

Ta/Pt 双底层 Co/Ni 多层膜的反常霍尔效应

Extraordinary Hall Effect on Co/Ni Multilayers
with Ta/Pt Underlayer

俱海浪^{1,2}, 李宝河², 刘 帅¹, 于广华¹

(1 北京科技大学 材料科学与工程学院, 北京 100083;

2 北京工商大学 理学院, 北京 102488)

JU Hai-lang^{1,2}, LI Bao-he², LIU Shuai¹, YU Guang-hua¹

(1 School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China; 2 School of Science, Beijing Technology and Business University, Beijing 102488, China)

摘要: 通过 JGP560A 型磁控溅射仪制备了一系列以 Ta/Pt 为底层的 Co/Ni 多层膜样品, 研究了多层膜中 Pt 缓冲层厚度、周期层中 Co 与 Ni 厚度以及多层膜周期数对样品反常霍尔效应和磁性的影响。结果发现: 逐渐增厚的 Pt 层可以使样品的矫顽力增加, 但是分流作用会导致样品的霍尔电阻降低, 通过比较确定 Pt 缓冲层的厚度为 2nm; 磁性层中 Co 和 Ni 都处于一定厚度范围内时, 多层膜的霍尔回线才能具有良好的矩形度, 当厚度超出其特定范围时, 多层膜的矩形度会变差, 经过分析确定磁性层中 Co 和 Ni 的厚度为均 0.4nm; 磁性层的周期数对样品的性能也有着显著的影响, 最终通过对周期数优化获得的最佳样品结构为 Ta(2nm)Pt(2nm)Co(0.4nm)Ni(0.4nm)Co(0.4nm)Pt(1nm), 该样品的霍尔回线矩形度非常好, 霍尔信号明显, 该样品总厚度在 7nm 以内, 可进一步研究其在垂直磁纳米结构中的应用。

关键词: Co/Ni 多层膜; 反常霍尔效应; 垂直磁各向异性

doi: 10.11868/j.issn.1001-4381.2015.11.004

中图分类号: O484.3 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-4381(2015)11-0019-05

Abstract: A series of Co/Ni multilayers with Ta/Pt underlayer were prepared by magnetron sputtering technique. The effect of Pt, Co, Ni thickness and the periodic number on the performance of anomalous Hall effect of Co/Ni multilayers was investigated. The results show that gradually thickened Pt layer leads to an increase in coercivity and lessening Hall resistance and the thickness of Pt is determined as 2nm. The multilayers have strong perpendicular anisotropy due to the thickness of Co and Ni in a certain range and the thickness of Co and Ni is tested as 0.4nm. Finally, through the optimization of the periodic number the best multilayer structure is acquired as Ta(2nm)Pt(2nm)Co(0.4nm)Ni(0.4nm)Co(0.4nm)Pt(1nm) for the rectangularity of its anomalous Hall loop is very good which shows that it has good perpendicular magnetic anisotropy and the total thickness is within 7nm.

Key words: Co/Ni multilayers; anomalous Hall effect; perpendicular magnetic anisotropy

反常霍尔效应是表征材料体系铁磁态的重要工具, 在磁性薄膜垂直磁各向异性方面的研究有着重要应用^[1-3]。反常霍尔效应物理起源有基于理想晶体能带模型的内禀机制^[4]和基于外在杂质、缺陷、声子散射的外禀机制^[5-10], 两种机制都认为电子的自旋轨道耦合是反常霍尔效应产生的主要原因。霍尔电阻率 ρ_{xy} 与外加磁场 B 的关系表达式为^[11]:

$$\rho_{xy} = R_0 B + 4\pi R_S M_S$$

其中 R_0 为正常霍尔系数, R_S 为反常霍尔系数, M_S 为材料的磁矩, 通常 R_S 大于 R_0 。至少一个量级以上, 且与温度关系密切。 ρ_{xy} 与样品磁矩的垂直分量成正

比^[12], 反常霍尔效应回线可反映出材料垂直磁结构的磁化特征, 可以通过曲线的矩形度和剩磁比来研究磁性薄膜的磁晶各向异性^[13,14]。此外, 材料的垂直磁各向异性与其自旋极化率密切相关, 高的自旋极化率对应高灵敏度。具有垂直磁各向异性的材料有 Co (CoFe)/Pt (Ni, Pd) 多层膜结构^[15-17]、 L_{10} FePt 有序化结构^[18]等。

