

退火对 FeMn 钉扎自旋阀性质的影响^{*}

柴春林¹⁾ 滕 蛟²⁾ 于广华²⁾ 朱逢吾²⁾ 赖武彦³⁾ 肖纪美²⁾

¹⁾ 中国科学院半导体研究所半导体科学实验室, 北京 100083)

²⁾ 北京科技大学材料物理系, 北京 100083)

³⁾ 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(2001 年 11 月 8 日收到, 2002 年 2 月 2 日收到修改稿)

通过对退火后 FeMn 钉扎自旋阀磁性的研究表明, 真空退火对自旋阀的性质有影响. 低于 200℃ 的退火能有效提高钉扎场, 退火温度高于 200℃ 时, 自旋阀的钉扎场要下降, 其他性能也恶化. 在 300℃ 时, 钉扎场降为零, giant magnetoresistance (GMR) 现象消失. 俄歇电子能谱仪 (AES) 的结果表明, 在自旋阀多层膜中存在着晶界扩散.

关键词: 真空退火, 自旋阀, 晶界扩散

PACC: 7570P, 9160P

1. 引 言

自旋阀结构多层膜具有频率特性好、工作磁场小、灵敏度高和信噪比高等优点而率先进入实用化阶段, 得到了广泛的研究. 目前, 用作自旋阀钉扎层的材料有很多种, 如 FeMn, NiMn, CrMn, NiO 等^[1-11]. 其中 FeMn 仍旧是研究得很多的一种材料, 这主要是由于其钉扎场较大, 靶材料容易制备. 第一个自旋阀的钉扎场约在 2.5×10^{-2} T 以上, 目前这种材料的钉扎场已能达到 4×10^{-2} T 左右. 自旋阀的应用不仅与其磁场灵敏度有关, 而且还与其热稳定性有关^[12-20]. 在自旋阀制作成计算机硬盘读头过程中要经历大约 250℃ 左右数小时的热处理, 在这一温度下, 自旋阀各层之间要发生互扩散, 从而会引起其磁性的变化. 而且对于 FeMn 钉扎的自旋阀, FeMn 反铁磁性的截止温度大约在 150℃, 在 250℃ 时 FeMn 将失掉反铁磁钉扎作用, 从而使自旋阀性能恶化, 甚至 giant magnetoresistance (GMR) 现象消失. 因此, 研究自旋阀的热稳定性问题显得十分重要.

在本文中, 我们主要研究了真空退火对 Si/Ta/NiFe/Cu/NiFe/FeMn/Ta 结构自旋阀的性质及层间扩散的作用. 利用高分辨电子显微镜 (HREM) 观察了各层晶体生长状况, 研究了真空退火后样品的磁性与温度之间的关系. 为了研究 NiFe/FeMn 之间的热

扩散, 在相同的条件下制备了基片/Ta/NiFe/FeMn/Ta 结构的多层膜. 在经相同条件的退火后, 利用俄歇电子能谱仪 (AES) 研究了 NiFe/FeMn 层之间的互扩散, 并利用 Fisher 模型分析了 NiFe/FeMn 层之间的互扩散.

2. 实 验

自旋阀多层膜是用磁控溅射法制成的, 基片有水冷却. 在经过清洗后的单晶硅基片上依次镀膜为 Ta (10nm)/NiFe (5nm)/Cu (2.5nm)/NiFe (3nm)/FeMn (10nm)/Ta (6nm) (A 组) 和 Ta (20nm)/NiFe (15nm)/FeMn (15nm)/Ta (20nm) (B 组) 两种类型的多层膜. 制备 B 组样品是为了在研究 NiFe 与 FeMn 之间的扩散时, 尽可能减少其他原子的干扰; 另外 AES 在深度方向的探测精度大约在 1nm 左右, 这要求每个单层厚度不能太薄, 为此, 我们增加了 NiFe 被钉扎层和 FeMn 钉扎层的厚度. 镀膜前本底真空优于 5×10^{-5} Pa, 溅射工作氩气压为 0.4Pa, 各种金属材料的溅射速率在 $0.14-0.2 \text{ nm} \cdot \text{s}^{-1}$ 之间. 溅射时基片上加有 2.5×10^{-2} T 的磁场. 将这两种膜在相同条件下进行真空退火, 其真空度优于 4×10^{-4} Pa, 退火温度分别为 100, 150, 200, 250 和 300℃, 退火时间为 1h, 升温速度为 $10^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$. 在退火过程中, 沿 NiFe 的易

^{*} 国家自然科学基金重大项目 (批准号: 19890310) 资助的课题.

