

# 如何以鐵磁共振法分析非共軸的合成亞鐵磁結構

## How to Analyze the Non-Collinear Synthetic Ferrimagnets with Ferromagnetic Resonance

陳友生、林昭吟

You-Sheng Chen, Jauyn Grace Lin

本文將詳細介紹如何使用鐵磁共振法去量測非共軸的合成亞鐵磁結構。此一方法可以彌補傳統靜態的磁化率量測方法對於非共軸磁性多層膜的分析不足之處。利用多個角度的鐵磁共振譜進行擬合，可以求得各鐵磁層準確的磁異向性、磁化強度比值以及磁耦合交互作用等。對應於可見的未來電子自旋元件將使用越來越複雜的磁性多層膜系統，鐵磁共振的技術會在工業應用中扮演重要的角色。

In this report, we demonstrate the method of ferromagnetic resonance to analyze a non-collinear synthetic ferrimagnet. With this method, we make up the shortage of the traditional methods that only allow one to analyze the static magnetizations for non-collinear magnetic multilayers. By fitting the angular dependent ferromagnetic resonance spectra, one could estimate the accurate values for magnetic anisotropy, the magnetization of individual layer and the exchange coupling constant between layers. As the spintronic devices require more and more complex multilayer components in the visible future, the ferromagnetic resonance technology would play an important role in the industrious applications.

### 一、背景介紹

傳統上，對一個偶合的磁性多層膜的分析，多是利用靜態的磁化量測的方式去偵測其磁特性。這些偶合結構常被用來做為磁場感測器，或是磁性記憶體 (Magnetic Random Access Memory, MRAM) 等重要的應用。因為其原理是利用兩個磁性層的平行與反平行構成的磁阻 (Magnetoresistance) 差異性，所以幾乎都是如圖 1(a) 所示的共軸 (Collinear) 結構。對於這些共軸系統來說，用傳統磁化率的量測

即可獲取所需要的基本磁性質。然而近年來，所謂的非共軸的偶合系統也開始受到重視，如圖 1(b) 所示。例如利用自旋矩傳遞 (spin-torque-transfer, STT) 的奈米共振器 (nano-oscillators, STNO)<sup>(1, 2)</sup>。STNO 是一種奈米尺寸、高頻、低頻寬且高功率密度的射頻產生器<sup>(3)</sup>。STNO 的原理是利用一組合成的亞鐵磁結構 (synthetic ferrimagnet, SyF) 或是磁穿隧電子結 (Magnetic Tunneling junction, MTJ)，在特定的 STT 條件下所激發的鐵磁共振 (FMR)。在這樣的結構中，如果利用垂直異向性 (Perpendicular

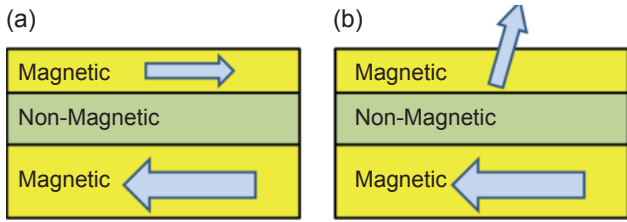


圖 1. 共軸 (a) 與非共軸 (b) 的耦合三層結構。箭頭代表無外加場時的磁矩平衡方向。

Magnetic anisotropy, PMA) 的鐵磁 (FM) 材料層作為自由層，再加上水平異向性 (Longitudinal Magnetic anisotropy, LMA) 的固定層，則這個正交的非共軸系統就能在無外加磁場的條件下產生鐵磁共振<sup>(4)</sup>。而這樣的零場特性對於做為應用元件是很有優勢的。在為數不多的 PMA 材料中，鈷鐵硼合金 (CFB)/氧化鎂(MgO)<sup>(2)</sup> 的雙層結構有著很低的磁阻尼，因此受到相當的注目。在 CFB/MgO 的結構中，MgO 的角色是產生 001 方向的結晶並與 CFB 形成鍵結，進而產生晶格磁異向性，而 PMA 則由此而生。在 CFB/MgO 之外，與 CFB 接鄰的一般金屬 (NM) 層也很重要。這一層 NM 可以調控 CFB 的性質。若使用不同的 NM 材料，或不同成長順序的條件下，在 CFB 與 NM 的界面區域會產生不同的無磁性層 (magnetic dead layer, MDL)<sup>(5)</sup>。這層 MDL 會直接影響到 PMA 的特性。然而，對於一個 SyF 型式的 STNO 而言，NM 層會同時影響接鄰的兩層 CFB 的磁異向性。而此時也會大幅影響兩層 CFB 之間的磁交換偶合作用 (exchange coupling)。這樣複雜的關係造成幾乎不可能去預測這樣的 SyF 的磁特性。同時以一個上下層異向性為正交狀態的 SyF 而言。由於用傳統靜態的量測方式無法正確地得到兩磁性層的異向性和偶合場，因此只有利用動態的方法來取求得正交 SyF 的系統參數。

