

# 國立交通大學

電子物理系

碩士論文

探討表面氧化對 Co 平板線的磁矩翻轉的影響

Effect of surface oxidation on the magnetization reversal  
of Co planar wires

研究生：姜智鈞

指導教授：許世英 副教授

中華民國一百年七月

# 探討表面氧化對 Co 平板線的磁矩翻轉的影響

學生：姜智鈞

指導教授：許世英 副教授

國立交通大學電子物理系

## 中文摘要

鐵磁性/反鐵磁性雙層薄膜在近幾年磁學的研究中佔有很大的地位，它與我們一般所知道的鐵磁材料的磁性行為有著很大的不同，我們實驗主要是藉由磁電阻的量測來探討反鐵磁層如何影響次微米鐵磁層的磁矩翻轉。

我們利用微影技術及濺鍍的方式做出了數個系列的 Co 平板線，厚度為 30 nm、長度為 30  $\mu\text{m}$ ，寬度介於 0.2~1.1  $\mu\text{m}$ ，並刻意將某些系列的 Co 平板線放在空氣中使其表層氧化產生反鐵磁層 CoO，以四點量測技術作低溫的磁電阻測量。

所有樣品在低溫時電阻對溫度的變化展現或多或少的無序性，電阻隨溫度下降而上升，但氧化過的 Co 平板線在低溫的無序性會比 Co 平板線要來的大。在磁區分佈方面，線寬為 0.5  $\mu\text{m}$  以下的 Co 平板線展現形狀異向性主導的單磁區特徵行為，但線寬介於 0.5~1.2  $\mu\text{m}$  之間的 Co 平板線似乎因為不可避免的自然氧化導致類似刻意氧化的 Co 平板線的磁阻行為，影響的程度隨著線寬增加而加劇，使得反鐵磁與鐵磁層的交流耦合抑制了原本簡單的鐵磁層所擁有的異向性主導至單磁區分佈與 curling rotation 翻轉機制。

除此之外，這些具有不可忽略的 CoO 外層樣品，其磁電阻展現清晰的偏移、training effect、較大的交換偏壓(exchange bias)，隨著氧化層的增加此三現象越加顯著。

# Effect of surface oxidation on the magnetization reversal of Co planar wires

Student : Chih-Chun Chiang

Advisor : Dr. Shih-Ying Hsu

Department of Electrophysics  
National Chiao Tung University  
Hsinchu, 30010, Taiwan

## Abstract

The study of the Ferromagnetic/Antiferromagnetic (FM/AFM) bilayer system is important in the research of magnetism. The magnetic behavior of the FM/AFM system is different from single FM layer. The thesis focus on the influence of the antiferromagnetic layer of cobalt oxide on the magnetization reversal of submicron cobalt planar wires using the magneto-transport properties.

We used the techniques of lithography and sputtering to fabricate several series of Co planar wires of 30 nm in thickness and 30  $\mu\text{m}$  in length. The widths range from 0.2 to 1.1  $\mu\text{m}$ . Some of Co planar wires are *in situ* covered by a 3 nm thick Au layer to prevent oxidation. Others are forced oxidized by exposing in the air for certain amounts of time before covering Au. The magnetoresistance was measured by the four-probe technique.

The resistance of all Co samples increases with decreasing temperature below 10 K indicating that all samples are slightly disordered. The disorder of CoO/Co planar wires is worse. For the Co planar wires, when the wire width is less than 0.5  $\mu\text{m}$ , the shape anisotropy dominates the magnetic behavior and reveals all characteristics of a single domain structure. When the width is between 0.5  $\mu\text{m}$  and 1.2  $\mu\text{m}$ , magnetoresistance curve is analog to that of the CoO/Co planar wires implying that there always is a naturally oxidized layer. The influence of such a nature oxidation is strong as the wire width increases. The exchange coupling of the AFM/FM bilayer seems suppress the shape anisotropy induced single domain structure in the high aspect ratio FM layer.

Besides, for the planar wires with surface oxidation, the magnetoresistance curve is clearly shifted from the remanent field and has the training effect and a big exchange bias. With increasing amounts of CoO, the above phenomena become more notable.

## 誌謝

這本論文能順利完成，我最想感謝的是許世英老師，老師去辦事時很辛苦的連在車上都要看我破破的論文稿子，如果沒有老師您辛苦的校閱與建議，這篇論文現在還不知道會有多亂。也非常感謝您這兩年來的指導，我不是一個學的很快的聰明人，但老師您總是很有耐心的在啓發我，讓我思考、讓我嘗試，使我有機會自己找到正確答案而有很深的體悟。也謝謝您在我低溫量測時，爲了我的樣品和數據陪我到很晚。最後謝謝您在說話及表達方式的教導，您總是提醒了我很多場合下話不該這樣說，我會銘記在心。

接下來要感謝的人很多，首先要感謝的是惠潔，在理論方面及生活方面與你討論使我的問題有了答案，也感謝妳辛苦製作了很多光微影讓我能把樣品順利完成。然後我要謝謝已畢業的碧珊學姊，很耐心的教我實驗技術以及在樣品製作上的建議，沒有妳我不可能可以做出成功的樣品。之後要感謝的是馨慧及已畢業的勝豪學長，每次儀器有問題或是藥品不夠時，總是不厭其煩的幫我處理。謝謝子諒學長與我分享在樣品製作上的經驗，讓我的實驗更加順利。

柯昇，恭喜你大學畢業，我想你一定可以爲實驗室做更多事，與你聊棒球每次都讓我覺得很快樂；沈書文、簡駿帆謝謝你們做的光微影，每次在教你們東西時總覺得你們的互動很好玩。

感謝家人對我的關心，也感謝在交大曾經與我相遇的人，我會記住這每一分一秒的回憶，祝你們身體健康，事事順利。

# 目錄

中文摘要.....	I
英文摘要.....	II
誌謝.....	IV
目錄.....	V
圖目錄.....	VII
第一章 緒論.....	1
第二章 理論背景.....	3
2-1 磁區結構與能量.....	3
2-1.1 交換能(exchange energy) .....	4
2-1.2 基曼能量(Zeeman energy) .....	5
2-1.3 磁彈性能(magnetoelastic energy).....	5
2-1.4 晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy).....	5
2-1.5 靜磁能(magnetostatic energy).....	6
2-1.6 形狀異向性能(shape anisotropy energy).....	7
2-2 磁矩翻轉.....	10
2-2.1 概述.....	10
2-2.2 Stoner Wohlfarth Model -Coherent rotation .....	13
2-2.3 Curling rotation model.....	15
2-3 鐵磁與反鐵磁層結構.....	17
2-3.1 反鐵磁(Antiferromagnetism) .....	18
2-3.2 鐵磁/反鐵磁的結構特性.....	18
2-3.3 交換偏壓(Exchange bias) .....	19
2-3.4 Training effect .....	20
2-4 異向性磁阻(anisotropic magnetoresistance, AMR).....	21
第三章 樣品的製作與量測.....	23
3-1 微影技術.....	24
3-1.1 電子束微影技術.....	24
3-1.2 系統參數對樣品製程的影響.....	30

3-2 光微影技術.....	32
3-3 濺鍍系統(sputtering) .....	33
3-4 蒸鍍系統.....	36
3-5 低溫系統.....	38
3-5.1 低溫系統構造介紹.....	38
3-5.2 低溫系統-溫控.....	40
3-5.3 低溫系統-降溫.....	41
3-5.4 低溫系統-換樣品 .....	42
3-6 樣品量測.....	42
第四章 實驗結果與討論.....	44
4-1 Co wire and CoO wire 樣品的分類.....	44
4-2 電阻對溫度變化的關係.....	45
4-3 Co 平板線的磁電阻曲線.....	49
4-3.1 異向性磁阻(AMR).....	49
4-3.2 磁電阻曲線特性.....	54
4-3.3 Co 的磁矩翻轉形式.....	56
4-4 CoO 磁電阻曲線與 Co 的不同.....	60
4-4.1 磁阻曲線型式.....	60
4-4.2 交換偏壓(exchange bias) .....	62
4-4.3 矯頑場 $H_c$ 的變化.....	63
4-4.4 Training effect .....	64
4-5 Co 與 CoO anisotropy constant $K_u$ .....	66
第五章 總結與未來探討.....	68
5-1 總結.....	68
5-2 未來探討.....	69
參考文獻.....	70

## 圖目錄

圖 2-1 不同的磁壁示意圖.....	3
圖 2-2 不同磁區的結構示意圖.....	4
圖 2-3 hcp結構Co磁化強度和磁場關係圖.....	6
圖 2-4 扁長型橢球模型.....	7
圖 2-5 計算出來的去磁係數 $N_a$ 及 $N_c$ 與aspect ratio $m$ 的關係圖.....	8
圖 2-6 圓盤、環與 aspect ratio 很大的長方形線等不同形狀磁矩的排列.....	8
圖 2-7 critical length 與 aspect ratio 的關係圖.....	9
圖 2-8 單磁區三種不同翻轉的形式示意圖，左圖為coherent、中間類3D圖為curling、右圖為buckling.....	10
圖 2-9 不同粒子的直徑 $D$ 與磁矩翻轉時磁場 $H_{sw}$ (switching field)的關係圖.....	12
圖 2-10 Stoner-Wohlfarth Model 下橢球模型磁化向量與磁場夾角的示意圖.....	13
圖 2-11 計算出不同的外加磁場與易磁軸的角度 $\theta$ 的 $m$ - $h$ 曲線圖.....	14
圖 2-12 左圖為Stoner-Wohlfarth畫出來的星狀圖(asteroid)，右圖為 $h_{sw}$ 跟夾角 $\theta$ 的關係圖.....	15
圖 2-13 圖左邊和中間為curling rotation的模擬圖，右邊為扁長型橢球模型做curling rotation的示意圖.....	15
圖 2-14 扁長型橢球( $m$ 很大)在 coherent rotation 及 curling rotation 形式下 $H_{sw}$ 與的關係圖.....	16
圖 2-15 不同的 $S$ 值與 $h_{sw}$ 與 $\theta$ 的關係圖.....	17
圖 2-16 反鐵磁材料在 $T > T_N$ 及 $T < T_N$ 磁矩的分布示意圖.....	18
圖 2-17 側視的鐵磁層/反鐵磁層的介面模型圖.....	19
圖 2-18 部份氧化的Co微粒系統於77 K時的磁滯曲線.....	20
圖 2-19 CoO/Co雙層結構的磁滯曲線圖.....	21
圖 3-1 樣品製做及量測的流程圖.....	23
圖 3-2 SEM不同倍率下拍出的兩張樣品圖.....	23
圖 3-3 為雙層阻劑與單層阻劑製做示意圖.....	27
圖 3-4 SEM下的Co平板線影像，左圖為雙層阻劑做出的Co線，右圖為單層阻劑做出的Co線.....	29

圖 3-5 電子束微影製程的流程圖.....	29
圖 3-6 三種方式電子束劑量及打在繪製圖形上的示意圖.....	30
圖 3-7 設計的線寬與實際上出來的線寬的關係圖.....	31
圖 3-8 左圖為 SEM 放大的光微影圖;右圖為中間方框部分的放大圖.....	33
圖 3-9 濺鍍機系統示意圖.....	36
圖 3-10 蒸鍍系統示意圖.....	38
圖 3-11 低溫系統側視圖.....	40
圖 3-12 低溫系統俯視圖.....	40
圖 4-1 電阻對溫度變化圖，三條線分別為 A2 $w=0.68 \mu\text{m}$ 、B $w=0.78 \mu\text{m}$ 、C2 $w=0.91 \mu\text{m}$ 系列的樣品.....	46
圖 4-2 不同系列的樣品於低溫下電阻對溫度變化圖.....	46
圖 4-3 各系列樣品的最低電阻時的溫度 $T^*$ 與線寬 $w$ 的關係.....	47
圖 4-4 溫度為 $T^*$ 的電導值與 5K 時電導值的差與各系列平板線線寬的關係圖.....	47
圖 4-5 室溫電阻溫度係數 TCR 與 10 K 時方塊電阻值 $R_{\square}$ 的關係圖.....	48
圖 4-6 A2 系列線寬為 $0.31 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時的磁阻圖，曲線右邊標示數字為 $\theta$ 值.....	49
圖 4-7 Stoner Wohlfarth Model 下利用(4-2)式所畫出的 $\cos^2(\phi)$ 與 $h$ 的關係圖，曲 線右邊標示數字為 $\theta$ 值.....	50
圖 4-8 用 Stoner Wohlfarth Model 擬合 A2 系列樣品 $w=0.31 \mu\text{m}$ ， $\theta=30^\circ$ 的飽和磁阻...51	
圖 4-9 用指數函數擬合 A2 系列 $w=0.68 \mu\text{m}$ 樣品的 TMR 曲線圖.....	51
圖 4-10 A2 系列 4 個不同的線寬飽和磁電阻與 $\cos^2 \theta$ 的關係圖.....	52
圖 4-11 A2 系列 $w=0.89 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時的磁阻圖.....	53
圖 4-12 A1、A2、A3 系列的樣品方塊電阻值 $R$ 與 $\Delta R/R_{\parallel}$ 的關係圖.....	54
圖 4-13 A2 系列 $w=0.38 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時不同外加磁場與長軸夾角 $\theta$ 的磁電 阻曲線，右圖為磁場在 -800~800 Oe 的放大圖.....	55
圖 4-14 A2 系列 $w=0.38 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時的 LMR 磁電阻曲線 .....	55
圖 4-15 A1 系列 $w=0.66 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時的 LMR 圖.....	56
圖 4-16 C2 系列 $w=0.55 \mu\text{m}$ 樣品的 LMR， $H_{c1}$ 與 $H_{c2}$ 為最低值時的磁場.....	58
圖 4-17 圖 4-17 $H_{sw}$ 跟角度 $\theta$ 的關係圖，實線為使用 curling 翻轉形式擬合數據所得 曲線.....	59



圖 4-18	圖(a)為三個樣品 A2 $w=0.68 \mu\text{m}$ 、B $w=0.60 \mu\text{m}$ 、C2 $w=0.55 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時的 LMR 磁阻曲線圖。圖(b)為圖(a)在小磁場區的放大圖.....	61
圖 4-19	C2 系列 $w=0.45 \mu\text{m}$ 樣品在 10 K 時磁阻曲線圖.....	61
圖 4-20	所有系列樣品的交換偏壓與線寬關係圖.....	63
圖 4-21	$H_c$ 和線寬的關係圖.....	64
圖 4-22	C1 系列 $w=0.65 \mu\text{m}$ 樣品在 $\theta = 0^\circ$ 時、 $T=10 \text{ K}$ 時，連續 3 次掃描的磁電阻曲線.....	65
圖 4-23	在 $\theta = 0^\circ$ 時、 $T=10 \text{ K}$ 時，兩樣品連續 3 次掃描的磁電阻曲線，左圖 B 系列 $w=0.60 \mu\text{m}$ ，右圖為 A1 系列 $w=0.47 \mu\text{m}$ .....	65
圖 4-24	擬合 A2 系列 $w=0.38 \mu\text{m}$ 樣品的示意圖，黑色方塊為量側的 data，實線為擬合的拋物線.....	66
圖 4-25	擬合 A1、A2、C1、C2 系列樣品的 TMR 而算出的 $K_u$ 值.....	67



## 第一章 緒論

近幾年，奈米結構製作技術快速發展，開啓了眾多的微米及奈米尺度的各種研究，其中一個熱門研究議題就是微米尺度以下的物質行爲，跟我們眼睛可看到的一般尺度(mm以上)有很大的不同。又2007年諾貝爾物理學獎頒發給法國的Albert Fert及德國的Peter Grünberg以表彰他們在1988年分別獨立發現巨磁阻效應(giant magnetoresistance effect, GMR)，GMR主要源自載流電子的不同自旋態與鐵磁層的磁矩方向的作用不同，導致磁電阻的變化，利用巨磁阻的變化，進而發展出磁資訊儲存(magnetic recording)[1]，所以激發了研究熱潮使越來越多人投入微米尺度下磁性材料的研究。

對於磁性薄膜的研究，主要可分為單層膜及多層膜，單層膜方面主要是以鐵磁材料鐵、鈷、鎳或其合金來探討它們磁性行爲的變化，多層膜結構則主要由多層鐵磁層材料配上一些特殊性質的材料來產生一些性質變化，如展現GMR之一的是由兩鐵磁層中間夾一層非鐵磁物質的spin-valve自旋閥門，一般會以反鐵磁層材料控制一鐵磁層，即構成所謂的固定磁矩層(pinned layer)，另一鐵磁層稱為自由層(free layer)，可以較小的磁場控制其磁矩翻轉。對於鐵磁層與反鐵磁層的雙層結構也有不少的研究文章，這些文章主要探討反鐵磁層如何來影響鐵磁層的磁性行爲，此雙層結構有別於一般鐵磁層的遲滯曲線，有很明顯的偏移現象，一般認為是反鐵磁層與鐵磁層交界處會有很強的交換耦合使磁矩呈現相反的排列所導致，此交換耦合的大小也會根據反鐵磁層材料及厚度的不同而有所改變，所以近年來在鐵磁與反鐵磁界面的交換磁異向性也是熱門的主題之一。

本篇論文主要是做多個系列的Co平板線，然後一系列的平板線我們鍍金防止其氧化，另一系列的平板線我們故意放在空氣中使表層氧化產生CoO，使之產生反鐵磁包裹鐵磁層的雙層結構，我們先藉由了解Co平板線的磁矩翻轉等行爲，再來探討反鐵磁層如何影響鐵磁層的磁矩翻轉。

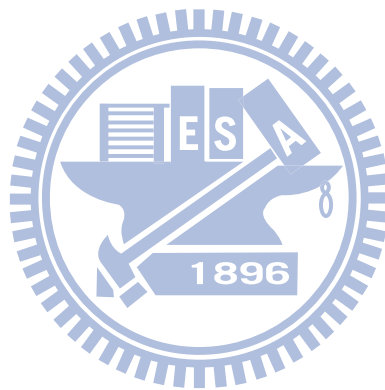
在第二章我們首先介紹磁區的形成及各種影響磁區相關的能量，然後說明並

分析較類似平板線的扁長型橢球模型及其磁矩翻轉的機制，之後介紹鐵磁層/反鐵磁層雙層結構的磁特性。

第三章說明了樣品主要的製作方式及介紹各種儀器，包括光微影製程、電子束微影製程及降溫過程中所用的低溫系統，以及我們量測磁阻的方式。

第四章將所有樣品做分類，然後藉由量測到的磁阻曲線來討論各類型樣品有什麼不一樣現象及磁阻曲線的差別，之後探討氧化過的平板線跟一般的平板線在翻轉形式上有著什麼樣的不同及氧化造成的影響。

最後在第五章我們會做出結論及建議未來可以繼續的研究方向。



## 第二章 理論背景

在本章中，我們將介紹磁性材料相關的理論以及鐵磁層/反鐵磁層的結構。第一節我們介紹磁區結構及其影響的各種能量；第二節我們介紹磁矩的翻轉形式及其模型；第三節我們介紹鐵磁/反鐵磁層的雙層結構；第四節我們將介紹異向性磁阻(AMR)理論。

### 2-1 磁區結構與能量

鐵磁特性中有所謂磁區(magnetic domain)，磁區的起源於鐵磁物質本身能量的自然分佈狀態將內部自動分成許多小區域[2]，在同一磁區內磁化方向是一致的，不同磁區間的磁化方向不同且呈混亂化，故互相抵消，平常感覺不到它有磁性，只有在磁場內加以磁化，打破磁區之混亂狀態，才能感受到它的強磁性。

各磁矩方向不同的磁區之間由磁壁(domain wall)所隔開，因相鄰兩磁區之磁矩方向不同，磁矩會在磁壁中作連續的空間分佈，依據磁矩連續分布的方向可以分成Bloch wall 和Néel wall，如圖2-1所示，在Bloch wall，磁矩的方向為垂直兩磁區平面；Néel wall則是平行兩磁區的平面。

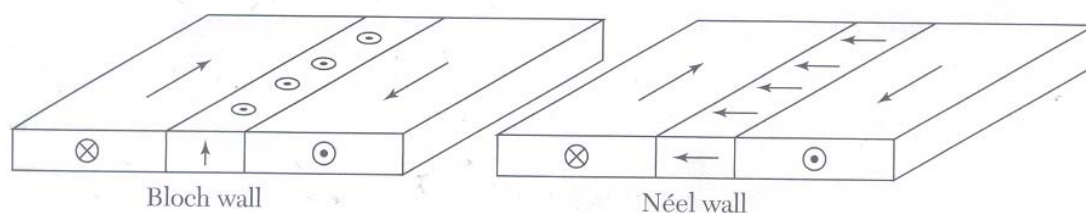


圖 2-1 不同的磁壁示意圖：左圖為Bloch wall；右圖為Néel wall [3]。

磁區結構在無外加磁場的情況下，會與材料形狀及尺度大小有密切的關係。尺寸較大的塊材或薄膜通常形成多磁區(multi-domain)結構，而尺度較小且形狀較特殊薄膜由於各種能量的平衡，會使磁區做接近單磁區(single domain)或是漩渦狀(vortex) [4][5]..等各種有一定規律的方式排列。圖2-2為不同磁區的結構示意圖：



圖 2-2 不同磁區的的結構示意圖，從左到右依序為漩渦狀(vortex)、單磁區(single domain)、多磁區(multidomain)。

磁區結構是由整個系統能量所決定，一個穩定的磁區分佈即是最低能態的表現[6]，換言之，物質的總能量決定了磁區的結構。實際上所考慮的能量有些是材料本身的特性，例如本身飽和磁化強度和晶格結構，這些特性會與材料種類及樣品在製作過程中的沉積(deposition)方式有關[7]；而其他外在影響因素，例如外加磁場強度及方向，樣品的大小及形狀以及電子自旋間存在的交互作用力也是影響能量的重要因素。

影響磁區的主要能量[8]包括交換能(exchange energy)、基曼能量(Zeeman energy)、磁彈性能(magnetoelastic energy)、晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy)、靜磁能(magnetostatic energy)、形狀異向性能(shape anisotropy energy)，以下我們逐一的來做介紹。

### 2-1.1 交換能(exchange energy)

在量子理論中磁矩的主要貢獻來自於原子中電子的自旋，不同的自旋電子彼此間會產生交互作用力(exchange force)，所產生的能量即為交換能(exchange energy)，交換能的大小可以由Heisenberg model考慮， $i, j$  兩原子的電子其自旋分別為 $S_i, S_j$ ，則交換能為[6]：

$$E_{ex} = -2J\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (2-1)$$

其中 $J$ 是交換積分常數，與第 $i$ 第 $j$ 個原子的電子分布有關，不同磁性材料有不同的

J，一般來說，鐵磁性材料 $J > 0$ ；反鐵磁材料 $J < 0$ 。此能量在鐵磁材料中當電子的自旋全部平行排列時能量為最小值，磁矩會呈現單一方向的磁化；相反地，在反鐵磁材料相鄰原子的電子自旋全部反平行排列時能量為最小值。

### 2-1.2 基曼能量(Zeeman energy)

基曼能量是指磁矩在外加磁場下所產生的能量，磁矩在外加磁場下會受到一個力矩使之偏向外加磁場的方向，當外加磁場達到該材料的飽和磁場後，樣品內所有磁矩會與外加磁場平行基曼能量的數學式如下[8]：

$$E_z = -\vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2-2)$$

H 為外加磁場，M 為磁化向量，由此可見磁矩平行外加磁場時，此能量為最小值。

### 2-1.3 磁致彈性(magnetoelastic energy)

磁致彈性現象主要發生在基板受一應力而產生一應變[9]，此應變與樣品的生長及製作過程有密切的關係。樣品與基板如果晶格結構不同，會產生不匹配的現象，使樣品會受一應力差 $\Delta\sigma$ ，因應力差導致的磁致彈性異向性能為[9]：

$$E_{me} = \frac{3}{2} \lambda_s \Delta\sigma \quad (2-3)$$

$\lambda_s$  為飽和磁致伸縮係數，主要跟樣品材料的晶格不匹配有關。

這項能量主要決定於不同物質間的晶格排列，所以跟材料的不同和沉積的方式有著密切的關係，一般來說，這項能量對多層膜結構會比單層結構影響來大。

### 2-1.4 晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy)

不同的磁性材料有不同的晶格結構，晶格排列方式會使電子的自旋軌道交互作用(spin-orbit interaction)產生差異，導致能量不同，影響磁矩沿著固定的晶軸方向做磁化，這種能量我們稱為晶格異向性能(crystalline energy)。

