

國立交通大學

電子物理系

碩士論文

微結構鈷/氧化鈷雙層平板線交換偏耦合的
幾何尺度效應



**Size Effects on Exchange Bias Coupling
in Patterned Co/CoO Bilayers**

研究生：黃鈺凱

指導教授：許世英 教授

中華民國一百零三年八月

微結構鈷/氧化鈷雙層平板線交換偏耦合的 幾何尺度效應

學生：黃鈺凱

指導教授：許世英 教授

國立交通大學電子物理學系

中文摘要

本研究針對一系列不同長寬比的微米尺度鈷/氧化鈷兩層結構平板線樣品，利用磁電阻量測來研究幾何尺度對此兩層結構中的交換偏耦合效應的影響。

在高長寬比的單層的鈷平板線中，由於形狀異向性能，內部呈現單磁區結構，且磁電阻曲線對稱於零磁場；但當有一層氧化鈷層緊鄰鈷層之後，磁電阻曲線並未展現單磁區的特性，且造成磁電阻曲線偏移，產生交換偏耦合(exchange bias coupling)效應。因此我們利用微影技術配合直流濺鍍，製作長度 $30\mu\text{m}$ ，線寬從 $0.2\mu\text{m}$ 到 $1\mu\text{m}$ 的平板線，厚度為鈷(28nm)/氧化鈷(2nm)，及單一鈷(30nm)平板線作對照，來探討幾何尺度對交換偏耦合效應的影響。

在單層的鈷平板線中，在 $1\mu\text{m}$ 以下的線寬都有單磁區的特性，並符合我們所預期的異向性磁阻效應，及交換場隨著線寬變大有單一雙曲線下降的趨勢；在縱向磁阻曲線的部份，僅有大約 10 Oe 的偏移量，表示側邊氧化對樣品的影響並不大。

兩層結構的樣品在 100K 的溫度下，皆展現出明顯的鐵磁/反鐵磁交換偏耦合效應，並有隨著線寬越小，交換偏耦合場(exchange bias field, H_{eb})越小的趨勢。而磁電阻曲線除了往負磁場方向偏移，也發現到正磁場偏移的情況，表示鐵磁/反鐵磁介面在同一批鍍膜中可能出現不一樣的磁矩排列方式。除此之外，相較於單一的鈷平板線，有顯著的矯頑場增益，以及 training effect，但兩者與長寬比之間沒有明顯相關性。

Size Effects on Exchange Bias Coupling in Patterned Co/CoO Bilayers

Student : Cheng-Kai Huang

Adviser : Prof. Shih-Ying Hsu

Department of Electrophysics

Nation Chiao Tung University

Abstract

The main purpose of this work is to investigate the size dependence of exchange bias coupling in patterned Co/CoO bilayers by using magneto-transport measurement. For patterned Co planar wires of high aspect ratio, because of shape induced anisotropy, these wires should tend towards a single domain states and its magnetoresistance curve might be symmetrical to the magnetic field axis. Meanwhile, for which there is a CoO layer beneath it, these wires seems to be multi-domain state, and exhibited magnetoresistance curve displaced along the magnetic field axis, which is called exchange bias coupling effect. Samples were fabricated by lithography technique and DC Sputtering with sample length being kept at 30 μm and its width varying from 0.2 μm to 1 μm . The sample thickness is Co(28nm)/CoO(2nm), and single Co layer(30nm) also be fabricated to be contrast.

For single Co layer, wires narrower than 1 μm tend towards a single domain states, and in line with anisotropy magnetoresistance as we expected. The switching field of wires can be fitted with a single hyperbolic function, and it decrease as width rise. In LMR(Longitudinal magnetoresistance) curve, only 10 Oe shift along the magnetic field axis, so there is only little contribution to exchange bias coupling of edge oxidation.

At 100K, we find that Co/CoO bilayer wires have much more significant exchange bias coupling effect than single Co layer, and we also find the reduction of exchange bias coupling field as widths decrease. Except for magnetoresistance curve shift to negative field, a few samples exhibited magnetoresistance curve displaced positively along the magnetic field axis, which means that Co/CoO interface might have different magnetic moment arrangement in the same procedure. Besides, we also observed coercivity enhancement and training effect, but they are insensitive with the aspect ratio.



誌謝

能夠順利完成這篇論文，首先我要感謝許世英老師，我自認不是一個聰明的學生，但在研究所這兩年的時間裡老師不只要求我們精進實驗技術，並且要求我們獨立思考以及解決問題的能力，就算真的遇到自己解不出來的難題，老師也很樂意用討論的方式幫助我們找到答案。在搬實驗室時，老師跟我們一起在三米高的梯子上架設鋼架，以及設計循環水系統，讓我驚嘆老師不僅是個物理強人，更是個生活智慧王。

從碩一剛進實驗室開始，多虧有柯昇學長的引導，讓我從磁電傳輸組的菜鳥，到現在能夠獨當一面；接著要感謝王漢賢學長指導我 SEM 的技巧，以及實驗衝刺時每個周末的時候一起來實驗室奮鬥；廖婉婷學姐也教導我許多製程技術上的秘訣，讓我在實驗中很快的進入軌道；以及同屆的好夥伴逸杰，一路相輔相成，一起成長；還有學弟翼竹跟宗翰，在論文打的很累時有人可以聊天的感覺很好。

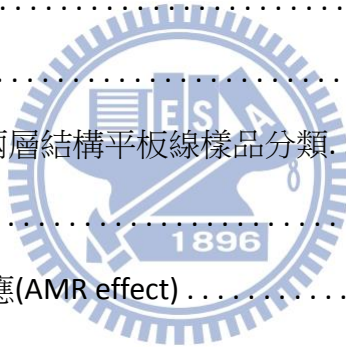
接著要感謝我的父母及家人，讓我能夠毫無後顧之憂的活到 24 歲並且完成碩士學位，沒有你們不會有今天的我。謝謝我的女朋友，常常因為在忙實驗而接不到電話，但謝謝妳一直在我身邊，讓我在心情不好時可以有個避風港。

最後謝謝在學習路上遇到的所有人、事、物，無論好的壞的，少了任何一塊這一生就不算完整，謝謝這世界，在交大這兩年真的是人生中寶貴且難忘的經驗。

目錄

| | |
|--|----|
| 中文摘要..... | i |
| Abstract..... | ii |
| 誌謝..... | iv |
| 目錄..... | v |
| 圖目錄..... | vi |
| 表目錄..... | xi |
| 第一章 緒論..... | 1 |
| 第二章 理論背景..... | 3 |
| 2-1 磁區結構..... | 3 |
| 2-2 磁性相關能量..... | 4 |
| 2-2.1 基曼能量(Zeeman energy, E_Z)..... | 4 |
| 2-2.2 靜磁能(magnetostatic energy, E_{ms})..... | 5 |
| 2-2.3 交換能(exchange energy, E_{ex})..... | 7 |
| 2-2.4 磁彈性能(magnetoelastic energy, E_{me})..... | 8 |
| 2-2.5 晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy, E_{mc})..... | 8 |
| 2-2.6 能量影響磁區變化及磁矩翻轉..... | 9 |
| 2-3 異向性磁阻(anisotropic magnetoresistance ,AMR)..... | 12 |
| 2-4 鐵磁與反鐵磁層結構..... | 13 |
| 2-4.1 反鐵磁性(Antiferromagnetism)..... | 13 |
| 2-4.2 鐵磁/反鐵磁兩層結構之特性..... | 13 |
| 2-4.3 交換偏耦合(Exchange bias coupling)..... | 14 |
| 2-4.4 溫度與交換偏耦合的關係..... | 17 |
| 2-4.5 Training effect..... | 18 |
| 2-5 尺寸效應與交換偏耦合的相關研究背景..... | 19 |

| | |
|---|----|
| 2.5.1 Size Dependence of Exchange bias in Co/CoO Nanostructures | 19 |
| 2.5.2 Size Dependence of the Exchange bias in NiO/Ni Nanostructures | 20 |
| 第三章 樣品製作與量測方式. | 22 |
| 3-1 光微影製程技術. | 23 |
| 3-2 電子束微影製程. | 26 |
| 3-2.1 電子束微影實驗步驟. | 26 |
| 3-2.2 參數與舉離方法對樣品線製作的影響. | 28 |
| 3-3 濺鍍系統. | 30 |
| 3-4 熱蒸鍍系統. | 32 |
| 3-5 低溫系統. | 34 |
| 3-6 量測系統. | 35 |
| 第四章 實驗結果分析與討論. | 37 |
| 4-1 Co 平板線與 Co/CoO 兩層結構平板線樣品分類. | 37 |
| 4-2 Co 平板線的特性探討. | 39 |
| 4-2.1 異向性磁阻效應(AMR effect) | 39 |
| 4-2.2 磁電阻曲線特性. | 42 |
| 4-3 Co/CoO 兩層結構的特性探討. | 47 |
| 4-3.1 磁電阻曲線. | 47 |
| 4-3.2 交換偏耦合(exchange bias coupling) | 52 |
| 4-3.3 角度對交換偏耦合的影響. | 55 |
| 4-3.4 矯頑場(Coercive field , Hc) | 58 |
| 4-3.5 Training effect. | 60 |
| 第五章 結論與未來研究方向. | 61 |
| 5-1 結論. | 61 |
| 5-2 未來研究方向. | 62 |
| 參考文獻 | 63 |