轴方向加有 $2 \times 10^{-2} \text{T}$ 的磁场. 用标准四探针法测量退火后的 A 组样品的磁电阻, 并用振动样品磁强计 (VSM) 测量磁滞回线, 得到了交换偏场. 用俄歇电子能谱仪分析 B 组样品, 获得了沿垂直膜面方向的成分分布曲线.

3. 结果与讨论

高分辨电子显微镜结果显示, 自旋阀多层膜沿垂直于膜面方向呈柱状晶生长, 晶粒尺寸约为 100nm. 图 1 所示为自旋阀多层膜经过不同温度退火处理后, 其磁电阻 MR 随退火温度 T 的变化. 在图 1 中, 曲线总的趋势表现出随退火温度的升高磁电阻 MR 减小的趋势, 但是在低于 150°C 时, MR 值并不是单调递减的, 而是在 100°C 时达到一个极小值, 150°C 时 MR 值反到变大. 这主要是由于样品在热处理时要发生两个过程, 即内应力的消除和层间原子的互扩散. 在镀膜时由于基片温度较低, 成膜速率又较快, 因而在膜内存在较大的内应力和较多的缺陷, 这些应力及缺陷的存在对磁电阻 MR 值有影响, 退火能有效的减小内应力, 消除缺陷, 从而提高磁电阻 MR 值^[21-22]; 另一方面, 随着退火温度的升高, 不同层之间的原子互扩散 (包括晶内扩散和沿晶界扩散) 会随之加剧, 在 100°C 时内应力的释放可能还不明显, 但界面上沿晶界的扩散已经发生, 因此磁电阻 MR 降低; 在 150°C 左右时, 内应力得到较大的释放, 其对磁电阻的有利影响要强于扩散的不利作用, 使得磁电阻 MR 值变大. 随着温度的进一步升高, 各层之间的扩散加剧, 同时膜间应力大部分已经得到释放, 表现出磁电阻减小; 在 300°C 时, 各层之间的扩散剧烈, 界面完全互混甚至合金化, 因此巨磁电阻现象完全消失.

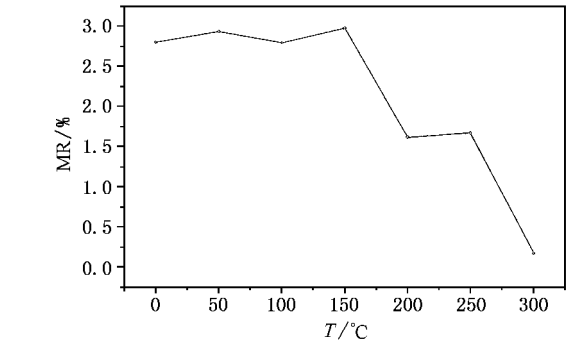


图 1 自旋阀的磁电阻 MR 与退火温度 T 的关系曲线

自旋阀样品在经过真空退火后, 不仅其磁电阻会发生改变, 而且其他一些性质也会改变. 图 2(a) 所示为经过不同温度退火后样品的磁滞回线, 由此可得到自旋阀样品的各种磁学性质. 图 2(b) 所示为不同温度退火后, 自旋阀的漂移场及自由层矫顽力的变化曲线. 在 100°C 以下随着温度的升高, 漂移场 H_f 逐渐变大, 但在 150°C 时变小以后又继续变大, 总体趋势为漂移场增加. 而自由层矫顽力的表现却完全不同, 在 50°C 时, 矫顽力为最小; 随后矫顽力增大, 但总的表现为矫顽力减小. 漂移场与两磁层之间的耦合有关, 退火后, 由于扩散作用使得钉扎效应增强等原因, 两磁层之间耦合增强, 漂移场变大.