對於六角形晶體(hexagonal crystal)結構，晶格異向性能可表示成[8]：

$$E_m = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta \quad (2-4)$$

$K_0$ 、 $K_1$ 、 $K_2$ ……是晶格異向性常數，單位為  $\text{erg/cm}^3$ ， $\theta$  為磁化方向與晶軸c軸的夾角。

如2-3所示，hcp結構在其易磁軸方向飽和磁場較小，1000 Oe的磁場就能使所有磁矩平行c軸，反之在難磁軸上磁矩緩慢的被磁場推向磁場方向，一直到10000 Oe仍尚未完全飽和。

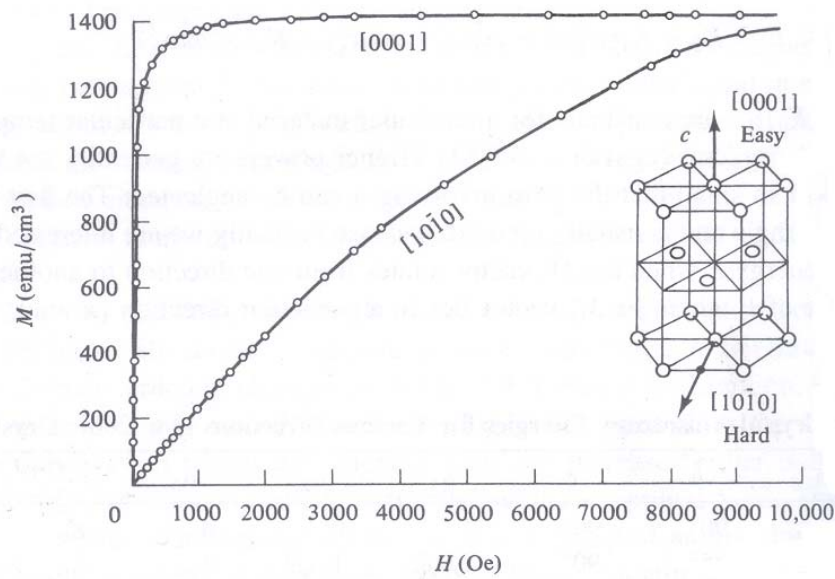


圖 2-3 hcp結構Co磁化強度和磁場關係圖，如插圖所示，C軸 [0001] 即為易磁軸[10]。

### 2-1.5 靜磁能(magnetostatic energy)

磁性物質本身因磁荷的堆積而會在空間中產生磁場，抵銷此空間中磁場所需的能量我們稱為靜磁能，又可稱為去磁能(demagnetization energy)。假設在一磁性物質中，單位體積的磁化向量為 $M$ ，而 $H_d$ 為磁偶極矩所造成的磁場，則靜磁能(去磁能)可表示為[11]：

$$E = \frac{\mu_0}{2} \int_v \overline{H_d} \cdot \overline{M} dv \quad (2-5)$$



## 2-1.6 形狀異向性能(shape anisotropy energy)

磁性樣品的幾何形狀會影響磁矩的磁化方向，不同的形狀會造成不同的異向性。若物體為一圓盤，則磁化方向跟外加磁場的方向就沒有一定的關係；又假設物體為一棒形，則裡面磁矩的方向會自然偏向長軸的方向，為了抵銷內部的磁場，會產生一去磁場(demagnetizing field)，此去磁場與磁化的方向相反並與磁化的大小成正比，關係式可表示如下：

$$\vec{H}_d = -N_d \vec{M} \quad (2-6)$$

負號代表去磁場與磁化方向相反， $N_d$ 為去磁係數(demagnetizing factor)，不同的樣品形狀會影響去磁係數的大小。

單位體積磁矩 $M$ 與去磁場 $H_d$ 所造成的能量變化可表示為[11]：

$$E = \frac{\mu_0}{2} \int_v \vec{H}_d \cdot \vec{M} dv \quad (2-7)$$

我們所做的樣品為一個長方形的平板線，平板線或棒狀結構的磁性樣品可以使用橢球模型來做分析，最常使用的橢球模型為扁長型，如圖2-4：

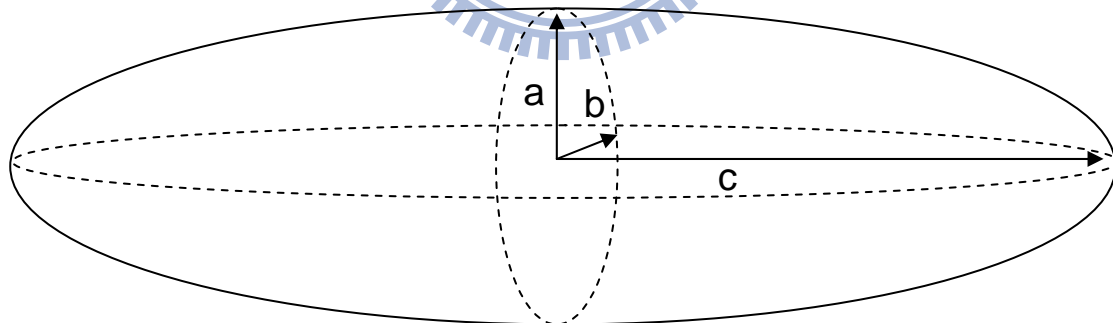


圖 2-4 扁長型橢球模型，其中  $c > a = b$

平板線的 aspect ratio=長/寬，可表示成  $m=c/a$ 。

橢球模型的去磁係數須符合下列關係式： $N_a + N_b + N_c = 4\pi$ 。

$$N_a = N_b = 4\pi \frac{m}{2(m^2 - 1)} \times \left[ m - \frac{1}{2(m^2 - 1)^{1/2}} \times \ln\left(\frac{m + (m^2 - 1)^{1/2}}{m - (m^2 - 1)^{1/2}}\right) \right] \quad (2-8)$$



$$N_c = 4\pi \frac{1}{m^2 - 1} \times \left[ \frac{m}{2(m^2 - 1)^{1/2}} \times \ln\left(\frac{m + (m^2 + 1)^{1/2}}{m - (m^2 - 1)^{1/2}}\right) - 1 \right] \quad (2-9)$$

由式子(2-8)(2-9)我們可以知道  $N_a$ 、 $N_b$ 、 $N_c$  與  $m$  有關，所以我們可以畫出  $N_a$ 、 $N_c$  與  $m$  的關係圖來了解它們之間的關係。如圖 2-5。

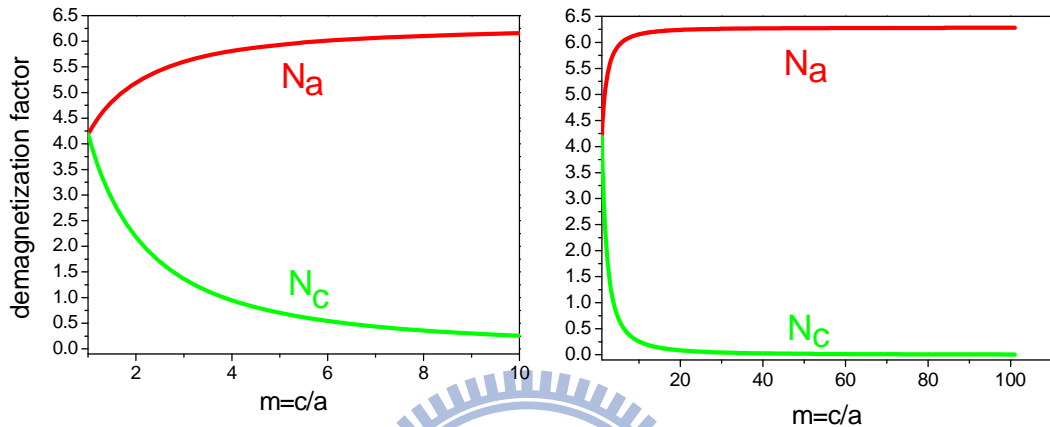


圖 2-5 去磁係數  $N_a$  及  $N_c$  與 aspect ratio  $m$  的關係圖，左圖  $m$  範圍為 0~10，右圖的  $m$  範圍為 0~100。

由圖 2-5 我們可以看出  $0 < m < 10$  時， $N_a$  及  $N_c$  的有著明顯的變化，代表裡面的磁區排列並不是穩定的單一方向磁化；當  $m > 10$  後， $N_a$  及  $N_c$  只有小小的變化並趨近一定的值，由此可知當  $m$  很大時，磁矩會沿著  $c$  軸(橢球長軸)去做單一方向的磁化。

不同的去磁係數會影響計算出來的能量大小，也會決定磁矩磁化的方向，圖 2-6 為各種不同的物體在無外加磁場下因形狀產生的可能磁矩排列。

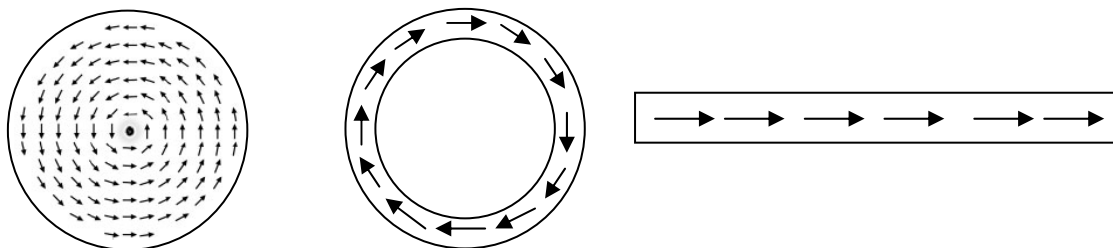


圖 2-6 圓盤、環與 aspect ratio 很大的長方形線等不同形狀磁矩的排列。

我們實驗上所做的平板線，aspect ratio  $m$  為一個重要的參數，在無外加磁場下當  $m$  很大時，平板線會因去磁能的增加而會趨近單磁區的結構，隨著  $m$  的減少，去磁能的影響也變小，磁區間會開始慢慢產生磁壁，造成交換能的增加改變了系統的總能量而形成多磁區，從單磁區轉換到多磁區時的長度我們稱為交界長 critical length( $L_c$ )，交界長  $L_c$  可寫成[12][13]：

$$L_c = 2m \frac{q}{M_s} \sqrt{\frac{C}{N_c}} \quad (2-10)$$

$m$ 為aspect ratio， $q$ 為Bessel function's solution， $q=1.8412+0.48694/m-0.11381/(m^2)$ 、 $M_s$ 為該材料的飽和磁化強度、 $C$ 為交換常數(exchange constant)。對於Co而言，參數如下： $M_s=1440 \text{ erg/cm}^3$  at 10K， $C=1.3 \times 10^{-4} \text{ erg/cm}$ 。

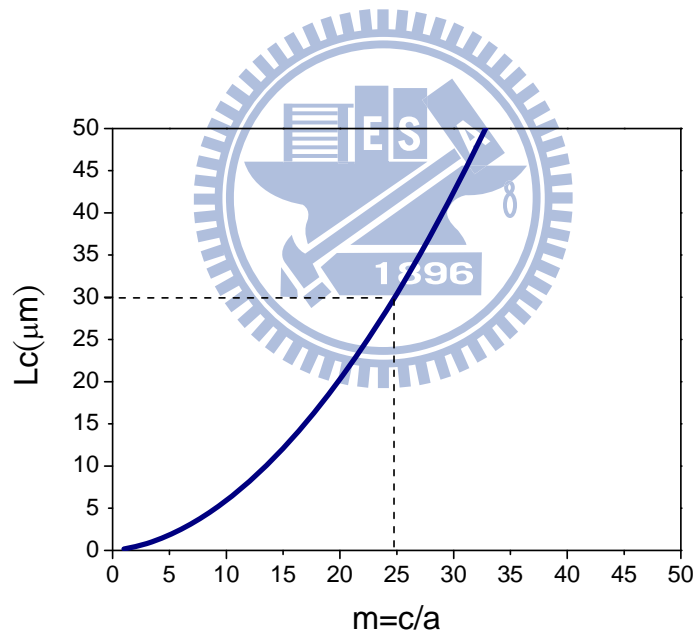


圖2-7 計算出來的 critical length 與 aspect ratio 的關係圖，在實線的左邊磁矩分佈為多磁區；實線的右邊磁矩分佈為單磁區。

我們所做的平板線長為 $30 \mu\text{m}$ ，由式子(2-10)我們固定 $L$ 值，可反推從單磁區轉換到多磁區時的寬度，由圖2-7虛線所標示，我們可以知道 $L_c=30 \mu\text{m}$ 時單磁區與多磁區的轉變交界為 $m=25$ ，我們因此計算出交界處線寬為 $1.2 \mu\text{m}$ ，當線寬大於

1.2  $\mu\text{m}$ 時，我們預測其零磁場下應為多磁區分佈；反之線寬小於1.2  $\mu\text{m}$ 時，其所有磁矩排列同向為單磁區分佈。

## 2-2 磁矩翻轉

### 2-2.1 概述

在外加磁場下磁區結構會發生變化，至於磁區的結構是怎麼發生變化？磁區是由磁矩的排列所組成，所以磁矩的變化就會造成磁區的變化，磁矩變化的過程我們稱之為“翻轉”。

近幾年愈來愈多人投入磁性結構的研究，對於磁性薄膜及塊材的翻轉機制已有很多文章做探討，對於aspect ratio較小偏向多磁區(multidomain)的翻轉形式大多解釋成磁壁的形成擴張及消失(nucleation or annihilation of domain wall)；對於aspect ratio較大單磁區(single domain)的翻轉形式則有三種形式，分別為coherent rotation、curling rotation 及buckling。

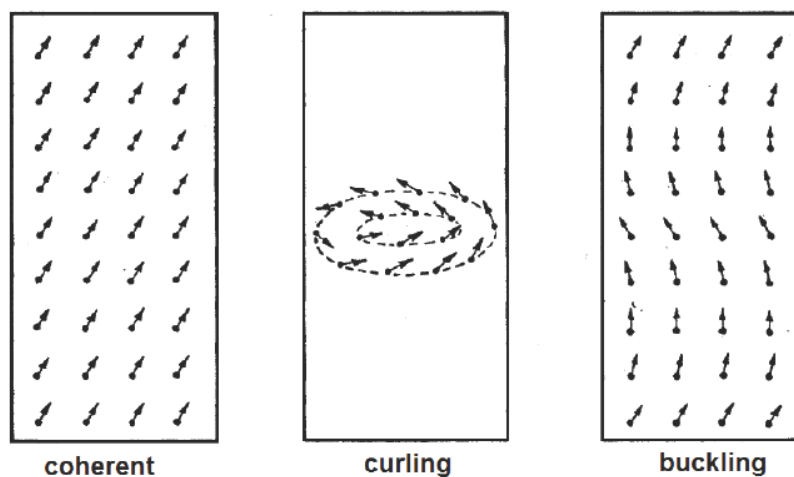


圖 2-8 單磁區三種不同翻轉的形式示意圖[14]，左圖為coherent，中間類3D圖為curling，右圖為buckling。

Coherent rotation是指在翻轉的過程中，每個磁矩會做同調性排列，每個磁矩都翻轉一樣的方向及角度，如圖2-8左圖所示，在一瞬間整體的磁矩都指向一致性的方向；curling rotation 是在一個垂直向上的平面上磁矩會依序呈現逆時鐘方

向的排列，如圖2-8中間類3D圖所示；右圖buckling則是磁矩的分佈呈類似一個S型的波形分布。

磁矩會做哪種形式的翻轉，主要取決於交換能和去磁能的大小，當磁矩均為平行排列，交換能為最低，磁矩會以coherent rotation做翻轉，而當aspect ratio增大時，去磁能漸增進而主導，磁矩則會選擇curling rotation。在橢球模型中，當易磁軸(easy axis)與外加磁場平行時，則其coherent rotation及curling rotation的交界半徑長度為[8]：

$$r_c = q \left( \frac{2}{N_a} \right)^{1/2} \frac{C^{12}}{M_s} \quad (2-11)$$

q為Bessel function's solution， $M_s$ 為該材料的飽和磁化強度，C為磁交換勁度常數(exchange stiffness constant)。

由上面公式，我們知道當 $r > r_c$ 時，磁矩翻轉會選擇curling rotation型式；當 $r < r_c$ 時，磁矩翻轉為coherent rotation[15]。由此我們可以用橢球模型算出其交界的半徑長度來預測其可能的翻轉形式。

至於buckling 的翻轉形式介在coherent rotation及curling rotation兩者之間且只會發生在很小的尺度範圍內，一般來說不易觀察到其變化，但是也有人依據Aharoni的理論模型去做計算來探討最有可能的S型波狀翻轉[16]。

圖2-9為不同粒子的直徑與磁矩翻轉時磁場的關係圖，由圖中我們可以看到最大的 $H_{sw}$ (switching field)出現在 $d_{th} < D < d_{crit}$ 之間，在此區間粒子主要呈現著single domain的特性並且磁矩會做coherent rotation，考慮橢球粒子的形狀異向性及材料的晶格異向性，我們可以算出最大的瞬間翻轉場為： $H_{sw} = (N_a - N_c)M_s + 2K_u/M_s$ 。當 $D < d_{th}$ ， $H_{sw}$ 會迅速的下降，主要原因是粒子小於某個尺寸外加場產生的磁取向力太小而無法抵抗溫度造成的熱擾動，而導致其磁化性質變成與順磁體相似，我們稱為超順磁性(超順磁性並不是我們主要討論的範圍)；當 $d_{crit} < D < D_{crit}$ 之間，樣品的特性一樣是single domain的特性，但是 $H_{sw}$ 已不是最大值，在此區間磁矩的翻轉有兩種形式，一種是curling rotation， $H_{sw}$ 會跟D有著-2次方的關係開始下降；另一種是buckling(虛

線部份)， $H_{sw}$ 會跟 $D$ 有著 $-2/3$ 次方的關係做下降，一般大多認為翻轉形式為curling rotation，但也有人依據Aharoni的理論模型去解Brown方程式，認為翻轉形式應該是buckling[16]；當 $D > D_{crit}$ 時，粒子的特性開始出現多磁區(multidomain)的特性，磁矩的改變方式受到磁壁(domain walls)產生和消失的影響已不再是明顯的變化，而是做緩慢的改變，我們稱此區的 $H_{sw}$ 為coercivity， $H_{sw}$ 會在 $D > D_{crit}$ 附近迅速下降，代表著磁壁的形成改變了翻轉的型態。

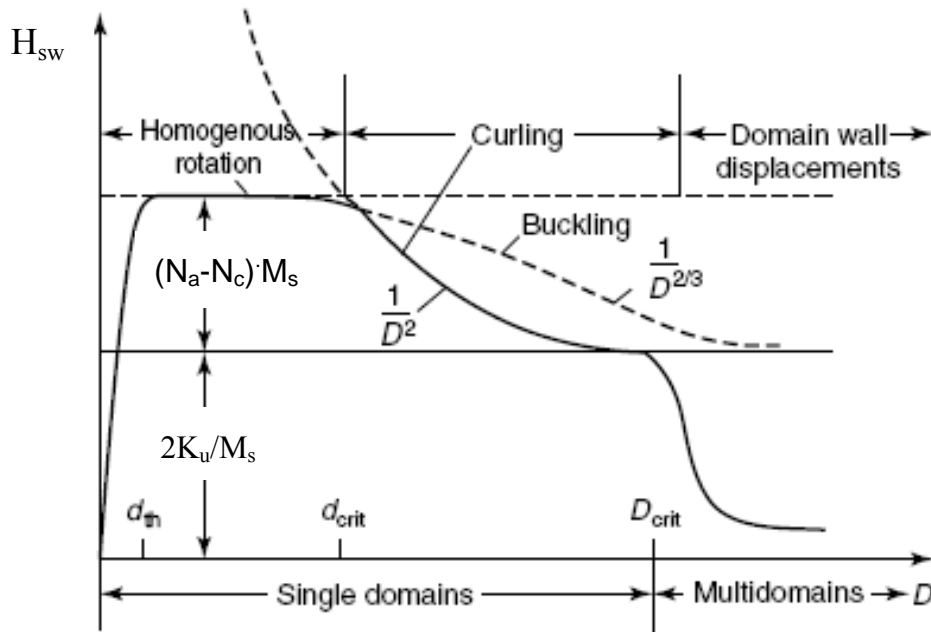


圖 2-9 不同粒子的直徑 $D$ 與磁矩翻轉時磁場 $H_{sw}$ (switching field)的關係圖， $N_a$ 與 $N_c$ 為橢球粒子短軸和長軸的去磁係數， $K_u$ 為形狀異向性常數， $d_{crit}$ 為coherent rotation及curling rotation的交界半徑， $D_{crit}$ 為single domain 和 multidomain的交界半徑， $d_{th}$ 為超順磁性(superparamagnetism)與鐵磁性(ferromagnetism)的交界[11]。

## 2-2. 2 Stoner Wohlfarth Model -Coherent rotation

Stoner-Wohlfarth Model 可以用來計算和解釋 coherent rotation，它主要是考慮形狀異向性能和外加磁場所造成的基曼能量(Zeeman energy)，當橢球模型上  $\phi$  及  $\theta$  分別是磁化向量與外加磁場對易磁軸方向的夾角時(圖 2-10)

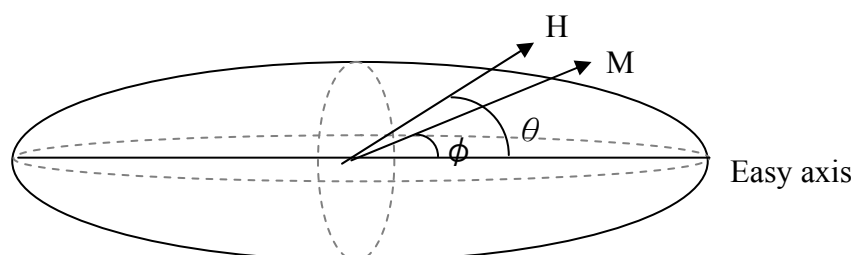


圖 2-10 Stoner-Wohlfarth Model 下橢球模型磁化向量與磁場夾角的示意圖。

我們可以把能量寫成下列式子：

$$E = K_u \sin^2 \phi - \vec{H} \cdot \vec{M}_s = K_u \sin^2 \phi - HM_s \cos(\theta - \phi) \quad (2-12)$$

其中第一項表示形狀異向性能，第二項為基曼能量， $K_u$  則為單軸異向性能常數。

我們藉由尋找能量的最小值，來知道磁矩的分布的情況，所以我們把能量對  $\phi$  作微分取極值，得到下式：

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = 0 \Rightarrow 2K_u \sin \phi \cos \phi + HM_s \sin(\theta - \phi) = 0 \quad (2-13)$$

我們令  $h = \frac{HM_s}{2K_u}$  (reduced field)，則上式可寫成：

$$\sin \phi \cos \phi = -h \sin(\theta - \phi) \quad (2-14)$$

再經由一系列的三角函數計算整理，可得下式：

$$2 \cos(\theta - \phi)(1 - \cos^2(\theta - \phi))^{1/2} \cos 2\theta + (1 - 2 \cos^2(\theta - \phi)) \sin 2\theta = -2h \sin(\theta - \phi) \quad (2-15)$$

我們可以令  $m = M/M_s$  (reduced magnetization)，又  $M = M_s \cos(\theta - \phi)$ ，所以  $m = \cos \theta$  代入上式又可簡化成：

$$2m(1 - m^2)^{1/2} \cos 2\theta + (1 - 2m^2) \sin 2\theta = -2h \sin(\theta - \phi) \quad (2-16)$$

我們可以解出 $m$ 與 $h$ 的函數關係來得到磁滯曲線(圖2-11)。由圖我們可以看到當 $\theta = 0^\circ$ 時， $m$ - $h$ 圖呈現的磁滯曲線為方方的， $h$ 值較大；而 $\theta$ 開始增加時，曲線開始慢慢變的慢慢有點類似圓弧， $h$ 值較漸少；當 $\theta = 90^\circ$ 時，曲線變成了一條斜直線，而此時的 $h$ 值為0。