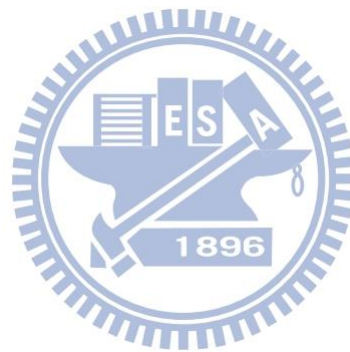
圖目錄

| | |
|---|----|
| 圖 2-1 (a) Bloch wall 示意圖 (B) Néel wall 示意圖 | 3 |
| 圖 2-2 不同磁區結構示意圖，由左而又依序為單磁區(Single domain)、封閉磁區(Closure domain)、封閉漩渦(Vortex)、多磁區(Multi-domain) | 4 |
| 圖 2-3 扁長型橢球結構圖，其中 $c \gg a=b$ | 6 |
| 圖 2-4 扁長形橢球去磁參數與長寬比關係圖..... | 7 |
| 圖 2-5 單晶(Single crystal)的鈷的磁化強度對磁場關係圖..... | 9 |
| 圖 2-6 Co 板線單磁區與多磁區的界定關係..... | 10 |
| 圖 2-7 單磁區結構磁矩翻轉示意圖..... | 11 |
| 圖 2-8 FM/AFM 兩層結構界面示意圖，上面為鐵磁層，呈同方向排列；下方為反鐵磁層，從左邊表示一般的反鐵磁層，而中間部分表示反鐵磁結構中可能會有無序性的產生，右邊表示由於晶格異向性和介面的不平整使得磁矩不與鐵磁層呈反平行排列..... | 12 |
| 圖 2-9 部分氧化的 Co 粒子在 77K 下的遲滯曲線，虛線為無外加磁場下冷卻的量測結果；實線為外加 10k Oe 磁場下冷卻(field cooling)的量測結果..... | 15 |
| 圖 2-10 CoO 25Å /Co(111) 56Å 的兩層薄膜在 175K 下所量測到的遲滯曲線，黑色圓球為第一次量測結果，白色方形為 training 後的曲線， H_{c2} 大致上維持不變， H_{c1} 有稍微變小，表示 H_{eb} 稍微變小，但皆是往正磁場偏移..... | 16 |
| 圖 2-11 三個由鐵磁/反鐵磁層交換耦合所產生的基本效應，(a)遲滯曲線偏移(b)矯頑場增加(c)單軸異向性能改變..... | 16 |
| 圖 2-12 (a) $Ni_{81}Fe_{19}(300\text{Å})/CoO$ 兩層結構的 H_{eb} 與溫度關係圖，圖中四條曲線分別代表 CoO 厚度為 15 Å、25 Å、50 Å 和 100Å [17] (b)CoO 溫度與厚度關係圖，黑色實心表示 blocking temperature 的曲線，白色空心表示 Néel temperature 的曲線..... | 17 |
| 圖 2-13 CoO/Co 兩層結構在 5K 下量測的遲滯曲線圖[21]，可看到第一次遲滯曲線與二、三次有明顯的差別..... | 18 |

| | |
|--|----|
| 圖 2-14 長寬為 $l \times 3l$ 的 Co/CoO 兩層結構的 $\mu_0 H_{eb}$ 與 $A/M_s V$ 的關係圖，其中四條曲線分別代表 S:30nm(橘色)、M:75nm(紫色)、L:120nm(紅色)以及無上方氧化(黑色)的樣品... | 19 |
| 圖 2-15 NiO(40nm)/Ni(10nm)分別在(a)293K 下的線寬與 H_{eb} 關係圖、(b) 293K 下的線寬與 H_c 關係圖、(c)5K 下的線寬與 H_{eb} 關係圖、(d)在 293K 下的線寬與 H_c 關係圖..... | 21 |
| 圖 3-1 實驗流程圖..... | 22 |
| 圖 3-2 左圖是光微影完成品利用 SEM 倍率 45 倍下所拍的照片；右圖是左圖在紅色圈圈部份在倍率 1k 倍下的放大圖..... | 23 |
| 圖 3-3 光微影塗佈示意圖..... | 24 |
| 圖 3-4 光微影曝光示意圖..... | 24 |
| 圖 3-5 光微影顯影示意圖..... | 25 |
| 圖 3-6 光微影蒸鍍示意圖..... | 25 |
| 圖 3-7 光微影舉離示意圖..... | 26 |
| 圖 3-8 右圖為我們電子束微影樣品完成圖，正中心兩條橫線為我們的第一道樣品線，外圍部分是我們第二道跨線；左圖為紅色圈圈部分的放大圖..... | 28 |
| 圖 3-9 兩邊圖形皆是設定 $0.3\mu m$ 的線寬，左圖為有翹邊的情況發生的樣品線；右圖為我們經由改變參數所得到的樣品線..... | 28 |
| 圖 3-10 濺鍍系統示意圖..... | 30 |
| 圖 3-11 低溫系統內部構造示意圖..... | 34 |
| 圖 4-1 (a)A2 系列 $0.46\mu m$ 在 100K 下的磁電阻曲線圖，曲線旁的數字為對應的 θ 值；(b)黑色曲線為左圖之磁電阻曲線圖，紅色曲線為擬合下外插至 12kOe 下的飽和磁場電阻值，角度標示在曲線旁..... | 40 |
| 圖 4-2 A2 系列 Co 平板線飽和磁電阻與 $\cos^2 \theta$ 關係圖，樣品線長度為 $30\mu m$ ，線寬分別為 0.23、0.33、0.46、0.55、0.65、 $1\mu m$ ，綠色實心圓點為外加磁場 2.6kOe 下的電阻值；藍色空心三角形為各角度用數值擬合得到的飽和磁場電阻值；紅色虛線為理論上異向性磁阻所表現的趨勢線..... | 41 |
| 圖 4-3 AMR ratio 與樣品在溫度 100K 實的飽和磁場下方塊電阻值關係圖..... | 42 |

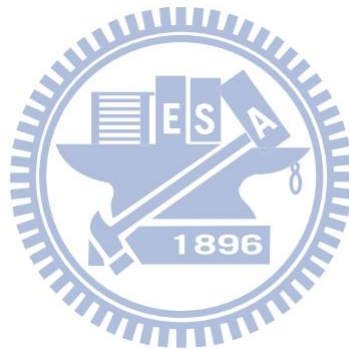
| | |
|--|----|
| 圖 4-4 A2 系列線寬為 0.46 μm 樣品在 100K 下的 LMR 磁電阻曲線..... | 43 |
| 圖 4-5 A2 系列線寬為 0.46 μm 樣品在 100K 下的 LMR 與 TMR 磁電阻曲線，右圖為磁場在-800 到 800Oe 的放大圖..... | 44 |
| 圖 4-6 A1 系列線寬為 0.87 μm 樣品在 100K 下的磁電阻曲線，圖(b)為磁場在-800 到 800Oe 的 LMR 與 TMR 放大圖..... | 45 |
| 圖 4-7 A2 系列樣品的 H_{sw} 與線寬關係圖..... | 47 |
| 圖 4-8 由左而由右分別是 A2 0.33 μm 、B2 0.33 μm 以及 B4 0.37 μm 在 100K 下的 LMR 曲線圖..... | 48 |
| 圖 4-9 圖(a) 為 B4 系列 0.47 μm 在 100K 下的磁電阻曲線圖，LMR 曲線往負磁場方向偏移，其餘角度呈現右高左低的不對稱性；圖(b)為 B2 系列 0.3 μm 在 100K 下的磁電阻曲線圖，LMR 曲線往正磁場方向偏移，其餘角度呈現左高右低的不對稱性..... | 48 |
| 圖 4-10 左圖為 B4 0.46 μm 在 100K 下磁場與長軸夾 30°角時的磁電阻曲線，以及當時的鐵磁/反鐵磁介面剖面圖；右邊五張圖為左圖各個特徵位置的磁化方向示意圖，其中 M 表示鐵磁層的磁化向量、 I 表示電流方向..... | 50 |
| 圖 4-11 左圖為 B2 0.3 μm 在 100K 下磁場與長軸夾 30°角時的磁電阻曲線，以及當時的鐵磁/反鐵磁介面剖面圖；右邊五張圖為左圖各個特徵位置的磁化方向示意圖，其中 M 表示鐵磁層的磁化向量、 I 表示電流方向..... | 51 |
| 圖 4-13 B2 系列 0.3 μm 在 100K 下的 LMR 磁電阻曲線圖， H_{c1} 與 H_{c2} 為最低點的磁場值..... | 52 |
| 圖 4-14 各系列樣品交換偏耦合與線寬關係圖..... | 53 |
| 圖 4-15 B2 系列四個不同線寬的溫度與 H_{eb} 關係圖..... | 54 |
| 圖 4-16 外加磁場與長軸夾角 $\theta=30^\circ$ 時的交換偏耦合與線寬之關係圖..... | 55 |
| 圖 4-17 外加磁場與長軸夾角 $\theta=45^\circ$ 時的交換偏耦合與線寬之關係圖..... | 56 |
| 圖 4-18 外加磁場與長軸夾角 $\theta=90^\circ$ 時的交換偏耦合與線寬之關係圖..... | 57 |
| 圖 4-19 上圖為利用 SQUID 量測 Co 陣列所得到的遲滯曲線；下圖為利用磁電阻量測 Co 平板線所得到的磁電阻曲線，兩者的 H_{sw} 對應到相同的位置..... | 58 |
| 圖 4-20 各系列樣品的 H_c 或 H_{sw} 與線寬的關係圖..... | 59 |

圖 4-21 (a)B2 系列 0.47 μm 三次 LMR 磁電阻量測曲線；(b)B4 系列 0.37 μm LMR 磁電阻
曲線量測，兩圖都可以看到第一次的曲線與第二、三次曲線有明顯的差異.....60



表目錄

| | |
|--|----|
| 表 2-1 濺鍍機各樣品使用參數..... | 32 |
| 表 4-1 Co 平板線(濺鍍 Co 後直接蒸鍍 3nm 厚的金)..... | 37 |
| 表 4-2 Co/CoO 平板線(濺鍍一層 CoO 後再濺鍍一層 Co 最後蒸鍍 3nm 厚的金)..... | 38 |
| 表 4-3 Co 樣品單磁區與多磁區分類表..... | 45 |



第一章 緒論

科技發展日新月異，隨著製程技術逐漸發達，讓人類能一窺奈米世界的奧秘，其中磁性材料在微米尺度以下的物理行為更是一大熱門議題，1988年由德國科學家 Peter Grünberg 以及法國科學家 Albert Fert 所發現的巨磁阻(Giant magnetoresistance,GMR)效應 [1]更是在 2007 年獲得諾貝爾物理學獎的肯定，巨磁阻是電子的自旋態與磁性材料內的磁矩方向同向或反向，而造成電阻大幅下降或上升的現象產生，此現象可用來當作邏輯訊號 0 或 1，發展磁阻式隨機存取記憶體(Magnetoresistive random access memory, MRAM)。

而磁性多層膜的研究中也不只單單有巨磁阻效應，其中鐵磁與反鐵磁層的兩層結構間交換偏耦合(exchange bias coupling)效應也有許多相關研究持續進行[2][3]。交換偏耦合效應一般認為是鐵磁與反鐵磁層界面中產生很強的交換耦合作用，導致遲滯曲線產生偏移而並非對稱於零磁場，由於此現象與許多因素息息相關，包括薄膜厚度以及反鐵磁材料種類，甚至是界面的粗糙程度都會造成影響，因此近年來的研究也從未間斷。

