

缓冲层对 NiCo 薄膜各向异性磁致电阻的影响

姜宏伟 季红 周丽萍 王艾玲 郑鹤

首都师范大学物理系, 北京 100037

摘要 用磁控溅射法制备了以 NiFeCr 和 Ta 分别为缓冲层的两种 NiCo 薄膜样品, 在不同温度下对两种样品退火. 结果表明: 在 NiCo 厚度相同的情况下, 以 NiFeCr 作为缓冲层的样品的各向异性磁致电阻 (AMR) 值明显高于 Ta 作为缓冲层的样品. X 射线衍射 (XRD) 的结果表明, NiFeCr/NiCo 薄膜的晶粒平均尺寸大于 Ta/NiCo 薄膜, 且两种样品的磁膜/缓冲层界面存在较大差异, 这可能是造成两者 AMR 差异的原因. 此外, 对样品进行温度适当的热处理可以明显改善薄膜的物理性质.

关键词 磁性薄膜; 缓冲层; 各向异性磁致电阻; 织构; 晶粒尺寸

分类号 TB 383; O 488.4⁺3

Influence of buffer layers on the anisotropic magnetoresistance of NiCo films

JIANG Hongwei, JI Hong, ZHOU Liping, WANG Ailing, ZHENG Wu

Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037, China

ABSTRACT NiCo films were deposited on NiFeCr and Ta buffer layers by using a DC magnetron sputtering system on Si substrates respectively. After deposition the samples were annealed at different temperatures. The structural and magnetic properties were systematically studied. It is shown that the value of anisotropic magnetoresistance (AMR) of the film with a NiFeCr buffer layer is higher than that of the film with a Ta buffer layer. XRD results indicate that the average grain size of the sample with a NiFeCr buffer layer is larger than that of the sample with a Ta buffer layer, and the situation of the NiCo/NiFeCr interface is different from that of NiCo/Ta. These would be responsible for the difference in AMR between the two kinds of films. A suitable anneal treatment is good for the films.

KEY WORDS magnetic thin film; buffer layer; anisotropic magnetoresistance; texture; grain size

铁磁金属及其合金材料的电阻率随电流 I 和磁化强度 M 的相对取向不同而发生变化, 这种现象被称为各向异性磁致电阻 (AMR) 效应, 其微观机制为基于电子自旋轨道耦合作用的自旋相关散射^[1]. AMR 薄膜材料的优点是: 工艺相对简单, 热稳定性和环境稳定性好; 各种技术条件已经非常成熟; 更为重要的是 AMR 薄膜能在硅基片上制备, 并可直接嵌入商业化集成电路单元中, 实现了与其他电路之间的一体化组装.

在实际应用中, 器件的小型化和集成化趋势对 AMR 薄膜提出了较高的要求. 由于器件尺寸已经

达到微米、亚微米量级, 因此磁性薄膜的退磁场成为影响器件质量的重要因素. 为了减小薄膜退磁场, 就需要减小薄膜厚度, 但薄膜的 AMR 值会随着薄膜厚度的减小而显著下降. Lee 等^[2-3]报道了采用 NiFeCr 合金作为缓冲层能沉积出性能更好的坡莫合金薄膜; 当 NiFe 厚度为 12 nm 时, 其各向异性磁致电阻值仍可达到 3.0%. 所以选择适当的缓冲层是解决上述问题的一条有效途径. 由于 NiFeCr 的电阻率大于 Ta, 还可以减小分流作用, 所以 NiFeCr 作为 AMR 薄膜的新缓冲层材料开始受到人们的关注^[4-5].

基于电流表的实际应用需要, 本文研究了饱和场较大的 NiCo 薄膜的 AMR 效应. 选择了 NiFeCr 和 Ta 作为缓冲层, 制备了不同厚度的 NiCo 薄膜, 在不同温度下对样品进行了退火处理, 并对样品 AMR 值的变化作了比较和分析. 所获结果对 NiCo 薄膜在器件中的实际应用提供了有用的参考数据.

