

# NiFe/FeMn 双层膜交换偏置的形成及热稳定性研究

滕 蛟<sup>1)2)</sup> 蔡建旺<sup>2)</sup> 熊小涛<sup>1)</sup> 赖武彦<sup>2)</sup> 朱逢吾<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> (北京科技大学材料物理与化学系, 北京 100083)

<sup>2)</sup> (中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室, 北京 100080)

(2003 年 3 月 19 日收到, 2003 年 4 月 17 日收到修改稿)

研究了在铁磁 (NiFe) 反铁磁 (FeMn) 双层膜之间, 交换偏置的形成过程和热稳定性, 特别是 NiFe/FeMn 的交换偏置作用与 FeMn 层晶粒尺寸的关系. 和以前作者不同的是, 本文方法采用非磁性 Ni-Fe-Cr 合金作缓冲层材料, 改变 Cr 的含量就可以获得不同晶粒尺寸的反铁磁 FeMn 层. 实验表明, 晶粒尺寸较小的 FeMn 产生较强的铁磁/反铁磁交换偏置场, 但是, 对于较大晶粒的 FeMn 层, 出现交换偏置作用所要的临界厚度较小. 这符合 Mauri 提出的理论模型. 交换偏置场的热稳定性实验表明, 具有较大晶粒尺寸的 FeMn 层给出较高的偏置场的截止温度. 这和 Noshioka 的实验与理论一致, 即较大的反铁磁层晶粒具有较大的激活能和较长的弛豫时间.

关键词: 交换偏置, 热稳定性, 反铁磁, 晶粒尺寸

PACC: 7550

## 1. 引 言

铁磁 (FM) 反铁磁 (AF) 间的交换偏置现象被发现至今已 40 多年<sup>[1]</sup>, 近 10 年来交换偏置现象被广泛地应用于巨磁电阻 (GMR) 自旋阀多层膜和磁隧道结中, 在信息存储技术中有着重要的应用<sup>[2]</sup>. 深刻理解 FM/AF 交换偏置的物理机理, 并由此提高其性能是当前凝聚态物理磁学领域的研究热点. 到目前为止, 尽管提出过多种不同的理论模型来理解 FM/AF 体系交换偏置的微观机理, 但这些模型都只能解释某一些特定 FM/AF 体系或交换偏置现象的某一方面.

近年来, 由于对 GMR 器件性能的影响, 热稳定性 (thermal stability) \ 记忆效应 (memory effect) \ 锻炼效应 (training effect) 成为研究热点<sup>[3-6]</sup>. 已有很多的研究工作集中在热稳定性以及由此理解交换偏置的微观机理. Nishioka 等人提出了“热扰动模型” (thermal fluctuation) 来解释 FM/AFM 交换偏置的热稳定性问题<sup>[3]</sup>. 他采用的实验方法是在双层膜 FM/AFM 下面改变种子层 (Cu 层) 厚度, 可以有效地控制颗粒尺寸, 进而研究热稳定性和反铁磁颗粒大小的关系. 李明华等人<sup>[7]</sup>的研究表明, NiFe/FeMn 双层膜

的下面若有 Cu 层时, Cu 原子会扩散并在该双层膜的界面偏聚, 从而造成交换偏置的复杂性. 我们则采用另一途径, 即用新的种子层  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  来改变晶粒尺寸.  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  是一种新型的种子层材料. Lee, Mauri 等人的研究工作表明, 通过调整 Cr 的原子百分比, 可以改变在其上生长的 NiFe 薄膜的晶粒尺寸和织构强度, 其中在  $x = 0.4$  左右时薄膜具有远大于其他成分下的晶粒尺寸和超强织构<sup>[8]</sup>. 通过这一手段, 我们在不改变薄膜厚度的情况下, 实现了对反铁磁晶粒的控制, 看到了 NiFe/FeMn 双层膜的热稳定性与反铁磁的晶粒尺寸有关, 实验结果表明 NiFe/FeMn 双层膜也符合 Noshika 等人提出的“热扰动”模型.

