

退火对 IrMn 基自旋阀结构和磁性能的影响

Effect of Annealing on Texture and Magnetic

Properties of IrMn Spin Valve

祁先进, 王寅岗, 周广宏, 李子全

(南京航空航天大学 材料科学与技术学院, 南京 210016)

QI Xian-jin, WANG Yin-gang, ZHOU Guang-hong, LI Zi-quan
(College of Materials Science and Technology, Nanjing University
of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

摘要: 采用高真空直流磁控溅射的方法制备了结构为//Ta(5nm)/Co₇₅Fe₂₅(5nm)/Cu(2.5nm)/Co₇₅Fe₂₅(5nm)/Ir₂₀Mn₈₀(12nm)/Ta(8nm)的顶钉扎自旋阀多层膜,通过X射线衍射(XRD)、原子力显微镜(AFM)和振动样品磁强计(VSM)研究了退火对自旋阀的结构及磁性能的影响。结果表明:退火使得IrMn(111)织构减弱,表面/界面粗糙度在低温退火后增大,而较高温度退火后减小;退火后交换偏置场和被钉扎层矫顽力减小,而自由层矫顽力增加;退火后自旋阀多层膜交换偏置场随样品在反向饱和场下停留时间的增加而不发生变化。

关键词: 退火; 织构; 界面粗糙度; 自旋阀; 交换偏置场

中图分类号: O484.4⁺3 文献标识码: A 文章编号: 1001-4381(2010)07-0068-04

Abstract: The CoFe/Cu/CoFe/IrMn spin valve multilayer was deposited by high vacuum magnetron sputtering on silicon wafer substrates, the influences of annealing on texture and magnetic properties were investigated by X-ray Diffraction (XRD), Atomic Force Microscopy (AFM) and Vibrating Sample Magnetometry (VSM). The results show that the texture of IrMn (111) weaken after annealing, the surface/interface roughness first increased with low temperature annealing while decreased after high temperature annealing; the exchange bias and coercivity of the pinned layer decreased after annealing, but the coercivity of the free layer increased. Moreover, the exchange field of the annealing spin valve kept nearly unchanged as the waiting time increasing.

Key words: annealing; texture; interface roughness; spin valve; exchange bias

自从1988年Baibich^[1]等在Fe/Cr多层膜中发现巨磁电阻效应以来,这个领域吸引了人们广泛的兴趣和注意,但因其饱和场太高而很难实用。1991年Dieny B^[2]利用反铁磁层的交换耦合,成功设计出铁磁层(自由层)/隔离层(非磁性层)/铁磁层(被钉扎层)/反铁磁层(钉扎层)的自旋阀结构。这种结构具有低饱和场、高灵敏度、能有效抑制Barkhausen噪音等优点被广泛应用于高灵敏度磁性传感器、高密度磁头和磁存储器中^[3-5],从而率先进入实用化阶段。

自旋阀多层膜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^[6]。如在将自旋阀多层膜制成计算机硬盘阅读磁头过程中一般要经历一定温度下数小时的热处理,而在这样的温度下,自旋阀多层膜各层之间会发生互扩散现象,从而影响磁性与磁电阻性能。例如在FeMn钉扎的自旋阀多层膜中,经过250℃热处理后,FeMn将失去反铁磁层的钉扎作用,

甚至巨磁电阻现象也消失^[7]。因此,研究热处理对自旋阀多层膜磁性能的影响显得十分重要。本工作研究了真空磁场退火对Ta/CoFe/Cu/CoFe/IrMn/Ta自旋阀多层膜的结构和磁性能的影响,并通过将样品在反向饱和场下停留不同时间研究了退火对自旋阀多层膜的热稳定性的影响,为实际应用提供一定的理论依据。

1 实验

利用高真空磁控溅射设备(日本真空MPS-4000-HC2)在硅衬底上制备了IrMn顶钉扎自旋阀多层膜,多层膜的结构和各层厚度为:Ta(5nm)/Co₇₅Fe₂₅(5nm)/Cu(2.5nm)/Co₇₅Fe₂₅(5nm)/Ir₂₀Mn₈₀(12nm)/Ta(8nm)。为了防止样品在空气中被氧化,在IrMn层上沉积了一层8nm的Ta作为保护层。在

