样在 Co 颗粒表面包有一层 CoO ,而颗粒间的 SiO_2 则变成 Si 和 SiO_2 的混合物,正如 Ohnuma 等^[8]对 Co-Al-O 系统的微结构研究所指出的那样,高温退火导致铁磁颗粒与非磁界面更模糊,颗粒间不再是电子隧穿导电,从而导致样品的巨磁电阻效应的进一步下降.同时也导致 Co 颗粒间的相互关联减弱,使样品的畴结构变模糊.

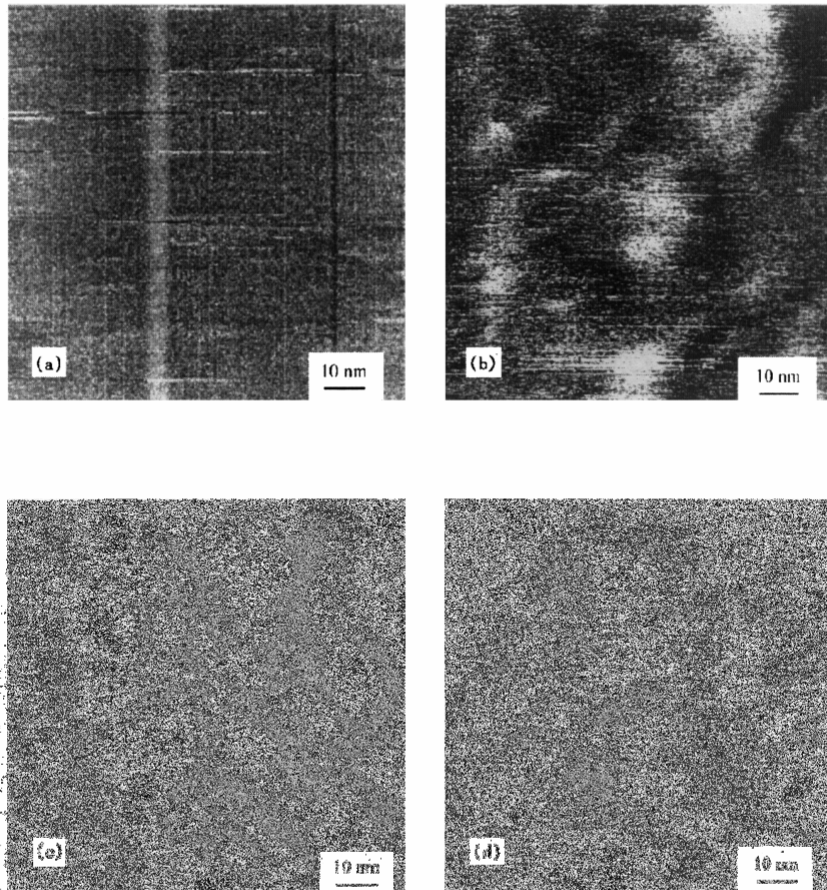


图 2 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜的畴结构 (a)未退火, (b) $T_d = 400 \text{ K}$, (c) $T_d = 500 \text{ K}$, (d) $T_d = 600 \text{ K}$

4 结 论

我们制备了一系列不同退火温度的 $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ 颗粒膜样品,发现样品的巨磁电阻随着退火温度的升高而单调下降.应用磁力显微镜对不同退火温度样品的磁畴结构进行了观测,发现未退火样品没有明显的磁畴,随着退火温度的逐渐升高,畴结构逐渐出现并变得清晰,到 500 K 时,样品的畴结构最为清晰.由于退火引起近邻的 Co 颗粒磁矩倾向于平行排列,使得外场引起的近邻 Co 颗粒磁矩相对转动角度减小,从而导致由近邻铁磁颗

粒间的电子自旋相关隧穿产生的巨磁电阻随退火温度的上升而下降。

- [1] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, C. H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.*, **57**(1986), 2442.
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 2472.
- [3] A. Berkowitz, A. P. Young, J. R. Mitchell, S. Zhang, M. J. Carey, F. E. Spada, F. T. Parker, A. Hutten, F. Thomas, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 3745.
- [4] J. Q. Xiao, J. S. Jiang, C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, **68**(1992), 3749.
- [5] J. Q. Xiao, J. S. Jiang, C. L. Chien, *Phys. Rev.*, **B46**(1992), 9266.
- [6] Q. Y. Xu, H. Chen, H. Sang, X. B. Yin, G. Ni, J. Lu, M. Wang, Y. W. Du, *J. Magn. Magn. Mater.*, **204**(1999), 73.
- [7] 陈慧余、孙勇、李志超、陈金昌、郑鹤、王艾玲, 物理学报, **47**(1998), 2046 [H. Y. Chen, Y. Sun, Z. C. Li, J. C. Chen, W. Zhen, A. L. Wang, *Acta Physica Sinica*, **47**(1998), 2046(in Chinese)].
- [8] M. Ohnuma, K. Hono, H. Onodera, S. Mitani, J. G. Ha, H. Fujimori, Fourth International Conference on Nanostructured Materials, 1998, preprint.

INFLUENCE OF ANNEALING TEMPERATURE ON THE GIANT MAGNETORESISTANCE OF $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ NANO-GRANULAR FILMS*

XU QING-YU NI GANG SANG HAI DU YOU-WEI

(State Key Laboratory of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 18 August 1999)

ABSTRACT

A series of $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ (volume fraction) nano-granular films of heat treatment at different annealing temperatures (T_a) were fabricated using ion-beam sputtering technique. The giant magnetoresistance of the samples was found to decrease with increasing annealing temperature. It was found that with increasing annealing temperature to 500 K, the magnetic domains of $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ nano-granular films were more and more clear, which showed that with increasing annealing temperature, the neighboring isolated Co particles tended to arrange their magnetic moments parallel to each other, thus led to the decrease of the giant magnetoresistance of $\text{Co}_{35}(\text{SiO}_2)_{65}$ nano-granular films with increasing annealing temperature.

PACC: 7360H; 7570K; 4490

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19890310(4)), the National "Climbing" Program for Nano-Materials Science of China (Grant No. NMS-07), and the Natural Science Foundation of Jiangsu Province (Grant No. BK97039), China.