收稿日期: 2007-03-08 修回日期: 2007-04-04

基金项目: 北京市教委科技发展计划资助项目 (No. KM200510028004); 北京市科委科技计划资助项目 (No. Y0404013040211)

作者简介: 姜宏伟 (1965-), 男, 副研究员,

E-mail: jhwphy@mail.cnu.edu.cn

1 实验方法

样品由国产 JGP-560B 型磁控多靶溅射台制备, 衬底采用 (100)Si 基片, 速率控制在约 $1 \text{ nm} \cdot \text{s}^{-1}$, 系统本底真空低于 $5 \times 10^{-5} \text{ Pa}$, 工作气体为高纯 Ar 气, 工作气压为 0.5 Pa . 采用 Ta 靶溅射 Ta 薄膜, Ni 靶加 Co 片溅射 $\text{Ni}_{0.74}\text{Co}_{0.26}$ 薄膜 (叙述中用 NiCo 代替), NiFe 合金靶加 Cr 片溅射 ($\text{Ni}_{0.81}\text{Fe}_{0.19}$) $_{0.66}\text{Cr}_{0.34}$ 薄膜 (叙述中用 NiFeCr 代替). 基片用水冷却, 镀膜时在平行膜面方向加有约 $20 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ 的磁场. 以 NiFeCr 和 Ta 分别作为缓冲层制备了两个系列的 NiCo 样品, 其中 NiCo 的厚度有变化, 即 NiFeCr(5 nm)/NiCo(t nm)/Ta(3 nm) 和 Ta(5 nm)/NiCo(t nm)/Ta(3 nm), 其中 $t=12, 15, 20, 30$ 和 40 . 在加有 $80 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ 磁场的真空退火炉中分别对样品以 $200, 300$ 和 $400 \text{ }^\circ\text{C}$ 的温度退火处理 2h. 薄膜结构和晶粒尺度由 X 射线的大角和摇摆曲线的结果测定, 薄膜的各向异性磁致电阻 AMR 值采用常规的直流四端法在室温下测量.

2 实验结果与讨论

通常定义各向异性磁致电阻 AMR 值的表示为:

$$\Delta\rho/\rho_0 = (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})/\rho_0.$$

式中, ρ_0 为铁磁材料在理想退磁状态下的电阻率, ρ_{\perp} 和 ρ_{\parallel} 分别表示外加磁场与电流方向垂直及平行时的电阻率. 由于理想的退磁状态很难获得, 通常将 ρ_0 取为:

$$\rho_{\text{av}} = (\rho_{\parallel} + 2\rho_{\perp})/3.$$

图 1 是样品 Ta(5 nm)/NiCo(t nm)/Ta(3 nm) 和样品 NiFeCr(5 nm)/NiCo(t nm)/Ta(3 nm) 的

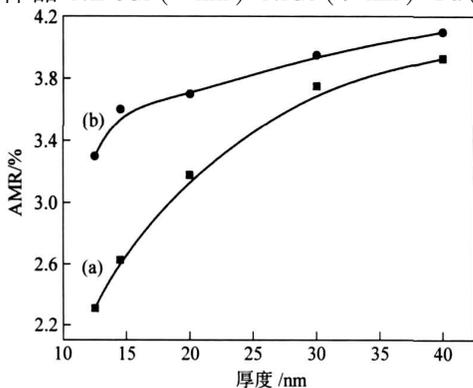


图 1 在缓冲层 Ta(a) 和 NiFeCr(b) 上制备的 NiCo 薄膜的 AMR 随 NiCo 薄膜厚度变化的关系

Fig. 1 Relation of the AMR ratio of NiCo films deposited on the Ta and NiFeCr buffer with the thickness of NiCo

AMR 值随着磁性层 NiCo 厚度变化的曲线. 从图中可以看出, 无论是用 Ta 还是用 NiFeCr 作缓冲层, NiCo 薄膜的各向异性磁致电阻值随着薄膜厚度的减小而下降, 当 NiCo 薄膜的厚度小于 20 nm 时, 它们的各向异性磁致电阻值都有明显地下降. 但在此厚度范围内, 以 NiFeCr 作为缓冲层的 NiCo 样品的 AMR 值明显高于用 Ta 做缓冲层的 NiCo 样品的 AMR 值. 比如, 用 Ta 作缓冲层的 NiCo 薄膜, 当 NiCo 厚度为 12 nm 时 AMR 值为 2.31% , 而用 NiFeCr 作缓冲层的同样厚度的 NiCo 薄膜的 AMR 值则为 3.30% , 比前者高了 42.8% .