溅射过程中, 本底真空优于 5×10^{-7} Pa, 溅射用高纯氩气, 气压为 7×10^{-2} Pa, 溅射功率为 120W, 生长速率控制在 0.03~ 0.12nm/s 左右, 沉积时在平行于膜面方向加有 100 Oe 外加磁场, 以诱导出一个易磁化方向。将自旋阀多层膜切两个 $0.5\text{cm} \times 0.5\text{cm}$ 进行真空退火, 其真空度优于 5×10^{-4} Pa, 退火温度分别为 235℃ 和 260℃, 退火时间分别为 2h 和 0.5h。在退火过程中, 沿易磁化方向加有 3000 Oe 的磁场。

用 HH10 型振动样品磁强计(VSM) 在室温测量磁滞回线, 磁场平行于膜面, 正向场方向与沉积时所加外场方向平行, 磁场扫描范围是- 800~ 800 Oe, 扫描速度为 3 Oe/s; 用 D8-Advance 型的 X 射线衍射仪(XRD) 研究薄膜的织构; 用原子力显微镜(AFM) 研究界面粗糙度。

在自旋阀多层膜热稳定性的实验中, 磁场首先从正向饱和场扫到反向饱和场, 然后保持在绝对值大于饱和场 200~ 300 Oe 的反向磁场下, 停留一定的时间后, 将磁场从反向饱和场扫到正向饱和场, 在磁场转换的过程中即可测量磁滞回线的后支曲线, 在正向饱和场不进行时间停留, 直接由正向场扫到反向场, 即可测量出磁滞回线的前支曲线。接着在大于反向饱和场 200~ 300 Oe 的磁场下进行第二次时间停留。通过时间累积的方法研究了退火对自旋阀多层膜热稳定性的影响。

2 结果与讨论

2.1 退火对自旋阀多层膜结构的影响

图 1(a), (b), (c) 分别为制备态、235℃ 和 260℃ 退火自旋阀多层膜的 XRD 图。从图中可以看到, 制备态和退火后 IrMn 都有较好的(111) 织构, 退火对自旋阀多层膜反铁磁层 IrMn 衍射峰的位置没有影响, 只是 IrMn 衍射峰的强度发生了变化, 表明在退火过程中, 反铁磁层 IrMn 没有发生晶型转变的过程, 只是

IrMn(111) 的织构随退火温度的升高而减弱, 即 IrMn(111) 晶面择优取向随退火温度升高而减弱。由文献[8] 可知, 在 200℃ 热处理后反铁磁层中 Mn 发生扩散现象, 所以, 退火后 IrMn(111) 的织构减弱的主要原因可能是 Mn 的扩散而导致的。

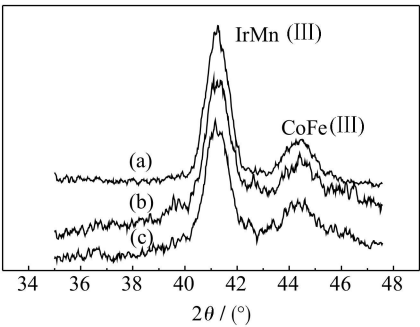


图 1 自旋阀多层膜的 XRD (a) 制备态; (b) 235℃ 热处理; (c) 260℃ 热处理
Fig. 1 XRD patterns of spin valve (a) as deposited; (b) after annealing at 235℃; (c) after annealing at 260℃

粗糙度也是影响自旋阀性能的一个重要因素^[9]。为了进一步研究退火对自旋阀结构的影响, 本工作用原子力显微镜对表面/ 界面形貌进行了研究。一般认为通过磁控溅射沉积的薄膜, 当他们在同一气压下连续沉积, 在一定厚度内多层膜是连续的, 共格生长的, 这样当界面离表面不是很远时, 表面的形貌近似为界面形貌^[10]。本工作所研究的自旋阀为顶自旋阀结构, 铁磁/ 反铁磁的界面离表面为 20nm, 可以认为样品表面的粗糙度能间接反映 IrMn 层和 CoFe 层之间的界面粗糙度。

样品原子力显微镜的观察结果如图 2 所示, 其中图 2(a), (b), (c) 分别为制备态、235℃ 和 260℃ 热处理后的三维形貌图。样品的方均根粗糙度 R_{rms} 分别为 0.678, 1.284nm 和 0.389nm。从测试结果中可知, 经过 235℃ 热处理后, 表面/ 界面粗糙度 R_{rms} 增加, 这