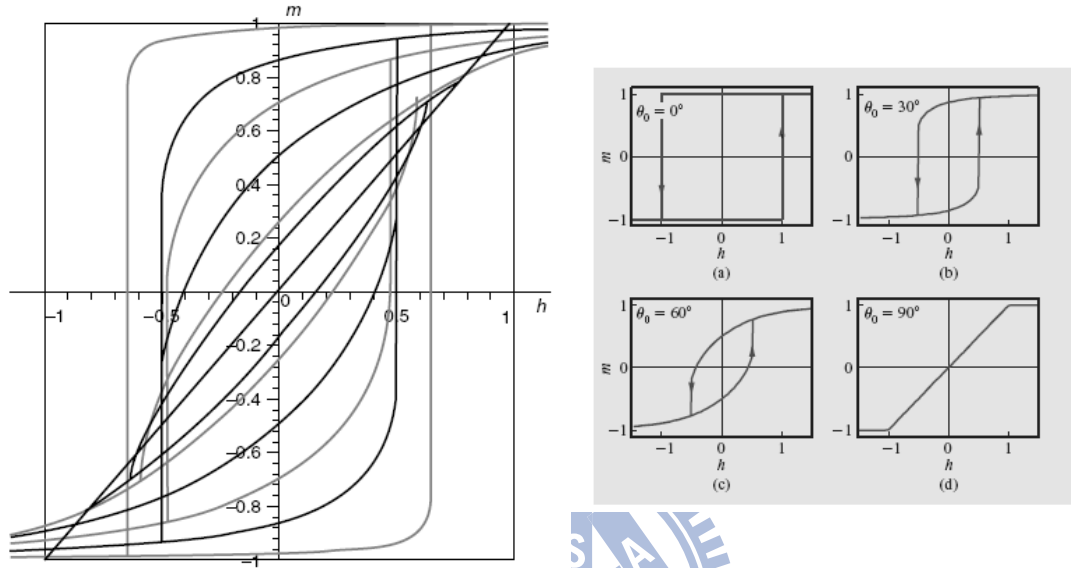


圖 2-11 利用公式(2-15)計算出不同的外加磁場與易磁軸的角度 $\theta$ 的 $m$ - $h$ 曲線圖，左圖由外而內分別為 $\theta = 0^\circ, 5^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ, 70^\circ, 85^\circ, 90^\circ$ ，右圖為 $\theta = 0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ 時各別的 $m$ - $h$ 曲線圖[8][11]。

我們接著討論磁矩的翻轉變大小，定義方式為下：磁矩翻轉變為最大時外加磁場的大小，我們稱之為 $H_{sw}$ (switching field)

因此我們可以由 $\frac{\partial m}{\partial h} = 0$ 及 $\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} > 0$ 計算出 $h_{sw}$ 與 $\theta$ 的關係式：

$$h_{sw} = (\cos^{2/3} \theta + \sin^{2/3} \theta)^{-3/2} \quad (2-17)$$

由上式我們可以畫出圖2-12所展現的星狀圖(asteroid)，在 $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ, 270^\circ$ 時有最大值 $h_{sw}$ 有最大值；而在 $\theta = 45^\circ, 135^\circ, 225^\circ, 315^\circ$ 則 $h_{sw}$ 有最小值。

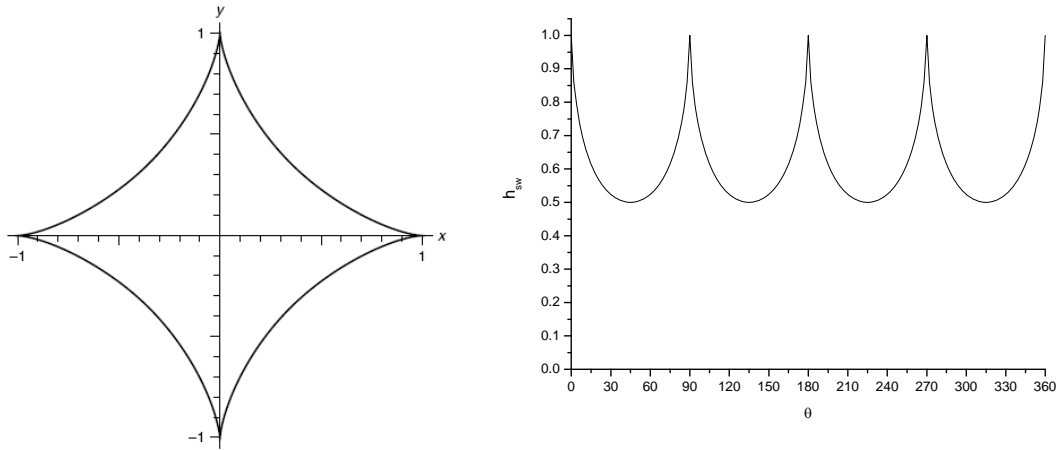


圖 2-12 左圖中實線部份即的Stoner-Wohlfarth畫出來的星狀圖(asteroid)，x軸代表易磁軸(easy axis)；y軸代表難磁軸(hard axis)。右圖為 $h_{sw}$ 跟夾角 $\theta$ 的關係圖。

### 2-2. 3 Curling rotation model

單磁區(single-domain)結構其磁矩翻轉除了coherent rotation 之外，另外一種磁矩翻轉機制：curling rotation。

curling rotation 是磁矩在一垂直易磁軸方向的平面上做類似一漩渦狀的翻轉，漩渦的方向符合右手定則的方向，如圖2-13。此種翻轉方式可以有效降低靜磁能，但是無法做出磁滯曲線的分析。

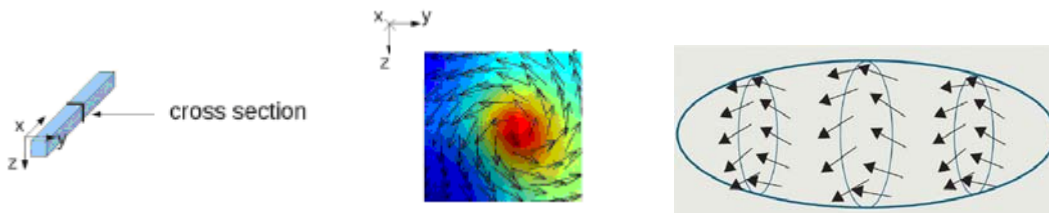


圖 2-13 左邊和中間為磁矩在長方形平板線的YZ平面上做curling rotation的模擬圖[17]，右邊則為扁長型橢球模型做curling rotation的示意圖[13]。

Aharoni 假設磁矩在做翻轉前的行為是做一致性的旋轉，依據 curling model 去解Brown 的偏微分方程式，得到扁長型橢球的  $H_{sw}$  與角度的關係式如下[18]：

$$h_{sw} = \frac{(2\frac{N_a}{4\pi} - \frac{k}{s^2})(2\frac{N_c}{4\pi} - \frac{k}{s^2})}{\sqrt{(2\frac{N_a}{4\pi} - \frac{k}{s^2})^2 \sin^2 \theta + (2\frac{N_c}{4\pi} - \frac{k}{s^2})^2 \cos^2 \theta}} \quad (2-18)$$



$H_{sw}=2\pi M_s h_{sw}$ ， $\theta$  為外加磁場與易磁軸方向(電流方向)的夾角， $N_c$ 與  $N_a$ 分別是扁長型橢球長軸與短軸方向的去磁能係數， $S$  為 reduced radius： $s=R/R_0$ ， $R$  為橢球半短軸， $R_0=(A/2M_s^2)^{1/2}$ ， $A$  為 exchange constant， $k=q^2/\pi$ ， $q$  為 Bessel function's solution。

圖2-14為 $h_{sw}$ 相對 $\theta$ 的關係圖，星狀實線為Stoner-Wohlfarth model 畫出來的 coherent rotation，虛線部分則為curling model不同 $S$ 值的關係。如圖所示，就一固定 $S$ 的樣品，隨著外加磁場與易磁軸的夾角由 $\theta = 0^\circ$ 至 $\theta = 90^\circ$ 時， $h_{sw}$ 會逐漸增加。而coherent rotation在 $\theta = 45^\circ$ 時最小，在 $\theta = 0^\circ$ 至 $\theta = 90^\circ$ 時為最大。由此圖我們可以知道，當 $S$ 值為1.6時，在 $\theta < 45^\circ$ 時，curling 形式的  $h_{sw}$  會小於coherent 狀態的  $h_{sw}$ ，反之 $\theta > 45^\circ$ 時，curling 形式的  $h_{sw}$ 會大於coherent 狀態的  $h_{sw}$ 。

由整體的趨勢可發現在 $S > 1$ 且 $\theta$ 為小角度的情況，磁矩幾乎都是做curling rotation，而 $\theta$ 在比較大的角度依然是利用coherent rotation的形式。而當 $S < 1$ 時，翻轉方式則完全是coherent rotation的形式。

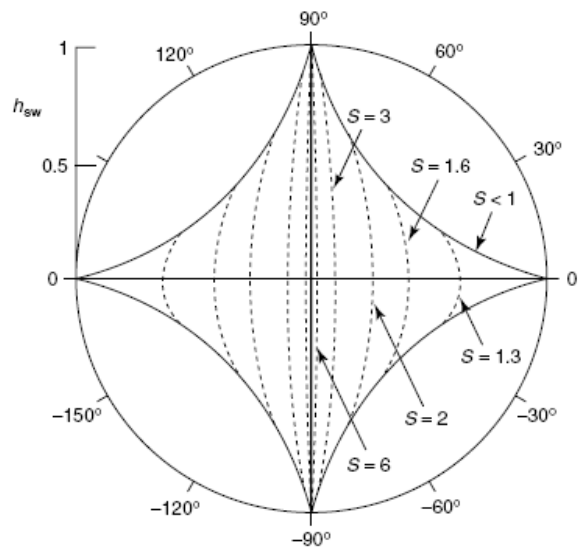


圖 2-14 扁長型橢球( $m$  很大)在 coherent rotation 及 curling rotation 形式下  $H_{sw}$  與  $\theta$  的關係圖。實線星狀圖為 coherent rotation 的結果，虛線有  $S$  值的則為 curling rotation 的結果[11]。

S 值會影響 curling rotation 的  $h_{sw}$ ，圖(2-15)說明了 curling 不管 S 值大小均在  $\theta=90^\circ$  時  $h_{sw}$  值為最大，表示在外加磁場為  $90^\circ$  時，要做 curling rotation 是比較困難的。所以通常外加磁場角度較大時，翻轉會比較趨向 coherent rotation。

當 S 值越小時，即扁長型橢球半徑越小，也就是 aspect ratio 越大時所算出來的  $h_{sw}$  值會越大，所以當 S 值越小，也意味著越難做 curling rotation；反之當 S 值越大時，所需的  $h_{sw}$  值會越小，磁矩越容易做 curling rotation。

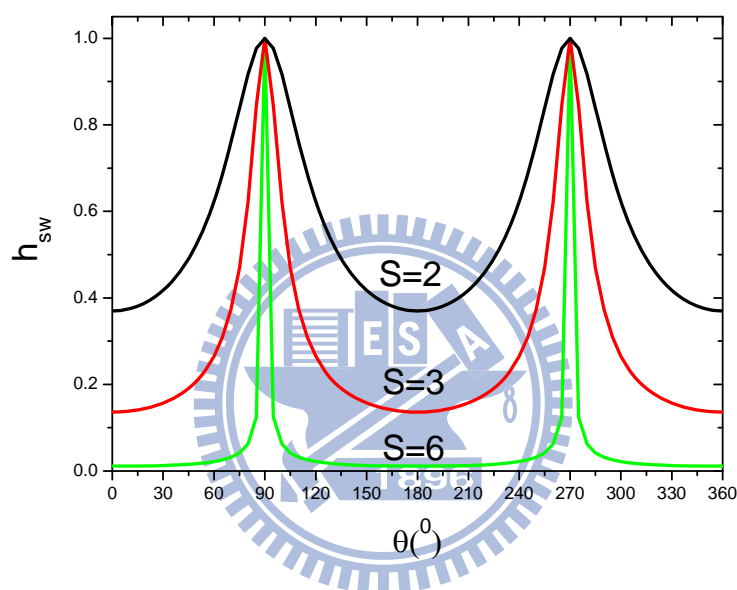


圖 2-15 不同的 S 值與  $h_{sw}$  與  $\theta$  的關係圖，S=2、S=3、S=6 大均在  $\theta=90^\circ$  時  $h_{sw}$  值為最大，隨著  $\theta$  增加或減少， $h_{sw}$  會開始減小，當  $\theta=0^\circ$  及  $180^\circ$  時  $h_{sw}$  最小。

### 2-3 鐵磁與反鐵磁層結構

之前我們都在探討鐵磁材料薄膜的特性，近年來多層材料薄膜為一熱門的研究主題，其中一項的研究為鐵磁/反鐵磁的結構(FM/AFM layer)，我們將在以下文章介紹反鐵磁的特性及鐵磁/反鐵磁的結構特性。

### 2-3.1 反鐵磁(Antiferromagnetism)

反鐵磁性(Antiferromagnetism)是磁性材料的另一種有序排列磁性質。在 1932 年由 Louis Néel 首次發現，在這種材料中，磁矩雖然呈現有秩序的排列但相鄰磁矩呈相反方向排列，其整體磁化率接近於零。

反鐵磁性為弱磁性，磁化率  $\chi$  為很小的正數，磁化方向與外加磁場相同。磁化率與溫度相關，但隨溫度變化情形較順磁性物質特殊。如圖 2-16 所示，當溫度遠低於 Néel 溫度  $T_N$  時，磁矩的排列則趨向於反平行，隨著溫度的提高，磁化率增大，而當溫度高於  $T_N$  時，磁化率則隨著溫度的提高而變小時，為順磁性。

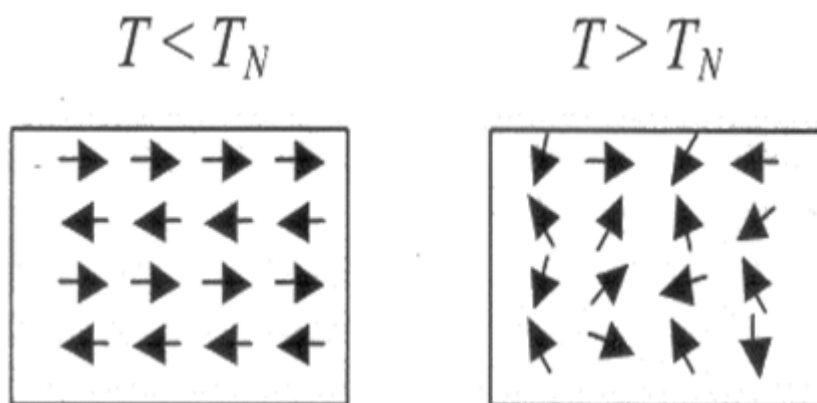


圖 2-16 反鐵磁材料在  $T > T_N$  及  $T < T_N$  磁矩的分布示意圖。

一般鐵磁性物質的氧化物多為反鐵磁性，如  $\text{CoO}$ 、 $\text{FeO}$ 、 $\text{NiO}$ ...等，其他比較常見的反鐵磁材料如  $\text{Mn}$  的化合物及金屬  $\text{Cr}$ ，這些元素在製作鐵磁或反鐵磁多層結構時由於有不同的晶格結構而有不同的性質。我們實驗中主要是讓  $\text{Co}$  平板線表面自然氧化形成  $\text{CoO}$ ，因此具有反鐵磁結構的特性。

### 2-3.2 鐵磁/反鐵磁的結構特性

一般鐵磁/反鐵磁的結構特性在介面會有很強的交換耦合(exchange coupling)，主要原因是鐵磁層受反鐵磁層的影響在接近介面時其磁矩排列與鐵磁層介面磁矩成反平行排列，如圖 2-17 所示。

鐵磁層裡面的磁矩在接近介面附近會受到很強的交換作用(exchange

interaction)，所以介面附近所產生的交換能(exchange energy)也必須要列入考慮。至於鐵磁層與反鐵磁層薄膜界面的交換耦合作用一般被認為與界面的粗糙度(Roughness)、反鐵磁層的磁區排列、反鐵磁層的晶格結構、以及反鐵磁層界面的原子磁矩排列有關，然而卻無一適合的模型能充份解釋此現象並與實驗結果完全吻合。

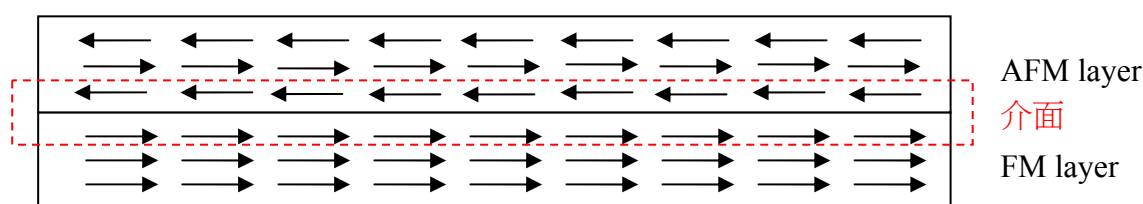


圖 2-17 側視的鐵磁層/反鐵磁層的介面模型圖。

### 2-3.3 交換偏壓(Exchange bias)

鐵磁與反鐵磁介面的交換耦合(exchange coupling)的現象最早在 1956 年由 Meiklejohn 和 Bean 在直徑約 20~100 nm 的部份氧化 Co 微小粒子(即 Co/CoO)中發現[19]，圖 2-18 虛線為樣品在無外加磁場下冷卻至 77 K 時所做的遲滯曲線，而實線部份為樣品在 10 KOe 的外加磁場下冷卻至 77 K 所做的遲滯曲線，前者由於 CoO 在沒有外加磁場的冷卻下，磁矩未形成反鐵磁態的排列，因此遲滯曲線完全反映了 Co 的鐵磁性特質；後者 CoO 在外加 10 KOe 的磁場下磁矩形成了反鐵磁態的排列，對鐵磁層 Co 產生了明顯的交換偶合(exchange coupling)作用，因此鐵磁物的遲滯曲線會往原先外加磁場方向的相反方向偏移，此曲線偏移量稱之為交換偏壓(Exchange bias)，偏移的遲滯曲線其矯頑場  $H_c$  明顯增加，如圖中箭號所示。

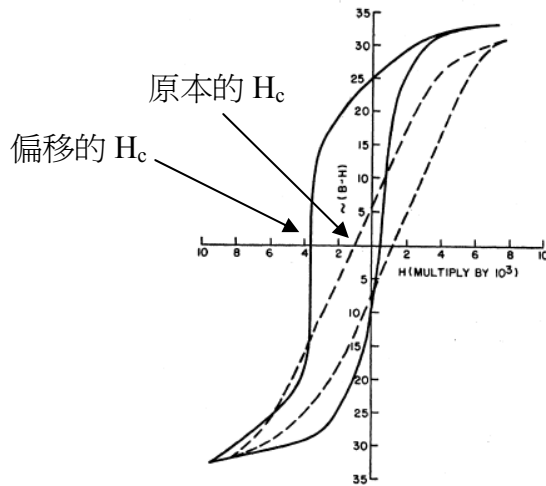


圖 2-18 部份氧化的 Co 微粒系統於 77 K 時的磁滯曲線，實線為加了冷卻磁場 (cooling field) 下的量測結果；虛線則為未加冷卻磁場下的量測結果[19]。

### 2-3. 4 Training effect

在量測鐵磁/反鐵磁層的遲滯曲線或磁阻曲線時，第一次測量出的遲滯曲線與第二次第三次測量出的遲滯曲線有明顯不同，如圖(2-19)，第一次測量時從正磁場漸掃到負磁場時，磁矩在較大的負磁場時才瞬間偏移至與外加磁場同向，而後續的第二次及第三次的遲滯曲線大致上相同，在負磁場下磁區的矯頑場也較小，且相對磁區翻轉也較緩和，此現象稱為 training，一般認為 training 大多發生在有鐵磁/反鐵磁層的薄膜中，在量測第一次曲線由正磁場掃到負場時，因為在此雙層薄膜的介面中有很強的交換耦合(exchange coupling)會影響鐵磁層磁矩的翻轉，所以需要較大的負磁場才能讓磁矩翻轉，當鐵磁層磁矩的翻轉後造成能量的改變，可能使反鐵磁層中磁矩的排列也發生了改變，產生了磁壁到另一穩定的磁區分布狀態，所以之後從負磁場掃到正磁場和第二次及第三次測量時並不會有明顯的差異變化，這就是我們一般俗稱的 training effect。

Training effect 與反鐵磁層的厚度有明顯的關係，當反鐵磁層越厚時，代表著反鐵磁層的晶格異相性(magnetocrystalline anisotropy)越大，越不容易改變反鐵磁層中磁區的分布狀態，所以 training effect 越小，即第一次測量與之後測量得到的磁

滯曲線差異性較小；而當反鐵磁層的厚度變薄，則鐵磁層翻轉後能量的改變越容易改變反鐵磁層中磁區的分布狀態，training effect 則會越明顯[21]。

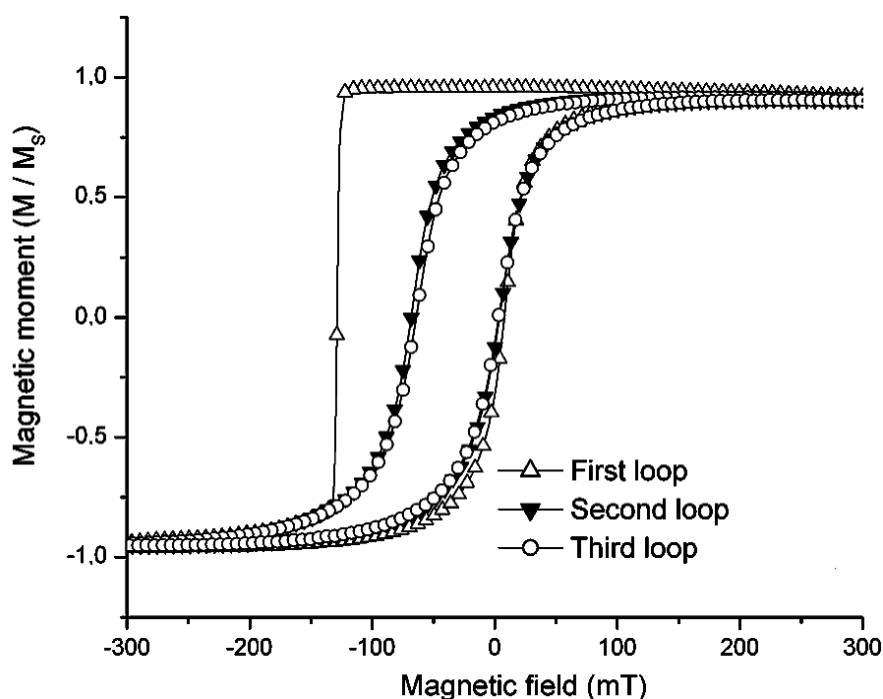


圖 2-19 CoO/Co 雙層結構的磁滯曲線圖[20]，磁滯曲線分別量了三次，我們可以發現第一次量出來的曲線與第二次第三次明顯的不同。

## 2-4 異向性磁阻(anisotropic magnetoresistance, AMR)

磁電阻是指在外加磁場下所量測到的電阻變化值，磁電阻有很多種類，例如勞倫斯磁電阻(Lorentz magnetoresistance)、異向性磁阻(anisotropic magnetoresistance, AMR)、巨磁阻(giant Magnetoresistance, GMR)、龐磁阻(colossal magnetoresistance, CMR)···等各自有其機制，在這些磁阻當中，主要影響我們 Co 平板線的類型為異向性磁阻(AMR)，所以我們將在下面介紹之。

異向性磁阻的成因主要是電子自旋軌道間的耦合及電子在 s 軌域和 d 軌域散射。電流與外加磁場所導致的磁化向量會改變磁性材料外層 4s 及 3d 電子軌域

的分布，當電流與磁化向量平行時，此時 s-d 軌域之間的散射機率達到最大，產生的電阻值也最大；而當我們改變磁化方向時，便會改變 d 軌域電子的分布，造成 s 軌域與 d 軌域不完全平行，進而降低了 s-d 散射的機率，故電阻值減少。所以由以上的解釋，我們可以定義出縱向磁阻(LMR)與橫向磁阻(TMR)。

縱向磁阻(LMR)：當流過的電流方向與磁矩的磁化方向平行時，電阻值會最大。

橫向磁阻(TMR)：當流過的電流方向與磁矩的磁化方向垂直時，電阻值會最小。

1857 年時 Lord Kelvin 發現電流與磁化方向的相對角度不同會有不同的電阻，且其電阻值與  $\cos^2 \phi$  有關，其關係式如下[22][23]：

$$R(H) = R_{\perp} + \Delta R \cos^2 \phi \quad (2-19)$$

其中  $\Delta R = R_{\parallel} - R_{\perp}$ ， $R_{\perp}$  為飽和磁化向量垂直電流的電阻值， $R_{\parallel}$  則是飽和磁化向量平行電流的電阻值， $\phi$  為磁化向量與電流方向的夾角。