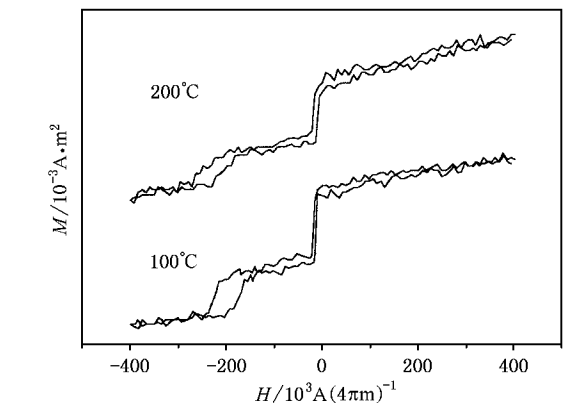


图 2(a) 自旋阀经退火处理后的磁滞回线

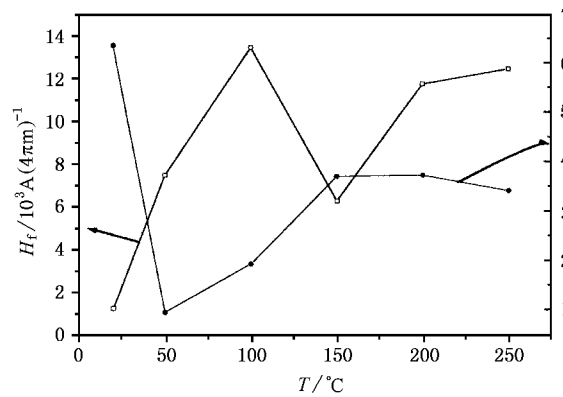


图 2(b) 自旋阀漂移场 H_f 及自由层矫顽力 H_{cl} 与温度 T 的关系

图 3 为自旋阀样品 Ta/NiFe/Cu/NiFe/FeMn/Ta 经过不同温度退火 1h 后, 交换偏场 H_{ex} 随温度 T 的变化关系. 从图 3 中可以看出, 交换偏场 H_{ex} 并不是随着退火温度的增加而单调递减的, 而是在 100°C 左右时 H_{ex} 减小到一个极小值后, 随着温度的增加 H_{ex}

也随之有所增加;当退火温度超过 200℃时, H_{ex} 开始减小;当温度达到 300℃时, H_{ex} 完全消失,即 FeMn 失去钉扎作用. 我们在其他样品中也观察到 H_{ex} 随退火温度变化的类似曲线. 自旋阀中单层金属膜厚仅仅几个纳米,呈多晶状态,受热后原子极易扩散. 另外,溅射法所制成的膜中特别是多层膜的界面,必然存在内应力,受热后可以得到松弛. 这两个过程是影响热稳定性的主要因素. 前者可作定量研究.

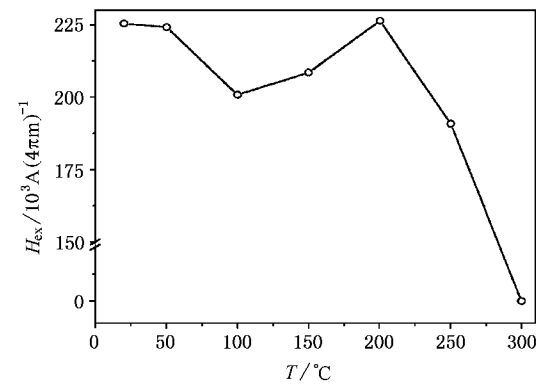


图 3 自旋阀交换偏场 H_{ex} 随退火温度 T 的变化关系

对于铁锰合金,不同的 Fe/Mn 原子浓度比所表现出的反铁磁性会有很大差异^[23], Fe/Mn 原子比约为 1:1 时,其反铁磁性最强,因而钉扎效应最佳. 原子间的扩散能改变 FeMn 层的成分,从而影响钉扎场的大小. 为此我们对 B 样品 Ta/NiFe/FeMn/Ta 沿垂直膜面方向进行了 AES 深度分析,所得的结果如图 4 所示. 从图 4 中可以看出,在 200℃以下时, NiFe/FeMn 之间发生扩散,但对 FeMn 层中 Fe 和 Mn 的原子浓度比影响不大,此时层间互扩散对钉扎场的影响不大. 但当温度高于 200℃时, NiFe/FeMn 之间的扩散加剧,互混层加宽,对 Fe 和 Mn 的原子浓度比有一定的影响;在 300℃时 Ta/NiFe/FeMn/Ta 四层之间相互扩散严重,四种原子混杂在一起,这时的互混层宽度约为 20nm,表明 NiFe 已经完全穿透了 FeMn 层,而且扩散到了 Ta 层,这自然要影响 FeMn 的磁性. 俄歇电子能谱的结果与交换偏场随温度的变化关系曲线是互相对应的.