一般认为, 薄膜织构对 AMR 值有很大影响, 合适的缓冲层可以使晶粒长大, 织构变好. 因此对两种样品进行了结构分析, 分别作 X 射线大角衍射和摇摆曲线.

图 2(a) 和 (b) 给出了不同缓冲层的 NiCo 为 20 nm 厚的样品经过 $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 、2h 退火前、后的 XRD 大角衍射图谱. 结果发现 NiCo 薄膜的 fcc(111) 峰退火后强度增加, 半峰宽变小. 由 X 射线大角衍射半峰宽, 根据公式 $D = 0.9\lambda/\Delta_{2\theta}\cos\theta$ (其中 $\Delta_{2\theta}$ 是 NiCo 薄膜 (111) 峰的半峰宽, λ 是 X 射线衍射 Cu $K_{\alpha 1}$ 的波长, 为 0.15405 nm), 可以计算出 NiCo 薄膜的平均晶粒尺寸. 制备态 Ta 作缓冲层的样品平均晶粒尺寸为 11 nm , 退火后晶粒尺寸增加到 14 nm 以上; 制备态 NiFeCr 作缓冲层的样品平均晶粒尺寸为 14 nm , 退火后晶粒尺寸增加到 18 nm 以上. 同时作两种样品的 X 射线摇摆曲线, 见图 2(c) 和 (d). 这些结果都说明晶粒横向、纵向的平均尺寸退火后均增大. 织构的影响在 AMR 薄膜材料中较明显. 对于面心立方的 NiFeCr 和 NiCo 软磁合金, (111) 表面能最小, 所以这两种材料容易形成 (111) 织构. 一般而言, 对于 NiFe、NiCo 合金薄膜, 在厚度一定时, 单一的强 (111) 织构一般都对对应较大的 AMR, 而随机取向的薄膜其 AMR 一般不大^[6-10]. 在厚度较小的薄膜中, 由于厚度的限制, 薄膜的结构完整性比较差, 要想形成单一 (111) 织构并不容易. 合适的种子层如 Ta、NiFeCr 都能诱导出很强的 NiFe(111) 织构.

一般认为, 退火可以使薄膜织构变好, 晶粒长大晶界减少, 消除了缺陷、杂质, 降低了电阻率 ρ_0 , 使退火后的磁性薄膜 AMR 值会有很大提高. 对所有样品做不同温度 ($200, 300$ 和 $400 \text{ }^\circ\text{C}$)、2h 的退火处理. 比较薄膜 AMR 值的变化规律发现, 在 $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 、2h 退火后, 两种缓冲层的 NiCo 磁性薄膜的 AMR 值都有约 30% 的提高; 但是随温度继续升高, 它们的