## 2. 实 验

实验样品采用直流磁控溅射方法制备. 磁控溅射设备共有 4 个靶位, 基片可通水冷却. 使用合金靶  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ,  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  制备 NiFe, FeMn 薄膜;  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  薄膜通过在  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  靶表面对称放置形状规整的 Cr 片获得. 通过调整 Cr 片的数量来改变 Cr 的原子百分比含量. 溅射系统本底真空优于  $4 \times$

$10^{-5}$  Pa, 工作介质 Ar 气压为 0.5 Pa. 各种靶材的溅射速率分别测定, 它们的范围在每秒 0.1 nm 左右. 在基片位置沿平行膜面方向施加有约 36 kA/m 的磁场. 整个实验过程中, 共制备了两类五组多层膜. 它们的结构如下:

( I ) 玻璃基片/Ta ( 12.5 nm )/NiFe ( 15 nm )/FeMn (  $d$  nm )/Ta ( 10 nm );

( II ) 玻璃基片/  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  ( 12.5 nm )/NiFe ( 15 nm )/FeMn (  $d$  nm )/  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  ( 10 nm ), 其中  $x = 0.38, 0.425, 0.473, 0.504$ ;  $d = 1.0, 1.3, 1.7, 2.1, 2.5, 3, 3.6, 4.8, 5.5, 7, 9, 12, 17, 24, 32$

$(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  层中  $x$  的值由相同条件下制备的约 300 nm 厚的单层膜通过电感耦合等离子体发射光谱 ( ICP-AES ) 分析获得; 用振动样品磁强计 ( VSM ) 在室温下测量了样品的磁滞回线, 得到交换偏场 ( $H_{\text{ex}}$ ) 和矫顽力 ( $H_c$ ); 并通过 VSM 对样品进行了不同温度下的磁滞回线的测试, 确定不同样品的截止温度 ( blocking temperature ).

### 3. 结果和讨论

对于 FM/AFM 系统, 交换偏置现象是在反铁磁层达到一定的厚度以后出现的. 随着反铁磁层厚度的增大, 铁磁层首先表现为矫顽力 ( $H_c$ ) 显著增大, 然后磁滞回线在外加磁场方向偏离零磁场. 磁滞回线中心偏移量的大小定义为交换偏置场 ( $H_{\text{ex}}$ ). Mauri 等人<sup>[9]</sup>认为反铁磁层与铁磁层间的交换作用是引起交换偏置场和铁磁层矫顽力变化的原因. 反铁磁层的磁各向异性性能  $K_{\text{AF}} V_{\text{AF}}$  ( $K_{\text{AF}}$  为反铁磁层各向异性常数,  $V_{\text{AF}}$  为反铁磁层体积) 决定了反铁磁层的行为. 在外场作用下, 铁磁层磁矩会随着外场方向的变化而翻转. 当反铁磁层较薄,  $K_{\text{AF}} V_{\text{AF}}$  的值较小时, 反铁磁层磁矩会随之翻转以降低整个体系的能量, 此时不能形成交换偏置场; 随着反铁磁层增厚,  $K_{\text{AF}} V_{\text{AF}}$  值变大, 反铁磁层具有大的磁各向异性性能, 所以不会随着铁磁层的翻转而翻转, 表现为在铁磁层中形成交换偏置场. 所以, 为了形成交换偏置场, 反铁磁层需要一定的厚度, 称为临界厚度. 相对铁磁材料来说, 反铁磁晶粒之间的作用微弱, 所以在实际的情况下是反铁磁晶粒与铁磁层相互作用的, 因而更合理地说,  $V_{\text{AF}}$  应当是反铁磁层的晶粒大小. 反铁磁层的晶粒越大, 反铁磁晶粒的各向异性性能也越大, 有

利于交换偏置场的形成.