在本文中，我們將以鈷 (Ru) 為 NM 層的正交 SyF 為例子，來介紹 FMR 的技術及相關分析方法。組成 MgO/CFB/Ru/CFB/MgO 的正交 SyF 之中，特定的 Ru 層厚度使得兩層 CFB 的異向性為正交的關係。利用磁化率和鐵磁共振 (Ferromagnetic Resonance, FMR) 的方式去量測此一系統的靜態

與動態性質。FMR 是一種對於磁異向性與交換作用極為靈敏的量測方式<sup>(6, 7)</sup>。尤其是對於磁性超薄膜而言甚為靈敏。因此，我們利用 X-band 頻帶的 FMR 量測去分析 SyF 中兩層 CFB 的磁異向性與磁交換偶合作用。

## 二、樣品製備與實驗儀器介紹

本文介紹的 SyF 的樣品是利用磁控濺鍍法製備，由中正大學陳恭教授的研究團隊所製作。其全結構如圖 2 上方所示的 Si(100)/SiO<sub>2</sub>/Ta/MgO/CFB/Ru/CFB/MgO/Ta。其中每一層的厚如下：底層 Ta 為 5 nm、CFB 層 1.2 nm、MgO 層 1 nm、中間的 Ru 層 2.3 nm 以及 Ta 頂層 1nm。使用熱氧化的 Si 基板在 4 mTorr 的氬氣環境下進行磁控濺鍍。並且在濺鍍腔中進行退火。退火條件是 300 °C 下持溫 1 小時。環境為真空，氣壓小於 10<sup>-4</sup> torr。詳細的製備方法可以參閱陳恭教授之前的文章<sup>(8)</sup>。本文中，磁化率的量測是使用 Quantum Design SQUID VSM。磁場掃描式 FMR 則是使用 Bruker EMX。操作頻率為 9.8 GHz (X-band)。

FMR 是一種鐵磁材料在特定條件下，以進動 (precession) 形式產生的共振現象。技術最成熟的激發方式為如圖 3 所示的微波法。此一方法為外加一個固定磁場 ( $H$ )，此時磁矩  $M$  會對齊  $H$  的方向。之後，再外加同調且偏極化的微波，使微波磁場 ( $H_{AC}$ ) 方向垂直  $H$ 。在不考慮磁異向性的情況