按照 Fisher 模型,如果两层膜之间的扩散是沿晶界扩散,那么 $\ln C$ 与 $y^{6/5}$ 之间的关系呈线性关系^[24—27]. 其中 C 为沿垂直膜面方向上的原子浓度, y 为沿垂直膜面方向的深度. 由图 4 的数据,作出了 NiFe 层和 FeMn 层界面附近 Mn 原子的 $\ln C-y^{6/5}$ 的关系曲线,如图 5 所示. 从图 5 可以发现,在 100—

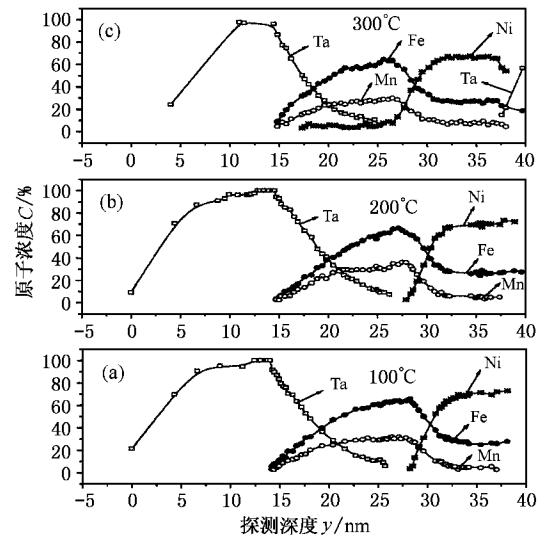


图 4 Ta/NiFe/FeMn/Ta 多层膜退火后,沿垂直膜面方向的成分分布

200℃温度范围内, Mn 原子的 $\ln C-y^{6/5}$ 曲线中在离开界面稍远处有一段呈很好的线性关系,表明在 NiFe 与 FeMn 层的互混中 Mn 原子存在着沿晶界扩散. 在紧靠界面处,由于同时存在体扩散和沿晶界扩散, $\ln C-y^{6/5}$ 不呈线性关系. 300℃时在界面附近不存在这种线性关系,表明此时晶内扩散的作用为主要扩散.

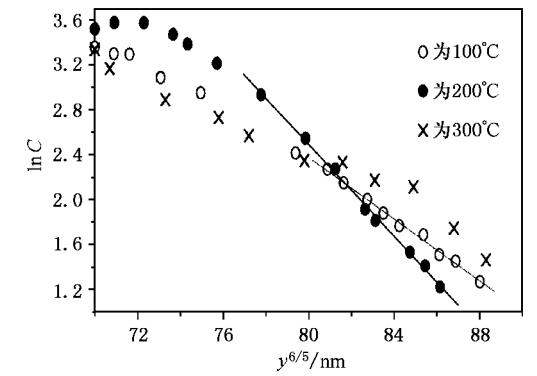


图 5 退火后, NiFe/FeMn 界面附近 Mn 原子的 $\ln C-y^{6/5}$ 关系曲线

4. 结 论

通过对退火后 FeMn 钉扎自旋阀磁性的研究表明,真空退火对自旋阀的磁性如磁电阻、漂移场和钉扎场等性质有影响. 低于 200℃的退火能有效的提高钉扎场,退火温度高于 200℃时,自旋阀的钉扎场要下降,其他性能也恶化;在 300℃时,钉扎场降为

零 ,GMR 现象消失. AES 的结果表明 ,在 200℃ 以下

300℃ 时体扩散的作用为主.

时薄膜中的层间扩散主要是沿晶界的扩散 ;在

[1] Nakamori T and Sakamoto S I 1996 *Nikkei Electron* . **5** 58

[2] Fujiwara H , Nishioka K and Metzger R 1996 *J. Appl. Phys* . **79** 6286

[3] Portier X , Petford-Long A K , Bayle-Guillemaud P *et al* 1998 *Appl. Phys. Lett* . **72** 118

[4] Norikazu Ohshima , Masafumi Nakada , Yuji Tsukamoto *et al* 1998 *IEEE Trans. Magn* . **14** 1429