而外加磁場會改變磁性樣品內部的磁矩分佈，電阻值會與磁矩及電流間的夾角有關，我們便是利用此特性，改變外加磁場的大小及方向，經由觀察磁阻的變化分析鐵磁性平板線的磁區結構，進而探討樣品內部磁矩的翻轉機制。



### 第三章 樣品的製作與量測

我們主要是用磁電阻量測的方式來探討微米尺度下的Co及表面氧化的平板線。本章中，將會介紹製程上需用到的微影技術和各種量測所用到的儀器，圖3-1是我們樣品製作及量測的流程圖，圖3-2微影技術所做出來的樣品圖。

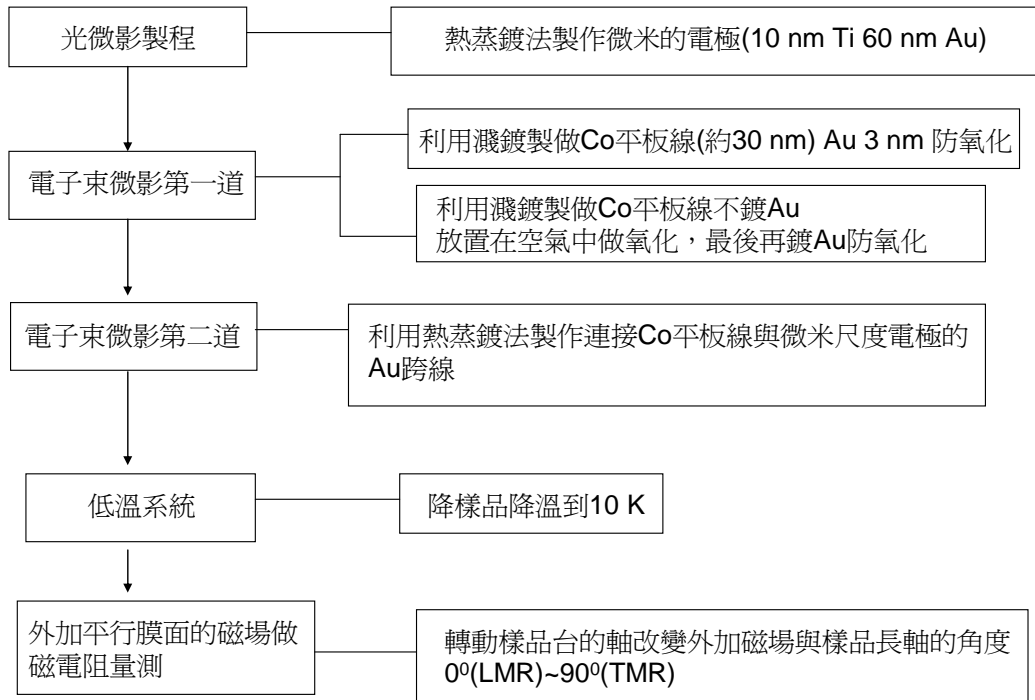


圖 3-1 樣品製做及量測的流程圖。

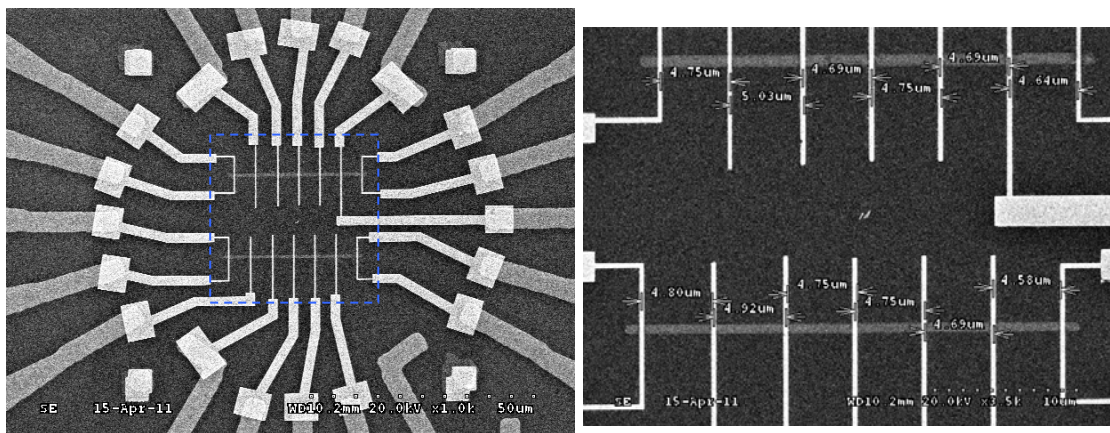


圖 3-2 SEM 不同倍率下拍出的兩張樣品俯視圖。右圖則為虛線方框部分樣品的放大圖，灰色直線為 Co 樣品，亮白色跨線為金電極。



### 3-1 微影技術

微影技術是一項重要的製成技術，被普遍應用於製作奈米或是微米尺度的元件上，我們的樣品製作主要是利用光微影(photolithography)及電子束微影(e-beam lithography, EBL)來完成。光微影的解析度與光源的波長有關，目前大量使用的是深紫外光(deep ultra violet, DUV)，而我們實驗室使用的則是i-line(利用汞燈所產生的)；電子束微影的解析度則與電子的波長有關，而電子束的波長很短，所以繞射效應很小，能達到很高的解析度。但是在製作大尺度的電極時，為了節省時間及考慮產量和良率，因此在微米尺度的電極製作上，會使用光微影技術。則在製作更小尺度的Co線，則使用電子束微影技術。

#### 3-1.1 電子束微影技術

電子束微影技術需用到掃描式電子顯微鏡(scanning electron microscope, SEM)的電子束為曝光源。本實驗所使用的掃描式電子顯微鏡為HITACHI S-3000H，透過加熱鎢絲，當到達足夠溫度時，發射出電子束，並以柵極給予電子20 kV 的加速電壓，之後電子束經過數個線圈及電磁透鏡，我們知道加速的電子在磁場中會受到Lorentz force，使電子束聚焦，最後到達樣品台時，電子束的孔徑大小(spot size)約為10 nm。

我們在製作需要的圖形，將基板塗上一層電子阻劑(PMMA)，並利用阻劑受到高能量電子束照射時會產生化學變化可溶於顯影液(MIBK)中，因此我們可以使用繪圖設計軟體(Design Cad)設計需要的圖形，並使用Nanometer Pattern Generation System (NPGS) 透過beam-blanker 控制電子束照射在設計的區域，之後便可顯影出電子阻劑上的圖形；最後利用濺鍍系統鍍上金屬材料Co，用丙酮溶解電子阻劑並舉離掉不需要的部份，便能製作出我們所設計的結構。本實驗樣品所使用的基板為一表面鍍上SiN的Si(100)基板(silicon wafer)。而在電子阻劑方面，我們選用的方式有單層和雙層兩類方式：

單層阻劑：製作方式使用的是495的PMMA 6%

雙層阻劑：製作方式是使用乙酸丙酯、A5 PMMA5%組合的double layer

我們Co系列的樣品，可能由於實驗上使用的阻劑方式不一樣，而使結果有所差異，我們一開始使用的是雙層阻劑的方式來做樣品，但是後來發現使用單層阻劑方式製作出的樣品較符合我們所預期的量測結果，所以我們的樣品大多數是用單層阻劑的方式，除了A1系列(見4-1分類表)的樣品是用雙層阻劑方式，我們的金跨線部分也是使用單層阻劑的方式來製作。

以下介紹電子束微影製程的基本步驟，分為單層阻劑和雙層阻劑的方式來做介紹。

#### 單層阻劑：

##### 1. 塗佈(Spin)：

首先將基板用丙酮、酒精清洗乾淨，用氮氣吹乾後，利用旋轉塗佈機(spinner)在基板塗上一層電子阻劑PMMA 6%，使用3000 rpm持續轉55秒，旋轉完後阻劑厚度約300 nm，如圖3-3(a)。



##### 2. 烘烤(Bake)：

將塗佈後的基板放置在180°C的加熱板上烘烤5分鐘，使電子阻劑內的有機溶劑揮發而固化。烘烤完後可以藉由PMMA的反光顏色判斷是否有灰塵掉在上面而造成spin出來的厚度不均勻，如有需要則重新清洗及塗佈。

##### 3. 曝光(Exposure)：

使用由Design-CAD 設計好的圖形，之後將塗上電子阻劑的基板放入掃描式電子顯微鏡的樣品台上，藉由NPGS及beam blanker與掃描式電子顯微鏡的連接，電子束就會依照我們所設計的圖形打在電子阻劑上，此過程稱為曝光，如圖3-3(b)。

#### 4. 顯影(Development)：

電子阻劑被電子束照射過後，其原子鍵結被電子束打斷而產生化學變化，使其可溶解在顯影液中；我們使用的顯影液為MIBK(methyl isobutyl ketone)：IPA(isopropyl alcohol) 1：3 的比例配製的溶液，先將樣品泡在顯影液內75秒，再將樣品泡在定影液(IPA)內25秒，之後迅速用D I - w a t e r 做清洗，然後用氮氣吹乾。顯影過後，電子阻劑被電子束打過的地方會被顯影液溶解掉，形成一個凹槽。如圖3-3(c)。

#### 5. 濺鍍

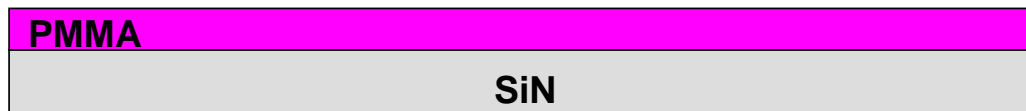
將樣品放入濺鍍系統裡製作我們所需的材料，如圖3-3(d)。(濺鍍請參考 3-3)

#### 6. 舉離(Lift-off)：

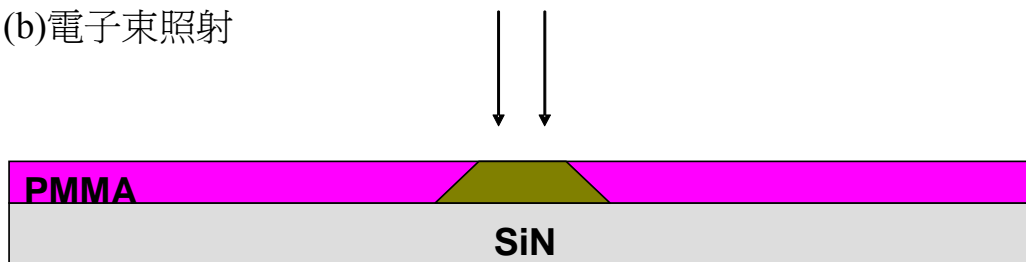
電子阻劑會溶解在丙酮，所以最後將樣品泡在丙酮內去除樣品上剩餘的電子阻劑，將覆蓋其上的材料也一併去除，如圖3-3(e)。我們便可把Design-CAD所繪的圖形轉移到基板上。



(a)塗佈



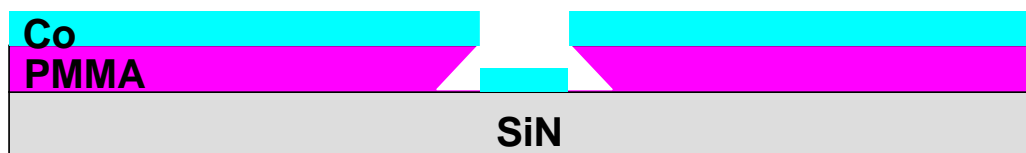
(b)電子束照射



(c)顯影後



(d)濺鍍



(e)舉離過後



圖 3-3 電子束微影製程的流程圖。

## 雙層阻劑方式：

### 1. 塗佈(Spin)：

首先將基板用丙酮、酒精清洗乾淨，用氮氣吹乾後，利用旋轉塗佈機(spinner)在基板塗上一層乙酸丙酯，使用3000 rpm持續轉55秒。

### 2. 烘烤(Bake)：

將塗佈後的基板放置在180°C的加熱板上烘烤5分鐘，使乙酸丙酯內溶劑揮發而固化，在基板上形成一層PMMA，具有該有的烘烤完後反光顏色。

### 3. 再次塗佈(re-spin)：

將烤好乙酸丙酯的基板再次放到旋轉塗佈機(spinner)上，將基板塗上PMMA5%，使用3000 rpm持續轉55秒。

### 4. 再次烘烤(re-bake)：

將塗了PMMA5%的基板放置在180°C的加熱板上烘烤5分鐘，使PMMA溶劑揮發而固化，在基板上形成一層PMMA，具有該有的烘烤完後反光顏色。

### 5. 之後曝光、顯影、濺鍍、舉離均同單層阻劑的製作方式。

## 兩種阻劑方式的差別：

如圖3-4，雙層阻劑底部的乙酸丙酯與電子會有較多的反應，底部電子阻劑被顯影掉的較多；單層阻劑底部電子阻劑被顯影掉的部分比較小。



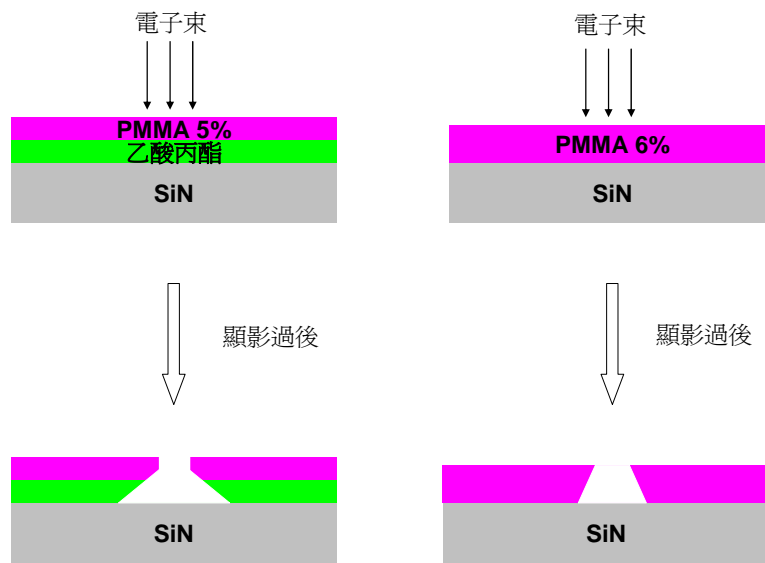


圖3-4 雙層阻劑與單層阻劑製做示意圖。

除此之外，如圖3-5，我們也明確在SEM影像看到兩方式做出來的Co線差異，左圖做出的Co線明顯有兩層的現象，而右圖做出的Co線看起來沒有外層淺色的包覆層。

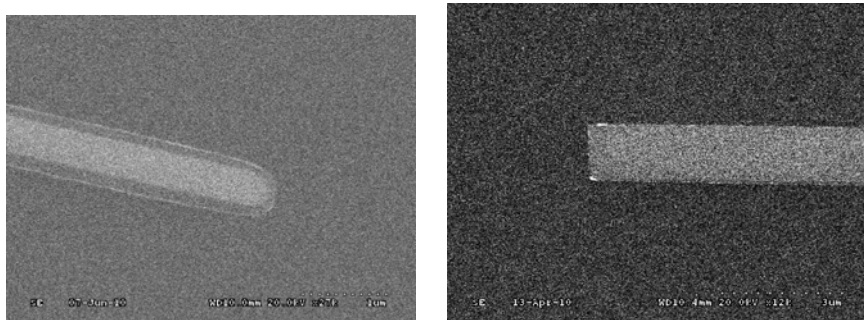


圖3-5 SEM下的Co平板線影像，左圖為雙層阻劑做出的Co線，右圖為單層阻劑做出的Co線。

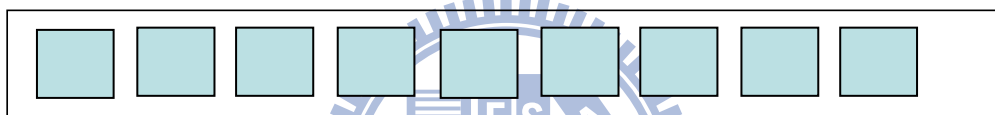
### 3-1.2 系統參數對樣品製程的影響

我們做出來的樣品，其形狀和大小並非如我們所設計的完全一樣，主要因素如下做探討：

#### a. 電子束的電子濃度

在NPGS系統中，我們可以設定劑量(dose)來調整電子束打在所設計的圖形上，劑量的設定可分為三種方式：Area dose、Line dose、Point dose，如圖3-6。Area dose主要是計算每單位面積要打多少電量的電子束下去；Line dose主要是計算每單位長度要打多少電量的電子；Point dose則是計算一個點要打多少電子束的電量。三種方式可以互相做換算。

Area dose



Line dose



Point dose

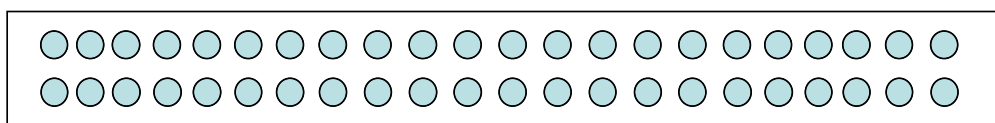


圖3-6 三種方式電子束劑量及打在繪製圖形上的示意圖。

電子阻劑所接受到的電子愈多，被顯影掉的部份會愈大，產生的圖形可能會比原先設計的寬；電子過少的情形，顯影後產生的圖形不僅比原先設計的圖形來得窄小，更甚者，會使金屬無法緊貼基板表面，可能造成舉離後金屬與電子阻劑一起被舉離而殘留破碎的圖形。

## b. Design-CAD 所繪製的圖形

雖然在Design-CAD 我們所繪的圖形有固定的長寬，但實際製作出樣品的線會依劑量數的不同長寬略有不同，這時可將設計線寬與劑量做搭配來得到想要的寬度。根據實驗結果，如果想要製作出寬度為 $0.7\ \mu\text{m}$ ，長度為 $30\ \mu\text{m}$ 的線，固定劑量為 $1.2\ (\text{nC}/\text{cm})$ 的情況下，在Design-CAD設計一個寬度為 $0.6\ \mu\text{m}$ ，長度為 $28\ \mu\text{m}$ 的線，製作出來的線寬會最接近我們的需求。

在很細的線( $0.3\ \mu\text{m}$ 以下的線)設計，與一般線寬設計的方式不同，必須把線寬設計的很窄且使用高劑量，圖3-7為針對細的線實際線寬相對設計線寬與計量的結果。

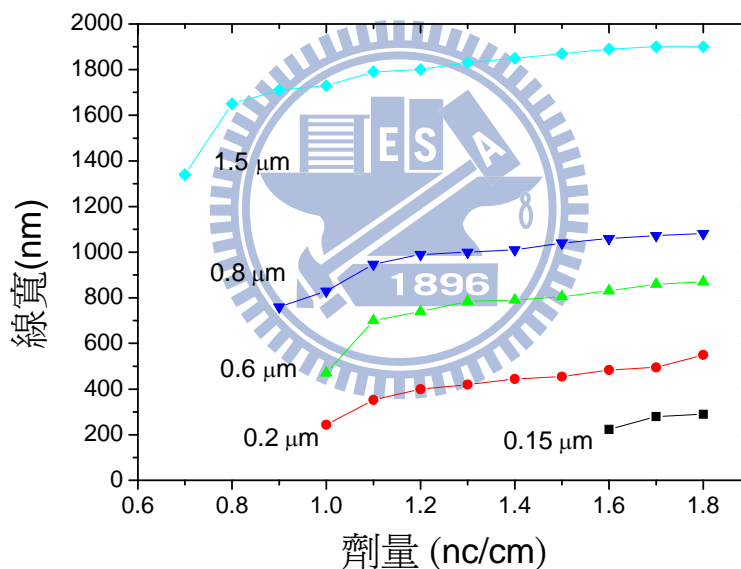


圖3-7 設計的線寬與實際上出來的線寬的關係，每條線的劑量使用都是 $0.6\sim 1.8$  ( $\mu\text{c}/\text{cm}$ )，其中沒有數據的地方代表該線劑量不夠，樣品製作沒成功。

## c. 電子阻劑的厚度

我們在塗佈的時候，電子阻劑的濃度及spin的轉速(rpm)會影響電子阻劑在基板上的厚度，而電子阻劑的厚度與所鍍的金屬薄膜厚度皆會影響樣品最後舉離的



結果，一般金屬薄膜厚度需大約為電子阻劑厚度的三分之一以下，被視為較理想的情況，在此狀況下舉離較不容易有翹邊及失敗的問題(實際上還是要看鍍的金屬，不同的金屬有不同的最佳厚度比)。

### 3-2 光微影技術

此技術是先光罩上做出我們所需要的圖形，再利用曝光機將光罩上的圖形轉移至基板表面的方式，基本製程包含spin光阻劑、軟烤、曝光、顯影、硬烤，大致上跟電子束微影技術的原理是差不多的，曝光源由電子束改為紫外光，電子阻劑換成光阻劑；實驗使用的紫外光波長大約365 nm，所以目前製作最小線寬大約2  $\mu\text{m}$ ，若要製作次微米的線寬，則必須用到波長254 nm DUV或更短波長的光源。本實驗光微影所使用的曝光方式為接觸式曝光(contact printing)。接觸式曝光的優點是圖形在轉移的過程中較不易失真(解析度會較好)；缺點則是因為光罩直接蓋在光阻上面，光罩容易沾上光阻或其他污染物，所以必須隨時注意做必要的清洗，當多次使用後的圖形邊邊接角剝落，則必須更換光罩。

我們主要利用光微影技術在基板上製作圖上較粗的金電極以連接樣品的粗跨線和電性量測系統，圖3-8為光微影完成後的樣品，靠近中央部份電極寬度5  $\mu\text{m}$ ，外圍電極寬200  $\mu\text{m}$ ，其中央部為電子束微影製作樣品的地方，ABCD為電子束微影的定位點，外圍方塊等區塊則是之後打線量測用。光微影部份主要是由王惠潔及學弟沈書文、簡駿帆製作。

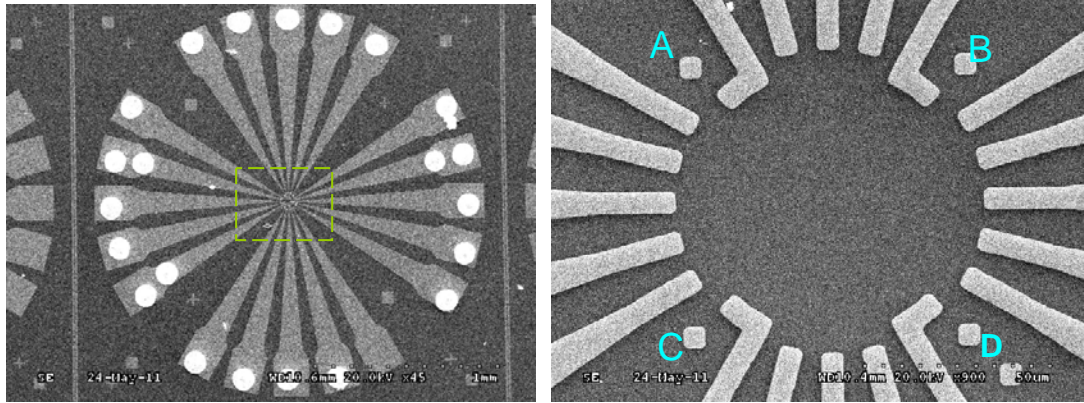


圖 3-8 左圖為 SEM 放大的光微影圖一區的完整圖形(約 2.5 mm×2.5 mm)，灰色是金接腳，而外圍方塊的亮原點為打線殘留金點；右圖為中間方框部分的放大圖。

### 3-3 濺鍍系統(sputtering)

濺鍍技術在半導體產業中應用非常廣泛，主要使用在生成金屬薄膜。一般濺鍍的方法為直流濺鍍及射頻濺鍍，我們主要使用直流濺鍍來鍍我們的磁性材料 Co 和其有關氧化的樣品。

直流濺鍍的原理是在一個真空腔體內通入氬氣(Ar)，之後在濺鍍槍的兩極間施加一高電壓，使周圍的氬氣被游離成帶正電的離子( $Ar^+$ )，眾多的正離子束被電場加速撞擊靶材表面的原子，使表面的原子獲得氬離子的能量而濺射出來，之後在基板上鍍出一層靶材材料的膜層。不同於熱蒸鍍方法(之後會介紹)，電漿狀態的氬離子衝撞及濺鍍靶材材料才是濺鍍的主要機制。而我們實驗使用的濺鍍機如圖 3-9。