我们曾详细地研究了在  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  / NiFe/FeMn 多层膜中, 种子层厚度及 Cr 的百分含量对多层膜微结构的影响<sup>[10]</sup>. 研究结果表明, 在种子层厚度不变的情况下,  $x$  的改变不会影响 NiFe/FeMn 的界面粗糙度, 但是会极大地改变反铁磁层的织构强弱和晶粒尺寸. 在相同厚度的情况下,  $x = 0.425$  时, FeMn 层具有最大的晶粒尺寸, 而偏离此值, 则反铁磁层的晶粒尺寸下降. 如果, 大的反铁磁晶粒能提高各向异性性能有利于形成交换偏置场的话, 那么对于  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  / NiFe/FeMn  $(\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19})_{1-x}\text{Cr}_x$  多层膜来说, 在  $x = 0.425$  时应该较其他成分时较早出现交换偏置现象. 也就是说, 在此成分下 FeMn 层仅需要较小的厚度即可产生交换偏置场.

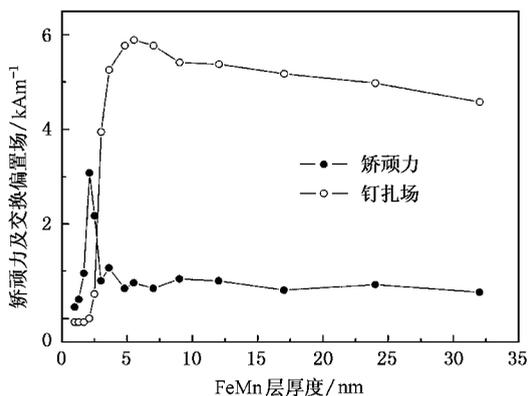


图 1  $x = 0.425$  时样品的矫顽力、钉扎场与 FeMn 层厚度的关系曲线

图 1 是  $x = 0.425$  时系列样品的矫顽力、钉扎场与 FeMn 厚度的关系曲线. 曲线完整地反映了交换偏置场产生的过程. 在反铁磁层很薄的情况下 (稍大于 1 nm), 铁磁层矫顽力开始增大, 表明在铁磁和反铁磁之间已经开始存在交换耦合 ( exchange coupling ) 作用, 但是还不足以产生钉扎场. 此后, 反铁磁层开始形成稳定的磁结构, 交换偏置场出现并很快达到其最大值. 其他的样品也表现了同样的规律, 但是相互之间存在着区别.

把  $x = 0.38, 0.425, 0.473$  的三组样品和以 Ta 为种子层的样品的关系曲线放到一起, 便得到了图 2. 如果定义同一系列中样品的交换偏置场到达最大交换偏置场的一半时所需的反铁磁厚度定义为临界厚度 ( $t_c$ ). 根据 Mauri 等人的模型, 具有较大的反铁磁晶粒的样品将具有较小的  $t_c$ . 同时, 根据该理论模型 ( 文献 9 ] 的 ( 3 ) 式 ), 有  $t_c K_{\text{AF}} = H_{\text{ex}} M t_F$ . 其中  $H_{\text{ex}}$

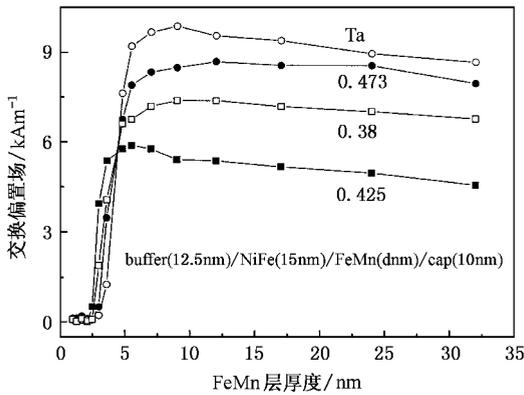


图2 交换偏置场与反铁磁层厚度的关系曲线. 曲线中所标数字为不同样品的  $x$  值, 图的下方是样品结构)

