

第四章 結果與討論

一、標準交換場系統：

自從 Meiklejohn 發現在 Co/CoO 中有磁滯曲線偏移的現象後，交換場的概念就一再的被廣泛研究並且應用在磁頭的產業上。然而，要使得反鐵磁層(本實驗使用 IrMn)能有效提供交換異向性，主要有以下三個條件：

- a. IrMn 厚度必須到達一特定厚度(critical thickness)，若是厚度太薄則僅會使得上層鐵磁層矯頑場變大而不會貢獻到交換場；
- b. IrMn 必須能長出 {111} 的結構，即非補償界面(uncompensated plane)；
- c. 必須利用磁退火的方式定義反鐵磁的方向。

因此在探討本實驗所提之正交耦合異向性等概念前，首先即必須先了解反鐵磁層在不同狀況下對鐵磁層所造成的影響，如此以來才能幫助我們更清楚的去了解此系統的相關概念。因此我們便藉由改變 IrMn 厚度來探討單純鐵磁-反鐵磁層中的性質(如圖 4-1 所示)。

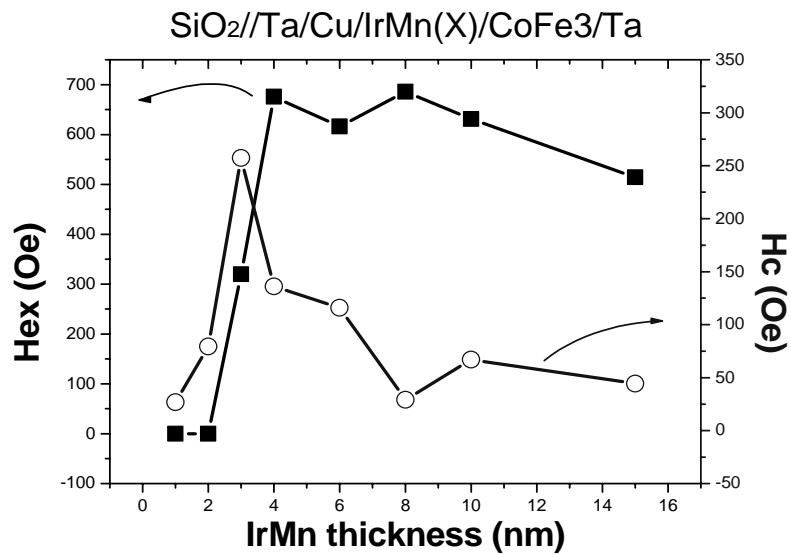


圖4-1 反鐵磁IrMn厚度與交換場、矯頑場大小關係圖

如上圖所示我們可以發現當 IrMn 厚度大於 4 nm 後，交換場的大小便不會有大幅度的變化約保持在 $H_{ex} \sim 600 \text{ Oe}$ 左右，此時即表示反鐵磁所提供之交換異向性大部份均貢獻到上層鐵磁層，然而在厚度較薄時依舊會造成矯頑場的提昇，而之後便隨厚度漸漸變大而穩定。

而經由計算我們可以得知在 IrMn 系統下退火 200°C , 30min. 下最大的交換異向性常數約為：以 IrMn 8nm, $H_{ex} \sim 690 \text{ Oe}$ 為標準，由 VSM 量測所得之 M 值 $\sim 8.57 \times 10^{-4} \text{ emu}$ 。

$$J = M/A * H_{ex} = (8.57 \times 10^{-4} / 2.25) \text{ emu/cm}^2 * (690) \text{ Oe} = 0.263 \text{ erg/cm}^2$$

而當 IrMn 厚度約在 3 nm 時，矯頑場最大且依舊有小量的磁滯曲線偏移的現象，此時即反鐵磁層厚度不夠厚因此交換異向性部分貢獻到交換場，部份貢獻到矯頑場。

若是 IrMn 的厚度小於 2 nm 後，則由於厚度太薄，反鐵磁層無法有效貢獻出交換場，因此沒有交換場出現以及矯頑場提升的效果。

二、標準自旋閥結構：

而後在 1991 年，Dieny 結合差異性自旋散射以及交換場提出了標準自旋閥結構的概念，一舉克服了巨磁阻(GMR)系統中翻轉場太大的問題，而其主要的原理主要是利用反鐵磁的耦合能力使得在間隔層上下兩鐵磁層磁矩排列的方向來得到磁阻值的差異。然而，由於自旋閥結構的磁阻變化率較低(約 6%)，因此利用奈米級氧化層的引入有效提升磁阻變化率便是在自旋閥中不斷發展的課題，而此一部分的研究我們也將會在下一節中進行詳細的探討。

而在本實驗中我們所設計的膜層如下：

SiO₂//Ta/Cu₂/IrMn₈/CoFe₃/Cu_{2.3}/CoFe₄/Ta (單位：nm)

利用 Ta 及 Cu 作為緩衝層，增進 IrMn{111}的結構，並利用 Co₉₀Fe₁₀的作為鐵磁層，最後覆蓋上 Ta 作為保護層。如此一來藉由電子在間隔層同上下界面磁矩排列的差異性自旋散射便可得到磁阻的變化率。而在本實驗中發現(圖 4-2,3)，當我們若是在鍍製被固定層時施加偏壓 -100V，可以有效使得磁阻變化率由 6%提升至 10%，然而交換場的

大小卻由約 600Oe 降至 220Oe。偏壓施加與否對於自旋閥結構的特性是如此顯著，因此我們做了以下的一些實驗去推測此一現象的成因。

1. VSM → 飽和磁化量

由 VSM 所得之飽和磁化量兩者接近，因此並不會是由於被固定層厚度的差異而造成交換場的改變。

2. XRD → 結構

由下圖可以看出來，加偏壓所得之 CoFe(111)結構長得較佳，然而 IrMn(111)結構兩者並沒有差異，然而一般而言交換場的大小主要是與 IrMn 的結構亦或是表面的粗糙度較為相關。然而在本系統中所得之結果發現在在鍍製鐵磁層的同時加偏壓可以使得 CoFe(111)的結構變好，並且得到較佳的磁阻變化率，然而由於偏壓的施加使得鐵磁-反鐵磁介面遭受破壞而使得交換場變小。

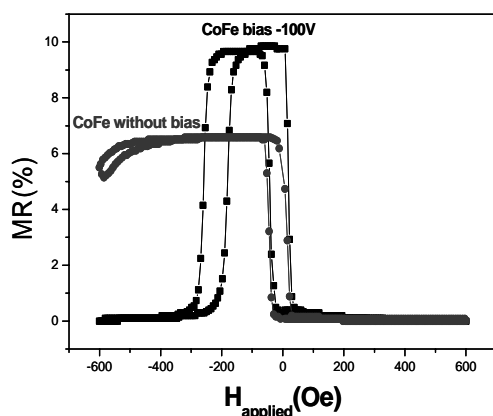


圖4-2 標準自旋閥結構中，被固定層偏壓施加與否對磁阻變化率、交換場大小的影響

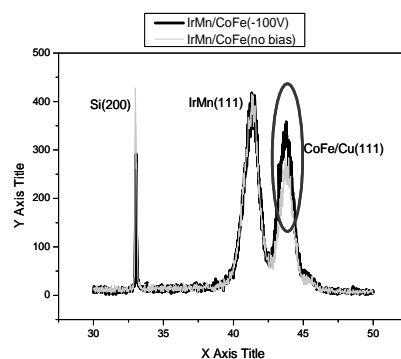


圖4-3 標準自旋閥結構中，被固定層偏壓施加與否對XRD結構的影響。

三、不同奈米級氧化層對自旋閥結構的影響：

本章節中主要研究當我們在被固定層中加入 CoFe，NiFe，Fe 的自然氧化或是電漿氧化層所發現的不同現象。一般研究發現在被固定層中引入奈米級氧化層不但可以有效提升磁阻變化率(Magnetoresistance Ratio, MR)亦可以增加交換場的大小，其中 MingMao 提出，加入自然氧化的 CoFeOx 可以最有效提升 MR 值，而在 Fukuzawa 的研究中發現利用離子輔助氧化法氧化 Co₅₀Fe₅₀ 合金不僅單純提升 MR 並會產生特殊的正交耦合力(twist coupling)；因而我們將藉由改變氧化層的種類以及氧化的方式來觀察其不同的性質表現。

3-1 CoFeOx system：

CoFe-NOL 系統膜層設計如下：

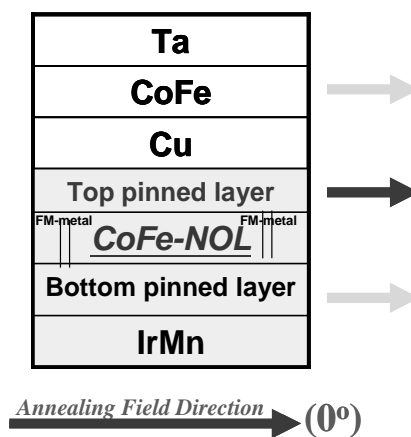


圖4-4 自旋閥結構中在被固定層中插入 CoFe奈米級氧化層磁矩排列情況之示意圖

當我們將自然氧化的 CoFe 的奈米級氧化層插入在被固定層中間時，可以得到磁阻變化率由原先的 9.8% 提升至 12% 並且不影響交換場大小。

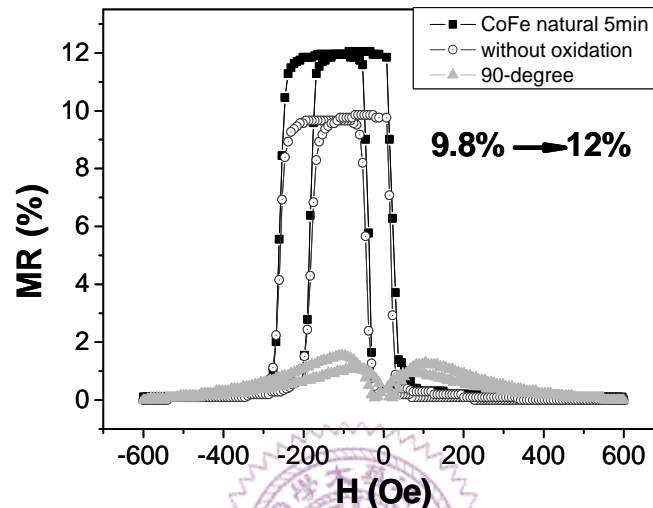


圖4-5 自旋閥結構中插入CoFe奈米級氧化層後磁阻變化率與標準自旋閥結構間的差異

3-2 PyOx system :

由於自然氧化之 CoFe 奈米級氧化層並未完全氧化，仍有部分鐵磁訊號可以傳遞反鐵磁層的耦合力，因此上下兩被固定層同時被反鐵磁層抓在零度的位置排列。然而我們若是將 CoFe 層改為 NiFe (Py) 進行電漿以及自然氧化，我們則會發現此時將產生與 CoFe 系統截然不同的情況產生。

自旋閥的結構中，磁阻的變化率主要是來自於間隔層上下介面的磁

矩，因此磁阻變化率即完整反映出上(自由層)、下(上被固定層)鐵磁層的磁矩狀態，而不會有其他如緩衝層或是下被固定層的訊號產生。因此藉由磁阻值量測的相關實驗，我們便可以知道實際上被固定層的翻轉行為及磁矩相對的排列情形，並進一步藉由改變其中的變因去了解實際 PyOx 系統中的行為；而我們也將在接下來的章節中，利用較單純之膜層設計，去除自由層的訊號，單純去研究上下被固定層的狀態。

而本實驗中 Py-NOL 系統膜層設計大致如下：

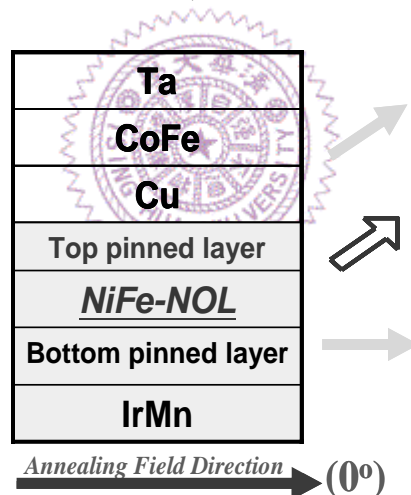


圖4-6 自旋閥結構中在被固定層中插入 Py奈米級氧化層磁矩排列情況之示意圖

3-2-1 氧化方式對 PyOx 系統的影響：自然氧化與電漿氧化

首先，我們藉由對 Py 進行不同方式的氧化 (自然氧化及電漿氧化)來觀察其電性的量測結果，自然氧化法即是在裝載腔中通入 1Torr 的氧氣氧化五分鐘；電漿氧化則是約在 150mTorr 下用 RF 電源供應器提

供 10w 功率氧化 10s 中。而由實驗結果發現當我們進行自然氧化時，會出現與 CoFe 系統中相同的情形，此時僅會有 MR 提升的效果，上被固定層依舊被設定在零度的位置[圖 4-7]；然而若是使用電漿氧化時，上被固定層則會受到一正交耦合力的作用而使得在九十度磁阻曲線上出現如同擬自旋閥結構的圖形，此時磁阻的變化情形即是來自於自由層與上被固定層間矯頑場的差異而得[圖 4-8]，並且我們也發現此在零度的磁阻曲線上會出現與自然氧化時九十度量測之曲線相同，因此可以推知在此條件下，上被固定層是位於難軸，同時也證明上被固定層是受到一耦合力使其穩定的排列再沿著退火方向夾九十度的位置排列。