早期对多层膜结构反常霍尔效应的研究主要集中在铁磁金属及其合金上, 随着自旋电子学的发展, 铁磁与非磁多层膜结构的反常霍尔效应研究多了起来, 但对铁磁层之间相互耦合多层膜结构的反常霍

尔效应研究还很少。Co/Ni 多层膜包含两种铁磁层 Co 和 Ni,由于 Co 层与 Ni 层之间具有很强的垂直表面各向异性,在适当条件下,通过实验调控,使得 Co 层与 Ni 层均处于适当的厚度时,Co/Ni 多层膜的异性能可以克服退磁场的作用,使其易磁化轴垂直于膜面,从而使得多层膜具备垂直磁各向异性。Co/Ni 多层膜在自旋器件如磁性随机存取、自旋转移力矩及畴壁移动技术等方面的研究有着重要的应用。Zhang 等^[19]对 Co/Ni 多层膜的热稳定性进行了研究,样品的霍尔信号随着温度从低温到室温的升高而增大。多层膜的(111)织构对应垂直各向异性^[20],反映在样品的霍尔回线上就是矩形度,但为了获得良好(111)织构,样品的 Pt 底层偏厚,达到了 32nm,这样样品在垂直磁纳米结构中的应用不利。

为了制备出更薄的、具有良好垂直磁各向异性的 Co/Ni 多层膜,本工作通过引入合适的缓冲层,调节 Co/Ni 多层膜中 Pt 底层厚度、Co 层与 Ni 层的厚度以及改变周期数等方法来获得易轴垂直于膜面的 Co/Ni 多层膜,制备出一系列具有垂直磁各向异性的 Co/Ni

多层膜样品,并对其性能进行了分析,并最终获取了最佳样品。

1 实验

磁控溅射通过外加磁场将靶表面被加速离子轰击出的二次电子限制在紧靠靶表面的区域内,增加电子与气体原子的碰撞,实现了低气压高产额,该方法除了制备金属多层膜外,该方法还可制备 NbSiN 复合薄膜^[21]、Ge/SiO₂ 光学多层膜^[22]等。

本研究所有样品均采用直流磁控溅射法在玻璃基片上制备,所用设备为双室五靶的 JGP560A 型超高真空多功能磁控溅射仪,系统本底真空压强优于 2.0×10^{-5} Pa,溅射气体为氩气(纯度 99.999%),溅射气压为 0.5Pa。溅射设备样品台带自转,制备样品时,基片以 1.7r/s 的速率旋转,以保证样品的均匀性。靶材的溅射速率由 Dektak150 型台阶仪测定,分别为 Ta 0.015nm/s, Pt 0.075nm/s, Co 0.047nm/s, Ni 0.042nm/s,样品厚度均用 nm 表示。制备样品具体结构如表 1 所示。

表 1 样品编号及结构
Table 1 Serial number and structure of the samples

Sample	Structure	Variables
S ₁	Ta(2)Pt(<i>t</i> _{Pt})[Co(0.3)Ni(0.6)] ₃ Co(0.3)Pt(1)	$2\text{nm} \leq t_{\text{Pt}} \leq 6\text{nm}$
S ₂	Ta(2)Pt(2)Co(0.3)Ni(<i>t</i> _{Ni})Co(0.3)Pt(1)	$0.4\text{nm} \leq t_{\text{Ni}} \leq 0.8\text{nm}$
S ₃	Ta(2)Pt(2)Co(<i>t</i> _{Co})Ni(0.4)Co(<i>t</i> _{Co})Pt(1)	$0.2\text{nm} \leq t_{\text{Co}} \leq 0.6\text{nm}$
S ₄	Ta(2)Pt(2)[Co(0.4)Ni(0.4)] _{<i>n</i>} Co(0.4)Pt(1)	$1 \leq n \leq 3$