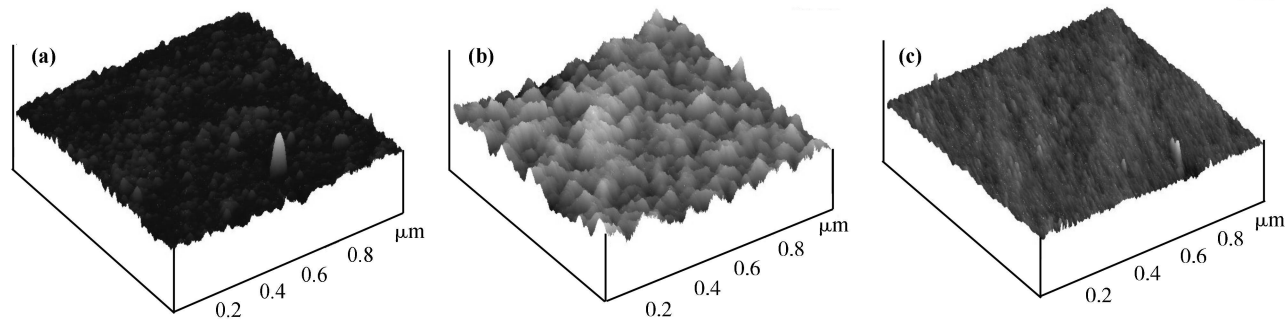


图 2 自旋阀多层膜的原子力显微镜测试结果 (a) 制备态; (b) 235℃ 热处理; (c) 260℃ 热处理
Fig. 2 AFM images of spin valve (a) as-deposited; (b) after annealing at 235℃; (c) after annealing at 260℃

与 Chen K C^[11] 等人在 NiFe/FeMn 双层膜中得到的粗糙度随退火温度升高而增加的结论一致; 而经过 260℃ 热处理后表面/界面粗糙度 R_{rms} 减小, 这可能是温度进一步提高为界面 Mn 原子的扩散提供了更高的能量, 从而使得表面/界面变的光滑, 导致表面/界面粗糙度 R_{rms} 减小。

2.2 退火对自旋阀磁性能的影响

2.2.1 退火对自旋阀的交换偏置场和矫顽力的影响

图 3 为 CoFe/Cu/CoFe/IrMn 多层膜的磁滞回线。从图中可知, 交换偏置场和被钉扎层的矫顽力随退火温度升高而减小, 而自由层的矫顽力随退火温度升高而增大。具体数据如表 1 所示。

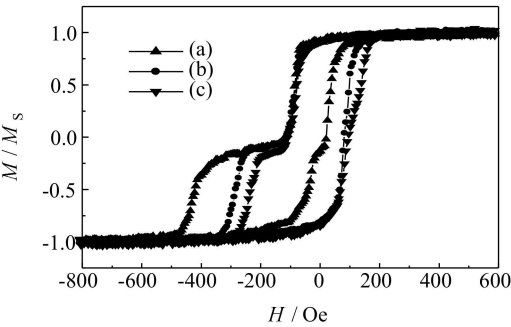


图 3 自旋阀多层膜的磁滞回线 (a) 制备态; (b) 235℃ 热处理; (c) 260℃ 热处理
Fig. 3 Hysteresis loops for spin valve (a) as-deposited; (b) after annealing at 235℃; (c) after annealing at 260℃

表 1 热处理温度与交换偏置场、被钉扎层和自由层矫顽力的关系

Table 1 Temperature dependence of the exchange bias, coercivity of the pinned layer and coercivity of the free layer			
Annealing temperature/℃	H_{ex}/Oe	H_{p}/Oe	H_{d}/Oe
As-deposited	235	190	60
235	109	176	89
260	86	151	107

一般认为反铁磁层的织构对磁性能有一定的影响^[12]。从 XRD 图谱中可知, 制备态和退火后 IrMn 都有较好的 (111) 织构, 从而解释了制备态和退火后自旋阀多层膜都具有交换偏置现象。但随着退火温度的升高, IrMn (111) 织构减弱, 从而降低了反铁磁层 IrMn 的钉扎作用, 所以, 退火使得反铁磁层 IrMn (111) 织构减弱是导致自旋阀交换偏置场和被钉扎层的矫顽力减小的原因之一。

表面/界面粗糙度对自旋阀交换偏置场和被钉扎层的矫顽力也有影响, 一般认为, 粗糙度增加, 交换偏置场减小^[10, 13]。所以, 经过 235℃ 热处理后表面/界面