本篇論文由我們實驗室先前研究表面氧化對 Co 平板線磁矩翻轉的影響為基礎[4]，在先前的研究中，我們將 Co 平板線靜置在空氣中氧化 5 分鐘及 30 分鐘，與沒有氧化的 Co 平板線作比較，發現氧化層的確會影響 Co 平板線內的磁矩翻轉，並且產生交換偏耦合效應，但此方法無法準確控制 CoO 的厚度，同樣氧化 30 分鐘也可能有不同的氧化程度。因此我們改變實驗方法，在濺鍍時將 Ar 氣體改為 Ar+O₂ 的混合氣體，讓我們可以將 CoO 控制在約 2nm 左右的厚度，進而減少變因以利我們更了解反鐵磁層如何影響我們鐵磁層內的磁矩反轉，以及鐵磁/反鐵磁層間尺寸效應的影響。

第二章我們會先說明磁區結構及影響磁區形成的相關能量，並說明影響我們平板線的異向性磁阻效應，最後介紹鐵磁/反鐵磁兩層結構的各種特性，並探討相關文獻的實驗結果。第三章介紹我們樣品的製作方法以及實驗中所會使用到的儀器，製作樣品的部分包括光微影製程、電子束微影製程、熱蒸鍍薄膜沉積以及直流濺鍍薄膜沉積；量測系統

則是使用 He^4 低溫系統搭配超導磁電進行磁電阻量測。接著介紹本篇論文的重點，也就是第四章的結果分析與討論先將我們樣品作細部分類，之後先介紹單一鐵磁層 Co 在磁場下的變化，接著介紹 Co/CoO 兩層結構與單一 Co 層的差異，並且與相關文獻作相互比較。最後在第五章對我們實驗的結果做總結並討論未來研究方向。



第二章 理論背景

在第二章裡我們介紹磁性材料的相關特性並探討鐵磁/反鐵磁層結構所造成的現象。第一節先介紹磁區的產生；第二節探討影響磁性物質的各種能量及在磁場下的翻轉模式；第三節討論異相性磁阻(AMR)效應；第四節針對鐵磁/反鐵磁兩層結構的相關效應；最後探究與我們樣品類似的鐵磁/反鐵磁兩層平板線的相關研究。

2-1 磁區結構

鐵磁性材料中，每個原子都帶有磁矩(magnetic moment)，磁矩的是由電子對原子的軌道角動量、電子和電子間的自旋角動量，還有電子自旋對自旋軌道的交互作用所產生。磁矩因為受到內部能量的影響造成某一區域中的磁矩都往同一方向排列時，則會形成磁區(magnetic domain) [5]，此概念是由法國的物理學家 Weiss 在 1907 年提出。

磁區與磁區之間由磁壁(domain wall)所隔開，因為相鄰的磁區間產生交互作用時產生交換能，所以會由磁壁做一個過度區以降低交換能。磁壁可分做兩個種類，一種為 Bloch wall，另一種為 Néel wall，兩個最大差別在於磁壁中磁矩翻轉的形式不同；Bloch wall 內的磁矩翻轉為平行於磁壁，再一般的塊材中大多都為此類型；Néel wall 的磁矩翻轉是垂直於磁壁，通常在磁性材料厚度較薄的時候產生。

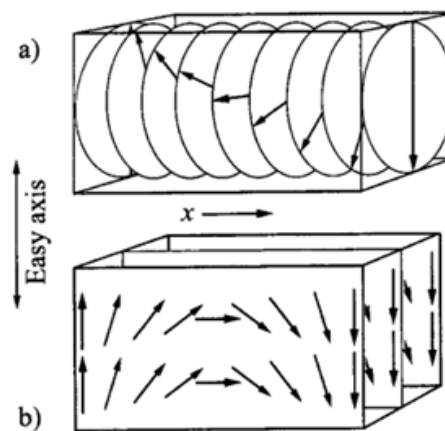


圖 2-1 (a)Bloch wall 示意圖 (B) Néel wall 示意圖 [6]。

在無外加磁場的情況下，若只考慮材料的大小與形狀，我們可以做以下分類，在尺寸較大的塊材下，為了降低靜磁能，大部分在磁區間形成磁壁，以多磁區(multi-domain)的形式存在。而當尺寸漸漸縮小，小到接近磁區的大小時，使則會因為材料的形狀而出現不同的磁區結構，若是形狀類似圓盤的薄膜，會以封閉漩渦(vortex)的方式排列，若是平板線薄膜則會以封閉磁區(closure domain)排列；如果繼續縮小材料的尺寸，當交換能的影響大於靜磁能時，則會為了降低總能量，而形成單磁區的結構。

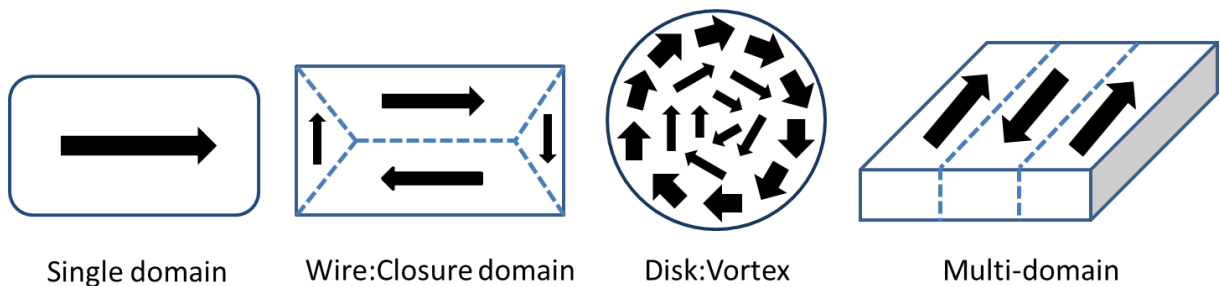


圖 2-2 不同磁區結構示意圖，由左而右依序為單磁區(Single domain)、封閉磁區(Closure domain)、封閉漩渦(Vortex)、多磁區(Multi-domain)。

2-2 磁性相關能量

在前一節中我們介紹了磁區結構，影響磁區結構的能量包含基曼能量(Zeeman energy)、靜磁能(magnetostatic energy)、交換能(exchange energy)、磁彈性能(magnetoelastic energy)、晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy)以及形狀異向性能(shape anisotropy energy)，在本章節中，我們將會詳細介紹上述的幾種能量，並且探討它們如何影響我們的樣品。

2-2.1 基曼能量(Zeeman energy, E_z)

基曼能量是在外加磁場下，樣品內部磁矩與之交互作用所產生的能量。當樣品內部磁矩與外加磁場方向平行時，可得到基曼能量的最小值，其數學式表示為：

$$E_z = - \int_V \vec{H} \cdot \vec{M} dv \quad (2-1)$$

其中 \vec{H} 為外加磁場， \vec{M} 為樣品內部磁矩之磁化向量， v 為樣品體積。

2-2.2 靜磁能(magnetostatic energy, E_{ms})

靜磁能是由磁耦極間交互作用所產生的能量，又可稱做去磁能(demagnetizing energy)。因為鐵磁性材料內的磁化向量 \vec{M} 而產生一去磁場 H_d ，由 Maxwell's equation 我們可以得知：

$$\nabla(\vec{H}_d + 4\pi\vec{M}) = 0 \quad (2-2)$$

且去磁場等於一磁位能 ϕ 取梯度得到：

$$\vec{H}_d = -\nabla\phi \quad (2-3)$$

由式子 2-3 與 2-4 可以導出：

$$\nabla^2\phi = -4\pi\nabla\cdot\vec{M} \quad (2-4)$$

經過計算可得到磁位能的解：

$$\phi(\mathbf{r}) = -\int_V \frac{\nabla\cdot\vec{M}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} dV + \int_S \frac{\vec{n}\cdot\vec{M}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} dS \quad (2-5)$$

再經由 2-3 式即可求得我們的去磁能 \vec{H}_d ，而去磁能與磁耦極間交互作用能即是我們的靜磁能，可表示為：

$$E_{ms} = -\int_V \frac{1}{2}\vec{M}\cdot\vec{H}_d dV \quad (2-6)$$

因為我們的樣品為平板線，所以可以利用橢球來模擬我們的樣品。我們考慮一個橢球形狀且為單磁區的均勻磁性物質， a 、 b 、 c 分別為橢球的三軸的長度，去磁場會與磁化向量成正比關係，可寫作：

$$\vec{H}_d = -N_d\vec{M}_s \quad (2-7)$$

其中 M_s 為該材料的飽和磁化強度， N_d 為去磁參數(demagnetization factor)，與材料的尺寸大小有關，而每個軸分別有不同的去磁參數 N_a 、 N_b 、 N_c ，且擁有類似的形式，我們

以軸 a 為例， N_a 可表示成[7]：

$$N_a = 2\pi abc \int_0^\infty \frac{(a^2 + \eta)^{-1}}{\sqrt{(a^2 + \eta)(b^2 + \eta)(c^2 + \eta)}} d\eta \quad (2-8)$$

且經由計算，發現三去磁參數的和為一定值：

$$N_a + N_b + N_c = 4\pi \quad (2-9)$$

當三軸長度相同時為一圓球，此時每個軸的去磁參數也相同，即 $N_a = N_b = N_c = \frac{4}{3}\pi$ 。

而最常用來近似次微米或奈米級平板線的靜磁能狀況的模型為扁長型橢球(Prolate ellipsoid)，他的特性為長軸 c 長度遠大於短軸 a ，且 a 與 b 長度相等，如圖 2-3。

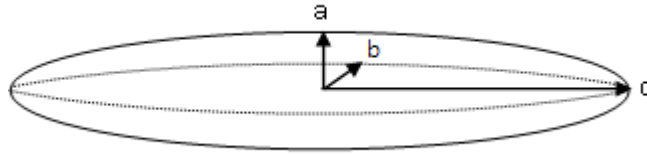


圖 2-3 扁長型橢球結構圖，其中 $c \gg a=b$ 。

我們定義長寬比(aspect ratio) $m=c/a$ ，可將各軸的去磁參數對長寬比的關係式寫為：

$$N_c = 4\pi \frac{1}{m^2 - 1} \times \left[\frac{m}{2(m^2 - 1)^{\frac{1}{2}}} \times \ln \left(\frac{m + (m^2 - 1)^{\frac{1}{2}}}{m - (m^2 - 1)^{\frac{1}{2}}} \right) - 1 \right] \quad (2-10)$$

$$N_a = N_b = 4\pi \frac{m}{2(m^2 - 1)} \times \left[m - \frac{1}{2(m^2 - 1)^{\frac{1}{2}}} \times \ln \left(\frac{m + (m^2 - 1)^{\frac{1}{2}}}{m - (m^2 - 1)^{\frac{1}{2}}} \right) \right] \quad (2-11)$$