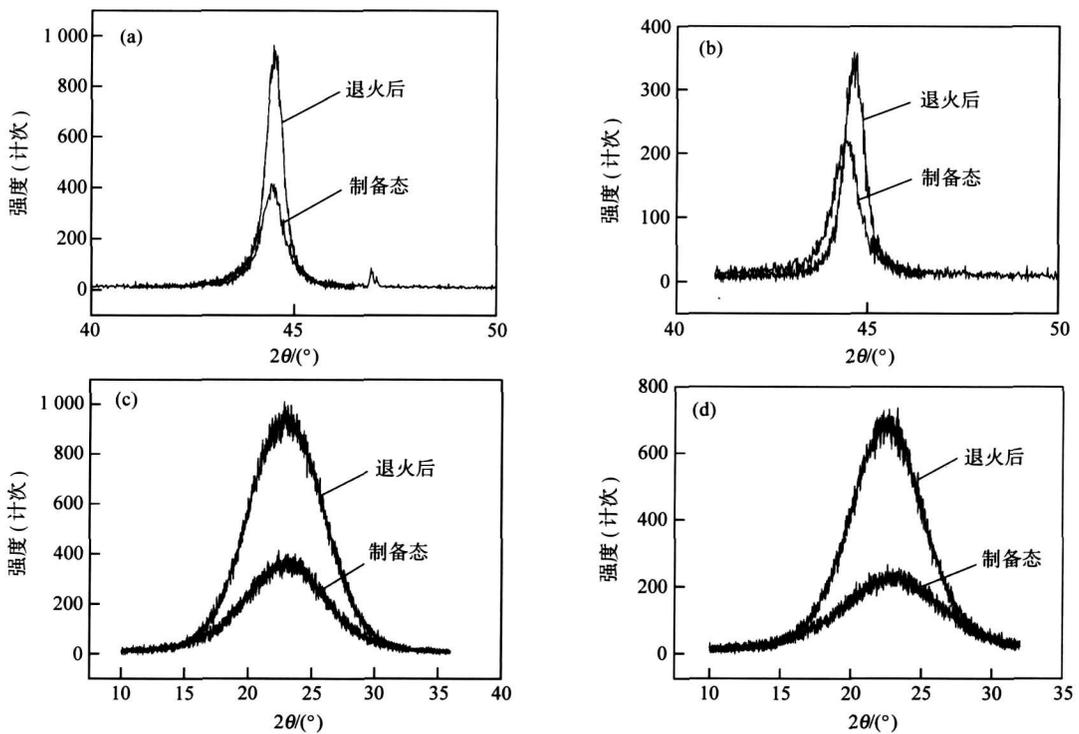


图 2 不同缓冲层 NiCo 薄膜退火前后的 XRD 图谱。(a) NiFeCr/NiCo 的大角 XRD 图谱;(b) Ta/NiCo 的大角 XRD 图谱;(c) NiFeCr/NiCo 的摇摆曲线;(d) Ta/NiCo 的摇摆曲线

Fig-2 XRD patterns of NiCo films with different buffers before and after annealing: (a) XRD pattern of NiFeCr/NiCo; (b) XRD pattern of Ta/NiCo; (c) Rocking curve of NiFeCr/NiCo; (d) Rocking curve of Ta/NiCo

AMR 值都急剧下降。这应该是由于缓冲层与磁性薄膜之间的层间扩散引起的。对 300 °C 退火前后的样品做了磁性测量,结果如图 3。退火后 Ta 作缓冲层的磁性薄膜饱和磁化强度 M_s 有明显的减小,而磁化强度 M_s 减小是由于层间扩散使 NiCo 薄膜部分非磁化造成的。NiFeCr 作缓冲层的磁性薄膜饱和磁化强度 M_s 变化不大,但矫顽力有明显增大,这可能是 Cr 原子的扩散引起的。Cr 作为杂质钉扎 NiCo 薄膜畴壁,使畴壁移动受阻,导致其矫顽力 H_c 值增大。Higura 等人系统地研究了杂质原子对坡莫合金 AMR 效应的影响^[11],结果表明坡莫合金的 AMR 值随 Ta、Cr 含量增加而迅速下降。在元素周期表中,离 Ni 近的元素对薄膜各向异性磁致电阻的影响比离 Ni 远的元素的影响要小。Cr 元素在元素周期表中的位置离 Ni 显然比 Ta 要近得多。从实验结果看,以上结论同样适合 NiCo 薄膜。随着退火温度升高扩散现象就越严重,到 400 °C 时,Ta 作缓冲层的 NiCo 薄膜 AMR 值几乎为零了。