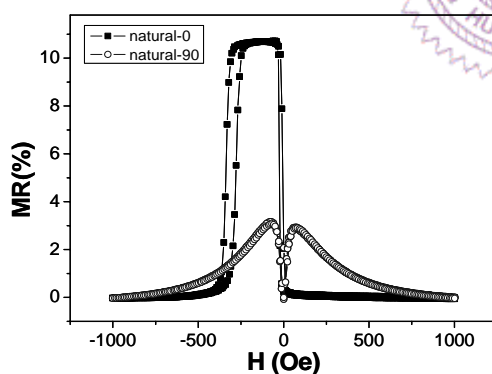


圖4-7 自旋閥結構中被固定層插入利用自然氧化法氧化之Py所得零度及九十度之磁阻曲線。

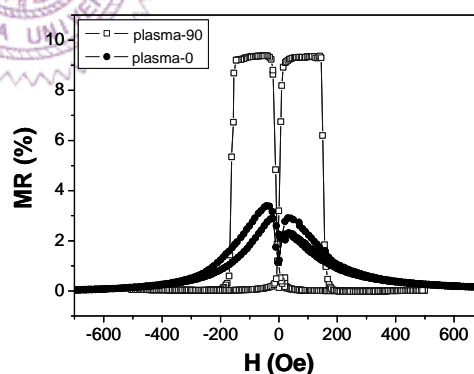


圖4-8 自旋閥結構中被固定層插入利用電漿氧化法氧化之Py所得零度及九十度之磁阻曲線。

由以上的磁阻曲線我們可以認定在電漿氧化的情形下，上被固定層是受到 NOL 層的作用而排列在與退火方向夾九十度的位置，然而為了更著重在此一層的排列行為，去除自由層，僅將膜層鍍至上被固定層

(稱之為半自旋閥結構)，並利用 MOKE 及 VSM 所量之磁滯曲線。

3-2-2 半自旋閥結構：Si//Ta/Cu/IrMn/CoFe10/PyOx/CoFe20/Ta

下圖 4-9 即是利用半自旋閥結構磁滯曲線之圖形，我們可以清楚的由此曲線發現此時的確在九十度處具有單軸異向性之力，而此結果也符合先前在自旋閥結構中看到九十度量測時的擬自旋閥結構訊號，反應出上被固定層與自由層兩者的矯頑場差，而此時所量測之矯頑場大小便是此時上被固定層所受到奈米級氧化層之正交耦合作用力的影響。而此時之零度曲線則呈現出一難軸訊號，主要是來自於上被固定層的貢獻，而接下來我們便利用 VSM 進行改變奈米級氧化層 Py 厚度以及氧化條件下的量測。

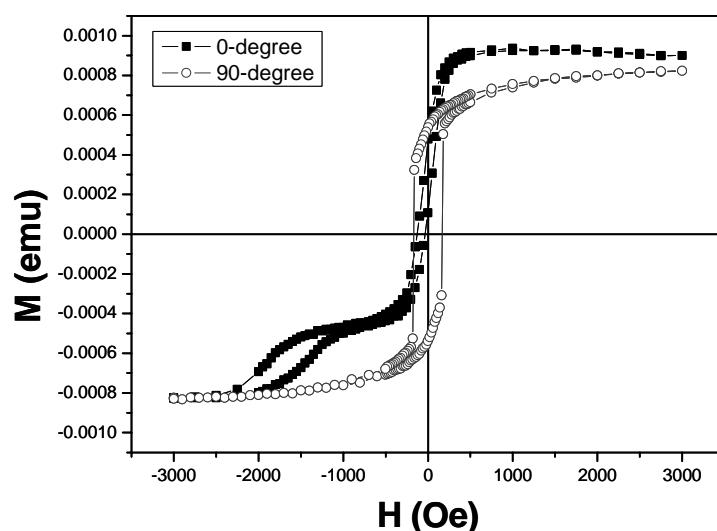


圖4-9 PyOx系統中利用MOKE量測之零度及九十度磁曲線圖

3-2-3 改變 Py 厚度對 PyOx 系統的影響：(0.3, 0.8, 0.95, 1.15 nm)

主要在奈米級氧化層上可以更改的參數有氧化時間以及膜層厚度兩者，然而一般而言氧化時間越長則氧化深度越深，然而本實驗中發現，改變氧化時間並不會造成正交耦合力的影響。反而在奈米級氧化層厚度的改變上，在零度的磁滯曲線上卻有明顯的影響。

如圖 4-10(a) 所示，當 Py 厚度控制 0.3 nm 時，零度及九十度磁滯曲線沒有差異，反應出此時由於氧化至鐵磁-反鐵磁界面而造成破壞喪失反鐵磁作用力因而也使正交耦合力消失；

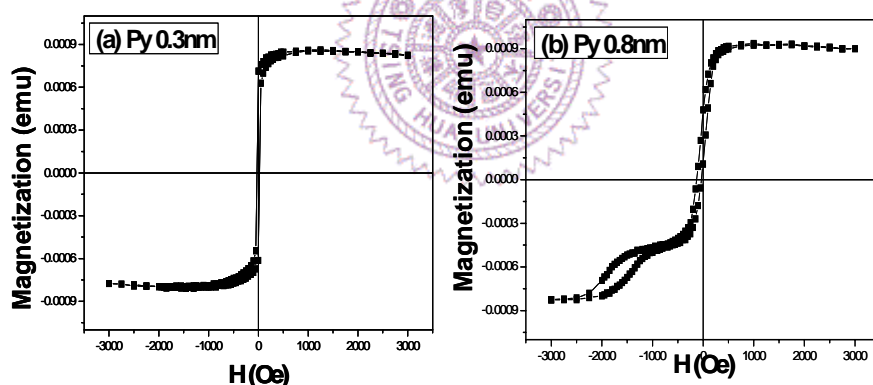


圖4-10 不同Py厚度下零度磁滯曲線的差異 (a)Py0.3nm; (b)Py0.8nm

當 Py(0.8 nm)時，圖 4-10(b)，下被固定層被抓住偏移約 1700 Oe，而上被固定層則呈現難軸曲線。然而當 Py 厚度漸漸變厚時，下被固定層交換場的大小逐漸變小。而如圖 4-11 所示，我們可以知道在不同 Py 厚度下的下被固定層所受到交換場的大小。

(Py0.8→Hex~1700 Oe ; Py0.95→ Hex~1300 Oe ; Py1.15→ Hex~1000

Oe)。→此也反映出當 Py 層厚度變厚時，仍有部分未氧化之 Py 造成

整體下被固定層 M 值上升交換場變小。

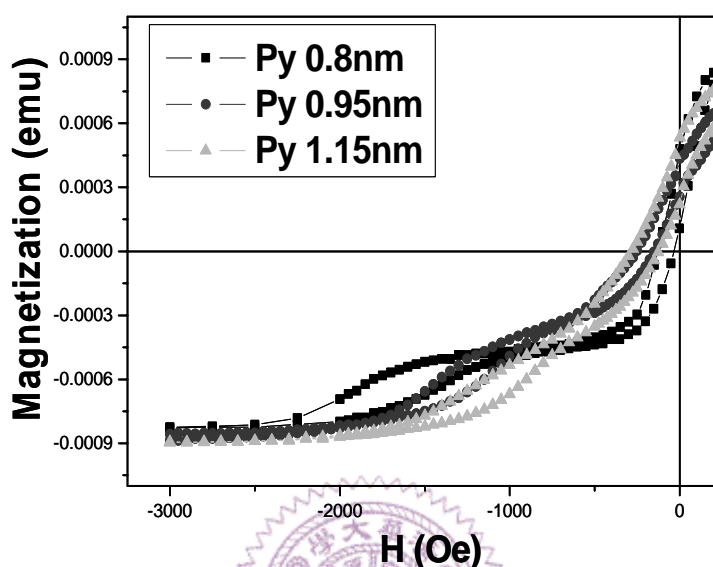


圖4-11 改變Py厚度在0.8nm,0.95nm,1.15nm時零度磁滯曲線圖形

3-3 FeOx system :

由以上的結果發現，當我們利用 Py 進行電漿氧化時可以發現正交耦合力的出現；自然氧化則無。然而為了去更了解 PyOx 系統中正交耦合力的來源，因此便單純選用 Fe 作為奈米級氧化層的材料，發現此時對於上層的被固定層而言，不再只是受到正交耦合力，單方向的耦合力也同時在此系統中出現。而此部分我們則是利用磁阻曲線的結果去解釋 Fe-NOL 系統的情況，並在下一節中藉由磁滯曲線單純去觀察

上下兩被固定層的狀態。

而本實驗中 Fe-NOL 系統膜層設計大致如下：

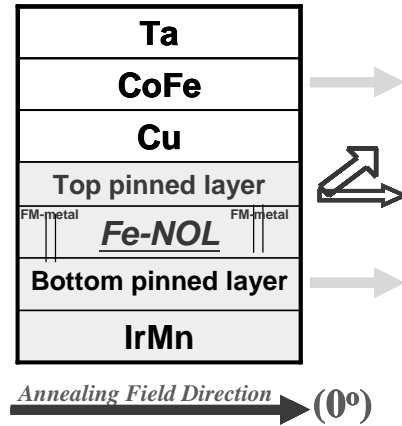


圖4-12 自旋閥結構中在被固定層中插入 Fe 奈米級氧化層磁矩排列情況之示意圖

利用以上的 FeOx 之奈米級氧化自旋閥結構量測磁阻值對外加磁場的變化情形發現藉由不同角度下的磁阻曲線量測會有不同之表現，並也反應出此時上被固定層以及自由層間磁矩排列的相關位置：(1)量測角度與退火磁場同向[圖 4-13 (a)] (即零度位置)，此時我們可以發現一類似於一般自旋閥磁阻反應，在負場處可以看到一翻轉場反應出此時上被固定層依舊有受到反鐵磁層的交換異向性力，使其翻轉的曲線偏移至負場處，然而由負場退回零場時的翻轉曲線並沒有如單純反鐵磁耦合力般劇烈，而出現一特殊的曲線，因此此時便推測此時的上被固定層並不單純只有受到單方向的耦合力，並進而去量測九十度處的曲線情形；(2)量測角度與退火磁場夾九十度時[圖 4-13 (b)]，則會發現如 PyOx 系統中擬自旋閥結構下相同的圖形，即磁阻的變化為兩個平

台，自由層在低場下翻轉，得到高阻值，而後當外加場克服上被固定層之矯頑場時即變回低電阻態，因此也反應出此時的上被固定層是被耦合在九十度的位置處。然而結合零度以及九十度量測之磁阻曲線的結果，我們可以推測此上被固定層是同時受到正交耦合力以及反鐵磁層所提供之交換異向力。

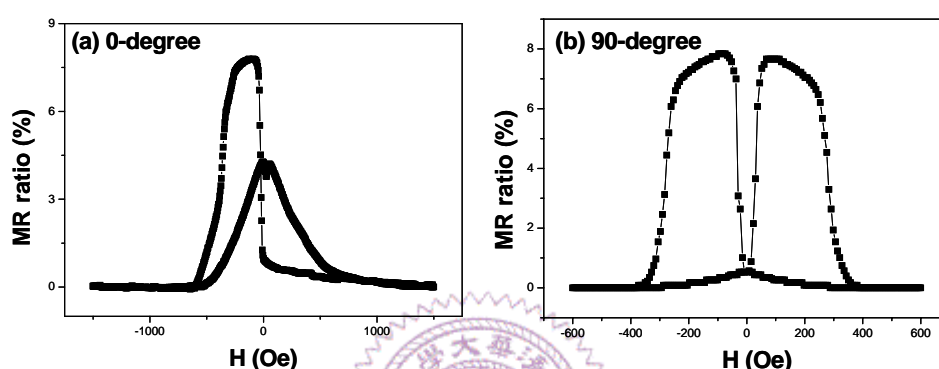


圖4-13 FeOx插入自旋閥結構後之零度(a)及九十度(b)磁阻曲線圖

而為了更進一步去解釋此種兩耦合力共存的情形，下圖 4-14 我們便轉換試片角度至與退火場夾 15 度處的位置進行磁阻變化率量測，並藉由附圖的標示來說明此項翻轉的機制。

藉由附圖，我們針對在 FeOx 系統自旋閥結構所得 15 度之磁阻曲線來做以下的解釋：

(a)在正場飽和時，自由層與上被固定層均沿磁場方向排列得到最低電阻態；

(b)當磁場放掉後，上被固定層便受反鐵磁層作用力影響轉至 15 度位置，而當磁場至負場時，自由層翻轉得高電阻態，之後負場更大使被

固定層翻轉使得上被固定層也翻轉是負場位置，得低電阻態；

(c)隨後再將負場放掉，上被固定層由於受到正交耦合力的作用，利用磁區翻轉(Domain Rotation)的模式轉至與量測場夾 105 度的位置(即與退火方向夾九十度處)，然而由於此一區間，均在負場下，自由層不會翻轉，因此磁阻值緩慢上升至標示為 1 處(實驗值約 $0.38 MR_{\max}$ ，與理論計算值 $0.377 MR_{\max}$ 相符合){註 1}，而後當外加場變為正場時，自由層翻轉，出現如最低電阻態(標示 2)，此時即是自由層與上被固定層磁矩同向時，而後磁阻便漸漸增大至標示 3 處。