粗糙度增加也是导致自旋阀交换偏置场减小的原因之一。经过 260℃ 热处理后, 表面/界面粗糙度减小, 而交换偏置场却减小, 这主要是反铁磁层中 Mn 原子的进一步扩散, 从而大大减弱了反铁磁层 IrMn 的钉扎作用, 导致 260℃ 热处理后自旋阀交换偏置场和被钉扎层的矫顽力进一步减小。

自由层的矫顽力随退火温度升高而增加的结果与已研究的测量温度对自由层矫顽力的影响的结果相同, 我们认为可能原因是铁磁自由层在热处理过程中发生了相变^[14], 因为在 Ta 上沉积 CoFe 可能使得部分铁磁层为体心立方结构, 经过热处理后, 自由层 CoFe 由体心立方结构变为面心立方结构, 导致自由层的矫顽力随退火温度升高而增加。

根据谢乐公式 $D = 0.9\lambda / (\cos\theta \cdot \Delta 2\theta)$, 其中 $\Delta 2\theta$ 是 CoFe (111) 峰的半峰宽, λ 是 X 射线衍射 Cu Ka1 的波长, 为 0.15405nm, 计算了退火后 CoFe 膜的晶粒尺寸分别为 11.9456, 14.013nm 和 16.6074nm。可见, 随退火温度升高, 铁磁层的晶粒尺寸增大, 所以, 认为退火温度升高使得铁磁层晶粒尺寸增大可能是导致自由层的矫顽力增大^[15] 的另一个原因。

2.2.2 退火对自旋阀热稳定性的影响

通过使样品在反向饱和场下停留不同时间, 研究了各种状态自旋阀多层膜的热稳定性。图 4 为制备态和热处理后自旋阀多层膜交换偏置场随反向饱和场下停留时间的关系。从图 4 中可知, 制备态自旋阀多层膜的交换偏置场随停留时间的增加而减小, 而经过 235℃ 和 260℃ 热处理后, 自旋阀多层膜的交换偏置场随反向饱和场停留时间的增加而不发生变化。

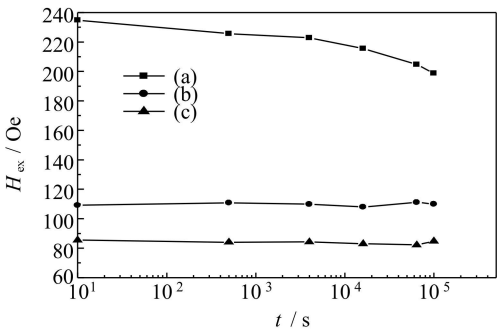


图 4 反向饱和场方向停留时间与自旋阀多层膜交换偏置场大小的关系图 (a) 制备态; (b) 235℃ 热处理; (c) 260℃ 热处理
Fig. 4 H_{ex} as a function of waiting time for the for spin valve held at a negative saturation field (a) as-deposited; (b) after annealing at 235℃; (c) after annealing at 260℃

制备态自旋阀多层膜的交换偏置场随停留时间的增加而减小的主要是由于反铁磁层中部分区域磁矩通

过热激活越过能垒的分布发生反转而导致的结果^[16,17]。当外磁场由正向饱和场向反向饱和场方向转变时,被钉扎层磁矩随着外磁场方向的改变而发生反转,而反铁磁层具有较大的各项异性能,使得反铁磁层的磁矩保持在原来的方向上,此时体系处于亚稳态。当自旋阀多层膜保持在反向饱和场时,由于铁磁层与反铁磁层之间的交换耦合作用使得部分反铁磁层的磁矩转向铁磁层磁矩方向,从而降低了反铁磁层的单方向各项异性能,即减弱了反铁磁层的钉扎作用,随着在反向饱和场停留时间的增加,越来越多的反铁磁层的磁矩通过热激活越过能垒分布发生反转,从而导致交换偏置场随着反向饱和场停留时间的增加而减小。

经过 235℃ 和 260℃ 热处理后自旋阀多层膜的交换偏置场不随停留时间的变化而变化主要是由于热处理使得反铁磁层中部分区域磁矩反转的能垒增加而使整个能垒分布变窄导致的结果。在反向饱和场下停留时,由于反铁磁层中各部分磁矩反转的能垒都比较大,铁磁层与反铁磁层之间的交换耦合能不足以克服反铁磁磁矩反转的能垒,即反铁磁层磁矩不随反向饱和场下停留时间的增加而发生翻转,所以,退火后交换偏置场随反向饱和场停留时间的增加而不发生变化。