#### 濺鍍機的操作及樣品製作：

1. 濺鍍機內部可分為濺鍍部分及蒸鍍部分(圖 3-8 的左圖和右圖)，濺鍍部份主要是鍍 Co；蒸鍍部份則是鍍防止 Co 氧化的金。我們先把樣品放在樣品台(holder)上，確定樣品對準直流濺鍍槍的中心位置(靶材的中心位置)，之後用三用電

錶檢測濺鍍槍的內罩電極必須與靶材短路，外罩電極與靶材有~1 MΩ的電阻。蒸鍍部份則兩電極要通路，電極與腔體(chamber)要斷路，確定好後把腔體關上。

2. 開啓機械幫浦(Mechanical pump)和粗抽閥門(rough valve)將腔體內的壓力抽到  $3 \times 10^{-2}$  torr 以下，之後開啓循環水系統(循環水主要是用來冷卻渦輪幫浦及濺鍍槍)，按下渦輪幫浦(turbo pump)加速鈕，關閉粗抽閥門並開啓前置閥(foreline valve)及主閥(gate valve)兩閥門將腔體內的壓力抽到  $3 \times 10^{-6}$  torr 以下。
3. 打開氬氣流量計並開啓氬氣鋼瓶，關閉主閥，並打管線的閥門使氬氣流入腔體內，調整氬氣流量計的大小可控制氬氣的流量，觀察腔體內的壓力大小，如腔體的壓力大於  $3.0 \times 10^{-2}$  torr，則須先用機械幫浦抽到此壓力以下，再用渦輪幫浦抽到大約  $9.0 \times 10^{-3} \sim 1.0 \times 10^{-2}$  torr。
4. 開啓連接直流濺鍍槍的直流發電機(DC generator)，調整其輸出的功率、電壓、電流的極值(limit)，並按下激發的按鈕，成功激發氬氣的話可以看到其輸出功率、電壓、電流的數值。
5. 在濺鍍中輸出功率、電壓、電流及氬氣的流量這些是主要會影響鍍率的參數，由於濺鍍部份並沒有安裝膜厚計，所以在鍍樣品前，我們必須要先測量其鍍率。我們使用的方法是拿一個正常基板鍍出我們所要的圖形(約長 1 mm 的寬 0.5 mm 的長方形)然後去用  $\alpha$ -steper 量其厚度，調整參數測量多次厚度後即可知道每秒的鍍率，之後我們就在這些參數下鍍出我們所需的金屬厚度。
6. 調整好參數在正式濺鍍前，爲了確保從靶材濺射出的金屬分子純度，必須先做預鍍 15 分鐘，在做預鍍的時候，有時候有可能會因濺鍍槍過熱而導致氬氣

無法持續的穩定激發，所以必須調整電壓、電流和氬氣的進氣量來維持其穩定。

7. 過了 15 分鐘且輸出功率、電壓、電流穩定時，即可轉開 I 的遮罩並開始鍍 Co，由之前測出的數據，我們可以依據秒數來控制要鍍多厚。我們實驗鍍的 Co 厚度大概在 30 nm 附近(每次濺鍍機啓動的狀況不完全相同，所以大概會有 3 nm 的誤差左右)。
8. 鍍完 Co 後，把腔體再次抽至  $3.0 \times 10^{-6}$  torr 以下，之後實驗分爲兩部分，一是直接鍍金(Au)防止其 Co 氧化；二是刻意使 Co 氧化再鍍金。

#### 一、直接鍍金(Au)防止其 Co 氧化

9. 轉動 II 的軸改變樣品台的位置到蒸鍍部份，用預先做好的記號來使樣品的位置在鎢舟的正上方，打開膜厚計並打開連接蒸鍍電極的電源供應器(power supply)，(蒸鍍的原理在 3-4 節會介紹)調整電流大小使金的鍍率穩定後即可轉動 III 打開遮罩鍍 3 nm 防止 Co 氧化。
10. 鍍完後關閉各種儀器，等待 30 分鐘冷卻，接著破真空把樣品拿出來並用舉離的方式即可做出我們要的 Co 平板線。

#### 二、刻意使 Co 氧化再鍍金

9. 關掉各種儀器等待 30 分鐘，破真空後開始計時 Co 樣品在空氣中氧化的時間，時間一到就移到蒸鍍機(會在下節介紹)裡抽真空並鍍上 3 nm 的金防止其繼續進一步氧化。
10. 鍍完全後可把樣品拿出來利用舉離的方式做出有表面氧化的 Co 線。

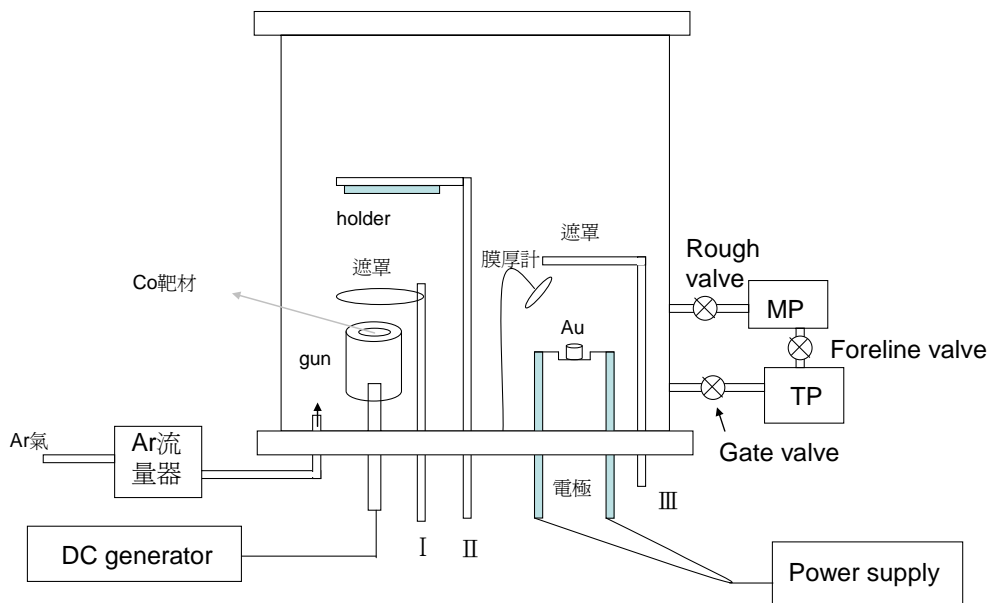


圖 3-9 濺鍍機系統示意圖。

### 3-4 蒸鍍系統

在光微影技術製作電極及電子束微影技術製作跨線時，我們都是使用熱蒸鍍機鍍上金。蒸鍍機的原理是將欲鍍的靶材放在鎢舟上，對鎢舟外加一電流，依電流的熱效應原理( $P=I^2R$ )使之產生高溫加熱靶材，當靶材溫度高過其沸點時便會蒸發，當氣體蒸氣到達基板表面會冷卻沉積形成薄膜，這種鍍膜方式即稱為熱蒸鍍。為了避免其他氣體及灰塵的干擾，蒸鍍必須在高真空的環境下進行。圖3-10為我們所使用的蒸鍍系統示意圖。

以下為蒸鍍機的操作步驟：

1. 先將鎢舟及靶材用丙酮、酒精依序清洗(至少20分鐘以上)，之後用氮氣吹乾。
2. 將鎢舟放入腔體並與電極連接，靶材放置於鎢舟上，樣品放置在樣品台(holder)上，之後用垂線校正樣品與靶材的位置，使樣品在靶材的正上方。

3. 拿三用電錶確定電極與錫舟導通，且電極與腔體不能短路。
4. 開啓機械幫浦(Mechanical pump)並打開Rough閥門，將腔體內的氣體壓力抽至 $3 \times 10^{-2}$  torr 左右(因為渦輪幫浦的正常工作壓力為 $3 \times 10^{-2}$  torr 以下，大於此壓力，會傷及幫浦內的旋轉葉片)。
5. 關閉粗抽閥門並打開前置閥門，啓動渦輪幫浦(turbo pump)並且使之葉片運轉加速，之後打開主閥門，將腔體內的氣壓抽至 $5 \times 10^{-6}$  torr 左右。
6. 暫時關閉主閥門，打開氬氣鋼瓶，使氬氣先通滿其管線，之後打開 A 閥門purge掉氬氣及其他空氣，重複三次後，關閉 A 閥門打開 B 閥門並控制氬氣的流量使腔體內的氣壓增加至 $8.8 \times 10^{-3}$  torr 左右後關閉 B 閥門。
7. 因電漿(plasma)可以去除樣品表面殘留的電子阻劑，所以我們給予0.8 kV的高電壓游離氬氣以產生電漿，之後打開遮罩讓樣品持續暴露在電漿中兩分鐘。
8. 打完電漿，關掉高電壓後，重新打開主閥門，將腔體內的氣體壓力抽至 $3 \times 10^{-6}$  torr 以下，即可開始蒸鍍。
9. 對錫舟施加一電流加熱其上的靶材，當靶材達到沸點後便會蒸發成爲氣態，等到鍍率隱定及壓力沒有明顯的持續上升後，即可打開遮罩，使金蒸氣沉積在樣品表面。
10. 蒸鍍完後需等30分鐘讓腔體冷卻，以氮氣破真空後即可將樣品取出，之後透過舉離的方式後，即可完成樣品的圖形。



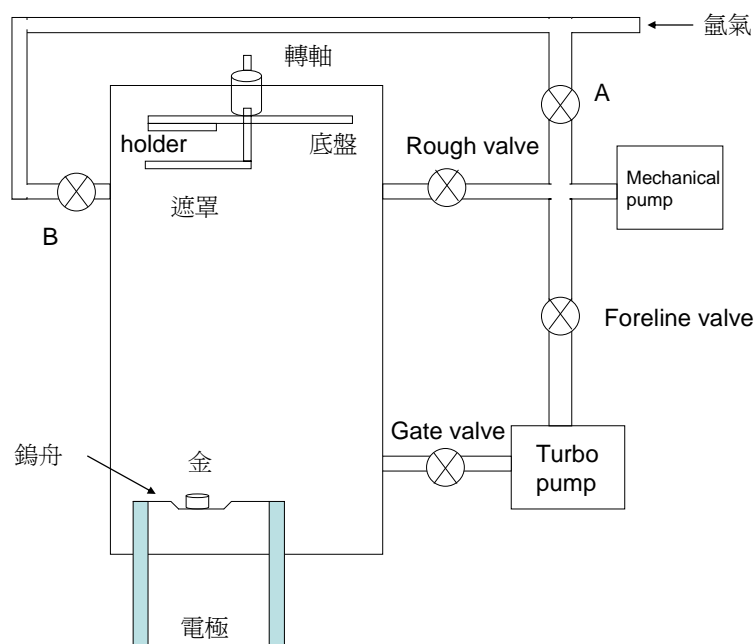


圖 3-10 蒸鍍系統示意圖。

### 3-5 低溫系統

我們在量測磁電阻時，為了避免溫度擾動所造成的干擾以及高溫導致的其他效應，因此將樣品溫度降低並控制在 10 K，方法就是透過低溫系統降溫及控溫。

本實驗室的低溫系統。有<sup>4</sup>He(量測範圍溫度300 K~1.3 K)、<sup>3</sup>He(量測範圍溫度30 K~0.3 K)、及dilution(量測範圍溫度20 K~20 mK)三種系統，我們是使用<sup>4</sup>He系統降溫，所以在此介紹<sup>4</sup>He低溫系統。

#### 3-5.1 低溫系統構造介紹

<sup>4</sup>He 的低溫系統基本上是一個類似杜瓦瓶的結構，圖 3-11 為其側視圖，圖 3-12 為其俯視圖。

1. A 稱為主容器 container(容量 5.5 L、高 20 cm)：用來存放液態氦的地方，主要藉由輻射的方式冷卻 sample space，所以並不會冷卻的特別快，另外 container

裡面有多少液態氮也會影響冷卻的速度，量不夠的話可能沒有辦法使 sample space 溫度下降。

2. B 稱為液氮夾層 jacket (5.5 L)：主要的功用是填置液態氮來減少 container 裡液態氮的消耗，jacket 與 container 中間有一個真空夾層，可以用來防止對流的消耗。jacket 裡的液態氮消耗的速率會比 container 快，一般而言每隔 12 小時需補充一次。
3. C 為 sample space，與 container 有一根毛細管做連接，其開關稱為 needle valve，此 needle valve 延升到頂端，藉由旋鈕控制 container 液態氮的流量。
4. 液態氮常態下為 4.2 K，可藉由 sample space 與機械幫浦連結，經針閥抽 container 的液態氮到 sample space，由於液態氮蒸發的速度加快，由於蒸發會吸熱，所以蒸發及流速即影響冷卻樣品台附近的溫度，藉由控制抽氣速率可使 sample Space，最低可降到 1 K 左右。





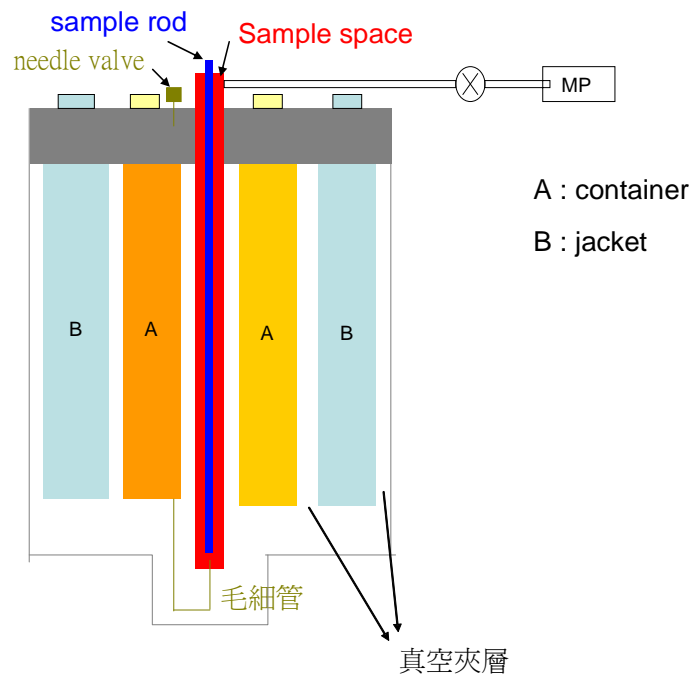


圖 3-11 低溫系統側視圖。

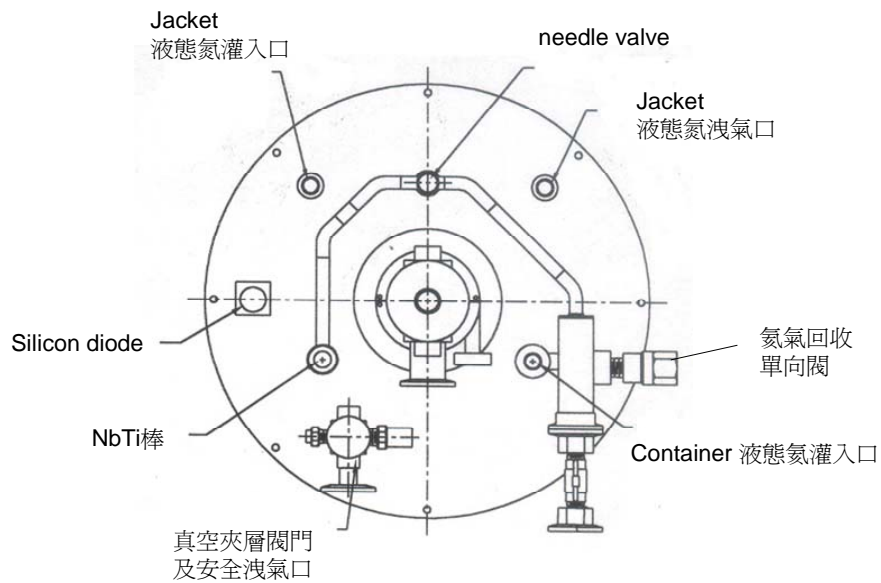


圖 3-12 低溫系統俯視圖。

### 3-5.2 低溫系統-溫控

1. 在sample rod放樣品處及sample space 底部(靠近毛細管口)分別裝已校正的

GaAlAs diode 和silicon diode溫度感測器，兩個diode分別接在LTC-11的CH2及CH1，可藉由溫控器LTC-11 分別給予diode 定電流然後測量其各自電壓值，便可得知所在的溫度。

2. 溫控方面，在sample space底部毛細管口附近及放樣品處的地方裝有一電阻加熱器，可藉由提供電流使其產生熱能( $P=I^2R$ )，控制電流的大小讓電阻放出的熱量與液態氮蒸發時所吸收的熱量達到平衡，便可將溫度控制在自己想要的範圍。

### 3-5.3 低溫系統-降溫

1. 在灌液態氮進 container 做預先冷卻之前，為防止連接 container 與 sample space 毛細管結冰(水氣在 0°C 會結冰)，必須以氮氣填充 sample space 且維持正壓(因為氮氣的凝結溫度比液態氮低)，在加氮氣前，也要先確保加氮氣的管線裡面沒有水氣，所以要先進行 purge，至少 3 次。當進行完 purge 後，讓 sample space 充滿氮氣並使壓力稍微大於安全洩氣閥的壓力，此時會有氮氣流出來(可用手在旁邊感覺有氣體出來，代表說裡面氮氣確實有達到大於安全洩氣閥的壓力)。
2. 開始進行灌液態氮到 container 裡做預先冷卻，先把管子插到 container 的底部再往上一點點(不可直插在底部因為在灌液態氮時有可能會因為流量太小堵在底端而從橡膠管爆裂開流出來)和橡膠管做連接，以氮氣加壓液態氮瓶使液態氮流進主容器，灌滿之後大概等 30 分鐘冷卻，就可以把液態氮反向移出來(若有殘留液氮，當液態氮降溫時液態氮會凝固，針閥 needle valve 會因周遭液態氮凝固而不能轉動)，之後先轉轉看 needle valve 看使否能轉動(sample space 在此時仍是處於正壓狀態)，確定可以後關好，可先灌液態氮到外層的 jacket，再灌液態氮進去 container，灌液態氮時需用特殊有真空夾層的傳輸管，將一

端慢慢垂直插入液態氮的儲存桶內，確定另一端出來的氮氣已降溫，才將管子插入 container，並以氮氣加壓儲存桶，使液態氮流入 container。

PS. 判斷container液態氮多高：container裡有插一根NbTi棒，NbTi會在9 K時變成超導體(液態氮溫度為4.2 K)，可藉由量其電阻的變化來知道裡面液態氮高度。液態氮愈多，NbTi 愈多部份變成超導體，所量到的電阻值愈低，所以當電阻值沒有明顯下降時，代表液態氮已灌滿container。

3. 灌完後，先把 sample space 維持正壓的氮氣抽掉，打開 needle valve 使液態氮進入毛細管，接著開啓連接機械幫浦與 sample space 的閥門，藉用機械幫浦的抽氣來使液態氮的蒸發速率加快，最後調整 needle valve 的大小控制液態氮流入 sample space 的量與抽氣速率達所要的降溫速率，等待系統降溫。



#### 3-5.4 低溫系統-換樣品

換樣品時，必須把 sample space 升到室溫，並且要使 space space 充滿氮氣，以防止水氣入侵毛細管造成毛細管結冰。sample rod 拿起來後應立即蓋上蓋子，換樣品後 rod 各處應吹乾避免水氣有入侵的機會。

### 3-6 樣品量測

我們量測電阻使用的儀器是LR-750，利用四條獨立的接線分別供給樣品電流與電壓測量樣品，測量方式有二點量測及四點量測法，二點量測法量到的電阻會包括接線本身的接點電阻及各個連接樣品接線的線電阻；而四點量測法由於電壓計內電阻遠大於樣品電阻，因此流經電壓器的電流幾近於零，最後量測到電阻極接近樣品量測區塊的電壓角兩端的電阻。

我們主要使用兩點量測的方法來確認各個接角的通路狀態，然後用LR-750 給予樣品一穩定的AC 電流源，順著電流接線接上量測樣品兩端的電壓，之後調到合適的歐姆檔位，即可獲得電阻值(其解析度可達 $10^{-6}$ )。

## 磁電阻量測方面：

### 1. 磁場

我們給予樣品的外加磁場是由sample space 兩旁裝置的電磁鐵所產生的。兩旁的電磁鐵有眾多線圈纏繞著軟磁鐵，對線圈施加電流，線圈所產生的磁場磁化軟磁鐵，使其在兩個軟磁鐵中間產生均勻的磁場；改變線圈電流的大小及方向(可施加在樣品上的最大磁場強度約2600 Oe)，便可以在sample space附近產生一可控式磁場。我們利用校正的Hall sensor 來得知樣品位置的磁場強度。

樣品台在sample rod 底端，我們主要把樣品放在一個無氧銅樣品台上，依據樣品台的不同，可決定外加磁場施加的方向是磁場垂直樣品表面(out of plane )或是磁場平行樣品(in plane)表面，不同的磁場施加在同一樣品上的磁場方向不同會產生不同形式的磁電阻特性曲線，本實驗的外加磁場是在in-plane方向，並且藉由旋轉sample rod 可改變磁場方向與樣品電流方向的夾角，其夾角的變化可由sample rod上面的圓盤量角器得知(誤差大約在1度內)。

### 2. 磁電阻

我們實驗量測磁電阻的方式是經由電腦中設計過的Labview 程式，在程式內設定電磁鐵電流的，從起始值到最終值以及各電流大小區間內的量測間距，執行run後電腦會透過介面卡經GPIB線將指令傳至電磁鐵的電流供應器以控制磁場強度，然後會依據設定的量測區間去依序改變磁場強度，在定磁場下由數位三用電錶Keithley 2000分別讀取LR750量測到樣品電阻及反應磁場強度的 hall sensor電壓，依序輪替量六次，並在程式內做換算，取平均成為樣品實際的電阻值與磁場值。

## 第四章 實驗結果與討論

我們以電子束微影及濺鍍的方法做了多個系列的樣品，並量測樣品在低溫時的磁電阻。由於這些樣品包含 Co 平板線和刻意使表層氧化的 Co 平板線，所以我們在第一節詳細敘述樣品分類，以利後續做討論比較。在第二節討論這些樣品的電阻與溫度變化的關係。第三節討論未氧化的 Co 平板線的磁電阻曲線及磁矩翻轉。第四節討論刻意氧化的 Co 平板線與 Co 平板線的磁電阻差異。第五節討論形狀異向性常數  $K_u$ 。

### 4-1 Co wire and CoO wire 樣品的分類

我們的樣品依據製作的流程主要分為 Co 及氧化的 Co 平板線兩大類，長度皆為  $30\ \mu\text{m}$ ，依據厚度的不同及氧化時間的不同我們可以再做細部的分類，分類表如下：

(1) Co 平板線(濺鍍 Co 線後隨即熱蒸鍍 3 nm 厚的金)。

類別	線寬 $w(\mu\text{m})$	$R_{\square}(\Omega)$ at 10K	厚度 $t(\text{nm})$
A1	0.44	15.0	28±2
	0.47	16.0	
	0.66	15.5	
	0.71	15.3	
	0.82	14.2	
	1.07	13.5	
A2	0.31	14.2	33±2
	0.38	14.3	
	0.68	11.0	
	0.89	9.0	
A3	0.25	20.2	34±2
	0.35	20.3	
	0.41	26.8	

(2)氧化的 Co 平板線(濺鍍 Co 線後,於空氣中置放設定時間後再鍍 3 nm 厚的金)。

類別	氧化時間	線寬 $w(\mu m)$	$R_{\square}(\Omega)$ at 10K	厚度 $t$ (nm)
B	5 min	0.60	8.8	30±2
		0.78	9.6	
		0.88	12.4	
C1	30 min	0.37	31.9	28±2
		0.51	32.1	
		0.65	22.8	
		0.84	21.7	
C2	30 min	0.45	9.1	30±2
		0.55	9.7	
		0.76	9.8	
		0.91	10.5	

#### 4-2 電阻對溫度變化的關係

所有的Co平板線的方塊電阻值展現相似的溫度對應變化，因此我們先以3樣品的行為作代表來描述，圖4-1為三樣品的方塊電阻對溫度變化的圖，由圖4-1我們可以知道從室溫開始下降到50 K時，電阻隨著溫度的下降而下降，有明顯的線性關係，溫度持續下降到50 K以下時，電阻值的下降速度會開始慢慢的變小，當溫度下降到10~15 K附近，看似達到一固定殘餘電阻值，似乎與金屬的性質相似，然由4-1的分類表可知其值介於8~32  $\Omega$ 之間，對應電阻率約為 24~96  $\mu\Omega\text{cm}$ ，較一般的多晶結構(polycrystalline)的Co塊材值仍稍大，若將仔細觀察低溫部分，其實並非如塊材金屬般電阻持續隨溫度下降而下降。