(d)隨後隨著外加磁場不斷增加再度使得兩層平行排列得到最低電阻態。



{註 1}

利用公式磁阻變化率之公式

$$MR(H) = \Delta R \left(\frac{1 - \cos[\theta_a(H) - \theta(H)]}{2} \right)$$

可以得到當我們不同磁阻值差異的比例如下計算式，磁阻最大值為被固定層被反鐵磁層抓住，自由層在沿負場方向時，此時兩者夾角 165 度；而標示為 1 之點則是上被固定層被正交耦合力抓住，而自由層仍沿負場方向時，此時夾角則為 75 度。因此便藉由以上之公式可以得知此兩點的 MR 值比例如下：

$$\begin{aligned} MR(H_a/H_{\max}) &= [1 - \cos(\theta_a)] / [1 - \cos(\theta_{\max})] \\ &= [1 - \cos 75^\circ / 1 - \cos 165^\circ] = 0.7412 / 1.9659 \\ &= 0.377 \end{aligned}$$

$$\rightarrow MR_{[H_a]} = 0.377 MR_{[\max]} \text{ (與實驗所得之值接近)}$$

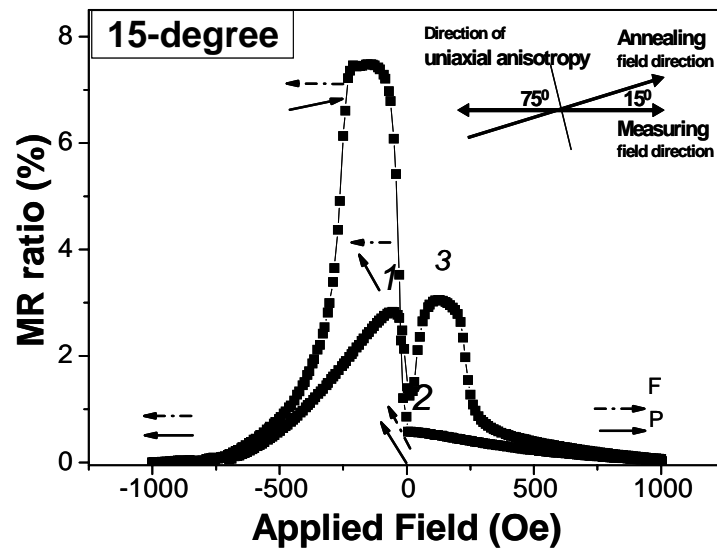


圖4-14 十五度磁阻曲線及磁矩排列翻轉情形

因此，為了更了解此一系統上的有趣行為，以下我們便藉由改變上被固定層的厚度以及下被固定層的厚度去觀察各種不同的行為，並藉此更去了解其中的機制。並且也會試圖利用殘存磁化量 M_r 對量測角度的關係以及 Vector Coil 量測法等去做詳盡的研究。

3-3-1 上被固定層厚度對正交耦合力的影響：

Si//Ta35/Cu12/IrMn80/CoFe10/FeOx15/CoFe(Y)/Cu23/CoFe40/Ta35

如同一般所示，改變上被固定層的厚度與在九十度磁阻曲線上呈現之正交耦合力的大小是息息相關的，當上被固定層的厚度變大，正交耦合力所需耦合住的磁矩量變大，因此所能承受的外加場大小降低，因此也如下圖般當厚度大於約 1.5 nm 時，隨厚度變厚而九十度矯頑場

變小。然而當厚度小於 1.5 nm 時，則由於無法反映出磁阻變化的行為，因而在磁阻曲線上並無法觀察其變化。

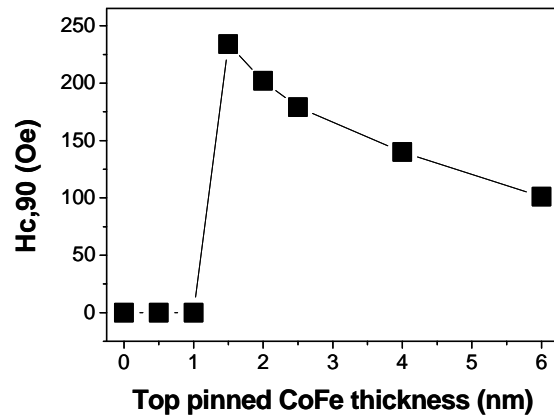


圖4-15 上被固定層厚度與九十度磁滯曲線中矯頑場大小

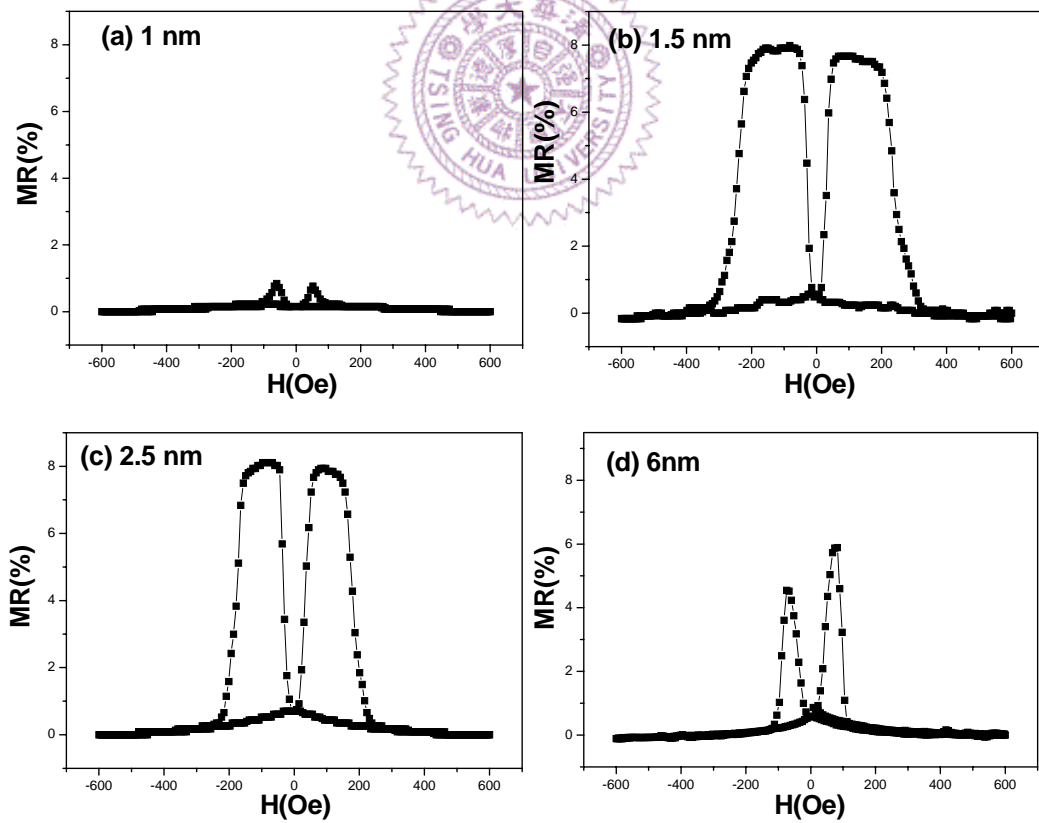


圖4-16 不同上被固定層厚度下的磁阻曲線圖 (a) 0nm; (b) 1nm; (c) 1.5nm; (d) 2.5nm; (e) 6nm

為了去求得此一情況下正交耦合力的 θ 大小，我們利用下述能量式去進行計算：其中 K_{top} ， t_{top} 為上被固定層之異向性常數及厚度， J_2 則為此時所貢獻之正交耦合異向性大小。

$$E = K_{\text{top}} t_{\text{top}} \sin^2 \theta + J_2 \sin^2 \theta, J_2 < 0$$

而最低能量態時， $dE/d\theta = 0$

→ 因此可推導得當 $|K_{\text{top}} t_{\text{top}}| < |J_2|$ 的情況下，正交耦合力才會發生，而藉由正交耦合力消失時所知的上被固定層厚度便可推得此系統中正交耦合力 J_2 值的大小。

如圖本實驗利用線性函數推得正交耦合力消失時的上被固定層厚度約為 6nm，而此鐵磁層 CoFe 之異向性常數 K 約為 $5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ ，因此我們可以利用公式得到 J_2 值大至約為 0.3 erg/cm^2 。

3-3-2 下被固定層厚度對正交耦合力的影響：

Si//Ta35/Cu12/IrMn80/CoFe(X)/FeOx15/CoFe20/Cu23/CoFe40/Ta35

除了上被固定層對正交耦合力有明顯的影響，下被固定層的厚度對也有一定的趨勢。當下被固定層厚度小於 0.5 nm 時，由於在磁阻曲線上，厚度太薄而不會有 MR 的訊號產生，但是當我們厚度在 1~4 nm 的時候可以很明顯的發現正交耦合力厚度不斷增加的情形下，耦合力也會隨之上升，此現象可能是由於當下被固定層厚度變厚的情形下，反鐵磁層耦合住的磁矩量變大，因而交換場變小，而此時由於正交耦

合力依舊維持一定大小，因此 J_2 值相對於 J_1 影響相對變大，因而使得九十度處的矯頑場變大。在 FeOx 系統中由於上被固定層仍受到 J_1 的影響，同時又有 J_2 的貢獻，然而當我們量測角度為九十度處時，照理來說 J_1 並不會有貢獻，但是由於 pinning 角度的一些分布，所以 J_1 在能量式的計算上依舊會造成九十度處矯頑場大小的變化。然而當厚度大到約 6 nm 時，圖形將會變得相當特殊複雜，而到達 10 nm 時，則會發現此現象完全消失，上被固定層會被耦合在零度的位置，而在九十度量測中呈現難軸的曲線。

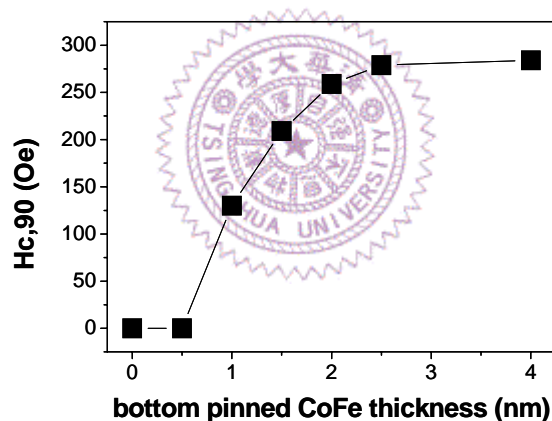


圖4-18 下被固定層厚度與九十度磁滯曲線中矯頑場大小

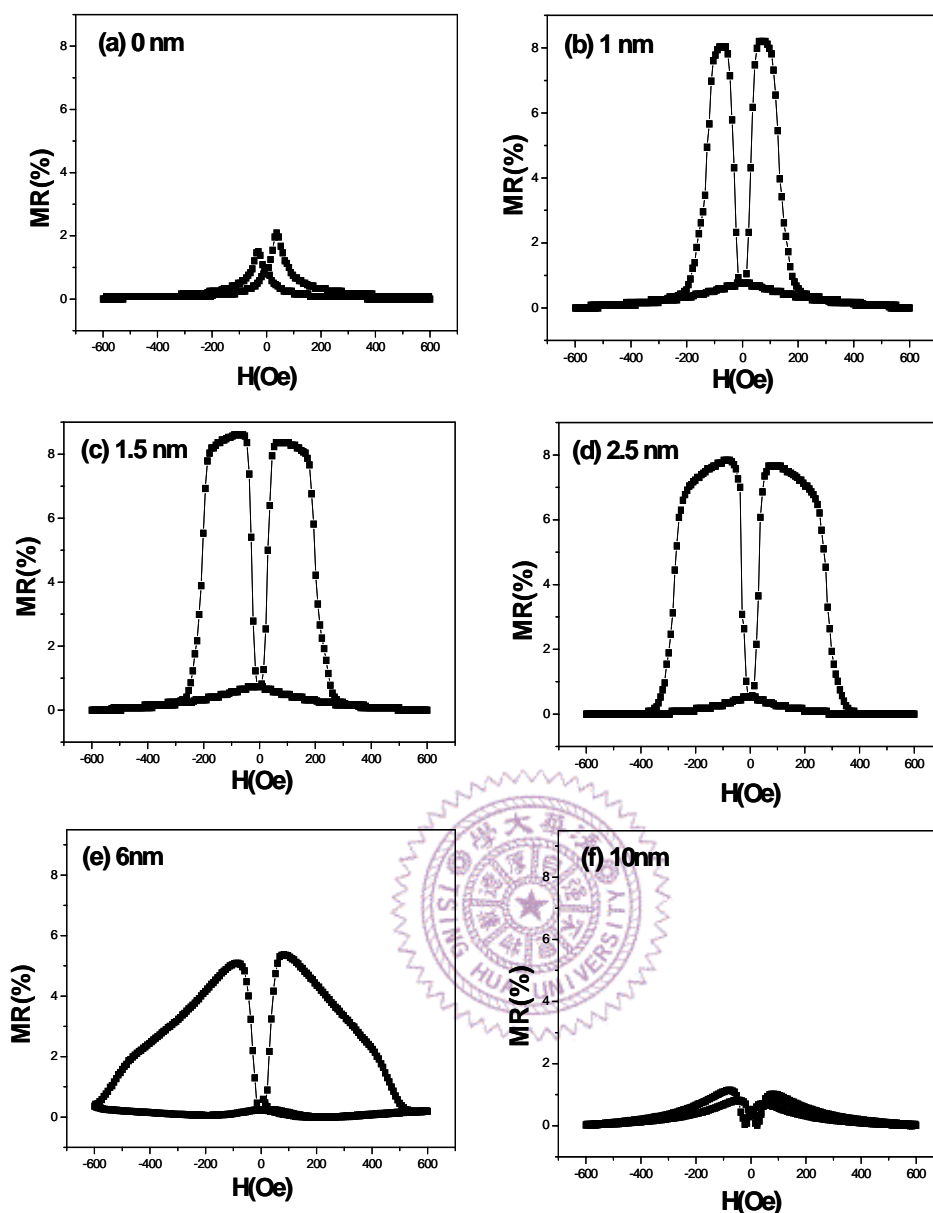


圖4-19 不同下被固定層厚度下的磁阻曲線圖 (a)1nm; (b)1.5nm; (c)2.5nm; (d)4nm; (e)6nm; (f)10nm

3-3-3 FeOx 半自旋閥結構

然而為了更進一步去了解其中上下被固定層的磁矩排列行為，再以下的一系列實驗去除了自由層的影響，單純藉由磁滯曲線的量測來驗證奈米級氧化層上下兩層鐵磁層的翻轉行為。而我們也將去除自由層的

膜層結構稱為”半自旋閥結構”，由於沒有了自由層的影響，在磁滯曲線上的圖形也變得相對單純僅反映出奈米級氧化層上下兩鐵磁層的訊號。而由實驗量測之圖形發現在 IrMn(AFM) /CoFe(FM) /FeOx(NOL) /CoFe(FM)的膜層結構中，磁矩翻轉所得之磁滯曲線圖形主要有兩項較為特殊的機制：一、零度曲線圖之不對稱性(asymmetry)，由正場退回至負場，以及負場量至正場所得之磁滯曲線上的不對稱性；二、九十度曲線的翻轉行為反映出此時在九十度位置上有一能量穩定態的存在。