利用式子 2-10 與 2-11 對長寬比作圖，發現當長寬比大於 10 之後去磁參數 N_c 的值趨近於零，表示磁矩傾向於躺在 c 軸上，所以可以將 c 軸當作易軸(easy axis)；而 N_a 的值接近 2π ，我們將它視為難軸(hard axis)。由此可知靜磁能的狀態與受到樣品的形狀所形成的能量差，我們稱作形狀異相性能(shape anisotropy energy)，由式子 2-6 與 2-7 可算出形狀異向

性能(K_u)等於：

$$K_u = \frac{1}{2}(N_a - N_c)M_s^2 = \pi M_s^2 \quad (2-12)$$

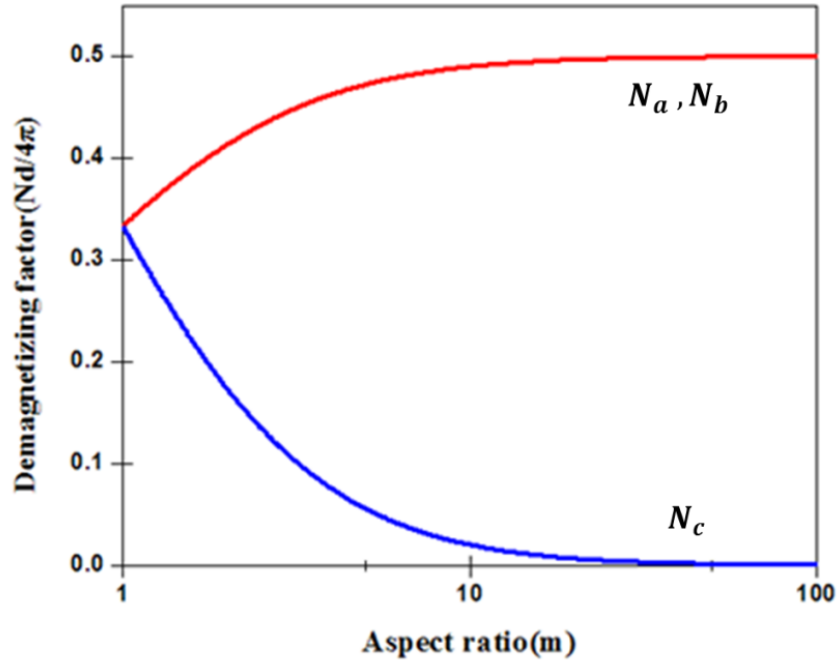


圖 2-4 扁長形橢球各軸向去磁參數與長寬比關係圖。

2-2.3 交換能(exchange energy, E_{ex})

在鐵磁性材料中，每個磁矩會因為泡利不相容原理和庫倫力的而產生交互作用，此交互作用會產生交換能量。在 Heisenberg model 中，假設有兩磁矩 μ_i, μ_j ，我們可將交換能量式子表示為[8]：

$$\varepsilon_{ex}^{i,j} = -2J_{i,j}\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (2-13)$$

其中 \vec{S}_i, \vec{S}_j 分別為兩磁矩所貢獻的單位自旋向量， $J_{i,j}$ 為交換積分常數，當 $J_{i,j}>0$ 時為鐵磁性材料，磁矩會傾向於平行排列以降低交換能；相反地，當 $J_{i,j}<0$ 為反鐵磁性材料，磁矩會傾向於反平行排列。交換能量會隨著距離越遠而快速減少，所以僅考慮鄰近磁矩的交換能的總和即為我們樣品的交換能，可表示為：

$$E_{ex} = -2 \sum_{i,j|i \neq j} J_{i,j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -2 \sum_{i,j|i \neq j} J_{i,j} S^2 \cos \phi_{ij} \quad (2-14)$$

ϕ_{ij} 是鄰近兩磁矩之單位自旋向量的夾角。

2-2.4 磁彈性能(magnetoelastic energy, E_{me})

磁彈性現象是源自於自旋軌道交互作用，當晶格受到一應力產生應變，此應變會改變原子間的距離，進而改變自旋軌道交互作用所產生的能量，稱做磁彈性能。此能量與材料性質以及沉積狀況有很大的關聯，一般來說對多層膜結構的影響較單層膜結構來的大。每單位體積的磁彈性能可表示為[10]：

$$E_{me} = -\frac{3}{2}\lambda\sigma\cos^2\theta \quad (2-15)$$

λ 為飽和磁致伸縮係數，與材料晶格方向有關； σ 為應力， θ 是應力與磁化方向的夾角。

2-2.5 晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy, E_{mc})

晶格異向性能為材料本身晶格排列方式以及方向有關，與材料的形狀與顆粒大小無關。對於單晶的材料而言，形狀異向性能即是將磁矩方向從易軸(easy direction)轉到難軸(hard direction)所需要的能量，而易軸與難軸則是由自旋軌道交互作用所決定。

我們的材料 Co 是屬於六角形晶體結構(hexagonal crystal)，由圖 2-3 所示，其易軸方向即為 c 軸，且經由實驗發現除了 c 軸以外的任何基面(basal plane)的方向皆為難軸，且從易軸轉到難軸所需的能量大小皆相等。因此晶格異向性能只跟飽和磁化強度的方向與 c 軸的夾角 θ 有關，可以將式子表示為[9]：

$$E_{mc} = K_0 + K_1\sin^2\theta + K_2\sin^4\theta + \dots \quad (2-16)$$

其中 K_0 、 K_1 、 K_2 ...為晶格異向性常數，以 Co 而言， K_1 和 K_2 皆為正值，為一單軸晶體。

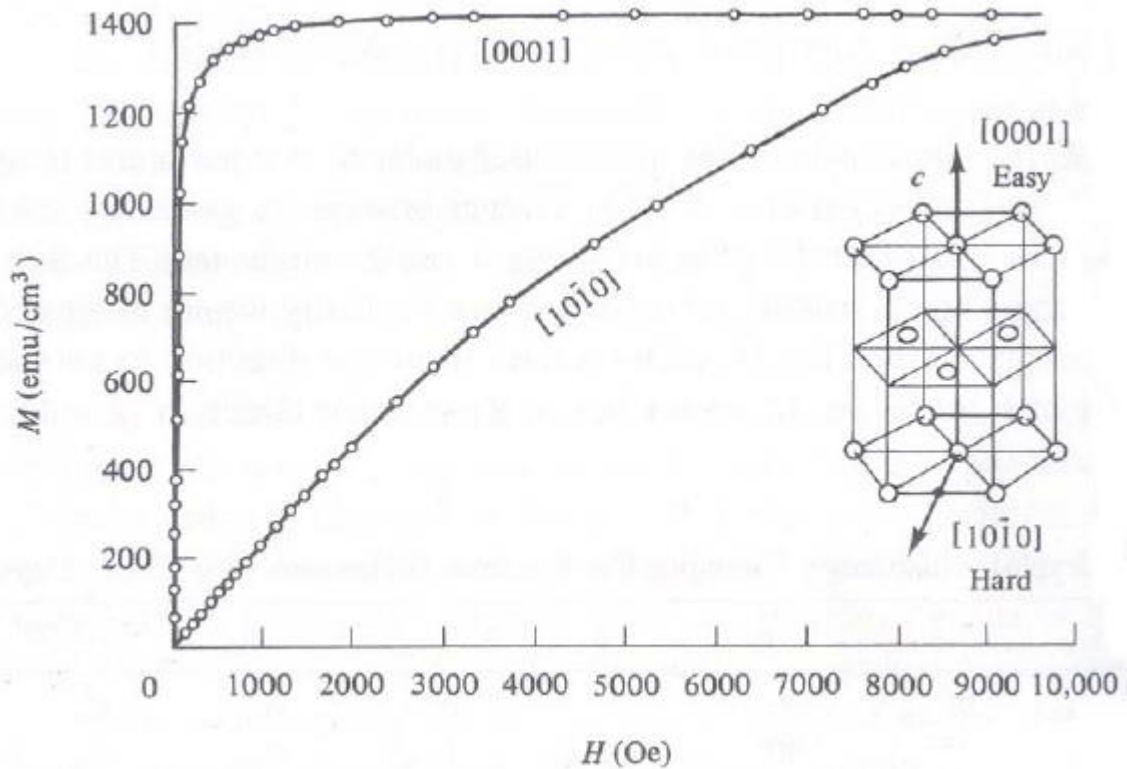


圖 2-5 單晶(Single crystal)的鈷的磁化強度對磁場關係圖[9]。

2-2.6 能量影響磁區變化及磁矩翻轉

上述能量會影響樣品內的磁區結構，在 Co 的平板線內，當磁矩都沿著長軸排列，而長軸同時也是晶格異向性能的易軸，此時的晶格異向性能與交換能影響減少，靜磁能影響大增，所以內部會開始形成磁壁而生成多磁區結構；當我們線寬持續縮小時，因為磁矩間翻轉角度變大而增加交換能的影響，所以磁矩為了降低交換能而傾向於排列在同一方向，而形成單磁區結構。而由多磁區轉換成單磁區時的長度我們稱作交界長度 (critical length, $L_{critical}$)， $L_{critical}$ 可表示為[10][11]:

$$L_{critical} = m_{critical} \times 2R_{critical} = 2m \times \frac{q}{M_s} \sqrt{\frac{C}{N_c}} \quad (2-17)$$

m 為長寬比(aspect ratio)、 M_s 為材料的飽合磁化強度、 q 為 Bessel functions 的最小解， $q = 1.8412 + 0.48694/m - 0.11381/(m^2)$ 、 N_c 為橢球長軸去磁參數、 C 為交換常數。

以 Co 為例， $M_s = 1440 \text{ erg/cm}^3$ ， $C = 1.3 \times 10^{-4} \text{ erg/cm}$ 。