所有样品用 1nm 厚 Pt 做保护层防止氧化。将制备好的样品切成 8mm×15mm 的矩形薄片后用四探针法测量其霍尔回线,磁场方向垂直于膜面。

缓冲层对 Co/Ni 多层膜的性能具有极大影响。通常为了使多层膜获得良好垂直磁各向异性,缓冲层都比较厚,但这样会增大样品的尺寸,对样品后续的工艺设计不利。Pt 常作为缓冲层来制备多层膜样品,但对于 Co/Ni 多层膜,要使样品具备垂直磁各向异性,往往需要的 Pt 底层较厚^[19]。为了获得厚度更小的多层膜样品,本研究制备的 Co/Ni 多层膜采用 Ta/Pt 双底层结构,在样品制备过程中先在玻璃基片上沉积厚度为 2nm 的 Ta 层。这是因为 Ta 界面比较平滑,Ta 层的引入一方面起到缓冲作用,另一方面可以增强多层膜的(111)织构,可以使样品以较薄的 Pt 底层获得良好的矩形度。

2 结果与讨论

图 1 为测得的样品的霍尔回线,图 2 为样品的霍尔电阻和矫顽力随各层厚度的变化曲线。首先研究的是 S₁ 系列样品中,Pt 厚度的变化对样品性能的影响。从图 1(a)中可以看到,所测样品均具有完好的矩形度和 100%的剩磁比,但由于 Pt 层变厚时分流作用的增加导致样品的霍尔电阻单调变小,如图 2(a)所示。样品的霍尔电阻整体上偏小,最大值不到 0.25Ω,可见样品的霍尔信号较弱,这和周期数偏多有关;同时由于(111)织构的增强,样品的矫顽力单调增加,但变化不是很大。当 Pt 厚度为 2nm 时,样品的霍尔电阻最大,矫顽力也有较为理想的值,所以将 Pt 层厚度定为 2nm,通过改变 Ni 层的厚度,以获取霍尔电阻更大的样品,同时为了获得较大霍尔信号,将周期数改为 1。