如下圖 4-21 所示，空心方塊的曲線是指在此一結構下零度量測所得之圖形，為一非對稱之曲線，由正飽和場放掉後需達一負場值後曲線會翻轉，展現出如交換異向性曲線偏移的現象；然而特殊的是，當量測磁場由負飽和場放掉時，所出現的曲線反映出此時鐵磁層是以磁區翻轉(Domain Rotation)的模式進行，因此磁矩量隨外加場漸漸變大，而不會出現一般單純鐵磁-反鐵磁間磁矩以磁區壁(Domain Wall Motion)移動的方式而得急劇的翻轉。事實上此一現象也顯現出此系統的複雜性，因此我們便進一步藉由九十度磁滯曲線的圖形觀察，明顯可得到在一定大小的磁場下，上被固定層因此時外加場克服正交耦合力而劇烈翻轉，然而此時貢獻出傾斜的直線則是下被固定層被反鐵磁耦合住而在九十度曲線反映出難軸的訊號。

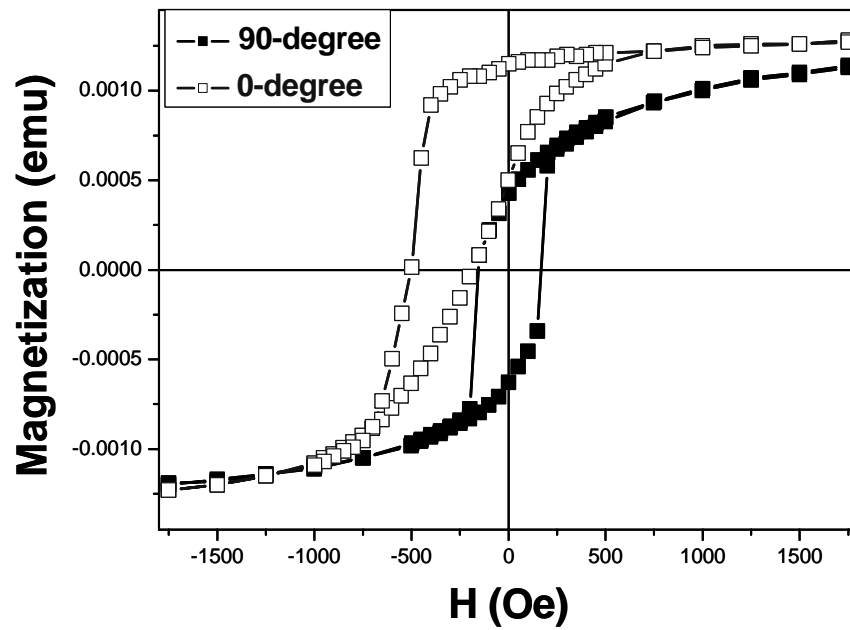


圖4-20 FeOx系統中零度及九十度磁滯曲線

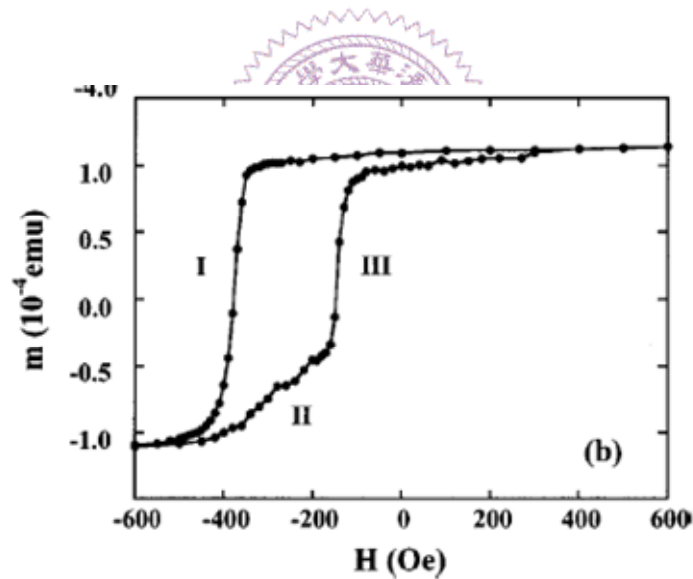


圖4-21 Shuller PRB63,060403

而在先前有關不對稱交換場曲線的論文中，Shuller[a]曾提出有關 FeF₂ 上疊 network Fe 的實驗中，發現磁滯曲線會有偏移且不對稱的現象產生，然而若 Fe 是以薄膜的方式鍍在 FeF₂ 上則不會有不對稱的曲線產生。而其圖形中主要可以區分為三個區域 I 為最標準反鐵磁層

以磁區壁移動的方式呈現造成曲線上明顯陡峭的翻轉，然而由負場翻回正場區域 II 的位置，由於 networks Fe 的小區域抑制了反鐵磁層內磁區壁的形成，因而反鐵磁層此時的翻轉以磁區翻轉為主而造成區域 II 的圖形，而有不對襯的區域產生。

而在 J.McCord[b]所研究之 CoFe/IrMn 系統中藉由 Kerr microscopy 來觀察磁矩翻轉的情形，發現由於鐵磁層的所具之異向性大小是不均勻大小的分布而造成了在反鐵磁層內部小角度磁區壁的產生而造成了在交換場系統的不對稱情形。

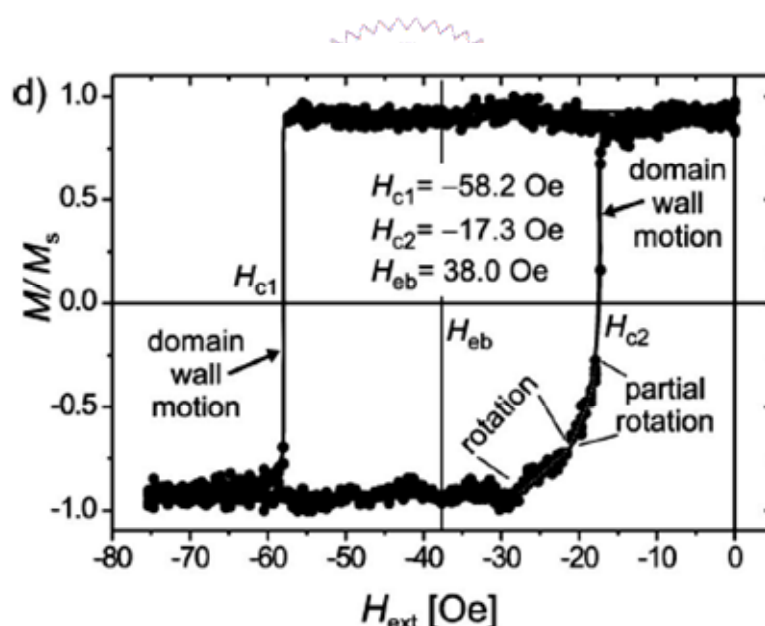


圖4-22 J.McCord JAP93,5491

綜合以上之研究，我們推測在本實驗研究 FeOx 的系統中，由於在 AFM/FM 之鐵磁層中間夾入一奈米級氧化層，並且此奈米級氧化層為一不連續之氧化薄膜，因此反鐵磁層 AFM 相當於是耦合住下被固定

層並藉由 Fe-NOL 層內之鐵磁通道耦合住上被固定層之磁矩，然而此時當磁場由正場退至負場的時候，由於鐵磁層是由最穩定態翻轉至最不穩定態，因此翻轉的模式依舊是以 domain wall motion 為主，即是外加場克服交換場的時候鐵磁層才會突然有翻轉的動作。然而當磁場由最不穩定之負場施加至正場的過程中，由於此時磁矩會希望其能找到最接近位置之最低能量態，而由上述所提在奈米級氧化層會提供一九十度位置處之介穩態，因此磁矩此時會傾向以 domain rotation 的方式漸漸翻轉至介穩態及九十度之位置，再漸漸回到最穩定態之零度位置，而這段翻轉的過程中便是以 domain rotation 的方式進行，因此便可得到此種不對稱圖形的產生。

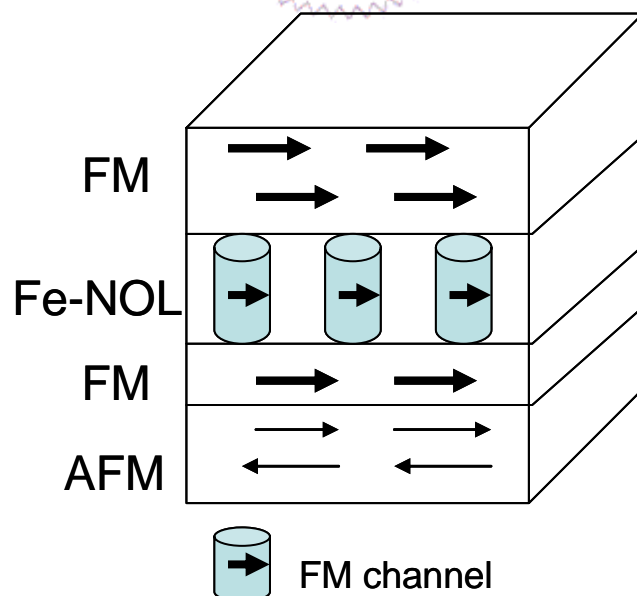


圖4-23 Fe-NOL自旋閥結構中磁矩排列模型

3-3-4 FeOx 系統中反鐵磁層所扮演之角色

而另一方面，正交耦合力系統，在文獻上主要是以 FM/AFM/FM 為主，如 Camarero[c]所提之 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{NiO}/\text{Co}$ 系統以及 P.A.A. Van der Heijden[d]研究之 $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{NiO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ ，均是藉由中間反鐵磁間隔層的影響所造成的九十度耦合力，而在本實驗中則是以 AFM/FM/NOL/FM 為探討之依據，則與 S.Matt[e]所探討的 $\text{PtMn}/\text{CoFe}_{10}/\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{CoFe}_{10}$ 系統甚為接近，利用反鐵磁層耦合住下被固定層，而後藉由中間間隔層因介面呈現高度混亂狀態使得上被固定層排列在九十度的位置。

當然我們可以去想像，此一正交耦合力的作用，是否只是單純如同 FM/AFM/FM 系統相似，根本不需要反鐵磁層定義方向的作用呢？為了更清楚此一想法，我們便設計兩組試片去研究，一組為具有反鐵磁層但不經退火定義方向，一組則不鍍製反鐵磁層。然而由下[圖 4-24,4-25]可知若是不去定義鐵磁-反鐵磁的方向性，即不進行磁退火，磁滯曲線在每個角度下量測所得之圖形均相同，僅僅受到反鐵磁層因散亂排列而對上層鐵磁層只會有矯頑場提升的效果而不會有其他的影響。然而若是直接去除反鐵磁層只單純考慮 FM/NOL/FM 三層結構，則亦無論是否進行磁退火均不會有任何方向性也不會有矯頑場的變化行為。

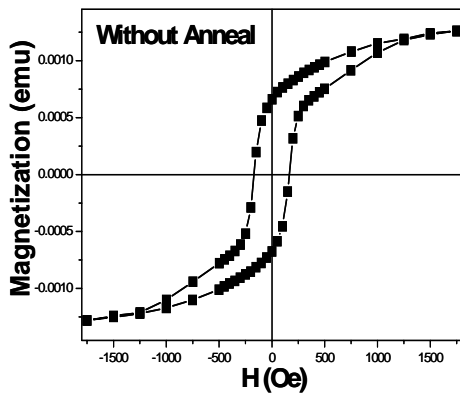


圖4-24 未進行退火之磁滯曲線

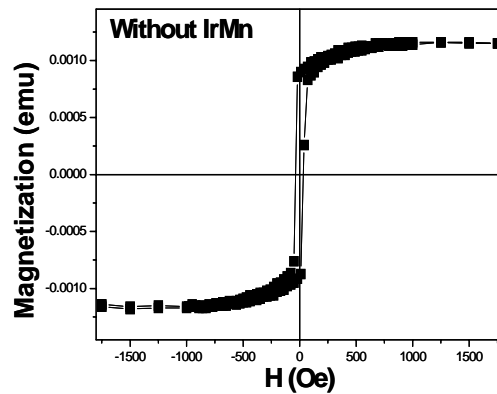


圖4-25 不加IrMn之磁滯曲線

3-3-5 改變 IrMn 厚度下磁滯曲線的差異：

Si//Ta/Cu/**IrMn(Z)**/CoFe/FeOx/Cu/CoFe /Ta

改變 IrMn 厚度主要也是考慮到交換異向性對正交耦合力的影響，如上一節交換異向場所示，當 IrMn 厚度降至 3~4 nm 時，交換場即會漸漸變小，反而造成矯頑場的提升。藉由此結果首先讓我們來看本多層膜系統中在 IrMn 厚度分別為 10, 6, 4, 2 nm 下的零度及九十度磁滯曲線圖，如圖 4-26，實驗發現，當 IrMn 能有效提供交換異向性時，正交耦合立即會明顯的出現，然而當 IrMn 厚度降至 4nm 時，由於交換異向性差因此在零度磁滯曲線上僅會看見少量地偏移，九十度的曲線也不如 IrMn 厚度 6, 10 nm 時有明顯；而當厚度降至 2nm 即無法再提供交換異向性時，此時零度及九十度曲線相同並無偏移等現象。