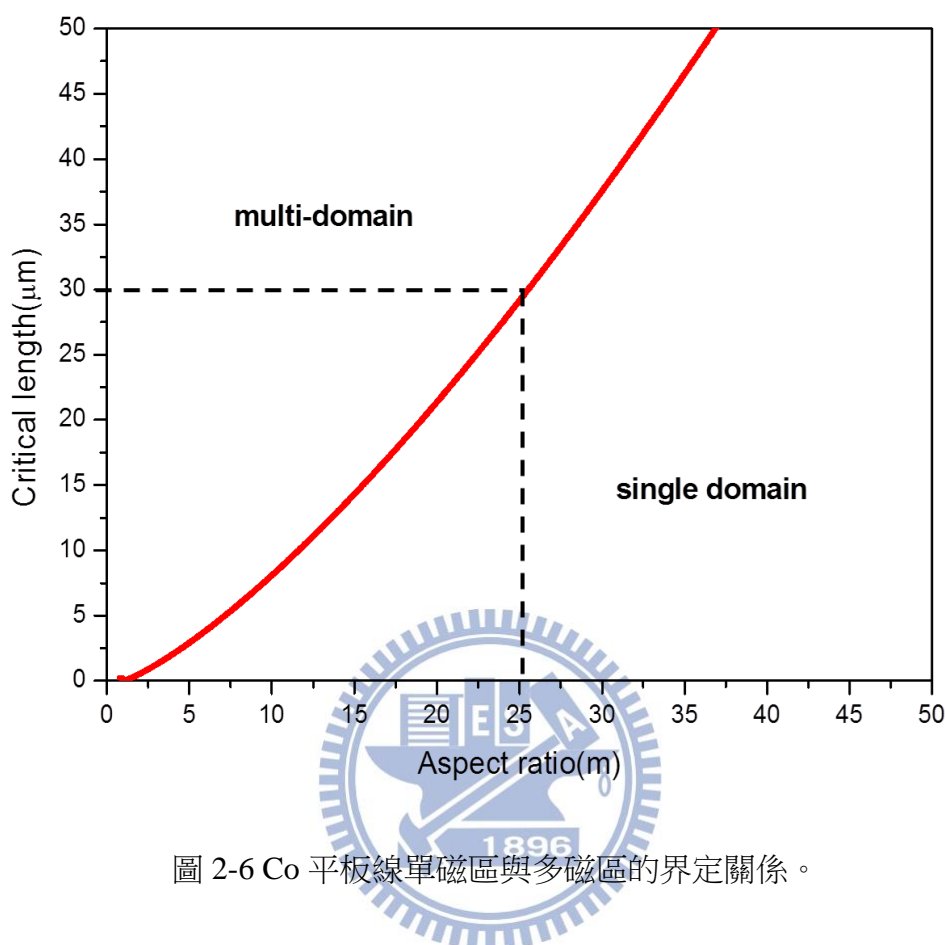


圖 2-6 Co 平板線單磁區與多磁區的界定關係。

圖 2-6 是利用式子 2-17 以及扁長形橢球模型來計算 Co 平板線磁區型態與樣品長寬比的關係，因為我們平板線長度為 $30 \mu\text{m}$ ，可以由上圖發現到當 $L_{critical} = 30 \mu\text{m}$ 時，所對應到長寬比 $m_{critical} = 25$ ，所以我們由理論推測當線寬小於 $1.2 \mu\text{m}$ 時，會形成單磁區排列；而當線寬大於 $1.2 \mu\text{m}$ 時，平板線內磁矩以多磁區的結構。

在外加磁場下變化的情況下，磁區結構會因為外加磁場的改變而隨之變化，我們稱做磁矩翻轉。近年來磁矩翻轉的機制已有許多相關文獻的研究，而多磁區結構與單磁區結構磁矩也會有不同翻轉的形式。對於多磁區結構而言，磁矩翻轉主要是因為磁區間的磁壁的移動，或者是磁壁的形成擴張以及消失 (nucleation or annihilation of domain wall)[12]。而單磁區的結構，主要可以分成 coherent rotation、curling rotation、buckling rotation 三

種[14][15]，其翻轉過程如下圖所示

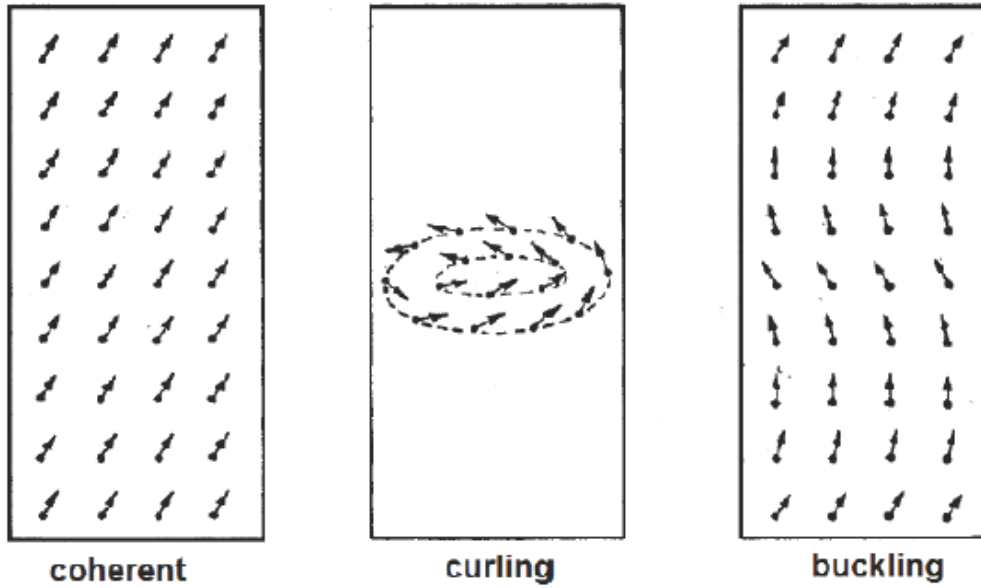


圖 2-7 單磁區結構磁矩翻轉示意圖[13]。

Coherent rotation 是在磁矩翻轉的過程中，所有的磁矩相互平行並且做一致性的翻轉；curling rotation 表示在長軸上磁矩以漩渦狀的方式排列；buckling rotation 則是以 S 型的狀態排列。單磁區內部翻轉的形式主要是由交換長度(Exchange length)所決定， $l_{ex} = \sqrt{C}/M_s$ ，若考慮一長型橢球，則當橢球半徑 R 大於 l_{ex} 的時候，磁矩會以 curling 的形式翻轉，而當橢球半徑 R 小於 l_{ex} 時，則改為 coherent rotation 的方式。Buckling 則是當橢球半徑 R 恰好等於 l_{ex} 時發生，為前面兩種形式之過渡地帶，此形式發生範圍極小，一般來說很難觀察到。

2-3 異向性磁阻(anisotropic magnetoresistance , AMR)

磁阻即是在外加磁場下電阻隨著磁場變化而隨之改變，對於磁性金屬來說，較常見的磁阻效應有巨磁阻效應(Giant magnetoresistance effect)、異向性磁阻效應(anisotropic magnetoresistance)、超巨磁阻效應(colossal magnetoresistance)...等等，而主要影響我們 Co 平板線的為異向性磁阻效應，以下就針對此效應做介紹。

異向性磁阻是 Kelvin 在 1857 年所發現的，他發現到當通過樣品的電流方向與磁化相量的方向改變時，電阻也會隨之改變，可以用數學式表示為：

$$R(\theta) = R_{\perp} + \Delta R \cos^2 \theta \quad (2-18)$$

其中 θ 為電流方向與飽合磁化向量的夾角， $\Delta R = R_{\parallel} - R_{\perp}$ ， R_{\perp} 為電流與飽合磁化向量垂直時之電阻值，我們稱做飽合橫向磁阻， R_{\parallel} 為電流與飽合磁化向量平行時的電阻值，我們稱做飽合縱向磁阻，對鐵、鈷、鎳等過渡金屬而言， $R_{\parallel} > R_{\perp}$ 。

上述金屬最外層的電子軌域為 4s 與 3d 軌域，s 軌域的電子在空間中呈對稱的機率分佈，d 軌域電子則是只在特定方向上對稱，我們假設 d 軌域電子以 x 軸為對稱軸分佈，則此時我們在 x 軸上加上一電流，此電流會破壞 s 軌域電子雲，只留下 x 軸上的電子機率分佈，則 s-d 軌域間有最大散射機率，有電阻最大值；當磁場方向與電流間夾角不為零時，d 軌域的電子分佈的對稱軸會隨之改變，則此時 s-d 軌域不再相互平行，降低了散射機率，電阻會逐漸減小。

以 Co 平板線為例，當我們通一電流在我們長軸上，並外加一平行長軸的大磁場，則此時有電阻最大值(R_{\parallel})，隨著磁場與電流夾角變大，電阻會跟著變小，直到電流與磁場夾 90 度時會有電阻最小值(R_{\perp})，我們即是利用不同磁場相對電流方向的磁電阻表現來觀察我們平板線磁區結構，以及了解內部磁矩翻轉形式。

2-4 鐵磁與反鐵磁層結構

前面章節我們探討了單一鐵磁層的平板線，隨著鐵磁材料的研究趨近完備，就開啟了多層膜結構的研究主題，其中我們所探討的 Co/CoO 兩層結構就是一種鐵磁/反鐵磁的兩層結構，所以接下來我們會介紹反鐵磁層的特性以及鐵磁/反鐵磁兩層結構所造成的效應。

2-4.1 反鐵磁性(Antiferromagnetism)

反鐵磁性(Antiferromagnetism)材料內磁矩雖然是有序的排列，但相鄰兩磁矩呈反平行排列，因此磁化率趨近於零，為一種弱磁性。

在外加磁場作用下，繞原子核旋轉的電子產生電磁效應，得到一磁通量來阻止外加磁場對磁矩影響，才使得磁矩反平行排列，成反鐵磁性；但上述情況僅發生在溫度小於 T_N 時，且隨著溫度上升，磁化率也會跟著變大， T_N 我們稱做 Néel temperature，是由發現反鐵磁性的法國科學家 Louis Néel 的名字所命名。當溫度大於 T_N ，反鐵磁性會消失，而變成順磁性，此時磁化率隨著溫度上升而下降。

常見的反鐵磁材料有過渡金屬內的 Cr 或者 FeMn 合金，而許多鐵磁性材料的氧化物也都有反鐵磁性的性質，例如：CoO、NiO、Fe₂O₃...等。

2-4.2 鐵磁/反鐵磁兩層結構之特性

在低於 Néel temperature 的鐵磁/反鐵磁兩層結構，我們外加一平行膜面的磁場，鐵磁性材料磁矩會與外加磁場同方向排列，而反鐵磁材料成反平行排列，所以此時鐵磁與反鐵磁層的介面間的交互作用(exchange interaction)所產生的交換能(exchange energy)影響變的更加顯著，此交互作用與界面的粗糙程度(interfacial roughness)、反鐵磁層晶格結構、反鐵磁沉積時的顆粒大小(grain size)及缺陷(defect) ...等許多因素有關，如圖 2-8 所示。時至今日，仍然沒有一個模型可以完整得解釋兩界面中的交互作用。