实际上,在很薄的薄膜中由于传导电子的平均自由程和膜厚可以相比,因此对 ρ_0 值的影响主要来自两方面:一方面是膜内的应力、缺陷、杂质和晶界

对传导电子的散射;另一方面则是膜面及磁膜/缓冲层的界面对传导电子的散射。

为了得到缓冲层/NiCo 薄膜的界面信息,在硅(100)基片上制备了 [Ta(5 nm)/NiCo(5 nm)]₁₀、[NiFeCr(5 nm)/NiCo(5 nm)]₁₀ 两个样品,对它们作漫反射曲线拟合,得到了界面的粗糙度。结果如下:[NiFeCr(5 nm)/NiCo(5 nm)]₁₀ 多层膜的界面横向关联长度 ξ 为 4 000,分形指数是 0.4; [Ta(5 nm)/NiCo(5 nm)]₁₀ 多层膜的界面横向关联长度 ξ 为 800,分形指数是 0.38。这些结果反映出 NiFeCr/NiCo 多层膜的界面起伏比 Ta/NiCo 多层膜小,界面比较平整。虽然样品的 NiCo 层做得比较薄(只有 5 nm),但可以认为这间接给出了两种样品的磁膜/缓冲层界面信息:不同缓冲层样品的磁膜/缓冲层的界面状况差别很大。以 NiFeCr 作为缓冲层的样品,其磁膜/缓冲层的界面比以 Ta 作为缓冲层的样品的磁膜/缓冲层的界面要“平滑”,这将使得传导电子在界面处的“弹性”散射几率增加。这也许是以 NiFeCr 为缓冲层的样品的 AMR 值高于以 Ta 为缓冲层的样品的原因之一。

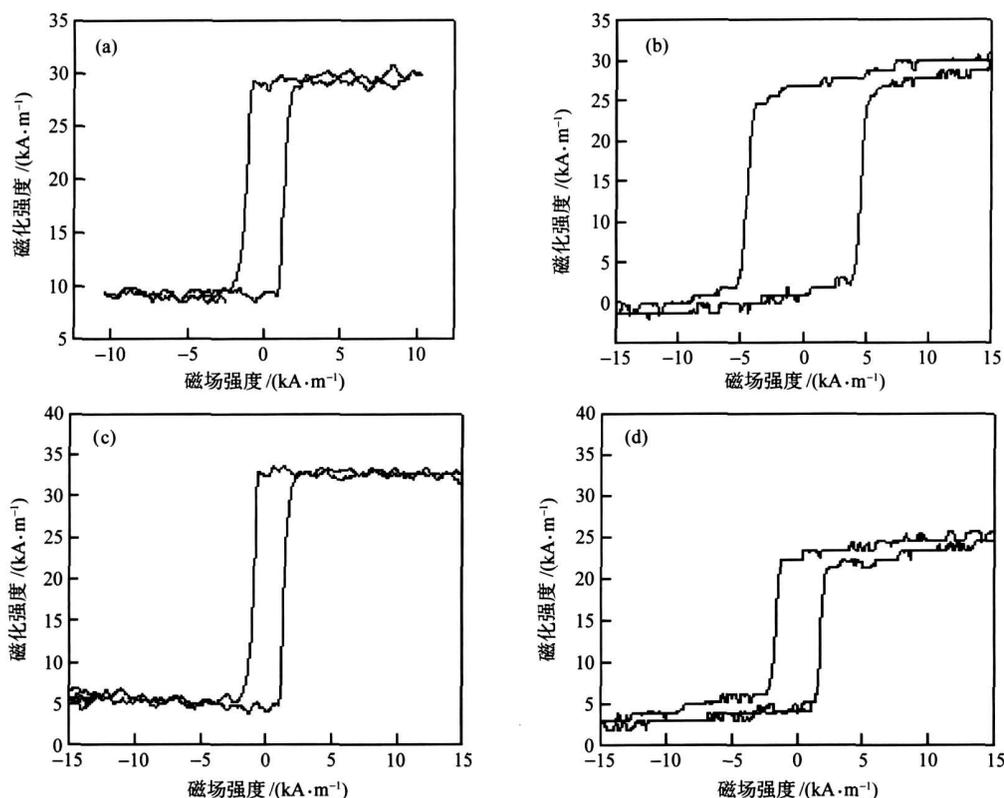


图 3 不同缓冲层 NiCo 薄膜退火前后的磁滞回线. (a) NiFeCr/NiCo 制备态; (b) NiFeCr/NiCo 退火后; (c) Ta/NiCo 制备态; (d) Ta/NiCo 退火后
 Fig. 3 Hysteresis loops of NiCo films with different buffer layers before and after annealing: (a) NiFeCr/NiCo film as-deposited; (b) NiFeCr/NiCo film as-annealed; (c) Ta/NiCo film as-deposited; (d) Ta/NiCo film as-annealed