是样品临界厚度  $t_c$  下对应的钉扎场,  $M$  是铁磁层磁矩,  $t_F$  是铁磁层厚度. 在本实验中, 为方便比较, 铁磁层的磁矩与厚度都是一样的. 假设四组样品的  $K_{AF}$  是相同的, 则交换偏置场 ( $H_{ex}$ ) 只与  $t_c$  有关. 换言之,  $H_{ex}/t_c$  比值应该相似 (或者是  $t_c$  与  $H_{ex}$  成正比). 在  $x = 0.425$  反铁磁层具有大晶粒的情况下, 样品较早地产生了交换偏置场, 其临界厚度 ( $t_c$ ) 仅为 3.0nm 左右. 从图中可以清晰地看到, 其他样品所需的临界厚度明显大于  $x = 0.425$  的样品所需的临界厚度, 而且交换偏置场越大其临界厚度越大. 该现象表明, FM/AF 交换偏置作用的确是通过对反铁磁晶粒进行的, 大的反铁磁晶粒有利于交换偏置场的形成, 可以减小产生交换偏置场所需的临界厚度. 将各组样品的临界厚度 ( $t_c$ ) 对应的交换偏置场 ( $H_{ex}$ ) 以及比值  $H_{ex}/t_c$  放到一起, 得到表 1.

表 1 各组样品的 Cr 含量、临界厚度、临界厚度下的交换偏置场、 $H_{ex}/t_c$

样品号	Cr 含量	$t_c$ /nm	$H_{ex}$ (kAm <sup>-1</sup> )	$H_{ex}/t_c$
1	0.425	2.9	2.99	0.103
2	0.380	3.5	3.74	0.107
3	0.473	4.0	4.30	0.108
4	(Ta)	4.3	4.98	0.116

表 1 的结果与 Mauri 等人提出的模型相符合, 各组样品的  $H_{ex}/t_c$  数值区别不大. 计算数据同时表明, “ $K_{AF}$  相同”这一假设基本上是合理的. 在以  $(Ni_{0.81}Fe_{0.19})_{1-x}Cr_x$  为基底(种子层)的三个样品上, 不同样品  $K_{AF}$  之间的误差不超过 4%, 比起  $t_{FM}$  的测量误差而言并不大. 以 Ta 为基底的第四组样品  $K_{AF}$

与前三个样品的差别表明基底化学组成存在影响的.

FeMn 钉扎体系的温度稳定性已有许多实验结果, 通常它的截止温度为 150°C, 明显低于它的奈尔温度. Nishioka<sup>[3,11]</sup>指出, 较小的反铁磁颗粒具有较低的激活能和较短的弛豫时间. 他们改变 Cu 种子层的厚度, 用 TEM 看到样品表面的颗粒度明显不同. 测量和模型计算表明, 在小颗粒的薄膜中, 交换偏置场  $H_{ex}$  随温度升高, 将以较快速度减小, 表明小颗粒中激活能较低. 我们的工作是通过改变  $(Ni_{0.81}Fe_{0.19})_{1-x}Cr_x$  种子层中 Cr 的百分含量来改变反铁磁层晶粒尺寸的, 同时在  $x = 0.425$  的情况下得到了最大的反铁磁晶粒<sup>9</sup>. 在该工作中, 有两个典型样品:  $(Ni_{0.81}Fe_{0.19})_{1-x}Cr_x$  层厚度为 12.5nm 时, Cr 的原子百分比为 0.425, 0.504 的两个样品. 前者 FeMn 层的面内晶粒尺寸达 21nm, 而后的 FeMn 层面内晶粒尺寸仅为 16nm, 两者的反铁磁层晶粒大小有明显的区别. 我们对这两个样品进行了温度稳定性的研究, 测量结果见图 3.

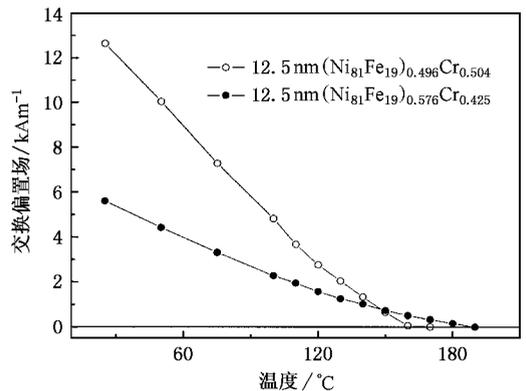


图3 交换偏置场随温度变化的关系曲线

由于具有较大的反铁磁层晶粒尺寸,  $x = 0.425$  样品的钉扎场远小于  $x = 0.504$  的样品. 但是随着温度的升高, 后者钉扎场的数值下降明显地快于前者. 在 170°C 时, 其钉扎效果完全消失, 而  $x = 0.425$  的样品至 190°C 时, 钉扎效果才消失. 实验的结果完全符合 Nishioka 等人的结果和模型, 表明对于 FeMn 反铁磁晶粒而言, 较大的晶粒尺寸会提高颗粒的激活能, 使样品的截止温度升高.