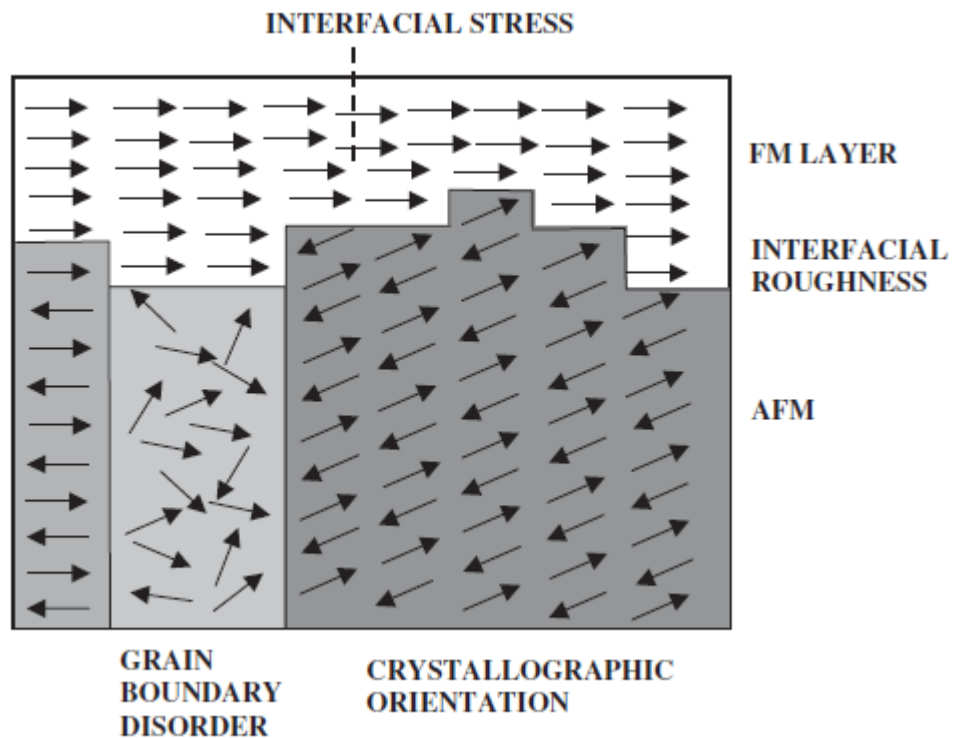


圖 2-8 FM/AFM 兩層結構界面示意圖，上面為鐵磁層，呈同方向排列；下方為反鐵磁層，從左邊表示一般的反鐵磁層，而中間部分表示反鐵磁結構中可能會有無序性的產生，右邊表示由於晶格異向性和界面的不平整使得磁矩不與鐵磁層呈反平行排列[16]。

2-4.3 交換偏耦合(Exchange bias coupling)

Meiklejohn 和 Bean 兩位科學家發現在溫度 77K 時，在直徑約 20~100nm 左右的部分氧化 Co 粒子會有遲滯曲線偏移的現象，他們認為這個偏移是因為鐵磁性的 Co 與外層反鐵磁性的 CoO 的界面間的交互作用(exchange interaction)所產生的[18]。在無外加磁場下冷卻到 77K，此時 CoO 內為順磁性，所以遲滯曲線僅表現出 Co 的鐵磁性性質，如圖 2-9 的虛線所示；而改在外加 10 kOe 磁場下冷卻，CoO 磁矩呈反平行排列，使遲滯曲線產生偏移，如圖 2-9 的實線所示，此曲線的偏移量我們稱之為交換偏耦合(exchange bias coupling)。

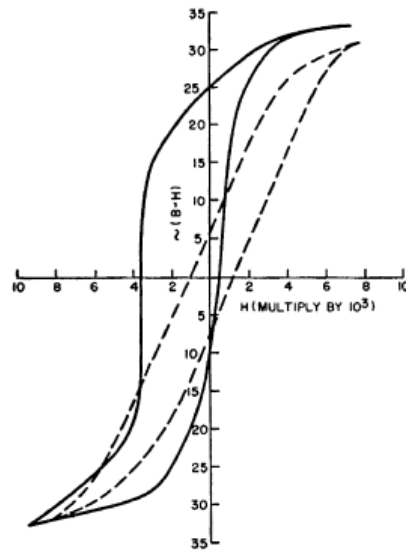


圖2-9 部分氧化的Co粒子在77K下的遲滯曲線，虛線為無外加磁場下冷卻的量測結果；實線為外加 10 kOe 磁場下冷卻(field cooling)的量測結果[18]。

隨著此現象的發現，許多團隊開始投入交換偏耦合的相關研究，也發現往正磁場偏移的遲滯曲線[28]，圖 2-10 為 CoO 25Å/Co(111) 56Å 的兩層薄膜在 175K 下，此時的溫度是接近樣品的 blocking temperature，進行兩次遲滯曲線量測，發現經過 training 過後的遲滯曲線 H_{c2} 大致上維持不變， H_{c1} 有稍微變小，而遲滯曲線產生正交換偏耦合(positive exchange bias coupling)的現象。先前研究發現的負交換偏耦合(negative exchange bias coupling)在高磁場下，鐵磁/反鐵磁介面中的磁矩是呈現平行排列，而在正交換偏耦合是鐵磁/反鐵磁介面中的在高磁場下的磁矩排列由平行排列變成反平行排列，出現 superexchange 的機制[28]，superexchange 的發生認為可能與溫度、鐵磁/反鐵磁介面粗糙程度，以及反鐵磁層的厚度有關。

除了遲滯曲線偏移以外，還有其它因為鐵磁/反鐵磁層間交換作用所產生的現象，例如矯頑場(coercive field)的增加，以及單軸異向性能(unidirectional anisotropy)的改變，如圖 2-11 所示。

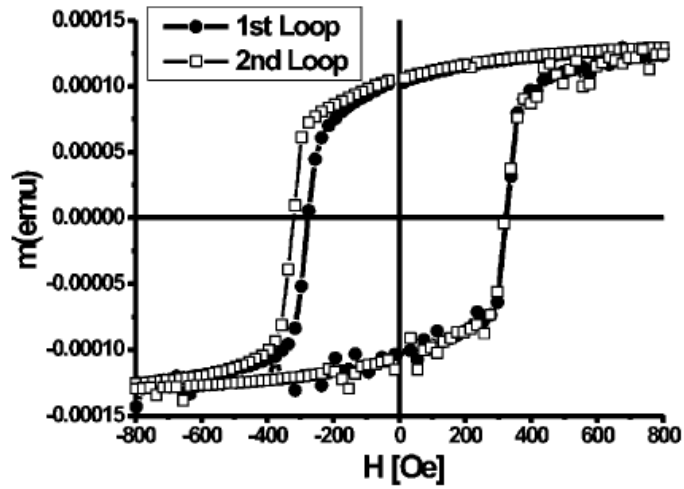


圖 2-10 CoO 25Å/Co(111) 56Å 的兩層薄膜在 175K 下所量測到的遲滯曲線，實心圓球為第一次量測結果，空心方形為 training 後的曲線， H_{c2} 大致上維持不變， H_{c1} 有稍微變小，表示 H_{eb} 稍微變小，但皆是往正磁場偏移[28]。

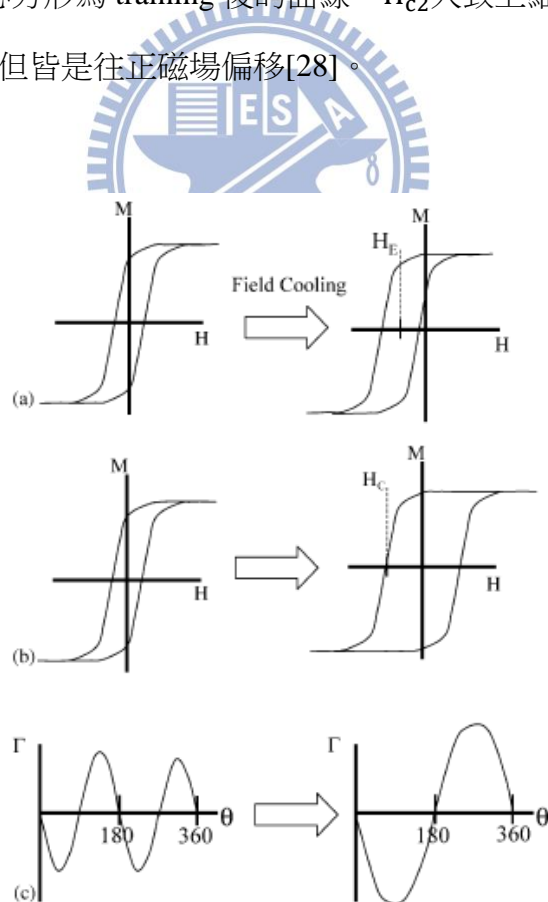


圖 2-11 三個由鐵磁/反鐵磁層交換耦合所產生的基本效應，(a)遲滯曲線偏移(b)矯頑場增加(c)單軸異向性能改變[19]。

2-4.4 溫度與交換偏耦合的關係

交換偏耦合與溫度之間有很大的關係，隨著溫度上升，鐵磁/反鐵磁間的交換耦合現象會變的不明顯，甚至是完全消失時，我們定義此時的溫度為 blocking temperature, T_B 。

圖 2-12(a)是 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{CoO}$ 兩層結構的 H_{eb} 與溫度關係圖，其中 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 的厚度固定在 30nm，改變 CoO 的厚度得到四條不同的曲線。CoO 的 Néel temperature 大約在 297K 左右，在圖中可以看到，在 CoO 100Å $T_B \cong 300\text{K}$ 左右，而當 CoO 厚度變為 15Å 時， T_B 大概掉到 100K 左右，表示 blocking temperature 會隨著 CoO 厚度越小而變小，所以我們可以做一個結論，對於一般的塊材或者是厚度較厚的反鐵磁層材料， $T_B \cong T_N$ ；而隨著反鐵磁層的厚度逐漸減小， $T_B < T_N$ [17]。圖 2-12(b)為 CoO 溫度與厚度關係圖，黑色實心表示 blocking temperature 的曲線，白色空心表示 Néel temperature 的曲線，可以發現雖然 Néel temperature 也會隨著厚度變小而降低，但 blocking temperature 下降的幅度明顯較大。