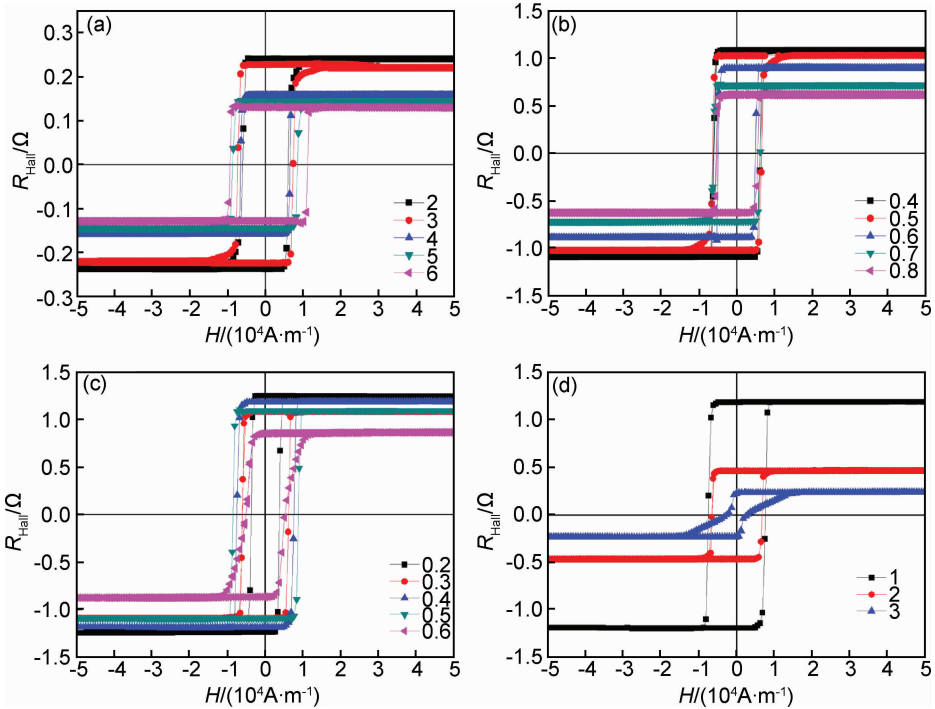


图 1 样品的霍尔回路 (a)S₁; (b)S₂; (c)S₃; (d)S₄

Fig. 1 Hall loops of the samples (a)S₁; (b)S₂; (c)S₃; (d)S₄

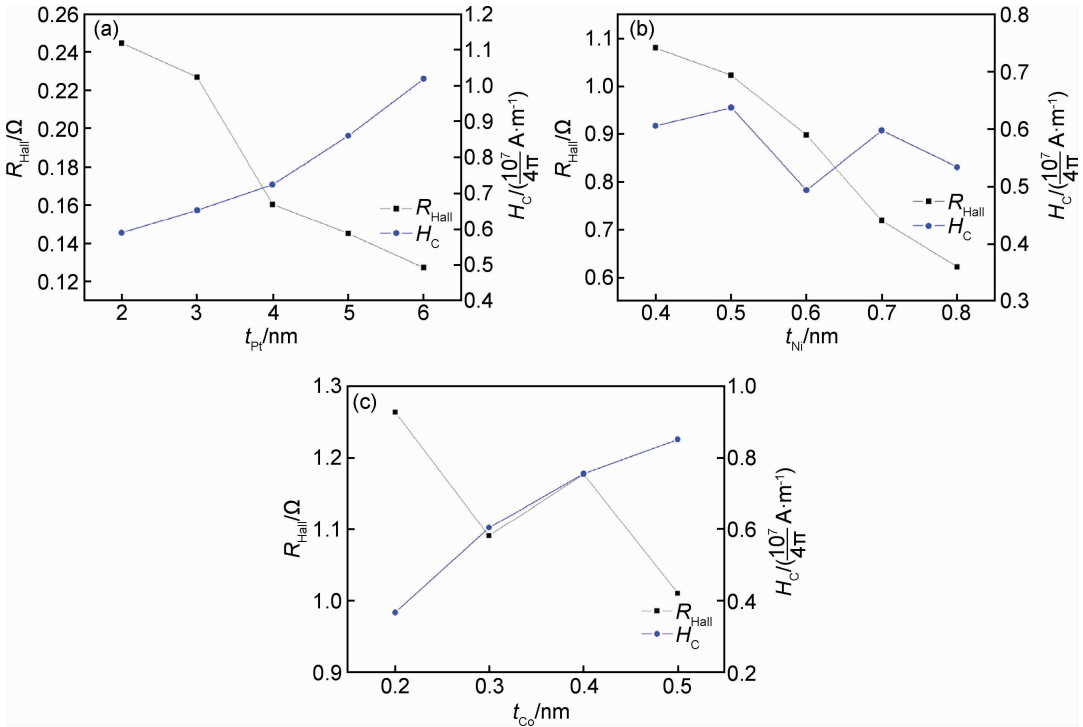


图 2 样品的霍尔电阻及矫顽力随各层厚度的变化 (a)S₁; (b)S₂; (c)S₃

Fig. 2 Variation of Hall resistance(R_{Hall}) and coercivity(H_C) of the samples (a)S₁; (b)S₂; (c)S₃

图 1(b)为改变 S₂ 系列样品中 Ni 层厚度测得的霍尔回路,图 2(b)为 S₂ 系列样品的霍尔电阻和矫顽力随 Ni 层厚度 t_{Ni} 的变化。可以看出,随着 Ni 层厚度的增加,样品霍尔回线的矩形度和剩磁比均很好,所有样品均具备垂直磁各向异性。从图 2(b)可以看出随

着 Ni 厚度的逐渐增加,样品的霍尔电阻是单调减小的,当 Ni 厚度为 0.8 时,霍尔电阻降至 0.62Ω,可见霍尔信号随着 Ni 厚度的增加而减弱;样品的矫顽力在很小的范围内波动,变化不大。当 Ni 厚度为 0.4 时样品的霍尔电阻最大;将 Ni 层厚度定为 0.4,改变 Co 层厚