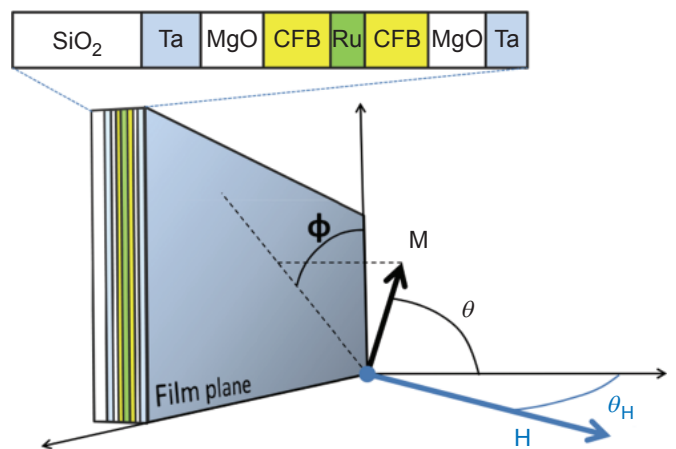


圖 2. 本文中的樣品結構與公式所使用的角度定義。

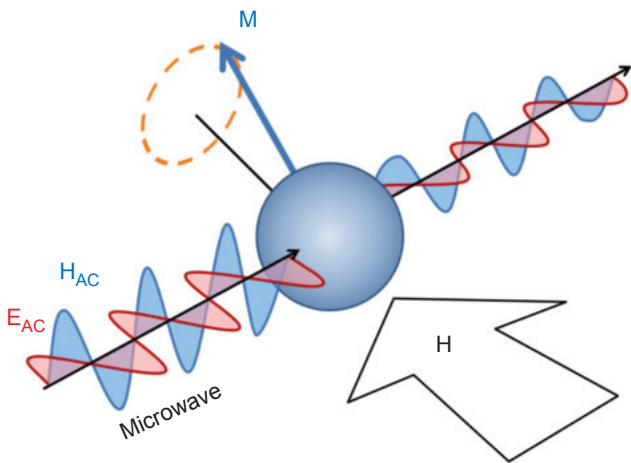


圖 3. 微波激發鐵磁共振的原理。

下，則由 Landau-Lifshitz 方程式可知，符合以下條件：

$$\omega = \gamma H \quad (1)$$

時，會產生共振現象。這裡， $\gamma$  是旋磁比，與  $g$  係數的關係為  $\gamma = g\mu_B/\hbar$ 。 $\hbar$  是浦朗克常數， $\mu_B$  為波爾磁矩。而  $\omega$  是微波的角速度， $H$  則為外加磁場。由於此時微波會被吸收，故在實驗上可以用

微波的吸收量 ( $P$ ) 來測得鐵磁共振訊號。為了增加訊噪比，可以使用微波共振腔 (Cavity) 進行改變磁場的實驗。圖 4 為本文中所使用的  $TE_{102}$  共振腔體。圖中也繪出  $H_{AC}$  與  $H$  在腔體中的方向。配合以微振訊號為相位基準的鎖相放大器 (Lock-in amplifier)，可以在固定頻率下取得以磁場微分的共振圖譜 ( $dP/dH-H$ )。利用微分圖譜則可以高精度地決定共振場 ( $H_r$ ) 與線寬 (linewidth) 等重要資訊。

在有磁異向性的情況下，共振條件將偏離公式 (1)。如果磁場方向在易軸的位置，則  $H_r < \omega/\gamma$ 。反而言之，在難軸方向則為  $H_r > \omega/\gamma$ 。以一個薄膜系統而言，形狀異向性相當明顯。在不計入晶體異向性 (Crystal anisotropy) 等其他磁異向性的狀況下，利用 Kittel 方程式則可以求得在各個磁場角度下的共振條件。例如在  $H$  垂直膜面的情況下，共振條件即為：

$$\omega = \gamma(H - 4\pi M_S) \quad (2)$$

$H$  平行膜面則為：

$$\omega = \gamma\sqrt{H(H + 4\pi M_S)} \quad (3)$$

其中， $M_S$  為飽合磁化強度， $4\pi$  為垂直膜面方向的去磁場參數 (demagnetization factor)。一般而言， $4\pi M_S$  常被形容為異向場 (anisotropy field)，為一個擬似單軸方向的內場 (internal field)。圖 5 為實驗上，單層 CFB 薄膜的 FMR 圖譜。對 SyF 之類的