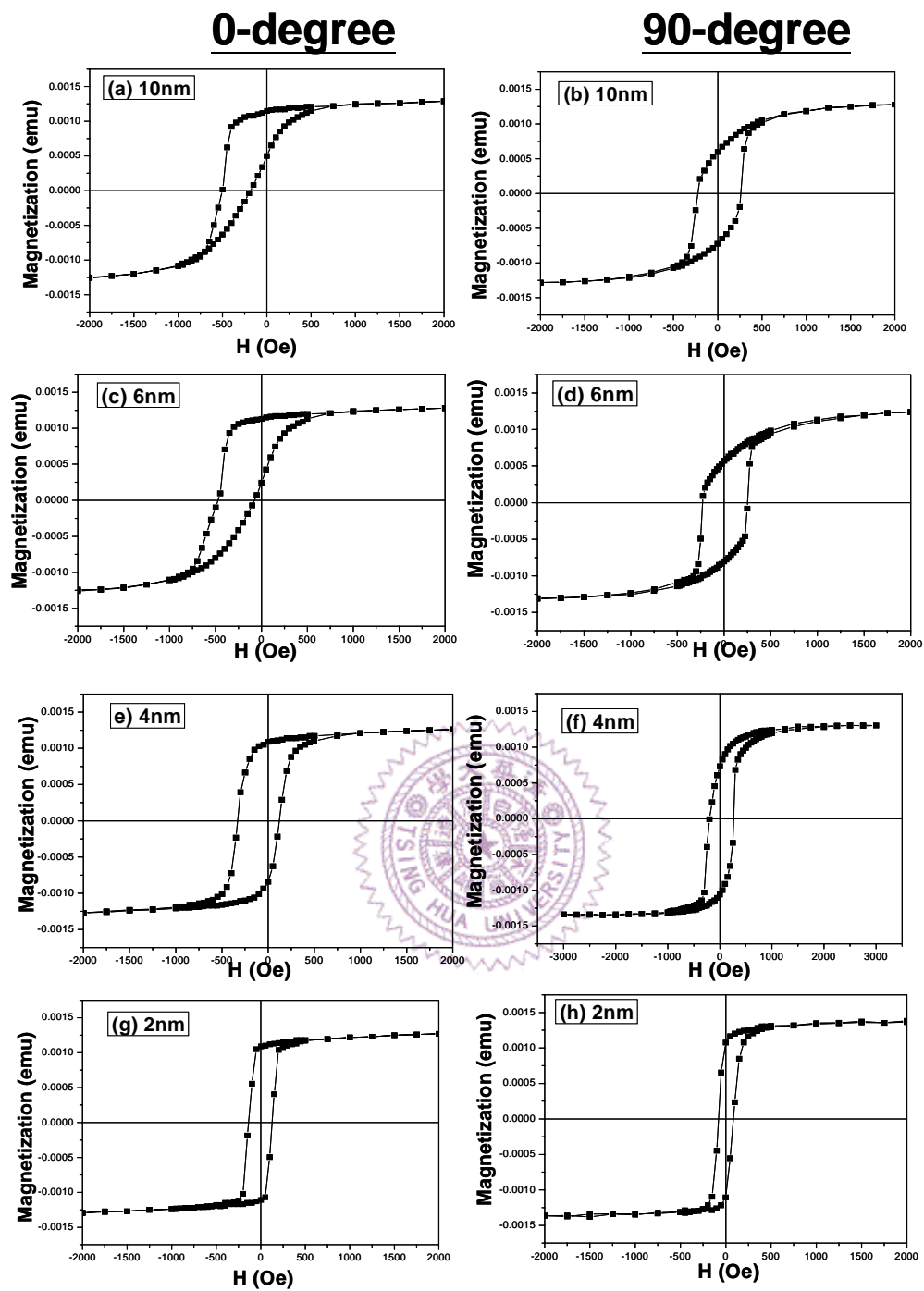


圖 4-26 改變IrMn厚度之半自旋閥結構零度(左a,c,e,g)及九十度(右b,d,f,h)磁滯曲線圖形

3-3-6 Vector Coil Data :

而以下我們則是利用 VSM 中的 vector coil 量測法，同時量測在 X 軸向以及 Y 軸向上的 M 值變化(如圖 4-27)，如此一來便可以藉由 M_x 及 M_y 的圖形反應出此時磁矩隨外加磁場改變下的翻轉狀態，而不再只是單純感應平行外加場方向的訊號。

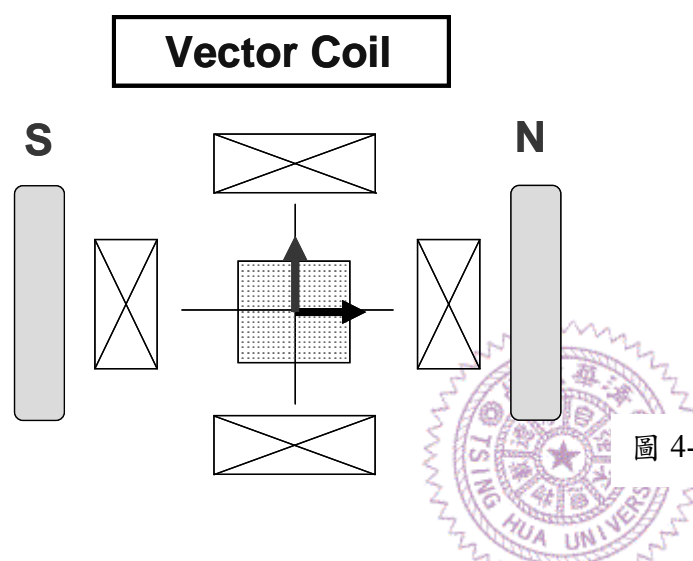


圖 4-27 vector coil 之示意圖

首先我們先以標準的單軸異向性 NiFe 以及 IrMn/CoFe 交換異向性的試片作為標準來進行探討。如圖 4-28 所示，若是我們單純鍍製單軸異向性之 P_y ，則 M_y 訊號幾乎沒有訊號表示此時 P_y 是以 domain wall motion 的形式翻轉，但仍有部分磁矩仍以 rotation 的形式並且在磁場等於矯頑場時有一小的翻轉。而在交換場系統中，我們可以發現 M_y 訊號在鐵磁層翻轉的磁場下均有最大值，而後在漸漸減小，而此部分的訊號則是來自於 domain rotation 的影響。因此在 vector coil 的量測中我們可以知道， M_y 的訊號來源主要是來自於 domain rotation 的影響，因此在鐵磁層翻轉時才能在九十度的位置貢獻出訊號，如此一來

也可以藉此判定膜層中磁訊號的翻轉行為模式。

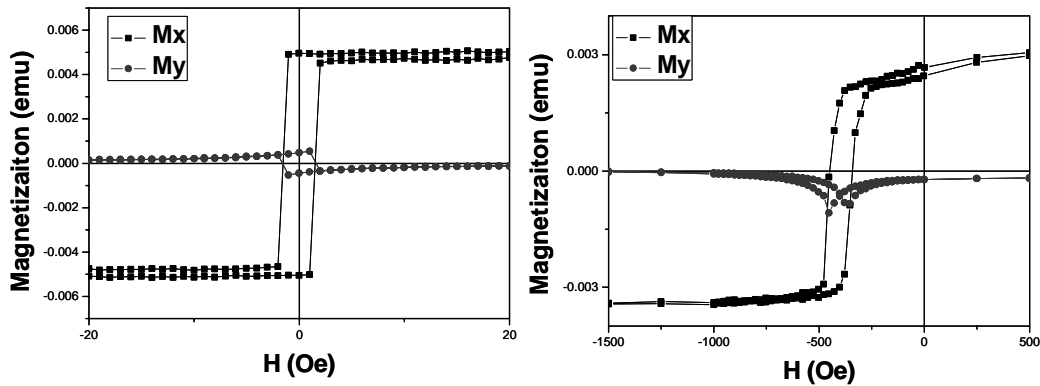


圖4-28 (左)單軸一向性之Py薄膜 (右)IrMn/CoFe交換場系統

而如圖 4-29,4-31，將 FeOx 半自旋閥結構試片進行零度以及九十度之磁滯曲線量測，實心方塊為 Mx 之分量，空心圓為 My 之分量。Mx 的曲線則是與單純使用 VSM 量測的圖形相同，而空心圓 My 則是取當時與外加場夾九十度處的 M 值變化。

零度

正場→負場 圖 4-29(b)

由曲線可以發現當外加場由正場變成負場時，在 $H \sim -500$ Oe 時，有一明顯的翻轉，Mx 的訊號轉換至 My 處，此時即表示上被固定層之磁矩翻轉至九十度的位置，因此此時在 My 方向有一明顯的磁矩貢獻，而後隨磁場加大，逐漸將原本排在上被固定層之磁矩翻轉至 180 度處，因此 My 訊號漸小，Mx 負值逐漸漸大。

負場→正場 圖 4-29(c)

然而若是由負場放掉逐漸加至正場，則在 M_x 處則是正斜率的斜直線，而在 M_y 處幾乎沒有訊號的貢獻，此種結果基本上可以分為兩種情形來做討論，一種是由於磁場由負場放掉時，磁矩以 rotation 的方式翻轉，由於此時在九十度處有一單軸異向性，因此磁矩翻轉時，在兩邊的量是一致的，因此在 M_y 的訊號上完全抵銷，卻在 M_x 上逐漸減少後增加；而另一種模式則是此時磁矩是以 domain wall motion 的方式進行，但是其移動是隨磁場改變而逐漸將磁區壁推動，因此在 M_y 處依舊沒有貢獻卻在 M_x 處減少後增加。

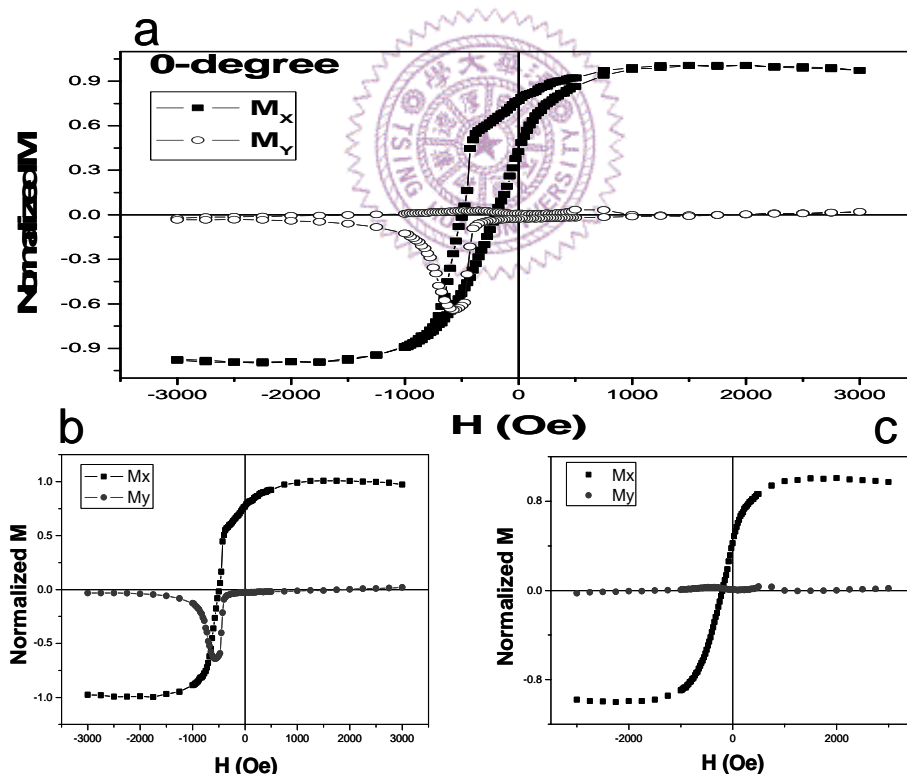


圖4-29 利用vector coil量測(a)零度磁滯曲線(b)由正場退至負場之訊號
(c)由負場退至正場之訊號

而讓我們進一步比較 Schuller [f]所研究之 Fe-FeF₂ 膜層之不對稱之磁

滯曲線(如圖 4-30)，利用 transverse MOKE 同時量測 $M_x(M_l)$ ， $M_y(M_t)$ 訊號來觀察磁矩翻轉行為。而在 Schuller 的系統中我們就可以很清楚的看出來不對稱性的來源就是單純的由於 domain rotation 以及 domain wall motion 兩者間的競爭產生在 M_x ， M_y 方向訊號上的差異。而與本實驗由於存在一正交耦合力使得磁矩會翻轉至九十度的位置造成 M_y 處訊號突然變強機制上有所差異。

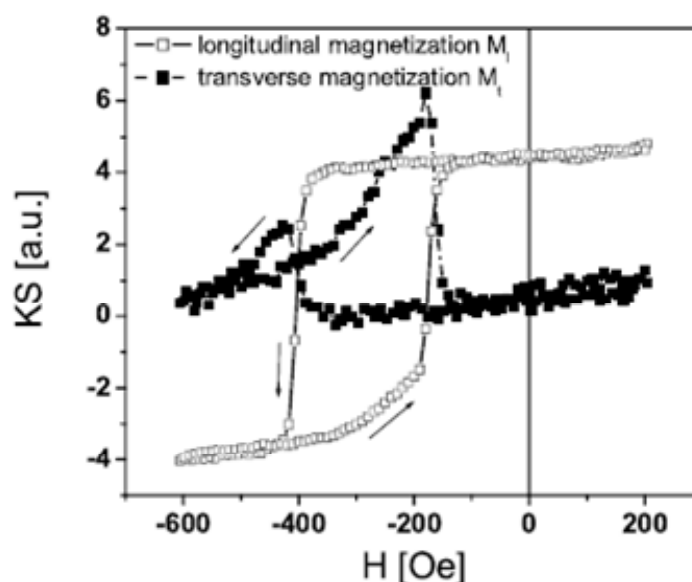


圖4-30 Fe-FeF₂ 系統 (Schuller PRL94,057203)

九十度 圖 4-31

隨著外加磁場漸漸變小， M_y 的訊號逐漸變大，其貢獻即來自於下被固定層受到反鐵磁層的耦合力因而再被抓回零度的位置(此時即 M_y 處)。

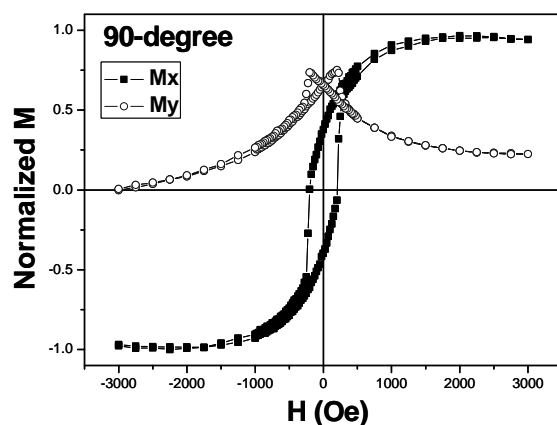


圖4-31 利用vetor coil量測九十度之Mx，My之磁滯曲線

3-3-7 Angular Dependence :