如圖4-2，低溫RT曲線呈現向上開口曲線，有一最小電阻值，我們稱此時的溫度為 $T^*$ ，當到達最小電阻值時，電阻開始隨著溫度的下降而緩慢上升，此現象主要是由無序效應中的弱局域或電子-電子散射所導致。

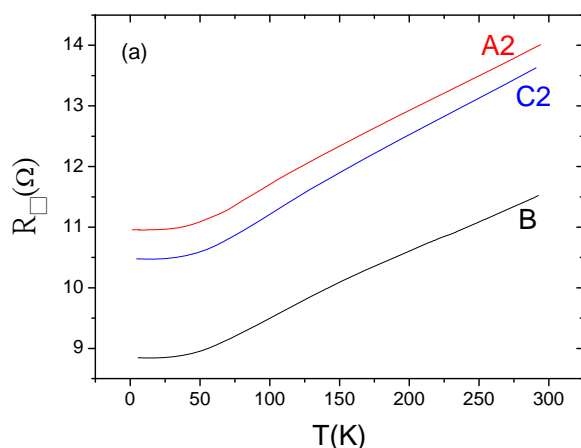


圖 4-1 電阻對溫度變化圖，三條線分別為 A2  $w=0.68 \mu\text{m}$ 、B  $w=0.78 \mu\text{m}$ 、C2  $w=0.91 \mu\text{m}$  系列的樣品。

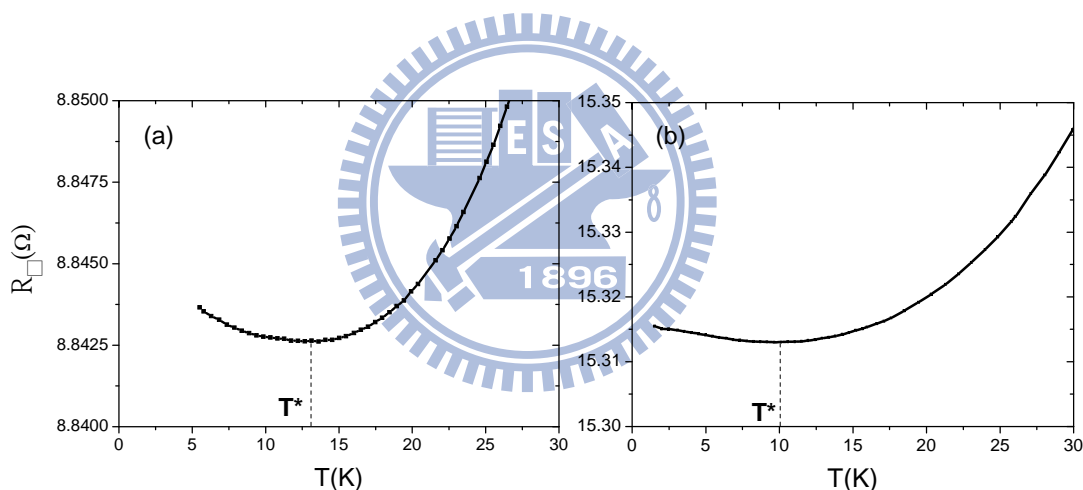


圖 4-2 不同系列的樣品於低溫下電阻對溫度變化圖。(a)圖為 B 系列  $w=0.78 \mu\text{m}$  的平板線，(b)圖為 A1 系列  $w=0.71 \mu\text{m}$  系列的平板線。

由圖 4-2 顯示 Co 平板線(b)與氧化過的平板線(a)在低溫時電阻變化的程度以及最低電阻值的溫度  $T^*$  不太一樣，我們可以來比較看看其它系列的樣品是否也有此現象。圖 4-3 為各系列的線與最低電阻時的溫度  $T^*$  的關係圖，由圖我們可以知道氧化過的平板線最低電阻值的溫度  $T^*$  均比 Co 平板線要來的高，表示 Co 的氧化層確實會影響 Co 在低溫時電性傳輸的性質。討論低溫時電導率的變化，其

中方塊電導值  $G=1/R_{\square}$ ，我們取最低的電阻值與 5K 時的電阻值來看這些平板線的電導值的變化： $\Delta G \equiv G(T^*)-G(5K)$ ，如圖 4-4，氧化過的平板線在低溫方面電導率的變化較 Co 平板線為大，因此氧化層在低溫的所造成的無序效應會比 Co 平板線大。

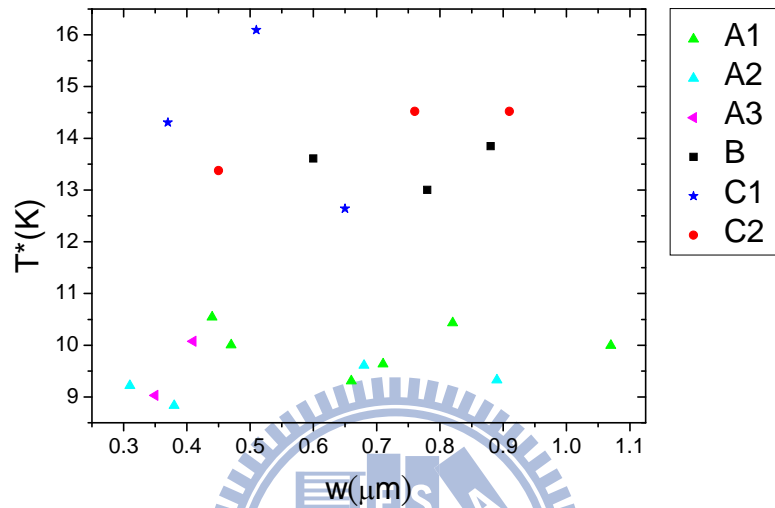


圖 4-3 各系列樣品的最低電阻時的溫度  $T^*$  與線寬  $w$  的關係圖。

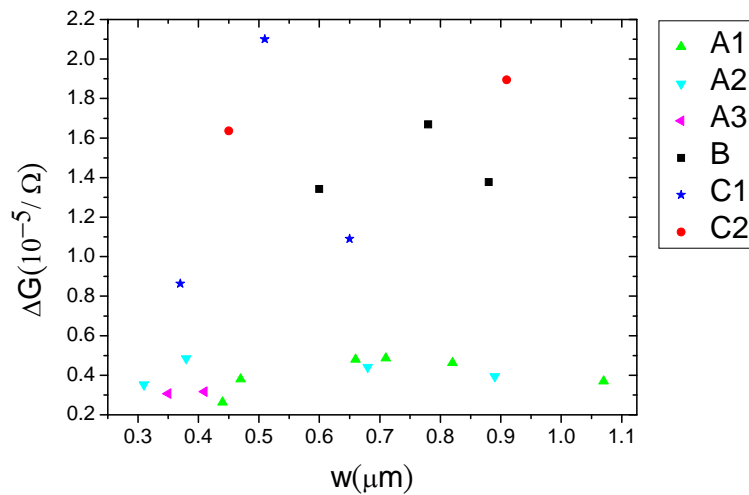


圖 4-4 溫度為  $T^*$  的電導值與 5 K 時電導值的差與各系列平板線線寬的關係圖。



所有樣品在  $T^*$  以上溫度展現金屬的電性傳輸特性，在 50 K~300 K 之間由於溫度導致晶格擾動，造成電子聲子散射以致電阻隨溫度上升規律性增加，我們計算此溫度區域的電阻溫度係數(Temperature Coefficient of Resistance)。

$TCR = (dR_{\square}(T) / dT) / R_{\square}(300 K)$ ，圖 4-5 為電阻溫度係數與方塊電阻值的關係圖，Co 平板線與氧化過的平板線均有電阻溫度係數隨著方塊電阻值越高有越小的傾向，代表著方塊電阻值越大，電阻變化率相對溫度的變化率越小。

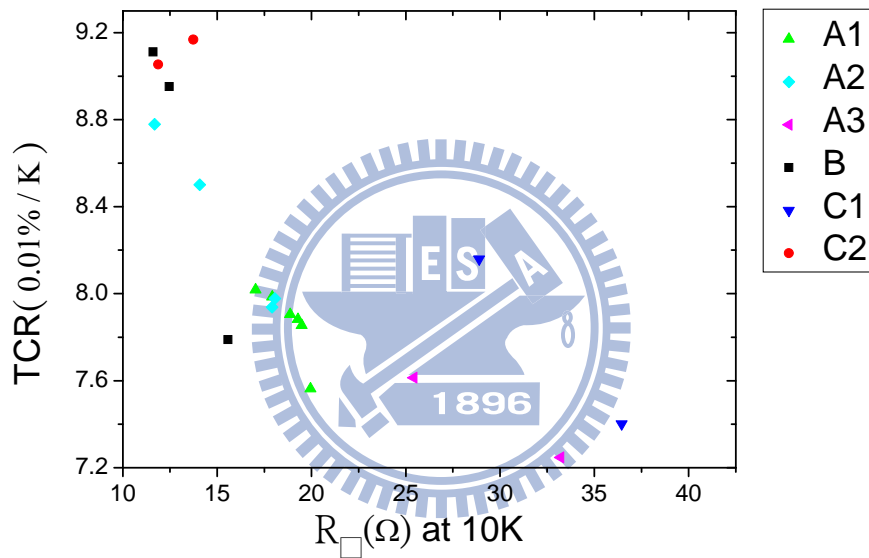


圖 4-5 室溫電阻溫度係數 TCR 與 10 K 時方塊電阻值  $R_{\square}$  的關係圖。

另一方面由數據可得知各樣品溫度降至 10 K 附近時，其方塊電阻隨著溫度的變化率 ( $\Delta R_{\square} / \Delta T$ ) 在  $10^{-4} (\Omega/K)$  以下，因此將樣品溫度控制在  $10 \pm 0.1 K$  內幾乎可忽略溫度擾動造成的電阻值變化對樣品磁電阻的影響。

### 4-3 Co 平板線的磁電阻曲線

#### 4-3.1 異向性磁阻(AMR)

對於 Co 平板線而言，主要影響磁電阻的即是異向性磁阻(AMR)，電流加在樣品長軸方向，而電流方向與磁化向量的夾角為  $\phi$ ，其磁電阻變化值與  $\cos^2 \phi$  有正比的關係，式子可以表示為：

$$R(H) = R_{//} - \Delta R \cos^2 \phi \quad (4-1)$$

$R(H)$  為磁場下量到的電阻， $\Delta R = R_{//} - R_{\perp}$ ， $R_{//}$ 、 $R_{\perp}$  則分別為磁矩平行及垂直電流時的飽和磁電阻，如外加磁場與長軸的夾角  $\theta$ ，而  $\phi$  決定於  $\theta$  與  $H$ 。當  $\theta = 0^\circ$  時，我們稱為縱向磁阻 LMR；當  $\theta = 90^\circ$  時，我們稱為橫向磁阻 TMR。

圖 4-6 為 A2 系列線寬為  $0.31 \mu\text{m}$  的 Co 平板線在不同磁場相對平板線長軸夾角  $\theta$  的磁阻圖形，由圖可以看到  $\theta$  為  $0$  度時，磁矩在小磁場下即明顯的呈現飽和狀態，但隨著  $\theta$  夾角度數的增加，曲線在最大可提供的磁場(2600 Oe)之外時仍有持續下降的趨勢，未達到飽和的狀態，所以我們用理論模型擬合磁電阻特性曲線來得到飽和電阻值。

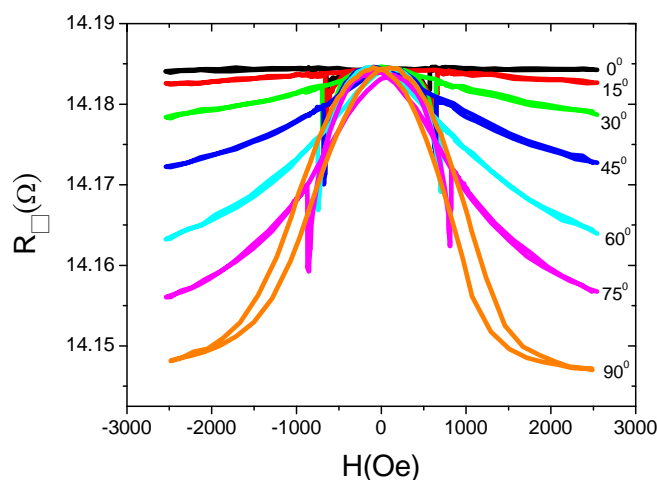


圖 4-6 A2 系列線寬為  $0.31 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 時的磁阻圖，曲線右邊標示數字為  $\theta$  值。

我們利用第二章所敘述的Stoner Wohlfarth Model，找到最低能量態時 $H$ 、 $\theta$ 、 $\phi$ 的關係式，如式子 (2-14)：

$$\sin \phi \cos \phi = -h \sin(\theta - \phi) \quad (4-2)$$

其中  $h=HM_s/2K_u$ ， $\phi$  及 $\theta$ 分別是磁化向量與外加磁場對易磁軸方向的夾角， $K_u$  為異向性常數， $M_s$  為飽和磁化強度， $H$  為外加磁場大小，我們固定 $\theta$ ，可以設 $h$ 值代入(4-2)式解出 $\phi$ ，畫出類似AMR效應的 $\cos^2 \phi$ - $h$ 磁阻曲線，如圖4-7。

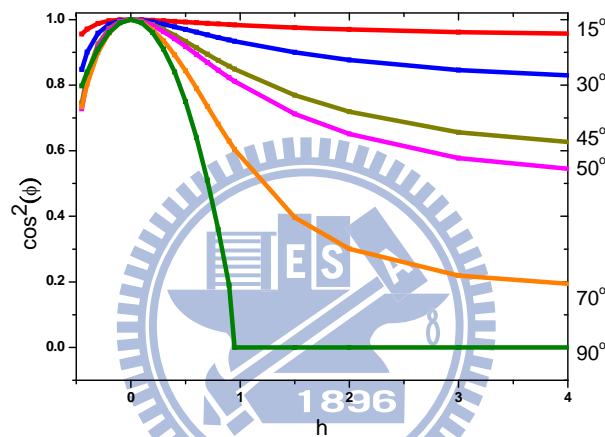


圖 4-7 Stoner Wohlfarth Model 下利用(4-2)式所畫出的  $\cos^2(\phi)$ 與  $h$  的關係圖，曲線右邊標示數字為  $\theta$  值。

接著我們藉由這些理論畫出的圖形去做改變及平移，擬合實驗數據，如圖 4-8，接著把磁場加大就可以知道磁阻會趨近於一定值，此值就是我們要找的飽和磁阻值，運用此方法可以找出  $\theta$  為  $15^0 \sim 75^0$  時樣品的飽合磁電阻，Stoner Wohlfarth Model 在  $\theta$  為  $90$  度時，由圖 4-7 顯示  $h>1$  時， $\cos^2(\phi)$  的值為  $0$ ，我們無法用 Stoner Wohlfarth Model 去擬合高磁場下的 TMR 曲線，但 TMR 在高磁場時的曲線，發現未飽和的磁阻在高磁場區大致上呈現著類似指數函數緩慢下降的趨勢，如圖 4-6 的 TMR。

圖 4-9 用指數函數擬合 A2 系列  $w=0.68 \mu\text{m}$  樣品的 TMR 曲線，當我們找到了一指數函數平移後可以符合 TMR 在高磁場的下降趨勢時，藉由延伸指數函數往高磁場區讓函數趨近定值，就可以找到 TMR 的飽和磁電阻。

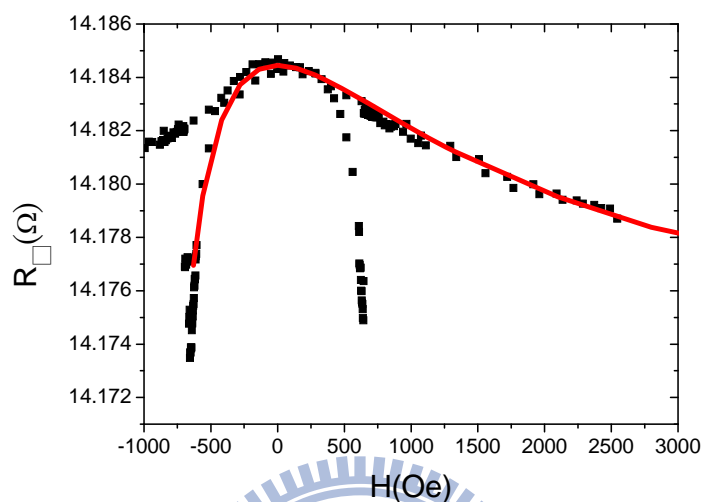


圖 4-8 用 Stoner Wohlfarth Model 擬合 A2 系列樣品  $w=0.31 \mu\text{m}$ ， $\theta = 30^\circ$  的飽和磁阻，圖中黑色方框點為量測的數據，實線為理論算的結果。

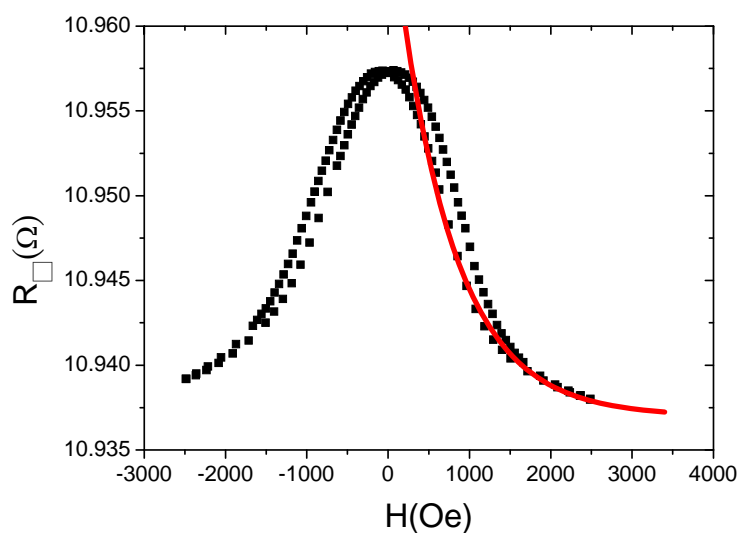


圖 4-9 用指數函數擬合 A2 系列  $w=0.68 \mu\text{m}$  樣品的 TMR 曲線，黑色方框點為量測到的數據，實線為擬合的曲線。

當我們找出各角度的飽和磁阻時，可藉由式(4-1)知道  $R(H)$  要與  $\cos^2 \theta$  成一線性的直線，圖 4-10 為 A2 系列 4 個不同的線寬飽和磁電阻與  $\cos^2 \theta$  的關係圖，由圖我們可以知道線寬為  $0.31 \mu\text{m}$  及線寬為  $0.38 \mu\text{m}$  擬合出來的值似乎都符合  $\cos^2 \theta$  的趨勢線，而當線寬為  $0.68 \mu\text{m}$  時，擬合的值已經開始偏離  $\cos^2 \theta$  的趨勢線，代表著磁阻曲線不一定全然由 AMR 主導，或擬合的高角度飽和磁阻值需再作修正，當線寬再變到  $0.89 \mu\text{m}$  更寬時，偏離的現象更是越來越明顯，如圖 4-11 所示，曲線在  $2600 \text{ Oe}$  時仍有持續下降的趨勢。在 A1、A2、A3 這 3 個系列的平板線都有相似的變化，線寬越寬樣品的飽和磁場越大，至於 A3 系列由於沒有大於  $0.6 \mu\text{m}$  以上的線寬，但在低線寬時的行為與 A2 系列的相似，所以我們可以預測 A3 系列當線寬變寬應該需要更大的磁場才能完全地磁化樣品內所有磁矩。

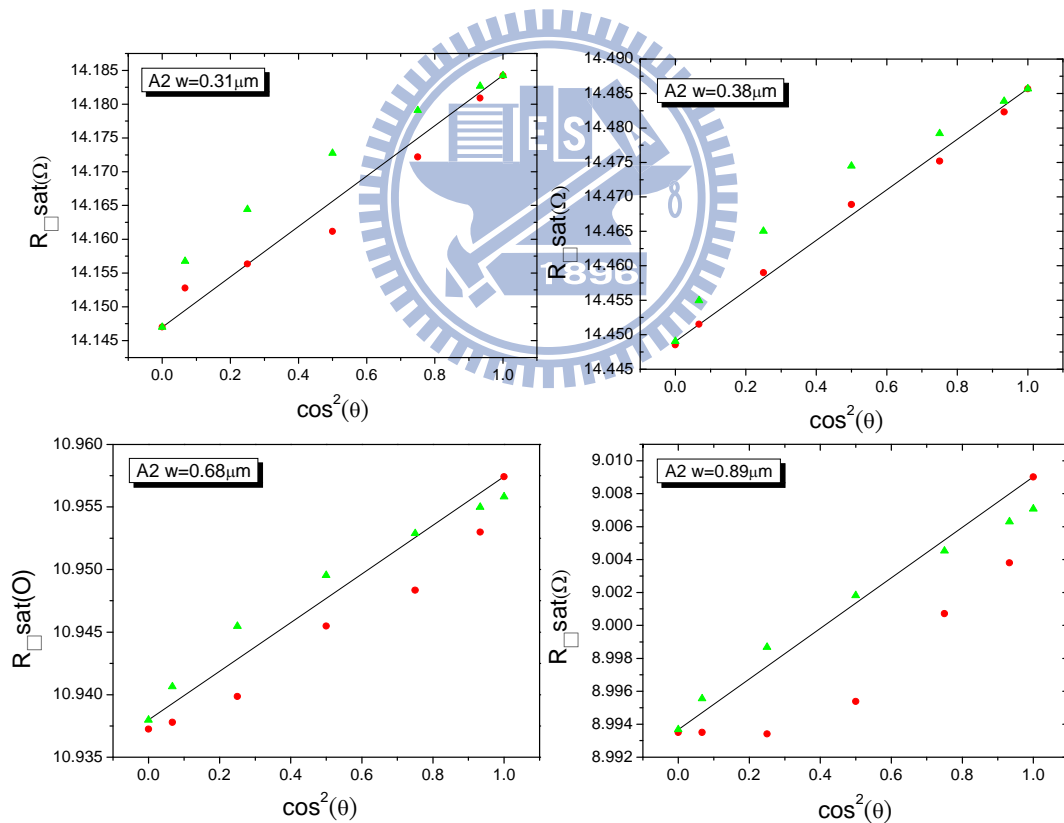


圖 4-10 A2 系列 4 個不同的線寬飽和磁電阻與  $\cos^2 \theta$  的關係圖。由左上到右下線。●：理論擬合得到的飽和磁阻值；▲：實驗量測到最接近飽和的磁電阻值；實線為  $\cos^2(\theta)$  的關係式。

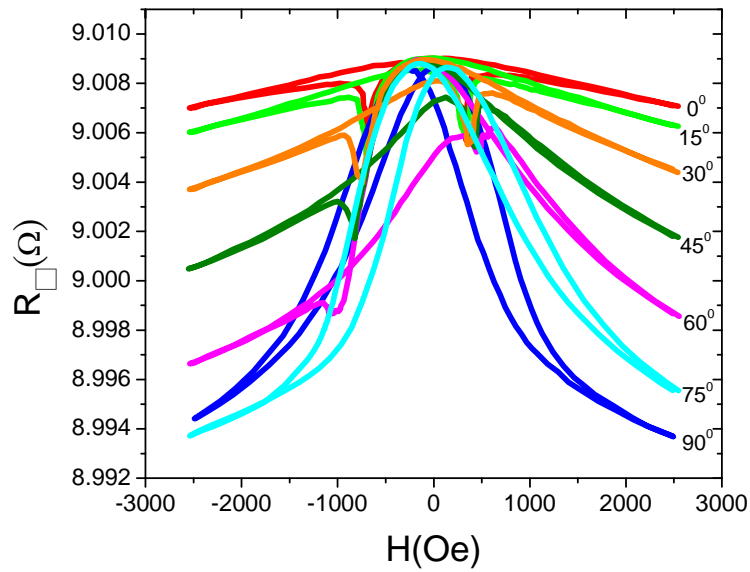


圖 4-11 A2 系列  $w=0.89 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 時的磁阻圖，曲線右邊標示數字為  $\theta$  值。