[5] Dong Z C and Zhao S X 1999 *Acta Phys. Sin* . **48** 511(in Chinese)
[董正超、赵树宇 1999 物理学报 **48** 511]

[6] Li M H , Yu G H , Jiang H W , Cai J W and Zhu F W 2001 *Acta Phys. Sin* . **50** 2230(in Chinese)
[李明华、于广华、姜宏伟、蔡建旺、朱逢吾 2001 物理学报 **50** 2230]

[7] Lu Z Q , Chai C L and Lai W Y 2000 *Acta Phys. Sin* . **49** 328(in Chinese)
[卢正启、柴春林、赖武彦 2000 物理学报 **49** 328]

[8] McMichael R D , Watanabe T , Dura J A , Borchers J A *et al* 1996 *IEEE Trans. Magn* . **32** 4636

[9] Redon O , Albuquerque G B , Rodrigues L M *et al* 1998 *IEEE Trans. Magn* . **34** 562

[10] McMichael R D , Egelhoff W F Jr and Bennett L H 1995 *IEEE Trans. Magn* . **31** 3930

[11] Li S , Plaskett T S and Freitas P P 1998 *IEEE Trans. Magn* . **34** 3772

[12] Olivier R , Goncalo B , Freitas Paulo P *et al* 1998 *IEEE Trans. Magn* . **34** 562

[13] Cochrane R W , Huai Y *et al* 1994 *J. Appl. Phys* . **75** 1

[14] Huang C , Nozieres J P and Speriosu V S 1993 *Appl. Phys. Lett* . **62** 1478

[15] Oliveira N J , Ferreira J L , Pinheiro et al J 1997 *J. Appl. Phys* . **81** 4903

[16] Junichi Fujikata , Kazuhiko Hayashi , Hidefumi Yamamoto *et al* 1998 *J. Appl. Phys* . **83** 7210

[17] Szucs J , Obrien T and Lottis D K 1997 *J. Appl. Phys* . **81** 4014

[18] Van der Heijden P A A , Mass T F M M , de Jonge W J M *et al* 1998 *Appl. Phys. Lett* . **72** 492

[19] Toney M F , Tsang C and Kent Howard J 1991 *J. Appl. Phys* . **70** 6227

[20] Lai C , Regan Thomas J and White Robert L 1997 *J. Appl. Phys* . **81** 3989

[21] Alexander M , Zeltser and Pentek K 1998 *IEEE Trans. Magn* . **34** 1417

[22] Li S , Yan M , Yu C *et al* 1994 *J. Appl. Phys* . **75** 6504

[23] Cullity B D 1972 *Introduction to Magnetic Materials* (New York : Addison Wesley)

[24] Mishin Y , Herzig C and Bernardini 1997 *J. Magn. Magn. Mat* . **42** 155

[25] Kaur I , Mishin Y and Gust W 1995 *Fundamentals of Grain and Interphase Boundary Diffusion* (Chichester : Wiley)

[26] Kaur I , Gust W and Kozma L 1989 *Handbook of Grain and Interphase Boundary Diffusion Data* (Stuttgart : Ziegler)

[27] McMichael R D , Watanabe T and Egelhoff W F 1996 *IEEE Trans. Magn* . **32** 4636

Effects of annealing on properties of spin-valve pinned with FeMn alloy^{*}

Chai Chun-Lin¹⁾ Teng Jiao²⁾ Yu Guang-Hua²⁾ Zhu Feng-Wu²⁾ Lai Wu-Yan³⁾ Xiao Ji-Mei²⁾

¹⁾ (Laboratory of Semiconductor Materials Science, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

²⁾ (Department of Material Physics, Beijing University of Science and Technology, Beijing 100083, China)

³⁾ (Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(Received 8 November 2001; revised manuscript received 2 February 2002)

Abstract

The magnetic properties of spin-valve pinned by FeMn layer were investigated after it was annealed at different temperatures. Its property was dependent on the vacuum annealing temperature. The pinning field could be increased through annealing at a temperature lower than 200°C; the pinning field would reduce and other properties be deteriorated as the annealing temperature was higher than 200°C; the pinning effect lost and giantmagnetic resistance disappeared at 300°C. Based on the results of AES analysis it was concluded that the diffusion in spin-valve multilayer was along grain boundary.

Keywords : annealing, spin-valve, diffusion along grain boundary

PACC : 7570P, 9160P

^{*} Project supported by the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19890310).