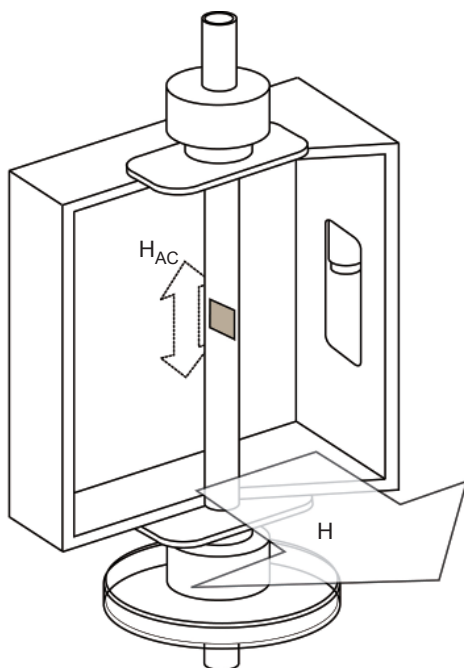


圖 4.  $TE_{102}$  共振腔體。

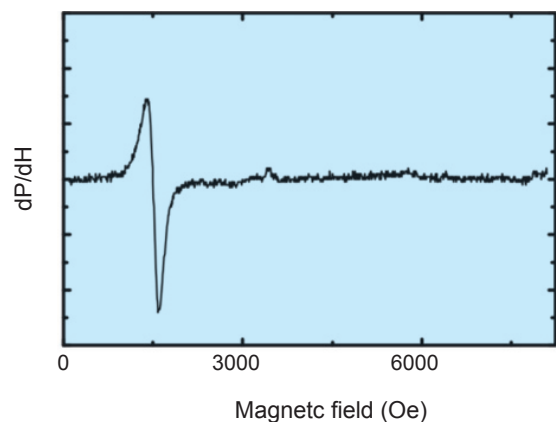


圖 5. 典型超薄膜的掃場式 FMR 圖譜。

多層膜來說，當各層磁性層的異向性不完全相同時，在圖譜中可以看到多個鐵磁共振的訊號。如此就能精確的量測到各層的磁特性。

### 三、數據分析

本文在分析含角度的數據時所使用的座標如圖 2 所示。 $\theta$  與  $\phi$  為磁化方向相對於垂直與平行膜面方向的角度。 $\theta_H$  與  $\phi_H$  則是磁場的角度。當磁場垂直 ( $\theta_H = 0^\circ$ ) 以及平行膜面 ( $\theta_H = 90^\circ$ ) 時，退火前後磁滯曲線 (M-H) 的量測結果如圖 6 所示。圖 6 的插入圖顯示了兩個樣品在垂直膜面方向時低磁場下複雜的磁滯曲線。在圖 6 裡，我們標示出斜率的轉折點：A、B、C 與 D。這些轉折點是不會出現在一組共軸異向性 SyF 中的。這些轉折點的出現可能是來自於一層 PMA 加上一層 LMA 的正交結構。以此觀點，A 與 C 即為 LMA 層的飽合點，B 和 D 點則為 PMA 層的飽合點。如此一來，可以推得 PMA 與 LMA 層的磁化強度並不相同。而兩層的磁化強度比例我們定義為  $M_r = M_{\text{PMA}}/M_{\text{LMA}}$ 。以此我們可以利用  $(M_B - M_A)/M_A$  或是  $M_C/(M_D - M_C)$  來估計  $M_r$  的值。然而這並不是對這樣多轉折點 M-H 曲線的唯一解釋。另一方面，計算後我們發現  $(M_B - M_A)/M_A$  和  $M_C/(M_D - M_C)$  的值是不同的。這個差別可能來自於磁性材料的非均值部份，而這些磁矩在此一量測中無法被扣除。另一個主要的問題是，即使能順利取得  $M_r$  的值，M-H 曲線仍難以顯示兩層 CFB 之間的交互作用。對共軸的 SyF 而言，在易磁軸方向的飽合磁場 ( $H_s$ ) 即能直接代表交互作用的強度。然而非共軸系統並不存在共同的易磁軸。如此一來磁滯曲線的量測方法將面臨很大的困難。

MgO/CFB/Ru/CFB/MgO 典型的 FMR 圖譜如圖 7(a) 與 7(b) 中所示。這些圖譜中包含了兩個共振模態分別表示為  $H_{r1}$  與  $H_{r2}$ 。這兩個共振磁場兩個共振場隨  $\theta_H$  方向的改變如圖 8 所示。其中，8(a) 與 8(b) 是退火前，而 8(c) 與 8(d) 則是退火後的變化圖。一般沒有偶合作用的情況下，這兩個共振模態則會被視為個別層的鐵磁共振。然而由圖 8 的  $H_r$  對  $\theta_H$  的變化圖中可發現這兩個模態並沒有交