接下來，我們便改變試片量測角度去觀察磁滯曲線上的差異，如下圖

4-32 所示，零度與一百八十度的圖形是以原點為中心對稱，而九十度的曲線則是結合難軸及易軸訊號而成的磁滯曲線。

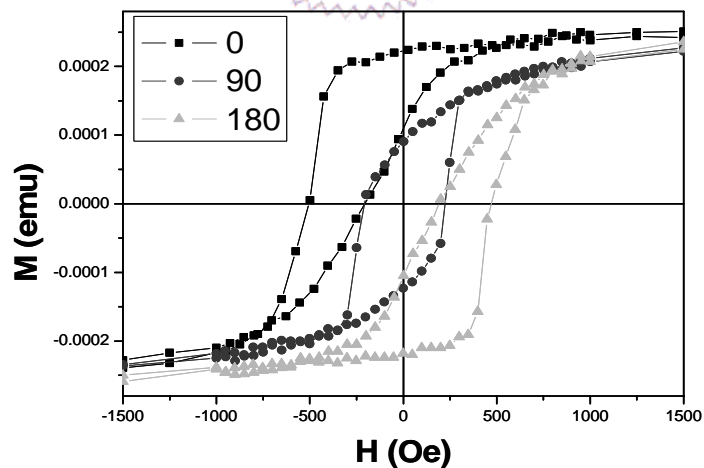


圖4-32 零度、九十度及一百八十度磁滯曲線圖形

而如圖 4-33，我們試著取更多不同角度量測下的磁滯曲線，發現當磁滯曲線由零度轉至九十度的階段，負場處的翻轉場漸漸減小，並且再

由負場回正場的曲線逐漸由標準的難軸訊號，轉變成在正場處有一明顯的翻轉，而當角度轉至九十度時，正負場處的翻轉場一致，即顯現出本實驗所提之單軸異向性之正交耦合力。而當角度繼續變大的狀況下，其圖形則是與零至九十度階段成以原點對稱。

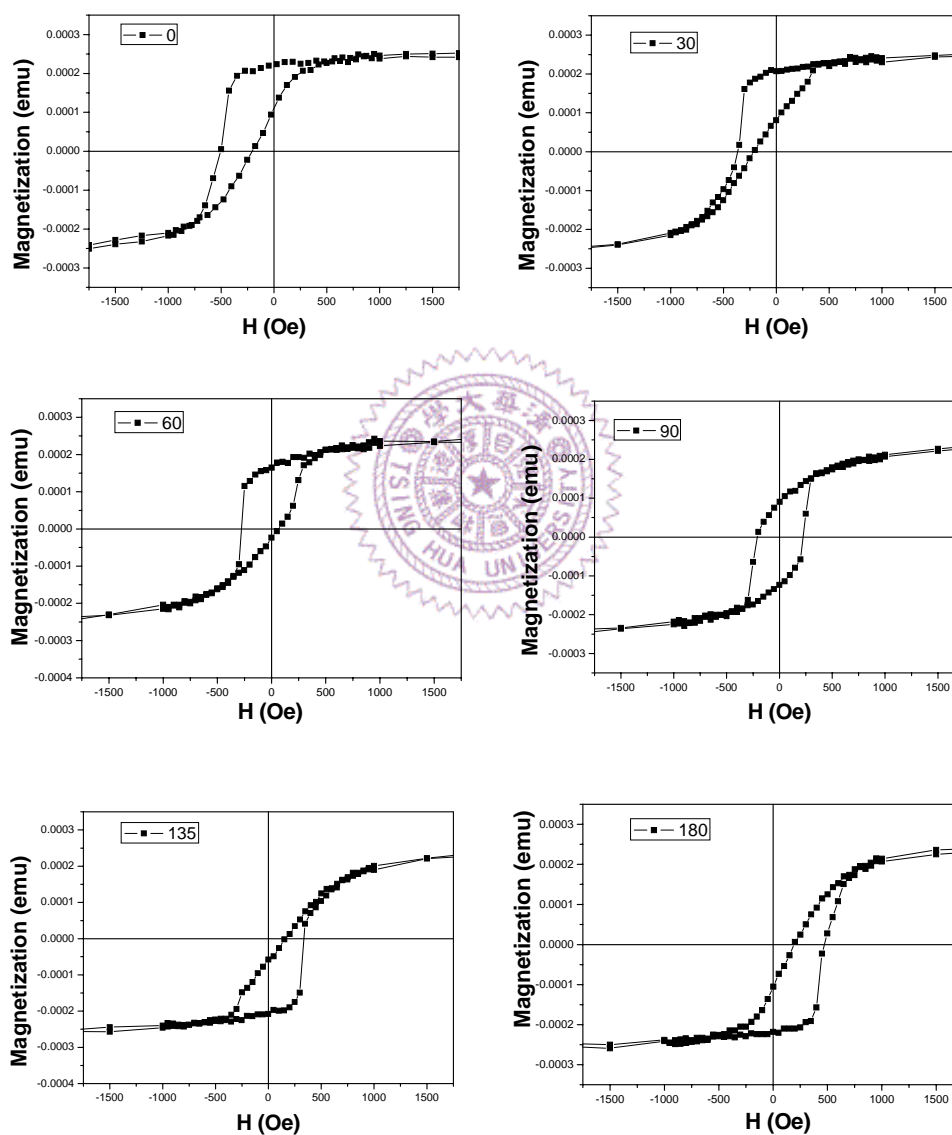


圖 4-33 不同角度量測下的磁滯曲線 (0^0 , 30^0 , 60^0 , 90^0 , 135^0 , 180^0)

而為了更進一步去分析在 FeOx 系統中轉換量測角度下所出現之圖形與本實驗所提之單方向異向性與單軸異向性共存的概念，我們參考了 C.L. Chen 所利用之概念，即是針對一單軸異向性材料來進行殘存磁化量(Mr)對量測角度的關係可以去判斷磁矩所排列的方向，即 Mr 最大值出現在量測角度與磁矩排列方向相同時，如下圖 4-34，而若是為一多層膜結構，亦可以利用此方式經由實驗所得之 Mr 值與計算推得各層磁矩排列的狀態。

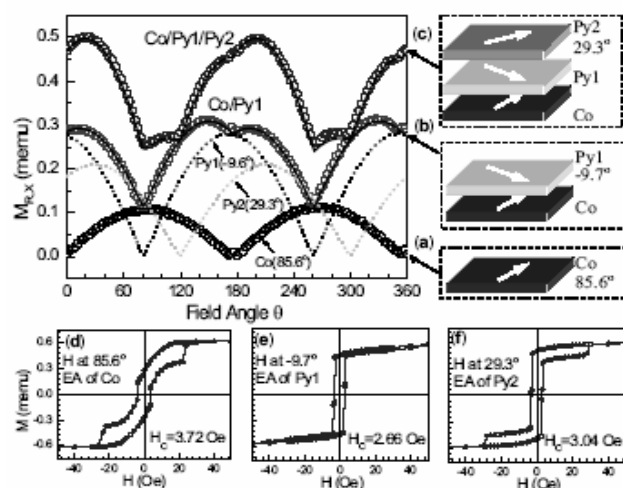


圖 4-34 Zhu and C.L. Chen

然而我們由此概念進行分析上的擴充。針對一個單軸異向性的材料， $Mr^+ + Mr^-$ 所得之值必為零，而 $Mr^+ - Mr^-$ 便可以表現出此時的資訊(此單軸異向性所存在的位置)；然而針對一單方向異向性如標準鐵磁-反鐵磁系統而言，由於由正場以及由負場退回零場所得之殘存磁化量值相同(交換場大小須大於矯頑場)，因此此時 $Mr^+ - Mr^-$ 所得之值變為零，反而是 $Mr^+ + Mr^-$ 才可以反映出單方向異向性的資訊。綜合上述，若是

在一系統中存在單軸異向性則必須利用 $Mr^+ - Mr^-$ 來回推，當然此時的 Mr^+ ， Mr^- 絕對值是相同的，因此在圖 4-34 的文獻中只須取其中一值即可表示。然而若是系統中存在一單方向異向性，則必須利用 $Mr^+ + Mr^-$ 來回推才可以在複雜的系統中分辨出兩種不同機制上的差異性。

而本實驗之 FeOx 系統即是利用上述之概念，比較其 Mr^+ (正場飽和後放掉所得之殘存磁化量) 與 Mr^- (負場飽和後放掉所得之殘存磁化量) 的相對關係，才可藉由此一方式進行確認 FeOx 系統中的確同時存在零度處的單方向耦合力以及九十度處的單軸耦合力。

而下圖 4-35 即是所量測到的結果：

其中實心圓為 Mr^+ ，而空心方塊則為 Mr^-

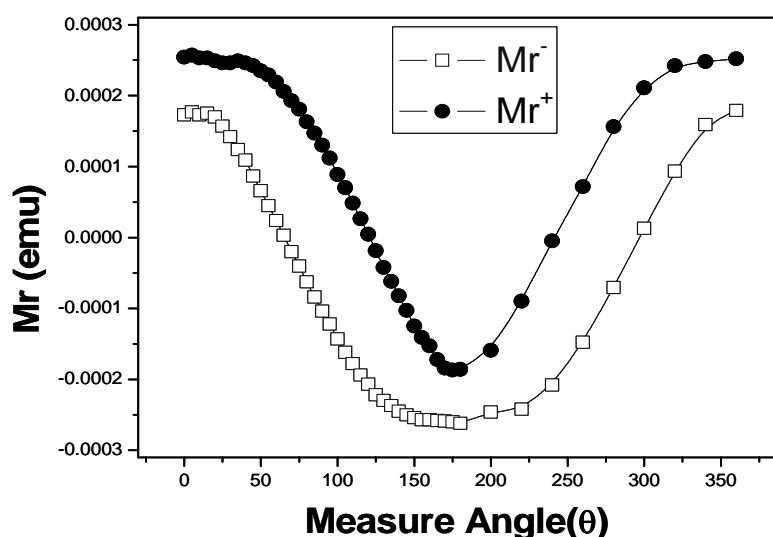


圖4-35 不同量測角度下所得之 Mr^+ 及 Mr^- 值

我們可以知道由於文獻中所做的為單軸異向性的膜層，因此 Mr^+ 必為

正值且等於 M_r 之絕對值，而在本系統中就相對複雜。然而我們取

$M_r^+ - M_r^-$ 以及 $M_r^+ + M_r^-$ 作圖，發現以下有趣的結果：

(接下來的圖示中，左圖為量測的資料，右圖則為 fitting 所得的結果。)

$$M_r^+ - M_r^-$$

將 M_r^+ 減去 M_r^- 作圖，發現如下圖 4-36 所示，其圖形與磁矩單純沿著九十度方向排列相同，在零度及一百八十度量測時為最低值，而在九十度處為最大值。

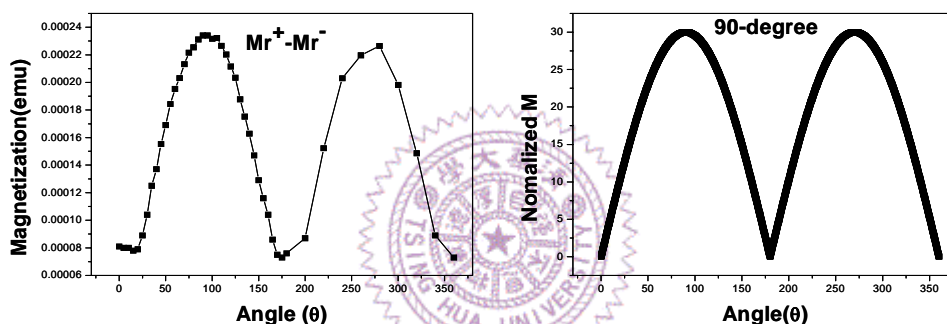


圖4-36 (左) $M_r^+ - M_r^-$ (右)單軸異向性磁矩排列在九十度之 M_r 對量測角度關係圖

$$M_r^+ + M_r^-$$

標準的交換場系統， $M_r^+ = M_r^-$ ，且在九十度時， $M_r^+ = M_r^- = 0$ 。然而在本實驗的系統中發現， M_r^+ 不等於 M_r^- ，有趣的是當利用 $M_r^+ + M_r^-$ 作圖時即可得到標準單方向異向性系統曲線，如圖 4-37，即最穩定態也就是 M_r 最大值均存在於零度及三百六十度處。

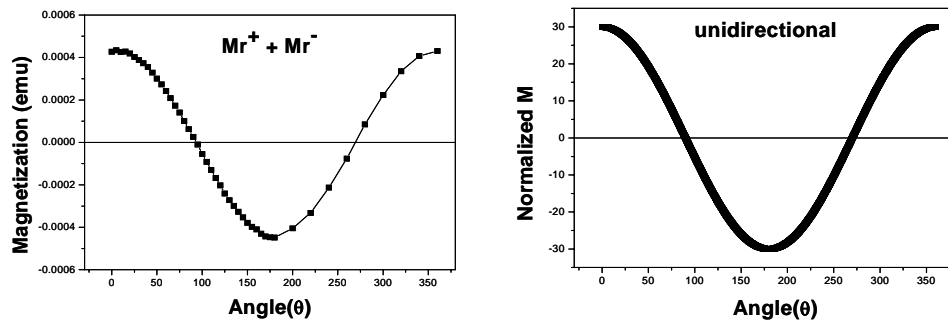


圖4-37 (左) $Mr^+ + Mr^-$ (右)磁矩受單方向異向性力之之 Mr 對量測角度關係圖

→以上兩者比較 $Mr^+ + Mr^-$ and $Mr^+ - Mr^-$ 所得到的結果如預期一者存在單純九十度之單軸異向性，另一者為單方向異向性的圖形，與實驗所提之兩力共存想法一致。