把飽和磁阻計算出來後，將式(4-1)除上  $R_{//}$ ，得到：

$$\frac{R(H)}{R_{//}} = 1 - \frac{\Delta R}{R_{//}} \cos^2 \phi \quad (4-3)$$

$\Delta R = R_{//} - R_{\perp}$ ， $\Delta R/R_{//}$  為  $\cos^2 \phi$  的係數，即磁阻的最大變化和磁矩平行長軸時磁阻的比值，我們稱之為 AMR ratio， $\Delta R/R_{//}$  的比值越大表示 AMR 現象越大。由 A1、A2、A3 系列的方塊電阻值與  $\Delta R/R_{//}$  的關係圖，我們發現 A1、A2 的 Co 平板線有著隨著方塊電阻值的上升而使  $\Delta R/R_{//}$  的上升的趨勢，如圖 4-12 所示，至於 A3 系列可能在製作過程中因為偏離了靶材的中心點使厚度較我們所預期的薄，A3 系列樣品的方塊電阻值確實比 A2 系列的同線寬大，這可能是 A3 系列沒有跟 A1、A2 系列有著相同趨勢的原因。

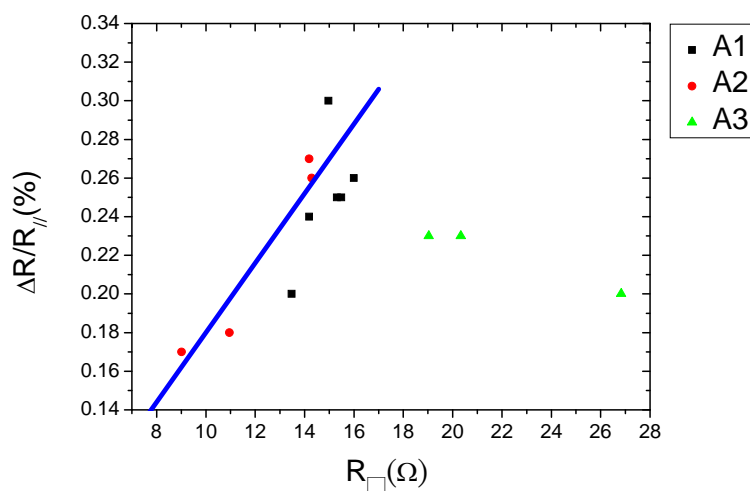


圖 4-12 A1、A2、A3 系列樣品方塊電阻值  $R_{\square}$  與  $\Delta R/R_{\parallel}$  的關係圖，實線表示可能的變化趨勢。

### 4-3.2 磁電阻曲線特性

#### 單磁區(single domain)特性

圖4-13(a)為A2系列 $w=0.38 \mu\text{m}$ 樣品在不同 $\theta$ 下的磁電阻特性曲線。當 $90^{\circ} > \theta > 0^{\circ}$ 時，由於易磁軸在長軸方向，外加磁場由飽和值開始減少時，磁矩會緩慢偏轉至長軸方向，所以磁電阻開始增加；當外加磁場為零(remnant state)時，磁矩會全部在長軸方向，所以磁電阻有最大值，如圖4-13(b)，之後磁場轉變至相反方向後，有一些磁矩會隨磁場強度的增加緩慢偏轉至磁場方向，所以電阻值開始下降，等磁場大於一定值後，磁矩會開始做一個不可逆的瞬間快速翻轉，而使磁電阻發生大變化，之後當磁場繼續增加時磁矩會全部偏向磁場的方向。此為單磁區結構的特性。

在 $\theta=90^{\circ}$ (TMR)時，由於易磁軸在長軸方向，外加磁場由飽和值開始減少時，磁矩會緩慢偏轉至長軸方向，之後磁場轉變至相反方向後，磁矩會隨磁場強度增加緩慢偏轉至短軸方向，並沒有出現不可逆的瞬間快速翻轉。

在 $\theta=0^{\circ}$ (LMR)時，外加磁場從高磁場減少至零時，其內磁矩仍平行於長軸方

向，所以有最高的磁阻值，之後磁場轉變至相反方向後，在小磁場時少部分磁矩會隨磁場強度增加緩慢偏轉至其他方向，逐漸降低磁電阻，但大部分的磁矩還是在長軸上，等到達了一定的磁場後，磁矩會做一個不可逆的瞬間快速翻轉，如圖 4-14 箭號所指地方，我們稱此時的磁場為  $H_{sw}$ ，測量時磁場の間隔只有 2 Oe 左右，因此翻轉瞬間並沒有穩定的磁區或磁壁結構產生，翻轉過後的磁矩方向則會轉成全部偏向負磁場的方向，然後以 coherent rotation 方式漸隨磁場強度增加而達到飽和，此現象為單磁區的主要特性。

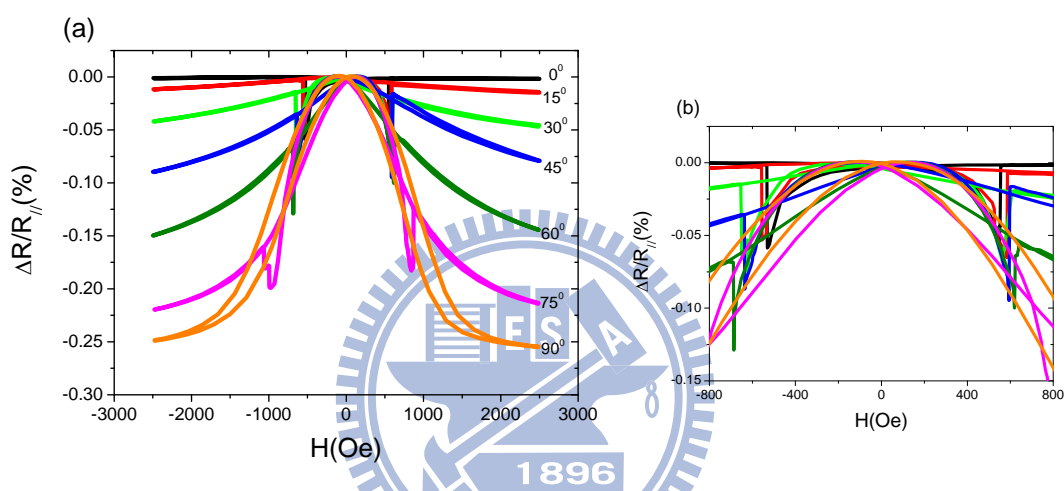


圖 4-13 A2 系列  $w=0.38 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 時不同外加磁場與長軸夾角  $\theta$  的磁電阻曲線，右圖為磁場在 -800~800 Oe 的放大圖。

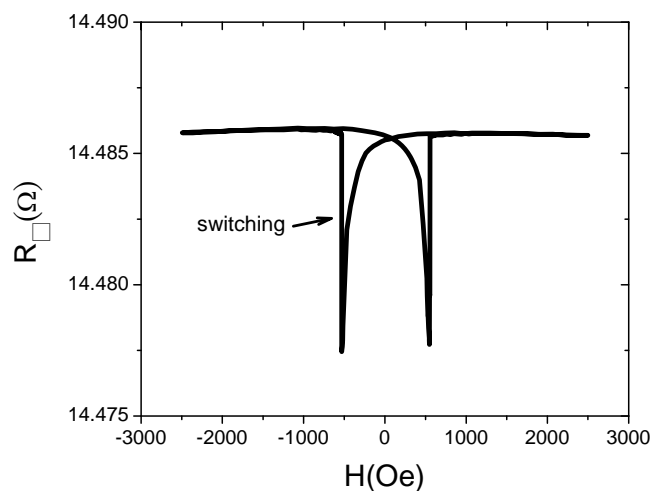


圖 4-14 A2 系列  $w=0.38 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 時的 LMR 磁電阻曲線。



### 多磁區(multidomain)特性

圖 4-15 即為多磁區結構樣品的 LMR，當外加平行電流的磁場達到飽和磁場時，所有的磁矩皆會平行外加磁場方向，這時擁有較高的磁電阻值；當外加磁場開始減少至接近零之前，為了減少靜磁能，磁矩便會開始偏轉，磁區間會有磁壁產生而形成多磁區結構，使磁電阻有慢慢下降的趨勢，當外加磁場為零時(remnant state)，可以很明顯的發現磁電阻比飽和時的磁電阻低很多，當外加磁場變成負方向時，磁電阻會開始快速減少並出現明顯的遲滯現象，當過了轉折點後，磁電阻開始緩慢的增加，這狀況說明內部的磁區正在緩慢改變，我們稱此轉折點時的磁場值為  $H_c$ (遲滯曲線中的矯頑場 coercive field,  $H_c$ )，之後直到外加磁場夠大則所有的磁矩方向都偏向磁場方向，這就是多磁區的特性，不像單磁區磁矩做瞬間快速的翻轉。至於高磁場區不飽和負磁阻背景曲線可能是低溫時電子與電子散射所造成[24]。

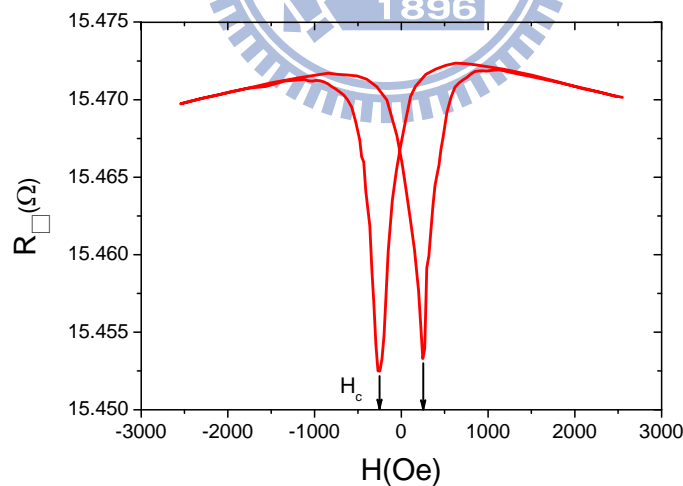


圖 4-15 A1 系列  $w=0.66 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 的 LMR。

### 4-3.3 Co 的磁矩翻轉形式

對於 Co 平板線，其磁阻曲線有各種不同的類型，所以在我們探討磁矩翻轉時，因此先做分類；由 LMR 磁阻圖形的磁矩變化主要可以做如下的分類：

1. LMR 有類似單磁區(single domain)的特性：其磁矩的排列在某一磁場時有發生瞬間的最大變化，造成磁電阻瞬間增加，我們稱該磁場值為  $H_{sw}$ 。如圖 4-1 箭號所指示的地方。
2. LMR 有類似多磁區(multi domain)的特性：磁矩在翻轉過程因為有磁壁的形成所以翻轉較為緩慢，磁電阻圖形上對應的是緩慢的磁阻增加，這時我們取最低磁阻時的磁場值為  $H_c$ 。如圖 4-15 箭號所示。

已經做了明確的上面兩個分類，但是有幾條磁阻曲線有出現上面兩類的特徵，有類似單磁區的 switching 發生，但在 switching 後又有類似多磁區磁阻緩慢上升的特性，我們稱這類樣品介於單磁區及多磁區之間。以下為 A1、A2、A3 樣品的分類表：

類別	線寬 $w(\mu m)$	$H_{sw}$	介於 $H_{sw}$ 與 $H_c$	$H_c$
A1	0.44	X		
	0.47		X	
	0.66			X
	0.71			X
	0.82			X
	1.07			X
A2	0.31	X		
	0.38	X		
	0.68		X	
	0.89			X
A3	0.25	X		
	0.35	X		
	0.41	X		

由上表我們可以知道有著單磁區特性磁矩有瞬間快速變化的樣品為 A1、A2、A3 系列線寬很小的，當這些系列的樣品線寬開始稍微變寬時，它們會開始出現單磁區及多磁區特性均有的現象，如 A1  $w=0.47 \mu m$ 、A2  $w=0.68 \mu m$  二樣品，磁矩在某些磁場會做瞬間變化的翻轉，但其它磁場又會近似慢慢變化，當線寬在

變粗時，則就一致性的出現多磁區特性翻轉。

LMR 磁阻曲線並不是完全對稱於零磁場，且刻意氧化的 Co 平板線更加明顯，如圖 4-16 所示；所以  $H_{sw}$  與  $H_c$  決定於正負磁場區兩邊最低點對應的磁場  $H_1$  和  $H_2$ ，以下列公式表示[25]；

$$H_{sw} = \frac{|H_1 - H_2|}{2} \quad \text{or} \quad H_c = \frac{|H_1 - H_2|}{2}$$

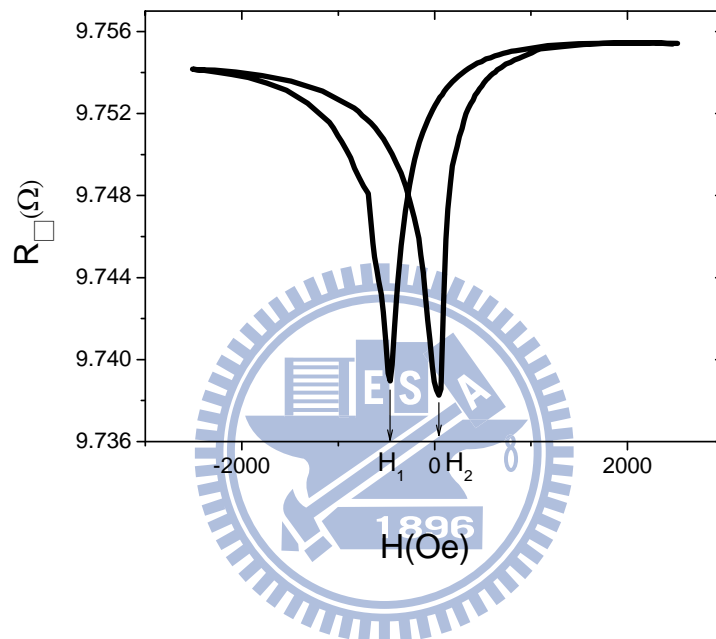


圖 4-16 C2 系列  $w=0.55 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 的 LMR， $H_{c1}$  與  $H_{c2}$  為最低值時的磁場。

對於一個單磁區特性的材料而言，最常見的兩種翻轉形式是coherent與curling rotation，如圖4-17所顯示Co樣品的 $H_{sw}$ 與 $\theta$ 關係圖，有著單磁區特性的樣品其 $H_{sw}$ 皆隨角度增加而增加，在 $\theta = 0^\circ$ 時有最小值，因此可以推論各樣品內的磁矩翻轉形式並不是coherent rotation。由此，我們可以利用curling的翻轉形式擬合所量測到的 $H_{sw}$ 。對一扁長型橢球而言，其 $H_{sw}$ 可藉由式(2-17)及 $H_{sw}=2 \pi M_s h_{sw}$  表示成：

$$H_{sw} = 2\pi M_s \frac{(2\frac{N_a}{4\pi} - \frac{k}{s^2})(2\frac{N_c}{4\pi} - \frac{k}{s^2})}{\sqrt{(2\frac{N_a}{4\pi} - \frac{k}{s^2})^2 \sin^2 \theta + (2D\frac{N_c}{4\pi} - \frac{k}{s^2})^2 \cos^2 \theta}} \quad (4-4)$$

$N_c$  與  $N_a$  分別是扁長型橢球長軸與短軸方向的去磁能係數， $S$  為 reduced radius：  
 $S=R/R_0$ ， $R$  為橢球半短軸， $R_0=(C/2M_s^3)^{1/2}$ ， $C$  為 exchange constant， $k=q^2/\pi$ ， $q$  為 Bessel function's solution。

我們主要是改變橢球半徑帶入上式來進行擬合。圖 4-17 的實線為擬合的結果，由圖可以知道有著單磁區特性系列的線，在角度  $\theta$  為  $15^\circ$ 、 $30^\circ$  時其翻轉的形式與 curling 的趨勢吻合，當  $\theta$  開始變大時，實驗量到的數據  $H_{sw}$  隨角度增加的速度遠不及 curling model 預期的速率，所以當  $\theta$  開始變大時，磁矩翻轉雖有類似 curling 翻轉的趨勢，但可能因為我們的樣品是平板線而非橢球，所以在在大角度下磁矩瞬間翻轉的磁場  $H_{sw}$  與理論預期值有差距。

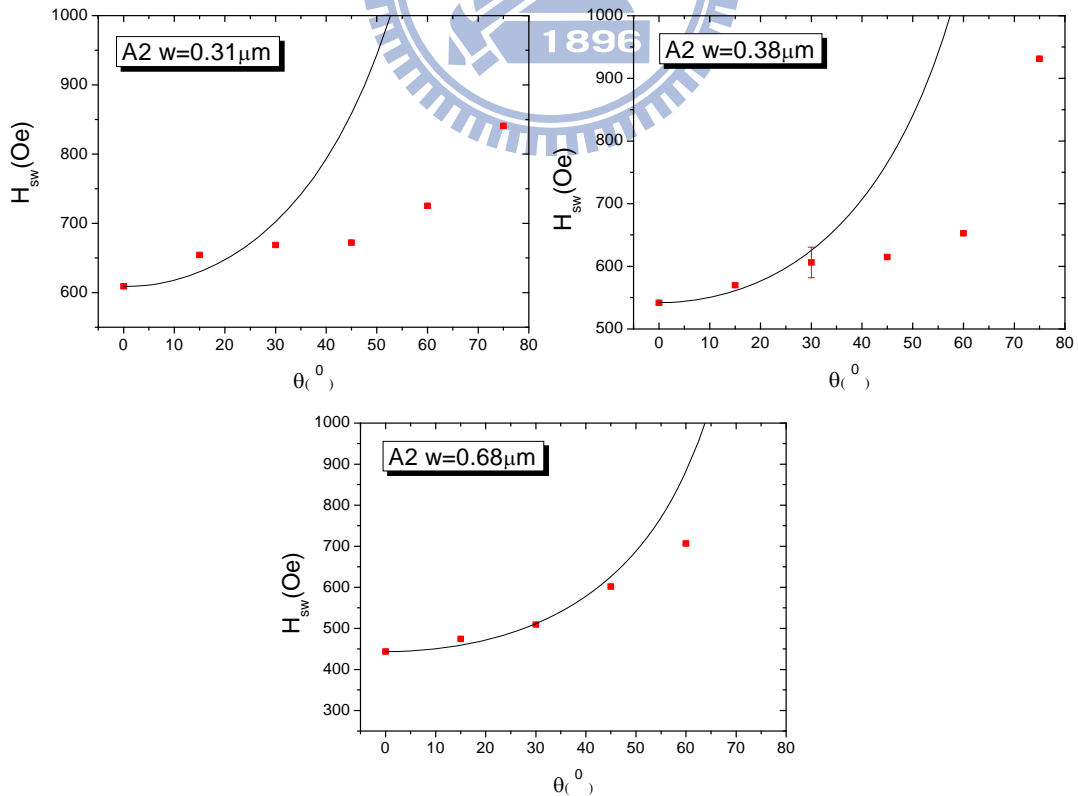


圖 4-17  $H_{sw}$  跟角度  $\theta$  的關係圖，實線為使用 curling 翻轉形式擬合數據所得曲線。

下表為擬合A2系列樣品的參數表：

wire width ( $\mu\text{m}$ )	0.31	0.38	0.68
aspect ratio m	96.8	78.9	44.1
$R_{\text{eff}}$ (nm)	48.2	53.4	71.4
$R_{\text{fit}}$ (nm)	89.1	94.1	101.8

$R_{\text{eff}}$  為平板線在橢球模型上的有效半徑： $R_{\text{eff}} = \frac{\sqrt{wt}}{2}$ , w 為線寬, t 為厚度； $R_{\text{fit}}$  為我們擬合  $H_{\text{sw}}$  的大小所用的橢球半徑。

#### 4-4 CoO 磁電阻曲線與 Co 的不同

由理論 Aharoni model 計算  $L=30\ \mu\text{m}$  系列其殘餘磁場下展現單磁區與多磁區轉換的寬度應為  $1.2\ \mu\text{m}$  左右，寬度  $1.2\ \mu\text{m}$  以下的樣品因形狀異向性呈現單磁區的結構，但在我們的樣品中，寬度在  $0.5\ \mu\text{m}$  以下才展現出單磁區的行為，除此之外，如圖 4-15 之樣品磁電阻展現在相反磁場方向的不對稱性以及相反磁場方向下  $H_{\text{sw}}$  或  $H_c$  也不盡相同，似乎存在同反鐵磁般的交換場，因此後續刻意加進 CoO 氧化層來做進一步了解反鐵磁層 CoO 的存在對 Co 磁區的影響。

##### 4-4.1 磁阻曲線型式

圖 4-18 為線寬相近但氧化程度不同的三類樣品的磁阻曲線，A2 為 Co 線未氧化、B 為氧化 5 分鐘、C2 為氧化 30 分鐘；如前言所說，A2 應該要在寬度  $1.2\ \mu\text{m}$  以下的樣品展現單磁區的殘餘磁區分布，但因可能有 CoO 反鐵磁層的存在，雖然  $H_{\text{sw}}$  有瞬間翻轉的現象，但磁矩並非完全回到平行易磁軸的方向，在翻轉過後改以平緩的變化回到易磁軸的方向，圖 4-18(b)可明顯的看到  $H_{\text{sw}}$  偏負磁場方向，由此可見確實有反鐵磁層 CoO 對 Co 的磁區產生影響。

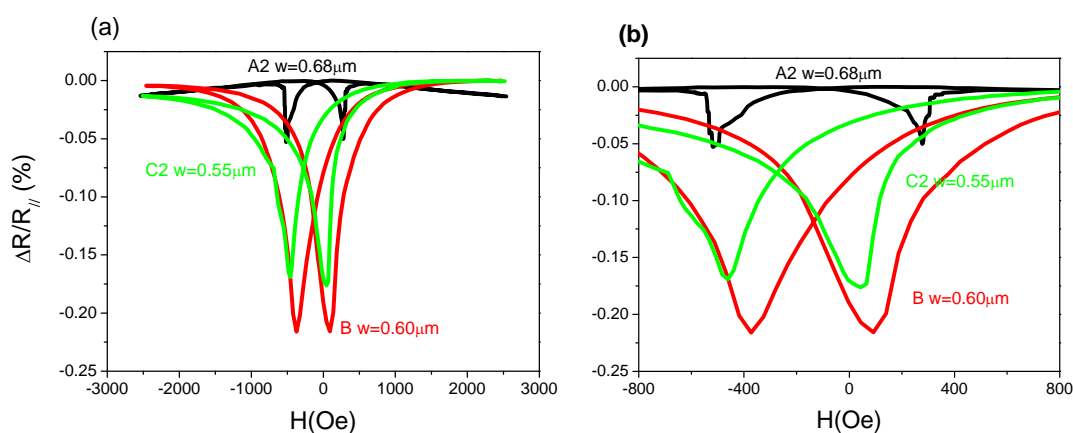


圖 4-18 圖(a)為三個樣品 A2  $w=0.68 \mu\text{m}$ (未氧化)、B  $w=0.60 \mu\text{m}$ (氧化 5 min)、C2  $w=0.55 \mu\text{m}$ (氧化 10 min)在 10 K 的 LMR 磁阻曲線圖。圖(b)為圖(a)在小磁場區的放大圖。

至於氧化過的 Co 平板線，我們可以看到與 Co 平板線的磁阻曲線明顯的差異，氧化過的磁阻曲線明顯的有左低右高的情況且往負磁場區偏移的更多，看不到單磁區的瞬間翻轉現象，而 C2 系列的此現象又比 B 系列來的更明顯，所以 CoO 反鐵磁層會明顯的影響鐵磁層的磁區分佈及磁矩翻轉，且厚度越厚影響越大。