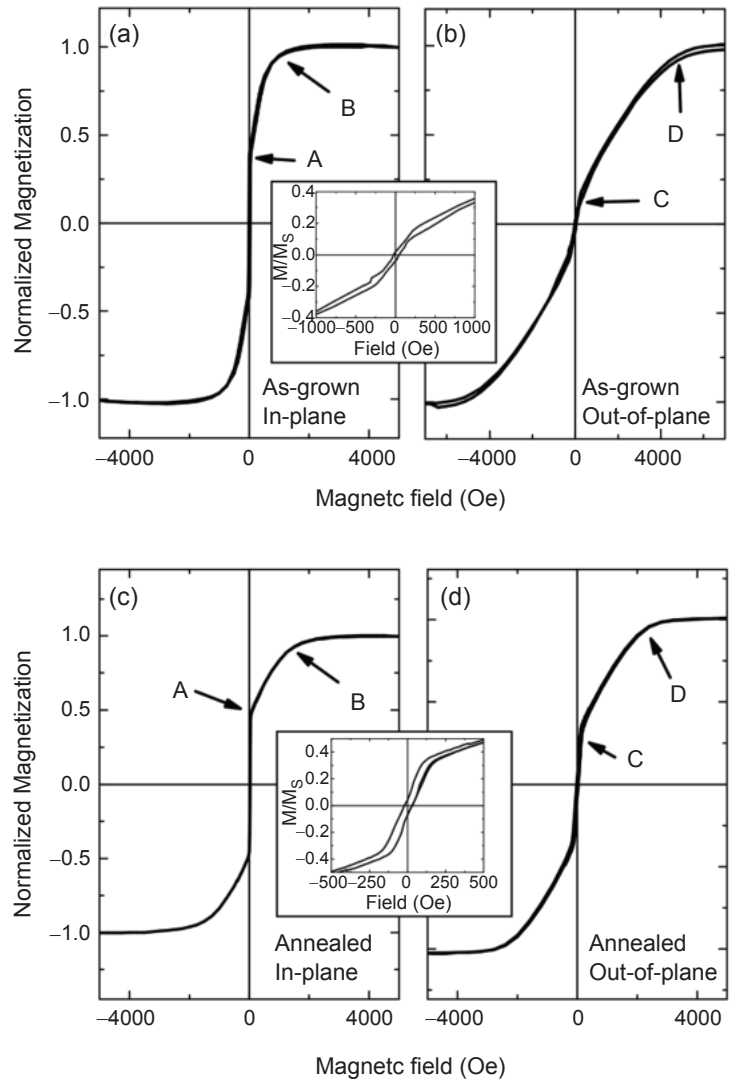


圖 6. 退火前樣品在磁場 (a) 平行膜面與 (b) 垂直膜面下的磁滯曲線。(c) 與 (d) 為退火後的樣品在磁場平行與垂直膜面下的磁滯曲線。插入圖為 (b) 與 (d) 的低磁場的放大圖。

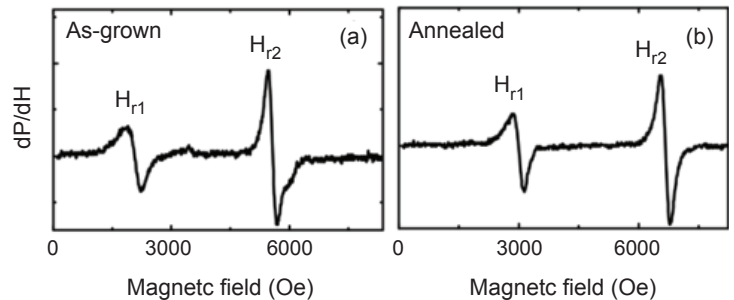


圖 7. 退火前 (a) 與退火後 (b) 的 FMR 圖譜。

樣品	鐵磁共振法				磁滯曲線法 - 平行膜面			磁滯曲線法 - 垂直膜面		
	$H_{u1}$	$H_{u2}/H_{k4}$	$M_r$	$H_{ex}$	$H_{u1}$	$H_{u2}$	$M_r$	$H_{u1}$	$H_{u2}$	$M_r$
退火前	655	-3043/0	0.9	203	600	—	0.8	—	-4400	0.3
退火後	1699	-1763/-100	0.7	320	1700	—	1	—	-2100	0.5

表 1. 由鐵磁共振法與磁滯曲線量測法求得的合成鐵磁體系統參數。

又。這代表著耦合的交互作用的貢獻對兩個共振場的影響是不能忽略的。稍後的理論中我們將得知這兩個分別為聲學模態 (acoustic mode) 與光學模態 (optical mode)。

圖 8 的紅色實心線為擬合的理論曲線。擬合使用的參數列於表 1 中。對於隨角度變化 FMR 的理論模型，一般使用的是磁自由能的模型。以一個 FM-NM-FM 的三層系統而言，其磁自由能  $E$  可以寫成

$$E = \sum \left[ -\mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_i - \frac{1}{2} H_{ui} M_i \cos^2 \theta_i - \frac{1}{4} H_{k4i} M_i \cos^4 \theta_i \right] + A_{12} \mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 \quad (4)$$