度,以制备更佳性能的样品。

图 1(c)为改变 S_3 系列样品中 Co 层厚度测得的霍尔回线,图 2(c)为 S_3 系列样品的霍尔电阻和矫顽力随 Co 层厚度 t_{Co} 的变化。当 Co 层厚度从 0.2nm 变化到 0.5nm 时,样品的矩形度和剩磁比均很理想,样品具备良好的垂直磁各向异性,当 Co 层厚度增加到 0.6nm 时,样品的磁矩开始倾斜,不再垂直于膜面。这是因为 Co 层太厚时多层膜体各向异性的影响超过了界面各向异性,从而导致反映磁矩垂直分量的霍尔回线变得倾斜。从图 2(c)可以看出当样品保持良好矩形度时,随着 Co 层厚度的增加,样品的矫顽力单调增加,这是因为 Co 变厚样品的磁性增加而导致的。同时样品的霍尔电阻有一定的波动,但总体呈下降趋势。可见在 Co/Ni 多层膜中,只有当磁性层中 Co 和 Ni 都处于一定厚度范围内时,多层膜才会具有明显的垂直磁各向异性,当 Co 和 Ni 的厚度超出特定厚度范围时,多层膜结构的垂直磁各向异性将会减弱。

当 Co 层厚度为 0.4nm 时样品的霍尔电阻比 Co 层厚度为 0.2nm 时略小,但矫顽力却要大很多,且此时样品的矩形度非常好,样品具有较大的霍尔电阻和更为理想的矫顽力。磁性层中 Co 的厚度定为 0.4nm 后,最后研究周期性对样品性能的影响,以便获取性能最佳的样品。

图 1(d)所示为确定了缓冲层 Pt 厚度,磁性层 Co 和 Ni 的厚度后,改变 S_4 系列样品中 Co/Ni 多层膜周期数测得的样品霍尔回线。可以看出,当 n 等于 1 时,样品的霍尔电阻与矫顽力均达到最大值,随着 n 的增加,样品的霍尔电阻迅速减小,当 n 等于 3 时,样品的霍尔回线已经倾斜,说明此时样品的磁矩已经不再垂直于膜面。最终获得的最佳样品结构为:Ta(2nm)Pt(2nm)Co(0.4nm)Ni(0.4nm)Co(0.4nm)Pt(1nm)。

3 结论

(1)以 Ta 和 Pt 作为 Co/Ni 多层膜双底层,通过对其各参数进行调制,最终以较薄的底层使得样品具备良好的矩形度和较强的霍尔信号。

(2)Co/Ni 多层膜要获得良好的矩形度和较强的霍尔信号,需对 Co、Ni 层厚度等参数进行调制,使界面各向异性占据主导地位,从而使样品的易磁化轴垂直于膜面。

(3)对以 Ta 和 Pt 为底层的 Co/Ni 多层膜样品的反常霍尔效应进行了系统的研究,得到了具有良好矩形度的最佳样品:Ta(2nm)Pt(2nm)Co(0.4nm)Ni(0.4nm)Co(0.4nm)Pt(1nm),该样品的总厚度在