四、磁性質與成分分析：

爲了解釋 FeO_x 系統中針對上被固定層正交耦合力以及單方向異向力共存的情況，我們便針對奈米級氧化層進行單層的磁性質以及成分分析等，而為此我們特別去準備了 IrMn/Co/FeO_x/Co 膜層結構以去除在鐵磁層中 CoFe 中 Fe 訊號的干擾，如此一來才可以針對奈米級氧化層進行以下的分析。

4-1 XMCD 分析：

首先我們便藉由同步輻射中 XMCD 實驗，其設備可以針對單一特定物質進行磁性質的分析，而本實驗便是利用此一概念，針對奈米級氧化層中的鐵進行研究，先將磁場加至正飽和場而後退至零場得 ρ^+ 曲線，而由負場退回所得即為 ρ^- 曲線。此也反映出此時在磁滯曲線上殘存磁化量的狀態，然而若是此材料為非磁、順磁性等性質，則兩曲線會重合而不會有任何差異；若為鐵磁性則因殘存磁化態不在同一點，因此在 ρ^+ 及 ρ^- 的曲線則會出現如本實驗所得下圖 4-38 差異性。

基於此結果我們也可以合理的解釋由於奈米級氧化層具有磁性因而能有效傳遞反鐵磁交換異向性至上被固定層而造成在零度的磁滯以及磁阻曲線上訊號偏移的行為。

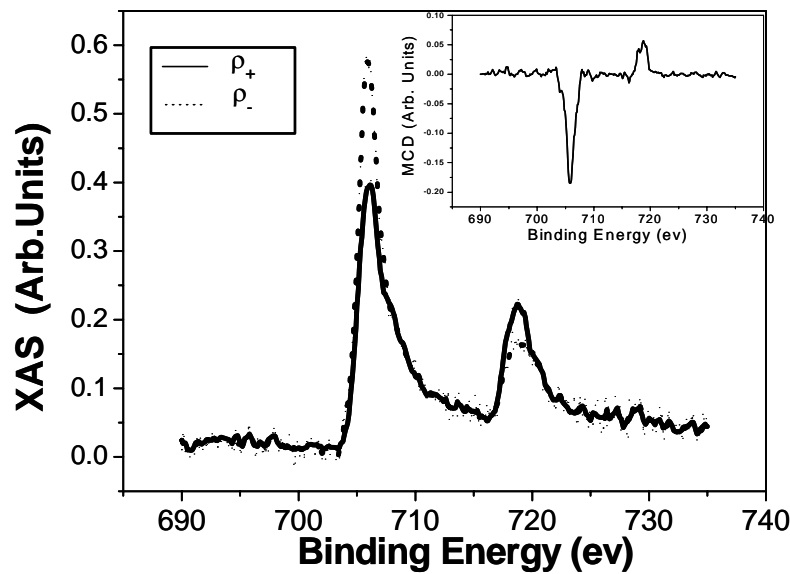


圖4-38 XMCD擷取Fe3d電子的訊號

4-2 XPS 分析：

然而為了更進一步去了解 FeOx 層中的成分，因此利用 XPS 的量測來鑑別此時在 FeOx 層中 Fe 的氧化狀況以及價數的差異。本實驗藉由 XPS，發現 FeOx 層中主要的組成依舊是以未氧化的鐵為主，然而依舊可以看出具有二價鐵及三價鐵訊號的出現，如下圖 4-39 所示。而此項結果也進一步驗證本實驗所提之理論，單方向的異向性來自於未氧化的 Fe，而正交耦合力則是氧化鐵的貢獻。

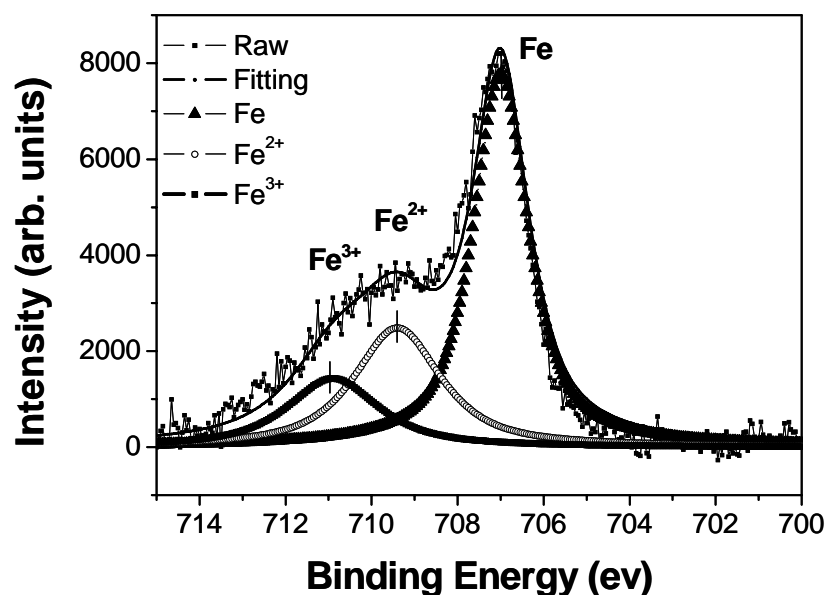


圖4-39 奈米及氧化層FeOx多層膜之XPS結果

4-3 SPEM 分析：

FeOx 模型中提出，鐵的奈米氧化層主要是以未氧化的鐵為主，而氧化態的鐵則是不均勻的散佈在未氧化的鐵基底上。由上面 XMCD 及 XPS 分析我們已經可以確知 FeOx 層的確存在著氧化鐵及純鐵，並且具有磁性。而為了更進一步的去卻知其中分佈的狀態，我們便藉由同步輻射中心 SPEM 的分析法，試圖以取影像的方式得知 FeOx 層上 Fe 價數的分佈，然而由於訊號太弱因此改以擷取 FeOx 層中不同區域的訊號，判知在各個區塊鐵的價數分布狀態。

由下圖 4-39 所示，我們在一標準 FeOx 多層薄膜上，取數點作 SPEM 比較圖形的差異性發現在不同區域，所呈現出來鐵的能譜的確是有差異的，能量在約 53ev 處約為純鐵的 3p 能階，而旁邊肩膀的部份則是

氧化鐵的 3p 能階，然而由以下 FeOx 層中四個位置處的圖可以看出在#1,2 處並沒有肩膀的出現亦即表示此處為純鐵態，而在# 3,4 處則具有肩膀表示此處的分布除了純鐵外亦有氧化鐵的存在。藉由如此的結果也可以再次驗證本實驗單純 FeOx 奈米氧化層的模型是以不均勻分布之純鐵及氧化鐵所組成。

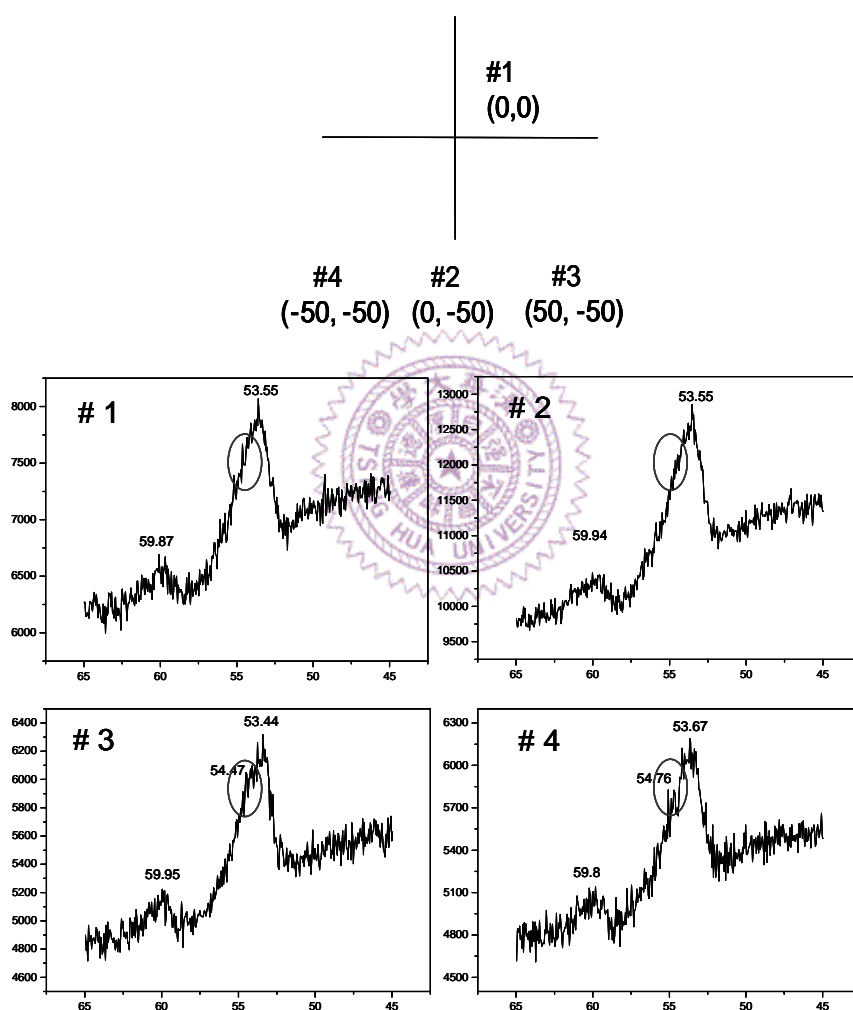


圖4-40 利用SPM所得之奈米及氧化層FeOx不同區域Fe之價數差異

4-4 FeOx model :

在經由以上一系列分析後，我們發現一般會提出如本系統之正交耦合力概念，主要是以三種模式來探討解釋：

(1)一種是 Chien 提出由於反鐵磁層內磁矩是以螺旋狀來分布，因此在不同反鐵磁層厚度下可以得到上下兩鐵磁層使被耦合在特定的角度上。

(2)一種則是界面磁性粗糙度的概念，當兩層介面為高度不平整的狀況，或是磁矩在介面處呈現高度混亂排列時，則此時依能量計算值可得最低能量穩定態位於九十度的位置。

(3)自旋翻轉模型(spin-flop)：當反鐵磁層的磁矩是以補償的方式排列是，即一個向左一個向右，如此一來，上面之鐵磁層則會因為傾向與兩者夾九十度排列，此即自旋翻轉。

然而上述三類型提出正交耦合力的因素均無法合理解釋本系統的實驗結果。螺旋排列的反鐵磁層在不同厚度會造成不同鐵磁層磁矩排列的角度，但本實驗並不會因為 NOL 層的厚度變化而有磁矩角度排列上的差異；而粗糙度以及自旋翻轉的概念雖然是較符合本實驗系統的模型，但依舊無法合理解釋上被固定層依舊受到交換異向性的影響。因此我們便藉由以上實驗磁性量測(VSM)以及材料性質上分析(XMCD, XPS, SPEM)的結果以及在文獻上所得之概念，提出了以下

的模型：

基本上，本實驗之奈米級氧化層—Fe-NOL，應為一個以未氧化之鐵當基底，而氧化鐵的部份則是以不同氧化態不均勻的散布在此一平面上。就如同圖 4-41 所示，未氧化之鐵則是形同一鐵磁性基材般可以傳遞由反鐵磁層所提供的交換異向性至上層之鐵磁層。然而氧化鐵則是以一個個自旋補償區塊(spin compensated domain state)出現在 Fe-NOL 的平面上，由於在當磁矩是以一補償面型態形成時，對於上面的鐵磁層而言其最穩定態則是位於在與自旋方向夾九十度之位置，因此在此一系統中氧化型態的補償自旋區域便是有效提供上層鐵磁層正交耦合力的來源。如此一來結合氧化鐵以及純鐵在 NOL 層中的分布，便可以有效解釋本實驗系統所觀察到的現象。

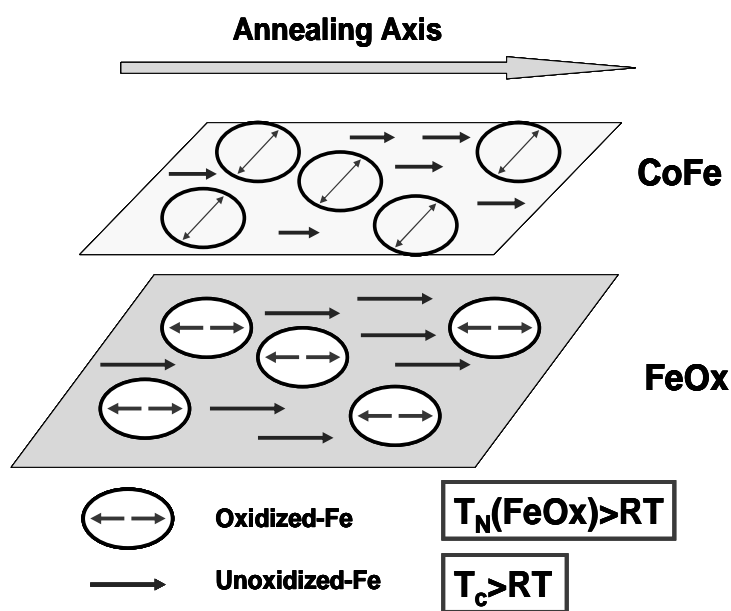


圖4-41 FeOx系統模型示意圖

五、低溫 RH、MH：

為了更進一步的了解兩系統中的性質，嘗試將試片降至低溫進行磁阻以及磁滯曲線的量測。此方式可以藉由在室溫施加磁場強迫磁矩沿某特定方向排列而後降至低溫後進行量測，此時由於磁矩已被固定在場方向而在低溫時已無法回到其原先之穩定位置，因此可以利用場冷的方法去控制磁矩的位置來做研究。而以下我們便利用 PPMS 以及 SQUID 量測在 FeOx 自旋閥及半自旋閥結構中的磁阻、磁滯曲線，藉由場冷以及零場冷等方式量測在不同溫度下的變化情形。

FeOx 自旋閥結構 → PPMS → 低溫磁阻曲線

Si/Ta/Cu/IrMn/CoFe2/FeOx/CoFe2/Cu/CoFe4/Ta (單位：nm)