這裡  $M_i$  是各層 ( $i = 1$  及  $2$ ) 的磁化強度。 $H_{k4}$  是四次項的磁異向場。一般而言  $H_{k4}$  小於二次項的  $H_u$ 。然而， $H_{k4}$  並非總是可以被忽略。二次項的  $H_u$  一般包含了形狀異向性與晶格異向性，可以表示成<sup>(7, 9)</sup>：

$$H_u = -4\pi M_v + H_{k2} = -4\pi M_v + 2(K_2^V + K_2^S/d)/M_v \quad (5)$$

其中， $M_v$  是單位體積的磁化強度 ( $M_i$ /體積)。 $H_{k2}$  則是二次項的晶格磁異向場。在 CFB/MgO 的系統中，為 CFB 的晶格異相能 ( $K_2^V$ )，以及 CFB/MgO 介面上產生的介面異向能 ( $K_2^S$ )。介面異向能的影響則隨著厚度  $d$  的增加而減少。交換場 ( $H_{ex}$ ) 常被用來描述一對耦合的 FM 層有效的交互作用磁矩。 $H_{ex}$  與  $A_{12}$  及  $M$  的關係為  $A_{12} = [(M_1 + M_2)/2] H_{ex}/2$ <sup>(7, 10)</sup>。將公式 (4) 最小化的結果之後得知，對一個同軸且  $M_1 = M_2$  的對稱 SyF 來說，在易磁軸方向  $H_{ex} = H_s$ 。然而在一個非同磁軸的 SyF 來說，由於兩層缺乏共同的易磁軸，所以  $H_s$  總是同時包括  $H_u$  和  $A_{12}$  的貢獻。一個解決方案是先量測單層 FM 的  $H_u$  再代入 SyF 的結構進行計算。然而超薄 CFB

層的異向性對於層疊次序和組成材料非常敏感<sup>(5)</sup>。因此單層的結果並無法代入多層膜的結果中，並且需要利用多個角度的 FMR 圖譜去擬合出正確的系統參數。

為了擬合各個角度的共振條件，我們利用最小化自由能取得該角度的平衡條件，並且利用 Landau-Lifshitz 方程式即可得出共振條件<sup>(10, 11)</sup>：

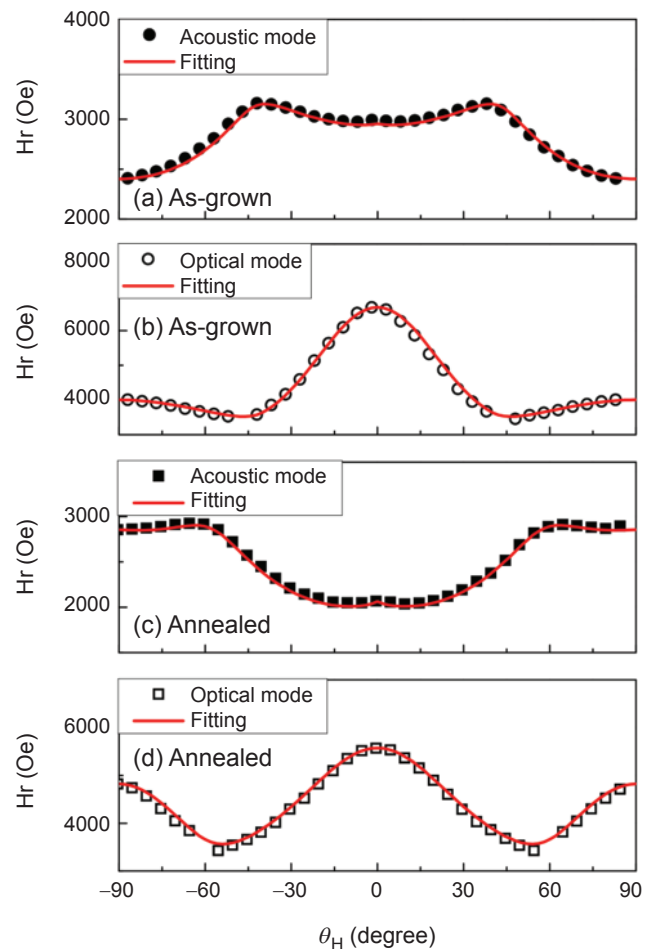


圖 8. 退火前 (a)、(b) 與退火 (c)、(d) 後在  $-90$  到  $+90$  度之間各角度下聲學模態 (a)、(c) 與光學模態 (b)、(d) 的共振磁場。插入圖為在磁場垂直膜面下的鐵磁共振圖譜。