7nm 以内,反常霍尔回线矩形度非常好,反常霍尔效应也很明显,可以进一步研究其与器件的集成性,以开拓在磁纳米结构方面的应用。

参考文献

- [1] MANGIN S, RAVELOSONA D, KATINE J A, et al. Current-induced magnetization reversal in nanopillars with perpendicular anisotropy[J]. *Nature Mater*, 2006, 3(5):210-215.
- [2] MENG H, WANG J P. Spin transfer in nanomagnetic devices with perpendicular anisotropy[J]. *Appl Phys Lett*, 2006, 88(17): 2506-2509.
- [3] KOU S P, LU R, LIANG J Q, et al. An extended effective potential method with topological phase of spin tunneling[J]. *Phys Lett*, 2003, 19(10):1525-1527.
- [4] 冯春,于广华,李宁,等. 利用 Bi 原子的调控作用制备快速有序的 L_{10} -FePt 薄膜[J]. *稀有金属*, 2012, 36(3):419-423.
FENG C, YU G H, LI N, et al. Construction of L_{10} -FePt films with fast ordering process based on manipulation of Bi atoms[J]. *Rare Metals*, 2012, 36(3):419-423.
- [5] KOHN W, LUTTINGER J M. Quantum theory of electrical transport phenomena[J]. *Physical Review*, 1957, 108(3):590-611.
- [6] LUTTINGER J M. Theory of the Hall effect in ferromagnetic substances[J]. *Physical Review*, 1958, 112(3): 739-751.
- [7] BERGER L. Side-jump mechanism for the Hall effect of ferromagnets[J]. *Physical Review B*, 1970, 2(11):4959-4963.
- [8] SMIT J. Side-jump and side-slide mechanisms for ferromagnetic Hall effect[J]. *Physical Review B*, 1973, 8(5):2349-2350.
- [9] BERGER L. Comment on side-jump and side-slide mechanisms for ferromagnetic Hall effect: a reply[J]. *Physical Review B*, 1973, 8(5):2351-2352.
- [10] SMITH J. Account of scattering-independent contributions to the Hall conductivity in ferromagnets[J]. *Physical Review B*, 1976, 17(3): 1450-1452.
- [11] MCGUIRE T R, GAMBINO R J, HANDLEY R C O. The Hall Effect and Its Applications[M]. New York: Plenum Publishing Corp, 1980. 137-139.
- [12] ALPHEUS W, SMITH, SEARS R W. The Hall effect in permalloy[J]. *Physical Review*, 1929, 34(6):1467-1469.
- [13] KARPLUS R, LUTTINGER J M. Hall effect in ferromagnetics[J]. *Physical Review*, 1954, 95(5):1154-1160.
- [14] 李宝河,黄阔,杨涛,等. 垂直取向 FePt/Ag 纳米颗粒薄膜的结构和磁性[J]. *物理学报*, 2005, 54(8):3867-3871.
LI B H, HUANG F, YANG T, et al. Structure and magnetic properties of FePt/Ag nano-granular films with perpendicular magnetic anisotropy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2005, 54(8):3867-3871.
- [15] CHEN W, BEAUJOUR J M L, LOUBENS G, et al. Spin-torque driven ferromagnetic resonance of Co/Ni synthetic layers in spin valves[J]. *Appl Phys Lett*, 2008, 92(1):2507-2510.
- [16] THIYAGARAJAH N, BAE S, JOO H W, et al. Effects of per-

- pendicular anisotropy on the interlayer coupling in perpendicularly magnetized[Pd/Co]/Cu/[Co/Pd] spin valves[J]. Appl Phys Lett, 2008,92(6):2504—2508.
- [17] Van DIJKEN S, CROFTON M, CZAPKIEWIEZ M, et al. Magnetization reversal and field annealing effects in perpendicular exchange-biased Co/Pt multilayers and spin valves with perpendicular magnetization[J]. J Appl Phys, 2006,99(8):3901—3905.
- [18] SEKI T, MITANI S, YAKUSHIJI K, et al. Spin-polarized current-induced magnetization reversal in perpendicularly magnetized L_{10} -FePt layers[J]. Appl Phys Lett, 2006,88(17):2504—2508.
- [19] ZHANG P, XIE K X, LIN W W, et al. Anomalous Hall effect in Co/Ni multilayers with perpendicular magnetic anisotropy[J]. Appl Phys Lett, 2014,104(8): 2404—2408.
- [20] TSUNASHIMA S, HASEGAWA M, NAKAMURA K, et al. Perpendicular magnetic anisotropy and coercivity of Pd/Co and Pt/Co multilayers with buffer layers[J]. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1991,93(1): 465—469.
- [21] 喻利花,苑彩云,许俊华. 磁控溅射 NbSiN 复合膜的微结构和性能[J]. 材料工程,2013,(7):35—39.
- YU L H, YUAN C Y, XU J H. Microstructures and mechanical properties of magnetron sputtered NbSiN composite films[J]. Journal of Materials Engineering, 2013,(7):35—39.
- [22] 彭洁,李子全,刘劲松,等. 退火温度对 Ge/SiO₂ 多层膜的结构和光学性能的影响[J]. 材料工程,2014,(9):32—38.
- PENG J, LI Z Q, LIU J S, et al. Effect of annealing temperature on structure and optical properties of Ge/SiO₂ multilayer films[J]. Journal of Materials Engineering, 2014,(9):32—38.
-
- 基金项目:**国家自然科学基金资助项目(11174020)
- 收稿日期:**2014-09-23;**修订日期:**2014-12-29
- 通讯作者:**于广华(1972—),男,教授,从事磁性薄膜材料研究,联系地址:北京市海淀区北京科技大学材料科学与工程学院(100083),E-mail: ghyu@mater.ustb.edu.cn
-