FeOx 半自旋閥結構 → SQUID → 低溫磁滯曲線

Si/Ta/Cu/IrMn/CoFe2/FeOx/CoFe2/Ta (單位：nm)

0-degree → **場冷 FC +5000 Oe**

首先我們先在 FeOx 系統中進行零度磁阻曲線的量測，由於在室溫下，上被固定層同時受到零度以及九十度處的耦合作用力，因而使得在負場處的磁阻曲線翻轉較不明顯，因為實驗設計施加一外加磁場 (+5000 Oe) 使得全部磁矩均沿著零度處排列而後降至低溫做變溫磁阻曲線的量測，實驗發現(如圖 4-42)當溫度在 10K 下所觀察到的圖形為

標準交換場系統此時可以視為沒有九十度作用力的影響，然而隨溫度升高，翻轉變得較不明顯，此時可視為正交耦合力的作用漸漸加大。同時我們也對半自旋閥結構進行相同場冷條件所得之結果如圖 4-43 所示，與在標準自旋閥結構所得之磁阻曲線相吻合。

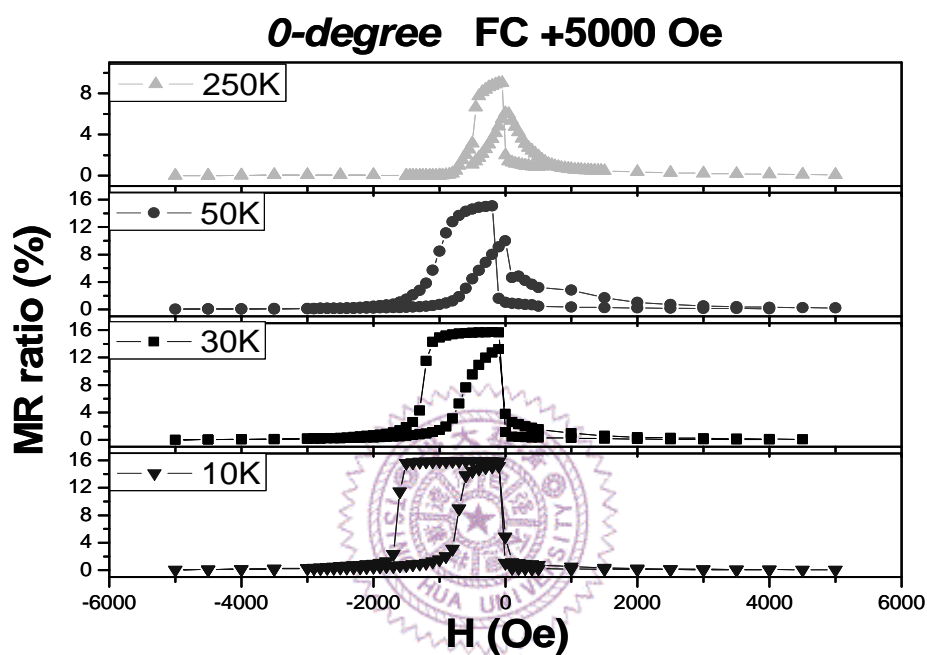
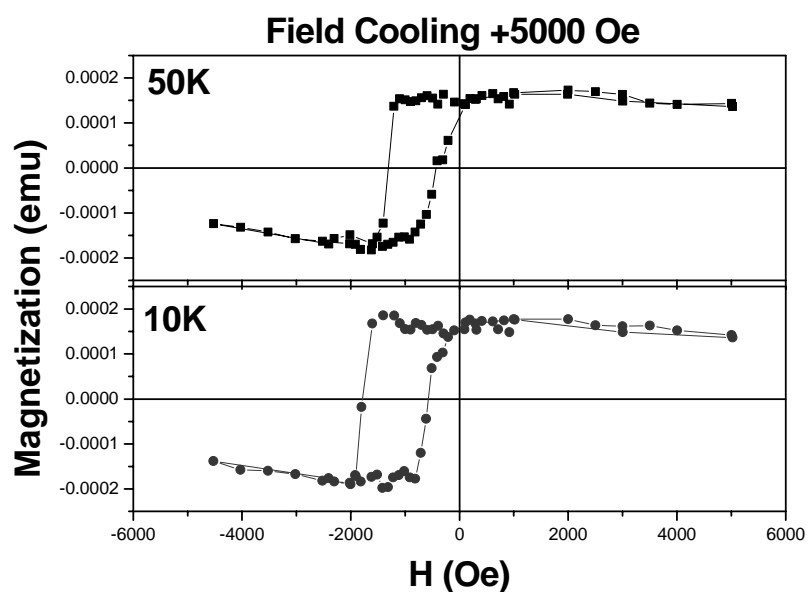


圖4-42 +5000 Oe場冷後在10K,30K,50K及250K所量測之磁阻曲線



而綜合以上結果可以視為室溫磁場 5000 Oe 下，已將 NOL 層中 spin-compensated domain 翻轉沿零度傾斜而在零度處貢獻出靜磁矩，而後降至低溫進行量測，便造成正交耦合力的消失並且使得交換場的翻轉變為明顯，然而隨著量測溫度的升高，使得 spin-compensated domain 漸漸回到原先位置排列貢獻出正交耦合力而使得零度磁阻曲線翻轉不明顯與室溫接近。(如圖 4-44)

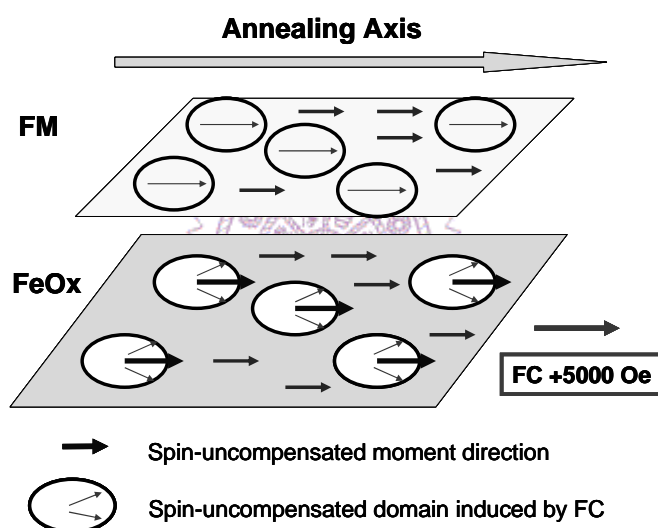


圖 4-44 零度處，FeOx經場冷至低溫的磁矩組態

90-degree → **場冷 FC +5000 Oe**

相較於之前零度量測的現象，若我們改為在九十度的位置正場場冷，則發現磁阻曲線由單軸異向性變為向負方向偏移之單方向異向性圖形(如圖 4-45)。此現象乃是由於當進行九十度場冷時，使部分 spin-compensated domain 轉為 spin-uncompensated domain 磁矩被固定

在場冷的位置，因此可以耦合住此方向的磁矩造成曲線的偏移，相同的，若是在相反方向進行場冷則曲線會向另一方向偏移，因此我們便可以藉由場冷的方向即可以控制 spin uncompensated domain 的方向進而改變磁阻曲線偏移方向的。如圖 4-45,46。

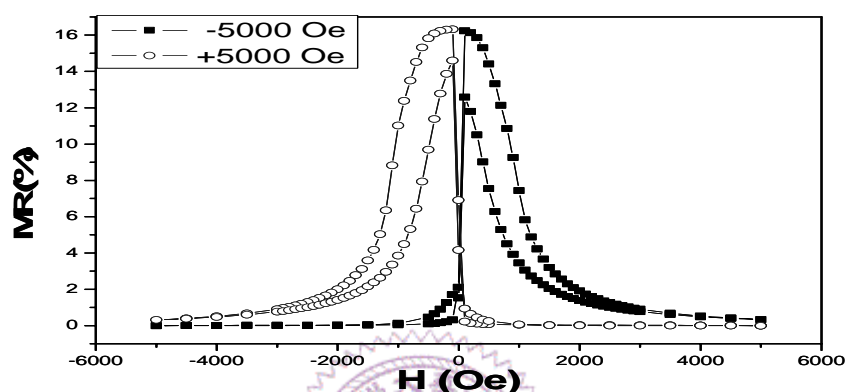


圖4-45 改變場冷方向(+5000Oe及-5000Oe)所得之磁阻曲線

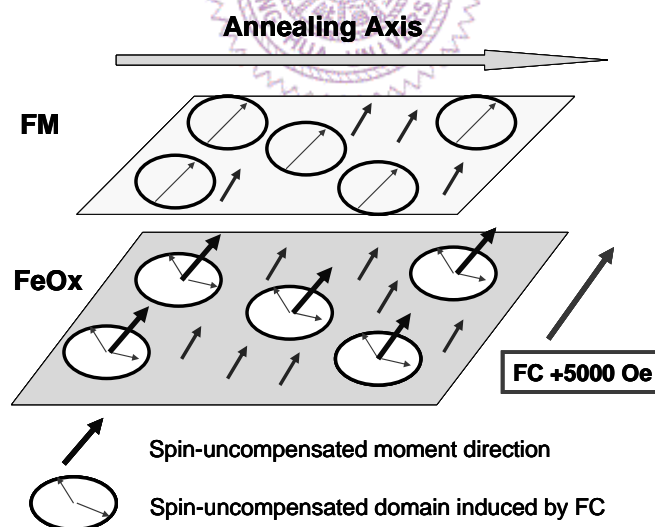


圖 4-46 九十度處，FeOx經場冷至低溫的磁矩組態

然而如圖 4-47 所示，磁阻曲線的翻轉隨量測溫度變高漸漸由單方向異向性轉為單軸異向性，此時即是由於溫度較高在奈米級氧化層中的

AFM domain 能回到原先的穩定狀態。當溫度升高至 80K 以上時，由於 AFM domain 已回復原先的 spin-compensated 狀態而使得曲線變成單軸異向性。

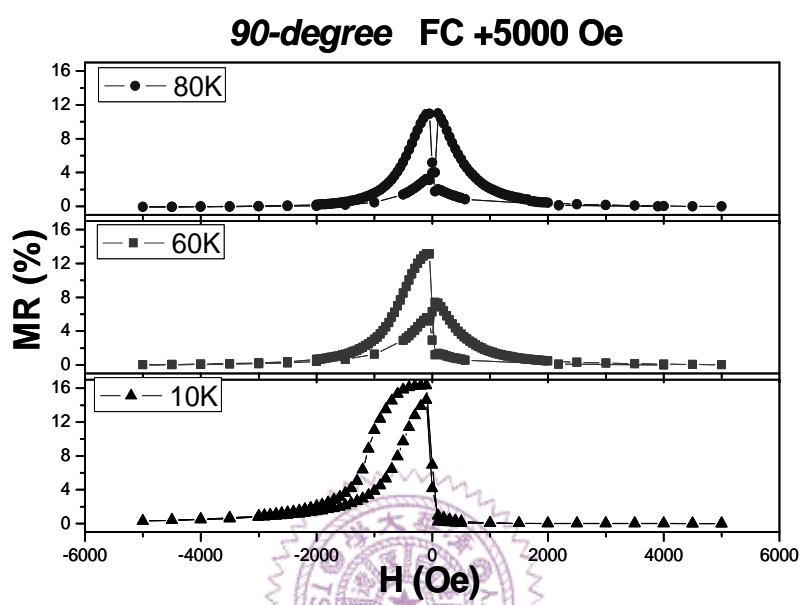


圖4-47 +5000 Oe場冷後在10K,60K,80K所量測之磁阻曲線

而最後我們變針對在 FeOx 以及 PyOx 半自旋閥結構中進行研究，當在與退火方向夾九十度加場場冷至 10K 則兩者所得之圖形有所差異，卻也反映出我們所預期的結構(如圖 4-48)：針對 FeOx 而言，由於上下被固定層耦合在一起，因此雖然 spin-compensated domain 受場影響而偏移造成磁滯曲線的偏移，但是由於下被固定層仍受到反鐵磁層耦合住在零度處，而產生較複雜之作用力狀況，因此在低溫 10K 磁滯曲線上雖然有曲線上的偏移卻並不明顯，但卻也與在 PPMS 所量測之磁阻曲線想吻合；然而 PyOx 而言，上下兩層鐵磁層排列之間並

就沒有交互作用力的問題，上被固定層沿九十度排列，下被固定層沿零度排列，因此在進行場冷時，由於 spin-compensated domain 受場方向影響而再九十度位置有靜磁矩造成磁滯曲線偏移，而下被固定層則是沿原先零度位置排列，而提供了難軸的訊號，上被固定層則是貢獻出偏移的曲線。

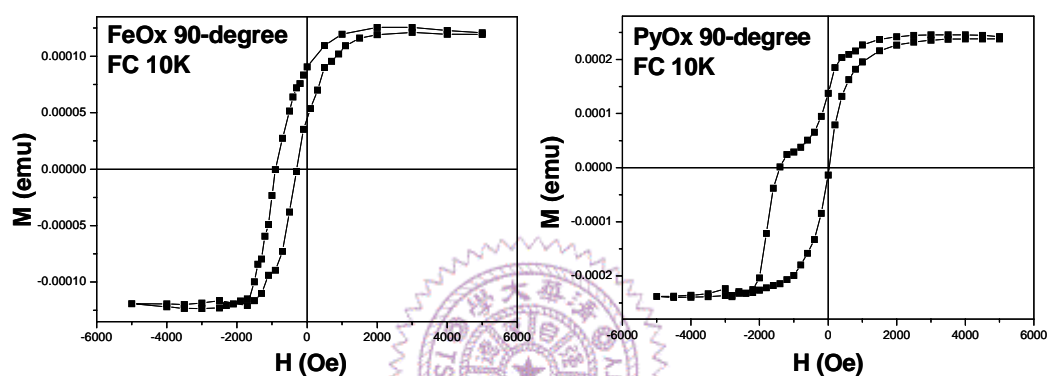


圖4-48 場冷至10K所得之FeOx以及PyOx九十度磁滯曲線