$$\text{Det} \begin{bmatrix} \frac{i\omega}{\gamma_1} + \frac{E_{\theta_1\phi}}{M_1 \sin \theta_1} & \frac{E_{\phi_1\phi}}{M_1 \sin^2 \theta_1} & \frac{E_{\theta_2\phi}}{M_1 \sin \theta_1} & \frac{E_{\phi_1\phi_2}}{M_1 \sin \theta_1 \sin \theta_2} \\ -\frac{E_{\theta_1\theta_1}}{M_1} & \frac{i\omega}{\gamma_1} - \frac{E_{\theta_1\phi}}{M_1 \sin \theta_1} & -\frac{E_{\theta_1\theta_2}}{M_1} & -\frac{E_{\theta_1\phi_2}}{M_1 \sin \theta_2} \\ \frac{E_{\theta_1\phi_2}}{M_2 \sin \theta_2} & \frac{E_{\phi_1\phi_2}}{M_2 \sin \theta_1 \sin \theta_2} & \frac{i\omega}{\gamma_2} + \frac{E_{\theta_2\phi_2}}{M_2 \sin \theta_2} & \frac{E_{\phi_2\phi_2}}{M_2 \sin^2 \theta_2} \\ -\frac{E_{\theta_1\theta_2}}{M_2} & -\frac{E_{\theta_2\phi_1}}{M_2 \sin \theta_1} & -\frac{E_{\theta_2\theta_2}}{M_2} & \frac{i\omega}{\gamma_2} - \frac{E_{\theta_2\phi_2}}{M_2 \sin \theta_2} \end{bmatrix} = 0 \quad (6)$$

對一個薄膜來說， $g$  值為一個介面與體積磁矩總合的結果。方程式 (6) 可以解出四個  $\omega$  的解。其中兩個為負值，沒有實際的物理意義。另外兩個則分別為聲學與光學模態，分別代表同相位與反相位的共振態。當兩個 FM 層完全對稱時，我們將無法偵測到光學模態。而在非對稱的 SyF 中，兩個模態都可以用鐵磁共振的方式量測到。

圖 8 中的擬合曲線實線與實驗結果是相當接近的。基於擬合的結果，退火前的 MgO/CFB/Ru/CFB/MgO 為同時存在著 LMA 與 PMA。且得到  $H_{ex} = 203$  Oe。樣品退火後， $H_{u1}$  從 655 增加到 1699 Oe。 $M_r$  從 0.9 減少至 0.7。 $H_u$  的增加與  $M_r$  的減少符合單層的實驗結果<sup>(5)</sup>。同時， $H_{ex}$  從 203 增加到 320 Oe。

表 1 中例出了所有利用 FMR 擬合取得的參數。利用這些參數，我們可以用公式 (4) 去模擬  $M-H$  曲線。圖 9 是模擬退火後樣品的  $M$ -曲線 (實線) 與實驗數據 (方塊) 的比對圖。由於模擬曲線和  $M-H$  量測結果相當符合，代表對一個正交的 SyF 而言，由 FMR 方法得到到異向性以及交互作用的參數相當準確。

由公式 (5) 可知 CFB 異向性的來源是介面異向能和體積異向能的競爭結果。其中已知 CFB 層結晶狀況接近非晶質。故晶格異向能 ( $K_2^V$ ) 可以忽略不計，而 PMA 則是決定於形狀異向性與界面異向性的比例。在此，因為界面異向性是來自於 CFB/MgO 介面的原子鍵結的種類，所以我們可以假定其為定值。故異向場  $H_u$  的變化主因是來自於形狀異向場。形狀異向場為  $4\pi M_v$ ，這代表著若改變 CFB 層的磁矩密度即能決定 CFB/MgO 是 PMA 或 LMA。另一方面， $H_{ex}$  的改變則有可能是由退

火造成 Ru/CFB 界面的粗糙度減少。

在表 1 中也列出了由  $M-H$  轉折點計算得到的系統參數。比較 FMR 與  $M-H$  法得到的系統參數，可以發現  $M-H$  法可能由於非均質性以及忽略交換場的影響，導致垂直與平行方向的  $M-H$  所得到的  $M_r$ ，不論是在退火前或是退火後都難以一致。甚至有數倍的差距。由此觀之，FMR 相當有利於量測正交的 SyF。事實上 FMR 不只適用正交系統。對於一般的非共軸系統的資訊也能藉由擬合的方式取得。例如表 1 中的四次項的異向場  $H_{K4}$ ，其易軸方向即為偏離膜面 45 度的方向。