3 结论

(1) 退火导致 IrMn(111) 织构减弱,表面/界面粗糙度在低温退火后增大,而较高温度退火后减小。

(2) 退火使得交换偏置场和被钉扎层矫顽力减小,而自由层矫顽力增加。

(3) 退火导致自旋阀反铁磁层部分磁矩反转的能垒分布变窄,退火后样品具有较好的热稳定性。

参考文献

- [1] BAIBICH M N, BROTO J M, FERT A, et al. Giant magnetoresistance of (001) Fe / (001) Cr magnetic superlattices [J]. *Physical Review Letters*, 1988, 61(21): 2472– 2475.
- [2] DIENY B, SPERIOSU V S, PARKIN S P, et al. Giant magnetoresistance in soft ferromagnetic multilayer [J]. *Physical Review B*, 1991, 43(1): 1297– 1300.
- [3] HAN D, STOKES S, LIU D, et al. Understanding of amplitude symmetry and its variation of synthetic spin valve heads for high density recording [J]. *Journal of Applied Physics*, 2003, 93(10): 7316– 7318.
- [4] ZHENG Y K, WU Y H, LI K B, et al. High thermal stable MRAM with a synthetic ferrimagnetic pinned layer [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2004, 40(4): 2634– 2636.
- [5] GUEDES A, MENDES M J, FREITAS P P, et al. Study of synthetic ferrimagnet-synthetic antiferromagnet structures for magnetic sensor application [J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 99(8): 08B703– 1– 08B703– 3.
- [6] ZHAO H, ZHANG Z Z, MA B, et al. Pinning effect and thermal stability study in LiO FePt -pinned spin valves [J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, 102(2): 023909– 1– 023909– 4.
- [7] 柴春林, 滕蛟, 于广华, 等. 退火对 FeMn 钉扎自旋阀性质的影响 [J]. *物理学报*, 2002, 51(8): 1846– 1850.
- [8] LEE J H, JEONG H D, YOON C S, et al. Interdiffusion in anti-ferromagnetic/ferromagnetic exchange coupled NiFe/InMn/CoFe multilayer [J]. *Journal of Applied Physics*, 2002, 91(3): 1431– 1435.
- [9] DANTAS A L, REBOUCAS G O G, SILVA A S W T, et al. Interface roughness effects on coercivity and exchange bias [J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(10): 10K105– 1– 10K105– 3.
- [10] PARK C M, MIN K I, SHIN K H. Effects of surface topology and texture on exchange anisotropy in NiFe/Cu/NiFe/FeMn spin valves [J]. *Journal of Applied Physics*, 1996, 79(8): 6228– 6230.
- [11] CHEN K C, WU Y H, WU K M, et al. Effect of annealing temperature on exchange coupling in NiFe/FeMn and FeMn/NiFe systems [J]. *Journal of Applied Physics*, 2007, 101(9): 09E516– 1– 09E516– 3.
- [12] STOBIECKI T, KANAK J, WRONA J, et al. Microstructure, texture and magnetic coupling parameters of IrMn-based magnetic tunnel junction [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2007, 316: e998– e1001.
- [13] SHEN J X, KIEF M T. Exchange coupling between NiO and NiFe thin films [J]. *Journal of Applied Physics*, 1996, 79(8): 5008– 5010.
- [14] ZHOU G H, WANG Y G, QI X J, et al. Thermal stability of CoFe/Cu/CoFe/IrMn top spin valve [J]. *Chinese Physics Letters*, 2009, 26(3): 037501– 1– 037501– 4.
- [15] VOPSAROIU M, GEORGIEVA M, GRUNDY P J, et al. Preparation of high moment CoFe films with controlled grain size and coercivity [J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(10): 10N303– 1– 10N303– 3.
- [16] HUGHES T, LAIDLER H, and O'GRADY K. Thermal activation of magnetization reversal in spin-valve systems [J]. *Journal of Applied Physics*, 2001, 89(10): 5585– 5591.
- [17] WANG Y G, PETFORD-LONG A K. Magnetization reversal of the ferromagnetic layer in IrMn/CoFe bilayers [J]. *Journal of Applied Physics*, 2002, 92(11): 6699– 6707.

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(50671048)

收稿日期: 2009-05-14; 修订日期: 2009-11-25

作者简介: 祁先进(1979—), 男, 博士研究生, 主要从事功能薄膜材料的制备和性能研究. 联系地址: 南京航空航天大学材料科学与技术学院(210016), E-mail: qxjmsc@nuaa.edu.cn