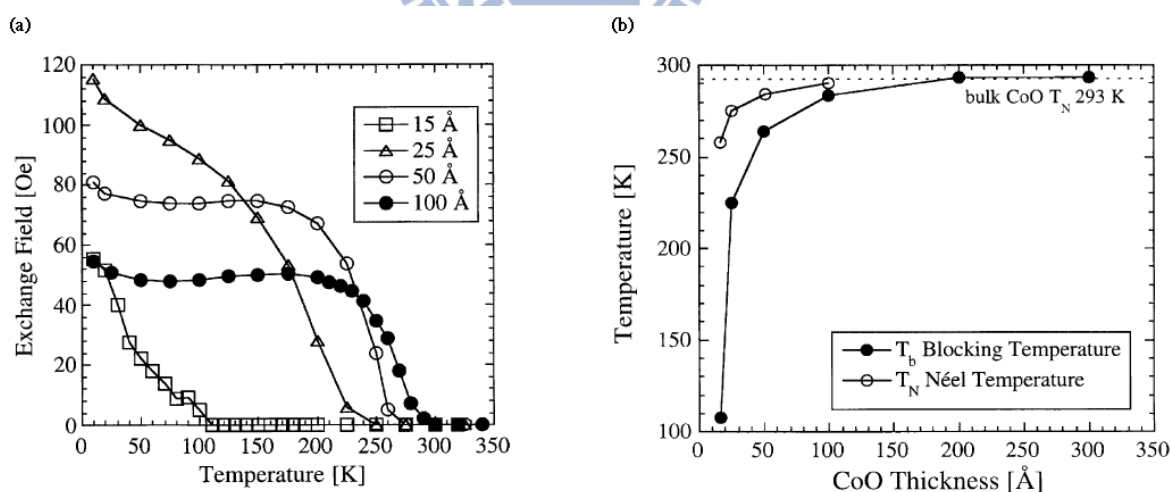


圖 2-12 (a) $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}(300\text{Å})/\text{CoO}$ 兩層結構的 H_{eb} 與溫度關係圖，圖中四條曲線分別代表 CoO 厚度為 15 Å、25 Å、50 Å 和 100Å [17] (b) CoO 溫度與厚度關係圖，黑色實心表示 blocking temperature 的曲線，白色空心表示 Néel temperature 的曲線[16]。

2-4.5 Training effect

Training effect 通常發生在鐵磁/反鐵磁的薄膜中，由圖 2-13 可以看到，第一次量測的遲滯曲線與第二次和第三次的遲滯曲線有很大的差異，除了負磁場的矯頑場較大以外，磁矩翻轉也較急遽。量測遲滯曲線時，會先由正磁場往負磁場方向掃，因為反鐵磁層會抑制鐵磁層磁矩的翻轉，所以需要較大的負磁場才會造成翻轉，一旦鐵磁層翻轉後，會改變鐵磁/反鐵磁層間交換能量，進而改變反鐵磁層內的磁矩排列方式，所以整個系統的能量可能因為磁壁的生成而達到另一穩定狀態，所以當由負磁場掃回正磁場時，遲滯曲線已經類似第二次與第三次的遲滯曲線圖，這種現象就是我們通稱的 training effect。

Training effect 會隨著反鐵磁層越薄而越大，可能因為較薄的反鐵磁層會有較小的晶格異向性能(magnetocrystalline anisotropy energy)，有較強的反鐵磁性，而產生較大的 training effect；反之，當反鐵磁層越厚，則 training effect 越小[21]。

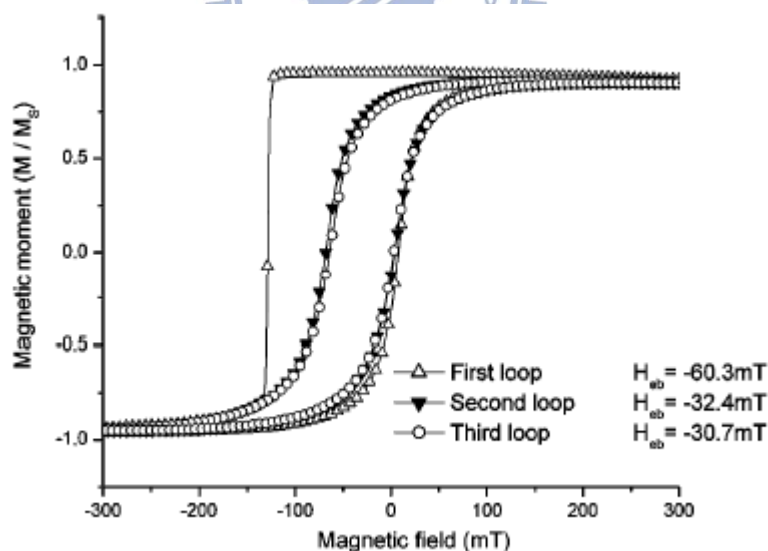


圖 2-13 CoO/Co 兩層結構在溫度 5K 下量測的遲滯曲線圖[21]，可看到第一次遲滯曲線與二、三次有明顯的差別。

2-5 尺寸效應與交換偏耦合的相關研究背景

在 2-4.3 中我們討論了鐵磁/反鐵磁兩層結構所產生的交換偏耦合效應，而隨著微影技術的發達，不同圖形以及大小對於交換偏耦合影響的相關研究就變得更加普遍，以下我們分別介紹 Co/CoO 以及 Ni/NiO 兩個不同材料，尺寸效應與交換偏耦合的關係。

2.5.1 Size Dependence of Exchange bias in Co/CoO Nanostructures

圖 2-14 是 Co/CoO 兩層結構的 $\mu_0 H_{eb}$ 與 $A/M_S V$ 的關係圖[3]，S. Laureti *et al.*製作了一系列的 $\ell \times 3\ell$ 長方形， ℓ 分別為 S:30nm、M:75nm、L:120nm，並利用 electron gun evaporation 沉積 8nm、12nm、25nm 厚的 Co，最後在 10^{-2} mbar 純氧下生成約 3nm 厚的 CoO。鐵磁/反鐵磁的交換耦合效應可以用 phenomenological equation[20]表示：

$$\gamma A = \mu_0 M_S V H_{eb} \quad (2-19)$$

其中 γ 為界面交換偏耦合常數(interfacial exchange coupling)、 A 是鐵磁/反鐵磁界面的表面積、 M_S 是鐵磁層的飽合磁化強度， V 是樣品鐵磁層的體積， H_{eb} 是交換偏耦合的磁場大小。

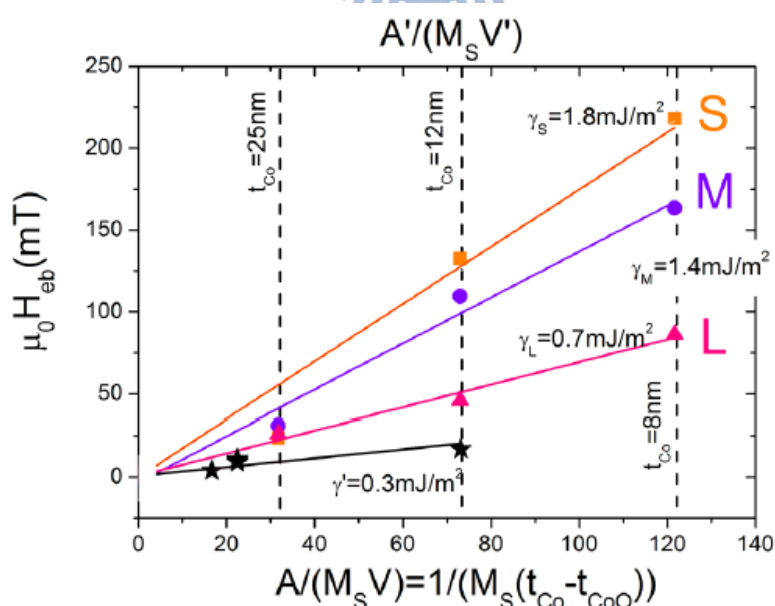


圖 2-14 長寬為 $\ell \times 3\ell$ 的 Co/CoO 兩層結構的 $\mu_0 H_{eb}$ 與 $A/M_S V$ 的關係圖，其中四條曲線分別代表 S:30nm(橘色)、M:75nm(紫色)、L:120nm(紅色)以及無上方氧化(黑色)的樣品[3]。

在樣品中，鐵磁/反鐵磁層界面間交換耦合作用為產生交換偏耦的主要原因，在樣品當中分別有上方的氧化層以及側邊的氧化層，從圖中最下面的黑色曲線可以看到，單純側邊氧化的樣品只有些微的交換偏耦出現，而且有上方氧化層的樣品的界面交換耦常數明顯比沒有上方氧化層的樣品來的大很多，表示主要影響 Co/CoO 兩層結構的是上方的氧化層，且隨著尺寸越小，而逐漸上升。接著討論在 Co 厚度為 8nm 與 12nm 的樣品中，皆有著隨著尺寸縮小而交換偏耦現象增益的趨勢；但在 Co 厚度 25nm 的樣品中，並沒有發現明顯的尺寸效應。他們認為這兩者的差異，主要是來自於交換耦產生的 characteristic dimension, D_{AF} ，交換耦包含鐵磁與反鐵磁間的交換耦(F-AF coupling)，以及反鐵磁顆粒(AF grain)間的交換耦。當 Co 厚度較薄時， D_{AF} 會大約等於樣品的寬度 l ；而當 Co 的厚度變厚， D_{AF} 會小於樣品的寬度 l 。

2.5.2 Size Dependence of the Exchange bias in NiO/Ni Nanostructures

M.Fraune *et al.* 利用電子束微影製作長 $100\mu\text{m}$ ，寬度小於 $3\mu\text{m}$ 的平板線，並利用離子束濺鍍(ion beam sputter)沉積出 NiO(40nm)/Ni(10nm)，先將樣品加熱到 553K($T_N = 523\text{K}$)後加磁場在長軸上降到 297K 以及 5K，利用 SQUID 量測遲滯曲線，以探討尺寸效應與交換偏耦間的關係[2]。