#### 四、結語

總而言之，我們詳細的介紹了如何利用 FMR 方法去準確的擬合出正交 SyF 的系統參數。對比於磁滯曲線量測的結果，FMR 所得的參數比傳統

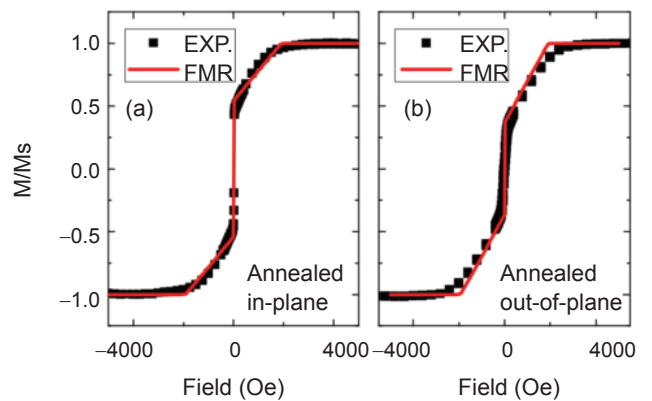


圖 9. 比較由實驗的磁滯曲線 (■) 與利用 FMR 所得參數的模擬曲線 (實線)。(a) 與 (b) 為退火後的樣品在平行與垂直膜面場下的比較圖。

斜率轉折點的做法更能準確描述  $M-H$  曲線的意義。這樣的差別主要是來自於  $M-H$  曲線轉折點定義的精度有限，而且靜態磁化率容易被不均質性影響。另外，傳統磁滯曲線量測對於易磁軸傾斜（非垂直或非水平異向性）的系統更如壞了的羅盤一般難以決定磁化方向。對 FMR 方法而言，精確的角度及共振場帶來了清晰且豐富的資訊。對應可見的未來自旋電子產品將使用越來越複雜的磁性系統，FMR 的技術將在這些系統的分析中扮演重要的角色。

## 參考文獻

1. S. I. Kiselev, J. C. Sankey, I. N. Krivorotov, N. C. Emley, R. J. Schoelkopf, R. A. Buhrman and D. C. Ralph, *Nature*, **425** (6956), 380 (2003).
2. Z. M. Zeng, P. Upadhyaya, P. Khalili Amiri, K. H. Cheung, J. A. Katine, J. Langer, K. L. Wang and H. W. Jiang, *Applied Physics Letters*, **99** (3), 032503 (2011).
3. S. Bonetti, P. Muduli, F. Mancoff and J. Åkerman, *Applied Physics Letters*, **94** (10), 102507 (2009).
4. C. H. Sim, M. Moneck, T. Liew and J. G. Zhu, *Journal of Applied Physics*, **111** (7), 07C914 (2012).
5. T. Zhu, Y. Yang, R. C. Yu, H. Ambaye, V. Lauter and J. Q. Xiao, *Applied Physics Letters*, **100** (20), 202406 (2012).
6. K. Lenz, E. Kosubek, T. Toliński, J. Lindner and K. Baberschke, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **15** (43), 7175 (2003).

7. M. Farle, *Reports on Progress in Physics*, **61**, 755 (1998).
8. C.-W. Cheng, W. Feng, G. Chern, C. M. Lee and T.-h. Wu, *Journal of Applied Physics*, **110** (3), 033916 (2011).
9. M. Farle, B. Mirwald-Schulz, A. N. Anisimov, W. Platow and K. Baberschke, *Physical Review B*, **55** (6), 3708 (1997).
10. J. Lindner and K. Baberschke, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **15** (4), R193 (2003).
11. Z. Zhang, L. Zhou, P. E. Wigen and K. Ounadjela, *Physical Review B*, **50** (9), 6094 (1994).



陳友生先生為台灣大學機械工程學博士，現任台灣大學凝態科學研究中心博士後研究員。

You-Sheng Chen received his Ph.D. in mechanical engineering from

National Taiwan University. He is currently a postdoctoral researcher at Center for Condensed Matter Sciences, National Taiwan University.



林昭吟女士為美國休斯頓大學物理學博士，現任台灣大學凝態科學研究中心研究員。

Jauyn Grace Lin received her Ph.D. in physics, University of Houston, USA.

She is currently a research fellow at Center for Condensed Matter Sciences, National Taiwan University.