## 4. 结 论

本文研究了 NiFe/FeMn 双层膜交换偏置形成过

程以及热稳定性. 主要结论有 :NiFe/FeMn 的交换偏置作用是通过反铁磁层晶粒进行的. 大的反铁磁层晶粒能提高反铁磁层的磁各向异性, 有利于交换偏置场的形成, 可以减小形成交换偏置场所需的临

界厚度. 热稳定性研究表明, NiFe/FeMn 体系也符合 Noshioka 等人提出的“热扰动”模型. 较大的 FeMn 晶粒具有较大的激活能和较长的弛豫时间, 有较高的截止温度.

- [ 1 ] Meiklejohn W H and Bean C P 1956 *Phys. Rev.* **102** 1423  
Meiklejohn W H and Bean C P 1957 *Phys. Rev.* **105** 904
- [ 2 ] Fontana R E, McDonald S A, Santini H A and Tsang C 1999 *IEEE Trans. Magn.* **35** 806
- [ 3 ] Nishioka K 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 6305
- [ 4 ] Gökemeijer N J, Cai J W and Chien C L 1999 *Phys. Rev. B* **60** 3033
- [ 5 ] te Velthuis S G E, Berger A, Felcher G P, Hill B K and Dan Dahlberg E 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 5046
- [ 6 ] Huang C Y, Mao M, Funada S, Schneider T, Miloslavsky L, Miller M, Qian C and Tong H C 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 4915
- [ 7 ] 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]
- [ 8 ] Lee W Y *et al* 2000 *IEEE Trans. Magn.* **36** 381
- [ 9 ] Daniele Mauri, Eric Kay, David Scholl, and Kent Howard J 1987 *J. Appl. Phys.* **62** 2929
- [ 10 ] Teng J, Cai J W, Xiong X T, Lai W Y and Zhu F W 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2849 (in Chinese) [滕 蛟、蔡建旺、熊小涛、赖武彦、朱逢吾 2002 物理学报 **51** 2849]
- [ 11 ] Nishioka K, Chunghong Hou, Hideo Fujiwara and Metzger R D 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 4528

## The establishment and thermal stability of exchange bias in NiFe/FeMn bilayers \*

Teng Jiao<sup>1,2)</sup> Cai Jian-Wang<sup>2)</sup> Xiong Xiao-Tao<sup>1)</sup> Lai Wu-Yan<sup>2)</sup> Zhu Feng-Wu<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> Department of Materials Physics and Chemistry, Beijing University of Science and Technology, Beijing 100083, China

<sup>2)</sup> State Key Laboratory of magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China

( Received 19 March 2003 ; revised manuscript received 17 April 2003 )

### Abstract

The establishment and thermal stability of exchange bias between the ferromagnetic NiFe layer and antiferromagnetic FeMn layer have been studied. We focused on the relationship between FeMn grain size and exchange bias with the size of FeMn grains controlled by varying Cr content in Ni-Fe-Cr alloy buffer layer. The results indicate that, smaller FeMn grains lead to a larger exchange bias field, but the thickness with the exchange bias setting on is larger, which is consistent with Mauri's model. Thermal stability of the exchange bias indicates that, the films with bigger FeMn grains have a higher blocking temperature, which is in agreement with Noshioka's conclusion: bigger antiferromagnetic grains possess higher activation energies and longer relaxation times.

**Keywords** : exchange bias, thermal stability, antiferromagnetic, grain size, seed layer

**PACC** : 7550