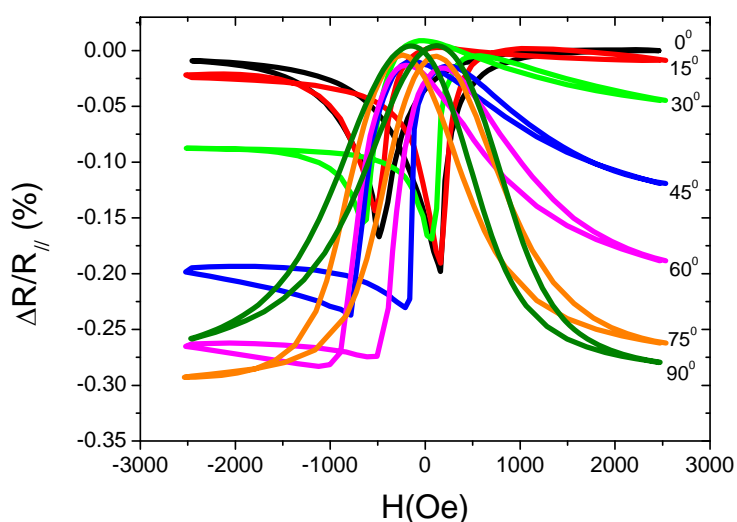


圖 4-19 C2(刻意氧化 30 min)系列  $w=0.45 \mu\text{m}$  樣品在 10 K 時的磁阻圖。

接下來我們討論刻意氧化過的平板線的外加磁場與角度  $\theta$  的磁阻圖，如圖 4-19，量測時，是由正磁場區掃到負磁場區，再由負磁場區掃回正磁場區。CoO 反鐵磁層與 Co 鐵磁層會存在著很強的交換耦合，所以 LMR 在正磁場區時鐵磁層的磁矩都跟磁場同方向，反鐵磁層磁矩的方向則會跟鐵磁層的磁矩反向，而在磁場開始降低時，反鐵磁層因有很大的晶格異向性所以並不會改變其磁矩的排列 [21]，而鐵磁層因為受反鐵磁層磁矩交換耦合的影響，所以在零磁場時電阻值跟正磁場時一樣趨近飽和磁阻，磁場開始往負方向增加時，磁矩開始下降到最低的轉折點並且慢慢的上升並趨近飽和，因受反鐵磁層的影響，在鐵磁介面處的磁矩並不會完全的排列在負磁場的方向上，所以在負磁場的飽和磁阻會較低。當  $\theta > 0^\circ$  時，反鐵磁層的影響會更加的明顯，隨著  $\theta$  越大則負磁場區的飽和磁阻下降的越快 [26]，所以在負磁場區並不符合式(4-1)的關係。之後由負磁場區掃到正磁場區時，鐵磁層磁矩則會趨向與反鐵磁層磁矩成反平行排列，因此會在接近零磁場區時就開始有磁矩受到影響而使磁阻上升的值較正磁場掃到負磁場時高，之後正方向磁場逐漸加大，磁矩開始往磁場的方向偏移而逐漸符合式(4-1)的關係。

#### 4-4.2 交換偏壓(exchange bias)

由圖 4-18 我們可以很清楚的發現氧化過 Co 平板線的磁阻曲線明顯的往負磁場方向偏移，此偏移的效應主要起因於鐵磁與反鐵磁介面的交換耦合(exchange coupling)作用。磁阻曲線的偏移量可用交換偏壓(exchange bias,  $H_{ex}$ )來描述，決定於 LMR 兩邊的最低磁阻對應的磁場值  $H_1$  和  $H_2$ ，如圖 4-16 箭頭所指示，並列此式來計算交換偏壓的大小 [25]：

$$H_{ex} = \frac{|H_1 + H_2|}{2} \quad (4-3)$$

圖 4-20 為所有系列的樣品根據式(4-3)所計算出來的交換偏壓，由此圖我們可以明確的知道 B、C1、C2 三系列的  $H_{ex}$  在線寬為  $0.4 \mu\text{m}$  以上均有很大的值，而在 A1、A2、A3 三系列的  $H_{ex}$  會隨著線寬變寬而變大，這表示說，刻意氧化過的 Co

平板線它們的交換偏壓確實會比沒有特意氧化過的 Co 平板線要來的大，但是當 Co 平板線寬開始變粗時，交換偏壓也會開始慢慢的增大。

Co 平板鍍金似乎仍無法完全防止氧化，在俯視的 SEM 影像也呈現 Co 平板線有不同面貌，可能氧從線的側邊滲進去或濺鍍時腔體仍有微量的氧，所以線寬越寬，反鐵磁層也越多，進而導致了 Co 平板線在線寬變寬時，交換偏壓也變大。

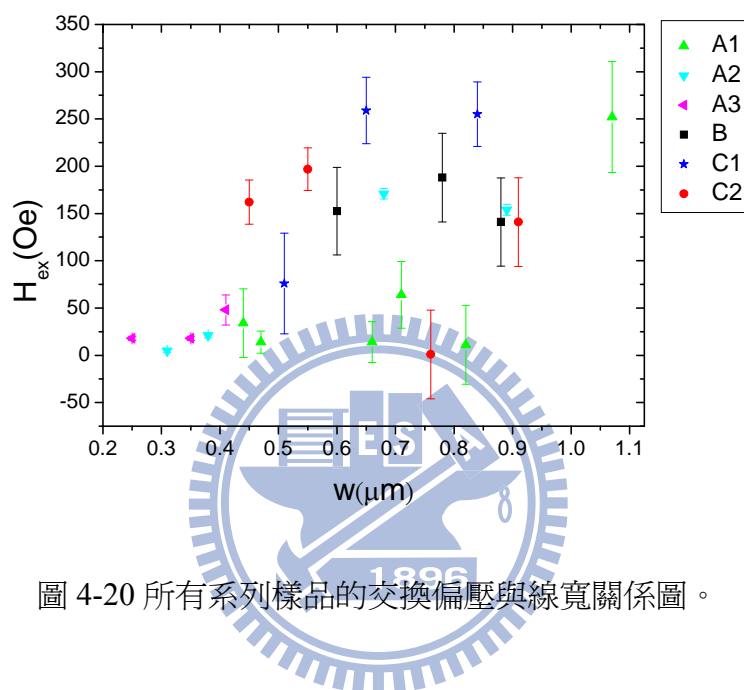


圖 4-20 所有系列樣品的交換偏壓與線寬關係圖。

#### 4-4.3 矯頑場 $H_c$

刻意氧化的樣品 B、C1、C2 類，不管線寬大小均呈現著磁矩為多磁區的特性，並不像 A1、A2、A3 類在小線寬下還具有單磁區的特性，由此可知，CoO 反鐵磁層確實的會影響鐵磁層 Co 的磁矩翻轉，會助長磁壁的形成，以致不會有單磁區特性的翻轉。

分類在多磁區特型的系列線，我們可以探討它們的  $H_c$  的變化，圖4-21為A1、A2、A3系列線  $H_c$  和線寬的變化關係圖，此圖並沒有展現出各系列樣品  $H_c$  隨著線寬的變化有任何明顯的關係；理論上  $H_c$  應該隨線寬變窄很變大[14]，但反鐵磁層確實會抑制Co線的磁矩做出明顯的switching。



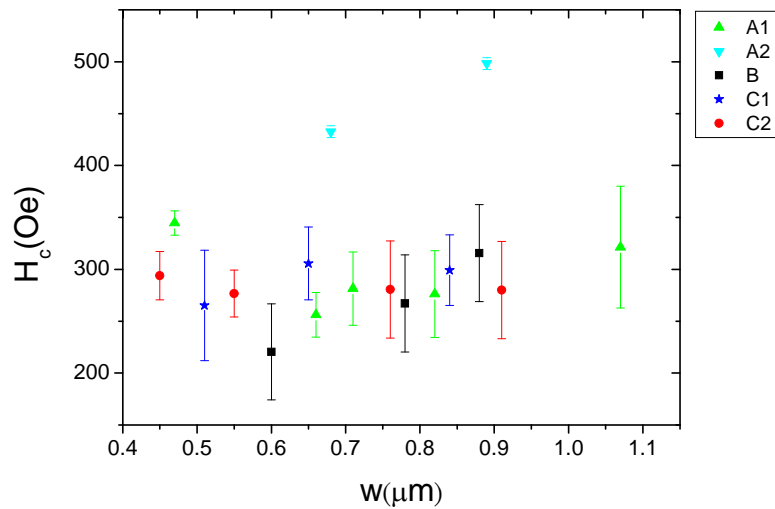


圖 4-21 H<sub>c</sub>和線寬的關係圖。

#### 4-4. 4 Training effect

量測 Co 平板線與氧化過的 Co 平板線磁電阻時，也發現有明顯的 training effect[20]，如圖 4-22。我們在磁電阻量測的時候，均一致性的從正磁場掃到負磁場再掃回去，在前面章節討論各磁電阻的性質時，皆以 training 完後穩定狀態的磁阻曲線來做討論。

至於 training 的現象，B、C1、C2 與 A1 系列的平板線都被觀察到，其中又以 B、C1、C2 等刻意氧化過的 Co 平板線更加的明顯。A2、A3 系列的線則沒有明顯的呈現 training effect。

A1 系列的 Co 平板線展現 training effect，可以推測出 A1 系列的樣品可能也有些微的氧化，但跟刻意氧化的 B、C1、C2 系列做比較，此現象又不是那麼的大，如圖 4-23。我們也發現 C1、C2 氧化 30 分鐘系列的線呈現 training effect 比 B 系列氧化 5 分鐘的明顯，即第一次的磁阻曲線(由正磁場掃到負磁場)與第二三次有較大的差異性，由此可見，training effect 與 CoO 反鐵磁層的厚度有著密切的關係，反鐵磁層越厚則 training effect 越明顯[21]。

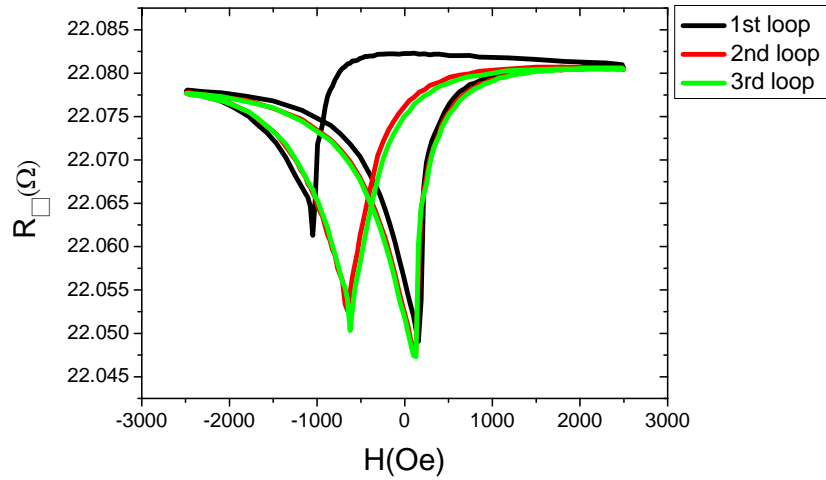


圖 4-22 C1 系列  $w=0.65 \mu\text{m}$  樣品在  $\theta=0^\circ$  時、 $T=10 \text{ K}$  時，連續 3 次掃描的磁電阻曲線，黑色線為第一次測量出的磁阻，紅色線為第二次測量，綠色線為第三次測量。

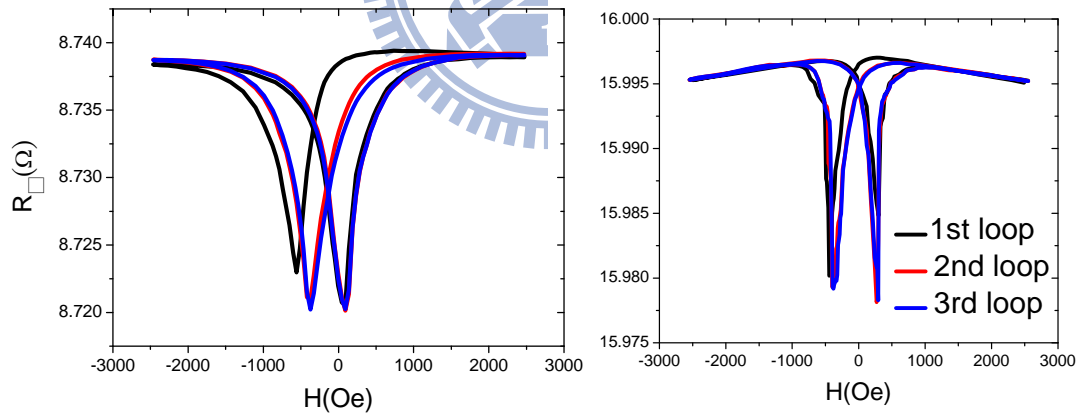


圖 4-23 在  $\theta=0^\circ$  時、 $T=10 \text{ K}$  時，兩樣品連續 3 次掃描的磁電阻曲線，左圖 B 系列  $w=0.60 \mu\text{m}$ ，右圖為 A1 系列  $w=0.47 \mu\text{m}$ 。

#### 4-5 Co 的異向性常數 $K_u$ 與 CoO 的影響

形狀異向性能與樣品的形狀及大小有關，樣品越小，形狀異向性應越明顯，而在完全由spin-orbit作用主導的異相磁阻(AMR)下，當  $\theta = 90^\circ$  時，其磁阻曲線可推算異向性常數  $K_u$ 。

我們考慮TMR( $\theta=90^\circ$ )及coherent rotation的情況，則式(4-1)可以改為：

$$R(H) = R_{//} - \Delta R \left( \frac{M_s H}{2K_u} \right)^2 \quad (4-4)$$

由上式可以知道R(H)是一拋物線函數，所以我們以  $y=ax^2+b$  擬合小磁場區域磁阻，如圖4-24，而擬合的前置係數a搭配Co的  $M_s$  值即可得到  $K_u$ 。

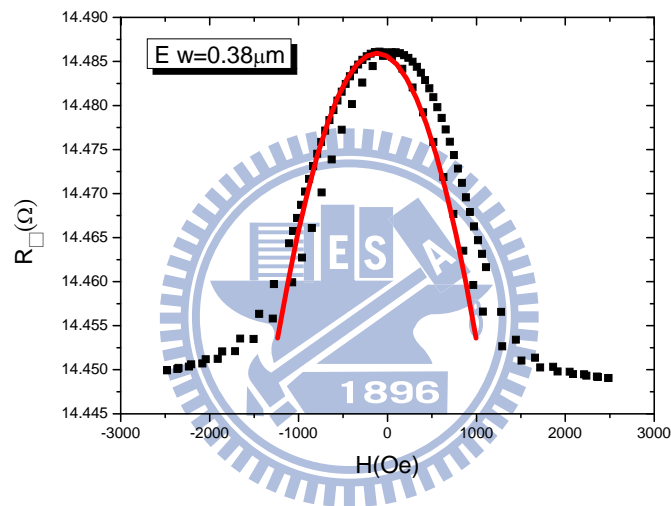


圖 4-24 擬合 A2 系列  $w=0.38 \mu\text{m}$  樣品磁電阻( $\theta = 90^\circ$ )示意圖，黑色方塊為數據，紅色實線為擬合的拋物線。

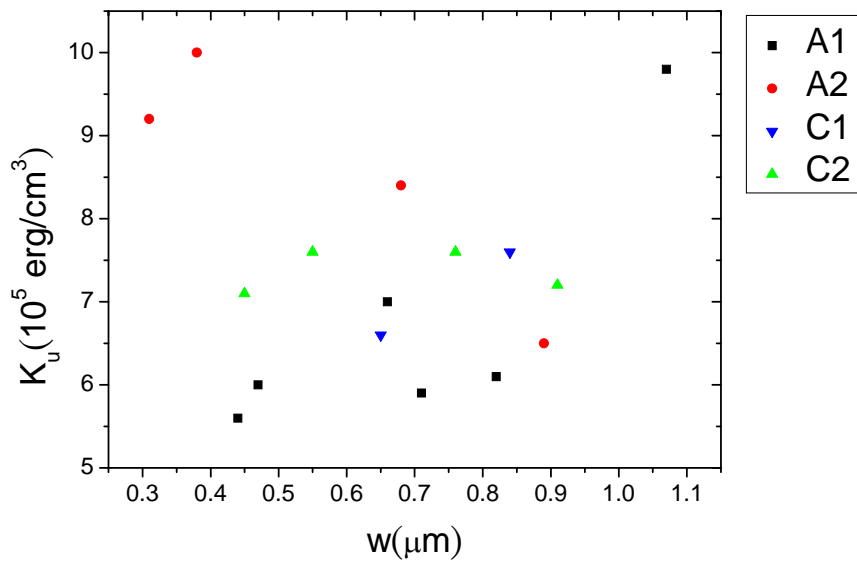


圖 4-25 擬合 A1、A2、C1、C2 系列樣品的 TMR 而算出的  $K_u$  值。

如圖 4-25， $K_u$  值約為  $5 \sim 10 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ ，較一般塊材的  $2.2 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$  大，符合一般預期的形狀異向性增益[27]，整體看來  $K_u$  與  $w$  並沒有特別的關係，原本預期  $K_u$  應隨著線寬變細而有明顯的增加且線寬越細增加的越快，展現與  $1/w$  成正比的關係，但在此不管是刻意氧化過的 Co 平板線還是 Co 平板線都看不出來有此變化趨勢。

## 第五章 總結與未來探討

本章我們將做一個總結並做未來的探討。

### 5-1 總結

我們做了多個系列的 Co 平板線及刻意氧化過的 Co 平板線，藉由磁電阻的量測，探討形狀異向性對 Co 的磁區翻轉機制的影響，另外也深入討論表面氧化對其造成的其它影響。

首先我們先討論電阻溫度變化的關係，雖然在 15 K 以上展現出一般金屬性的行為，但低溫的方塊電阻值稍大(8~32  $\Omega$ )且展現無序效應所具有的電阻隨溫度下降而上升的趨勢，刻意氧化的線更加劇了此現象，因此本論文的樣品皆有少許氧化導致的無序性。

我們的 Co 平板線在線寬小於 0.5  $\mu\text{m}$  時，有著明顯的單磁區特性，可以利用 curling model 去描述外加磁場角度與  $H_{sw}$  的關係，這些有著單磁區特性的平板線符合 curling 的翻轉形式；由理論預估多磁區發生在寬度 1.2  $\mu\text{m}$  附近，但線寬大於 0.5  $\mu\text{m}$  即展現異於單磁區的現象，我們認為可能是因為不可避免的表面氧化導致翻轉機制與磁區分佈的改變，因此我們製作與量測刻意氧化的 Co 平板線發現它們確實有類似的行為。刻意氧化的 Co 平板線在線寬很窄下，也未因形狀異向性而展現單磁區的結構，其零磁場下有部份區域已開始偏離長軸方向，因此電阻值低於飽和 LMR，且磁矩在其快速翻轉場或矯頑場時，並未呈現瞬間翻轉，因此可以推論反鐵磁層會抑制形狀異向性導致單磁區分佈的 curling 翻轉機制無法形成。

氧化過的線在磁阻曲線方面，有著比 Co 線明顯的 training effect、較大的交換偏壓，且在外加磁場角度較大時也展現不同的磁阻曲線，由此可知反鐵磁層的影響在大角度時會更加的明顯。

當然反鐵磁層必會因介面鐵磁-反鐵磁耦合造成遲滯曲線的偏移，我們在刻意氧化的平板線與線寬較大的 Co 平板線都觀察到有交換偏壓，且隨著線寬越

粗，交換偏壓變的越大，也許在我們製程的方法上無法防止側邊的氧化，在線寬越寬時氧化會越多，可能是導致線寬變寬交換偏壓變大的主因。

最後我們做了 TMR 曲線的擬合去算  $K_0$  值，發現不管是刻意氧化的 Co 平板線或是 Co 平板線並沒有看出來有任何的趨勢關係，這與理論上預測有很大的差別，推論也許一點點的氧化也可能影響著 Co 平板線。

## 5-2 未來探討

我們已做了不同系列的 Co 平板線與氧化過的 Co 平板線做比較，由實驗結果，我們僅能知道 CoO 反鐵磁層確實的會影響鐵磁層 Co 的磁性行為，且製程方面 Co 平板線並沒有辦法完全阻止其氧化發生，也許我們可以試試一些其他的方法來改善這一點。如果我們能試著控制反鐵磁層，改變反鐵磁層的厚度或反鐵磁層的材料來探討對鐵磁層的磁阻曲線、遲滯曲線有何影響，將更有助於定量地釐清反鐵磁與鐵磁的作用對磁矩分佈與翻轉機制的影響。



## 參考文獻

- [1] R. L. Comstock, Introduction to magnetism and magnetic recording, John Wiley & Sons, 1999.
- [2] R. C. O' Handley, Modern Magnetic Materials: Principles and Applications, Wiley, New York, 2000.
- [3] C. Kittel, Introduction to solid state physics, John Wiley & Sons, New Jersey, 2005.
- [4] J. K. Ha, R. Hertel, and J. Kirschner, Micromagnetic study of magnetic configurations in submicron permalloy disks, Phys. Rev. B 67, 224432 (2003).
- [5] M. Heumann, T. Uhlig, and J. Zweck, True Single Domain and Configuration-Assisted Switching of Submicron Permalloy Dots Observed by Electron Holography, Phys. Rev. Lett. 94, 077202 (2005).
- [6] C. Kittel, Physical Theory of Ferromagnetic Domains, Rev. Mod. Phys. 21, 541 (1949).
- [7] A. M. Nguyen, S. Cercelaru, G. Tremblay, J. -C. Perron, and P. Hesto, Magnetic and electrical characterizations of thin Ni---Fe and Ni---Fe---Mo films, Thin Solid Films 275, 231 (1996).
- [8] L. Sun, Y. Hao, C. L. Chien, and P. C. Searson, Tuning the properties of magnetic Nanowires, IBM J. Res. Dev. 49, 79 (2005).
- [9] D. Navas, C. Nam, D. Velazquez, and C. A. Ross<sup>1</sup>, Shape and strain-induced magnetization reorientation and magnetic anisotropy in thin film Ti/CoCrPt/Ti lines and rings, Phys. Rev. B 81, 224439 (2010).
- [10] B. D. Cullity, Introduction to magnetic materials, Addison-Wesley publishing company, 1972.
- [11] M. Kläui and C. A. F. Vaz, Magnetization Configurations and Reversal in Small Magnetic Element, Universität Konstanz, Germany, 2007.

- [12] E. Seynaeve, G. Rens, A. V. Volodin, K. Temst, C. V. Haesendonck, and Y. Bruynseraede, Transition from a single-domain to a multidomain state in mesoscopic ferromagnetic Co structures, *J. Appl. Phys.* 89, 531 (2001).
- [13] A. Aharoni, Elongated single-domain ferromagnetic particles, *J. Appl. Phys.* 63, 5879 (1988).
- [14] E. H. Frei, S. Shtrikman, and D. Treves, Critical Size and Nucleation Field of Ideal Ferromagnetic Particles, *Phys. Rev.* 106, 446 (1957).
- [15] A. Aharoni, *Introduction to the Theory of Ferromagnetism*, Oxford University Press, New York, (1996).
- [16] A. B. Oliveira, S. M. Rezende, and A. Azevedo, Magnetization reversal in permalloy ferromagnetic nanowires investigated with magnetoresistance measurements, *Phys. Rev. B* 78, 024423 (2008).
- [17] R. A. Silva, T. S. Machado, G. Cernicchiaro, A. P. Guimarães, and L. C. Sampaio, Magnetoresistance and magnetization reversal of single Co nanowires, *Phys. Rev. B* 79, 134434 (2009).
- [18] A. Aharoni, Angular dependence of nucleation by curling in a prolate spheroid, *J. Appl. Phys.* 82, 1281 (1997).
- [19] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean, New Magnetic Anisotropy, *Phys. Rev.* 102, 1413 (1956).
- [20] S. Brems, D. Buntinx, K. Temst, and C. V. Haesendonck, Reversing the Training Effect in Exchange Biased CoO/Co Bilayers, *Phys. Rev. Lett.* 95, 157202 (2005).
- [21] T. Gredig, I. N. Krivorotov, and E. D. Dahlberg, Magnetization reversal in exchange biased Co/CoO probed with anisotropic Magnetoresistance, *J. Appl. Phys.* 91, 7760 (2002).
- [22] Th. G. S. M. Rijks, R. Coehoorn, M. J. M. de Jong, and W.J.M. de Fonge, Semiclassical calculations of the anisotropic magnetoresistance of NiFe-based thin



- films, wires, and multilayers, Phys. Rev. B 51, 283 (1995).
- [23] J-E. Wegrowe, D. Kelly, A. Franck, S. E. Gilbert, and J.-Ph. Ansermet,  
Magnetoresistance of Ferromagnetic Nanowires, Phys. Rev. Lett. 82, 3681 (1999).
- [24] G. Dumpich, B. Leven, and M. Brands, Electron transport in magnetic nanostructures,  
phys. stat. sol. (a) 201, 3237 (2004).
- [25] X. P. Huang, Magnetoresistance and exchange bias effect of the periodically  
nanostructured cobalt filament arrays, J. Phys. D: Appl. Phys. 42, 185004 (2009).
- [26] T. Gredig, I. N. Krivorotov, and E. D. Dahlberg, Temperature dependence of  
magnetization reversal and angular torque in Co/CoO, Phys. Rev. B 74, 094431  
(2006).
- [27] M. Brands and G. Dumpich, Experimental determination of anisotropy and  
demagnetizing factors of single Co nanowires by magnetoresistance measurements,  
J. Appl. Phys. 98, 014309 (2005).