3 结论

制备了用 5 nm Ta 和 5 nm NiFeCr 作为缓冲层的不同厚度的 NiCo 薄膜, 它们的各向异性磁致电阻都随着 NiCo 薄膜厚度的减小而减小. 用 5 nm NiFeCr 作缓冲层的较薄的 NiCo 薄膜, 其 AMR 值比用 5 nm Ta 作缓冲层的同样厚度的 NiCo 薄膜有较大的提高, 最大能提高 42.8%. XRD 结果表明, 缓冲层 NiFeCr 与磁性层 NiCo 薄膜有非常接近的晶格常数, 这可能使薄膜的晶粒尺寸生长得更大, 薄膜/缓冲层的界面更为“平滑”. 这些变化使薄膜的电阻率 ρ_0 减小, 从而在薄膜较薄的情况下, 以 NiFeCr 作缓冲层的 NiCo 薄膜具有比以 Ta 作缓冲层的相同厚度的 NiCo 薄膜大的 AMR 值. 而温度适当的后期热处理对薄膜的性质有明显的改善作用, 在温度 200 °C、2 h 退火后, 不同缓冲层的 NiCo 磁性薄膜的 AMR 值都有约 30% 的提高, 但是随温度的进一步升高, 薄膜的 AMR 值急剧下降.

参考文献

[1] Mcguire T R, Pouer R I. Anisotropic magnetoresistance in ferromagnetic 3d alloys. *IEEE Trans Magn*, 1975, 11(4): 1018
 [2] Lee W Y, Toney M F, Mauri D. High magnetoresistance in sputtered permalloy thin films through growth on seed layers of

(Ni_{0.81}Fe_{0.19})_{1-x}Cr_x. *IEEE Trans Magn*, 2000, 36(1): 381
 [3] Lee W Y, Toney M F, Tameerug P, et al. High magnetoresistance permalloy films deposited on a thin NiFeCr or NiCr underlayer. *J Appl Phys*, 2000, 87(9): 6992
 [4] Dai B, Cai J W, Lai W Y. The dependence of exchange bias of Ni₈₁Fe₁₉/Ni_{100-x}Mn_x bilayers on the Mn content and the thickness of Ni_{100-x}Mn_x. *Acta Phys Sin*, 2003, 52: 478
 (代波, 蔡健旺, 赖武彦. Ni₈₁Fe₁₉/Ni_{100-x}Mn_x 双层膜的交换偏置对 Ni_{100-x}Mn_x 层 Mn 成分和厚度的依赖. *物理学报*, 2003, 52: 478)
 [5] Dai B, Cai J W, Lai W Y. Structural and magnetic properties of NiFe/NiMn bilayers with different seed and cap layers. *J Magn Mater*, 2003, 257: 190
 [6] Kitakami O, Okamoto S, Shimada Y. Effect of surface free energy of underlayer materials on crystal growth of Co polycrystalline films. *J Appl Phys*, 1996, 79: 6880
 [7] Kitada M. Reaction and magnetic properties of Ti/permalloy bilayer thin films. *Thin Solid Films*, 1985, 131: 21
 [8] Li S X, Yan M L, Yu C T, et al. Effect of interface on the properties of Ti/NiFe thin films. *J Appl Phys*, 1994, 75: 6504
 [9] Michelini F, Ressler L, Degauque J, et al. Permalloy thin films on MgO (001) Epitaxial growth and physical properties. *J Appl Phys*, 2002, 92: 7337
 [10] Gong H, Litvinov D, Klemmer T J, et al. Seed layer effects on the magnetoresistive properties of NiFe films. *IEEE Trans Magn*, 2000, 36: 2963
 [11] Nagura H, Saito K, Takanashi K. Influence of third elements on the anisotropic magnetoresistance in permalloy films. *J Magn Mater*, 2000, 212: 53