由圖 2-15(a)發現在室溫時，隨著線寬變小， H_{eb} 有降低的趨勢，且矯頑場 H_c 也有因為形狀異向性能而有隨著線寬變小而呈指數上升(圖 2-15(b))。但當溫度降到 5K 的時候，從圖 2-15(c)可以看到 H_{eb} 變的與線寬沒有太大的關聯，甚至在最小線寬時 H_{eb} 還略大於沒有圖形的薄膜，而 H_c 仍然有著隨線寬減小逐漸上升的趨勢，不過只有在小線寬時較明顯。他們認為室溫時的 H_{eb} 較小是由於熱擾動(thermal fluctuation)造成鐵磁/反鐵磁層界面間的剩磁(surplus magnetization)降低，且影響到反鐵磁層內磁矩排列，並非完全固定在長軸上。在低溫下與線寬無關，他們認為可能是在小於 $3\mu\text{m}$ 的線寬下，NiO 的晶體尺寸與磁區的尺寸差不多大，因此推論在樣品內應該接近單磁區結構，都是單磁區所以翻轉所需的克服的交換耦強度差不多；而在室溫下有隨著線寬變小而交換偏耦下降的趨

勢，是由於平板線內，反鐵磁壁皆被固定住，只有少數的反鐵磁壁會影響到交換偏耦合的大小，且線寬越小能影響的反鐵磁壁越少，所以才會造成交換偏耦合下降。

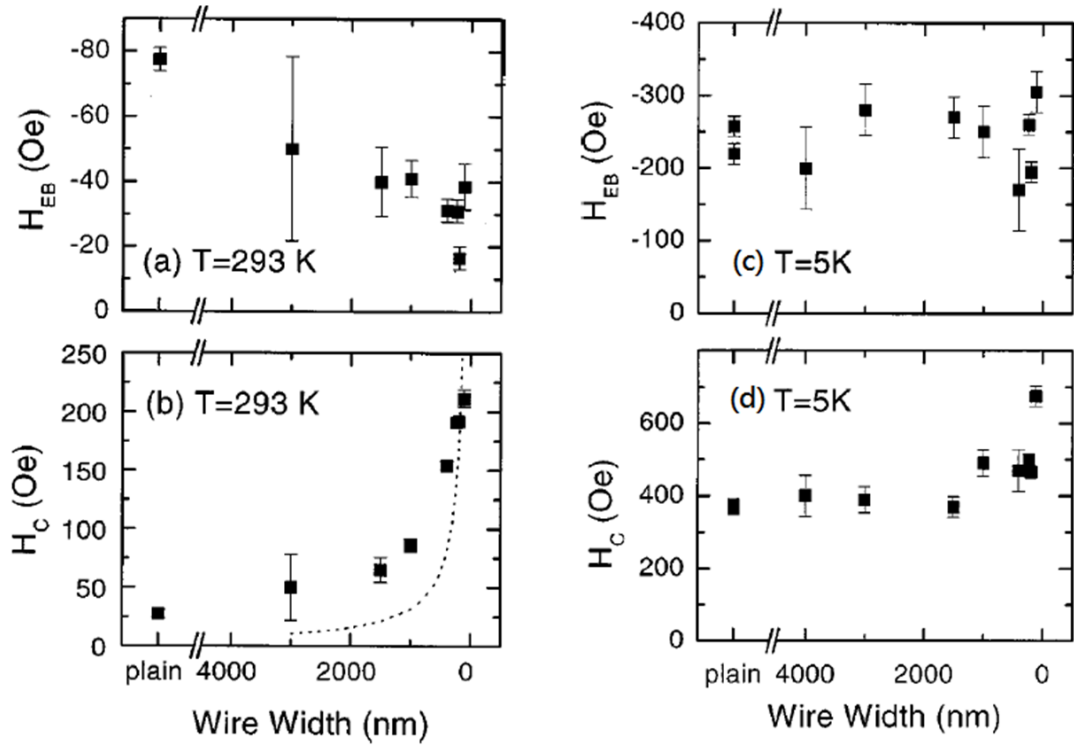


圖 2-15 NiO(40nm)/Ni(10nm)分別在(a)293K 下的線寬與 H_{eb} 關係圖、(b) 293K 下的線寬與 H_c 關係圖、(c)5K 下的線寬與 H_{eb} 關係圖、(d)在 293K 下的線寬與 H_c 關係圖。[2]

第三章 樣品製作與量測方式

我們是利用磁電阻量測來探討微米線寬的 Co 平板線以及 Co 與 CoO 的兩層結構的平板線的磁區變化。所以在本章節裡，我們將詳細地介紹實驗過程中所用到的製程技術，包括光微影製程以及電子束微影製程；薄膜沉積的部分有濺鍍系統和熱蒸鍍系統；最後介紹的是量測時所使用的低溫系統以及量測系統。

以下是整個實驗的流程圖：

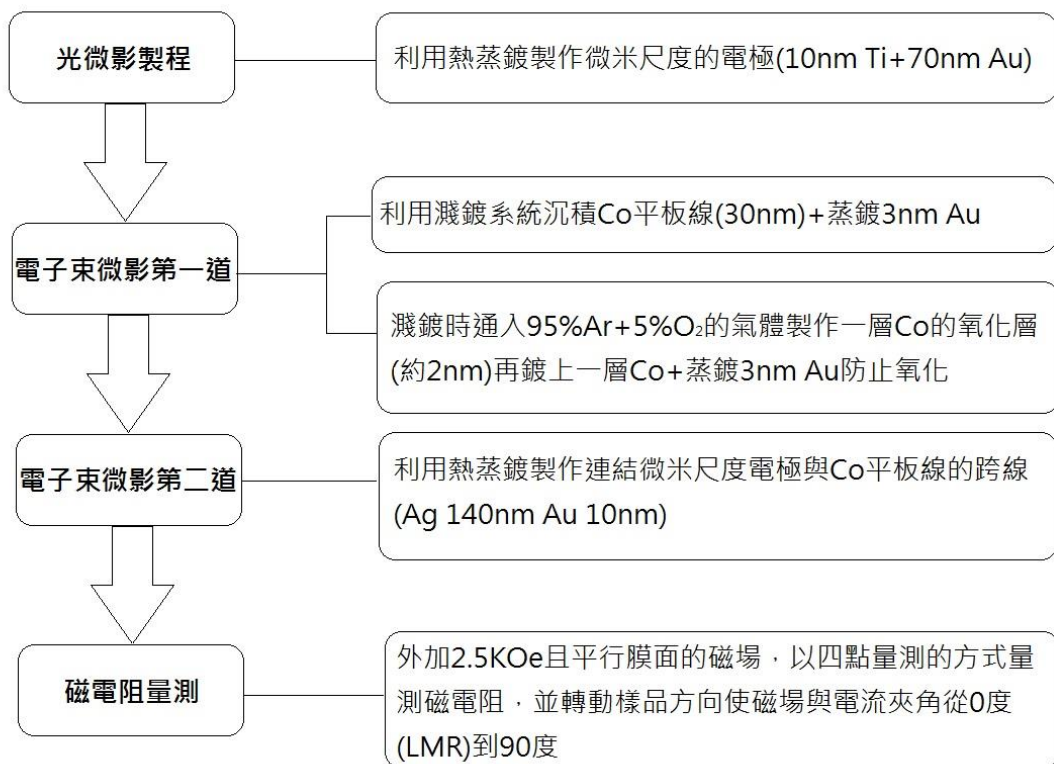


圖 3-1 實驗流程圖。

3-1 光微影製程技術

在現今的半導體工業中，光微影製程是一項不可或缺的技术，主要是利用光罩將設計好的元件轉移到晶圓上以達到量產的目的。而在本實驗中，我們利用此技術來製作我們樣品最外層微米尺度的電極。我們樣品最外圍的用來打線的電極寬度為 $200\mu\text{m}$ ，而用來與我們的樣品線做接觸的部分最小線寬是 $5\mu\text{m}$ ，如下圖所示：

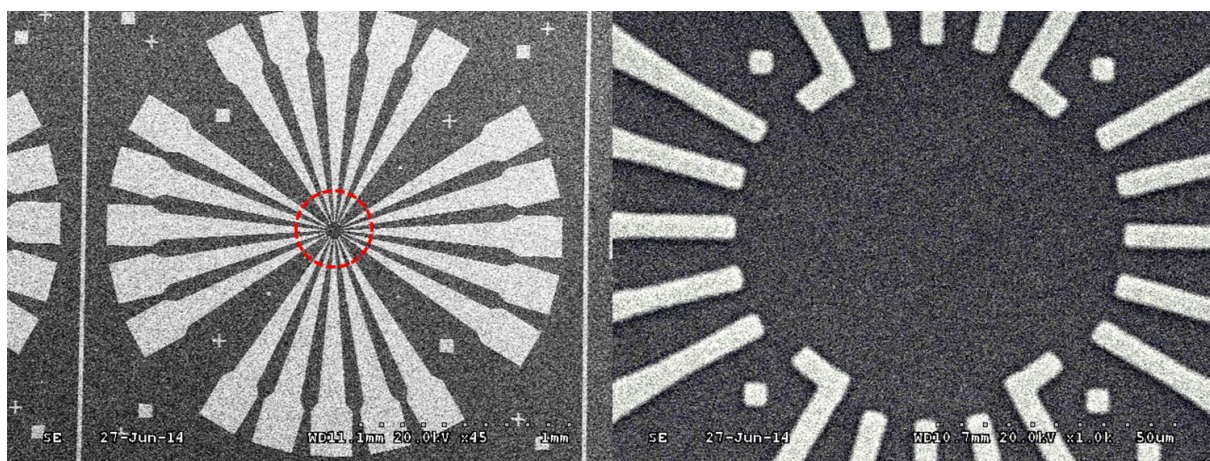


圖 3-2 左圖是光微影完成品利用 SEM 倍率 45 倍下所拍的照片；右圖是左圖在紅色圈圈部份在倍率 1k 下的放大圖。

光微影製程實驗步驟如下：塗佈→預烤→曝光→反轉烤→全曝→顯影→蒸鍍→舉離。
接下來會對各步驟做細部的說明。

(1) 塗佈

在 SiN/Si 基板上滴上光阻劑 AZ5214E，利用旋轉塗佈機設定前 10 秒 1000 r.p.m. 及 40 秒 5000 r.p.m.，塗佈完成的光阻厚度約為 $1\mu\text{m}$ 左右，塗佈完需確認光阻是否均勻，或者有無附著雜質，若發現有上述情況發生，則用丙酮將光阻劑清洗掉重新塗佈。塗佈完成後，在機板最外圍的光阻厚度會較厚，如下圖 3-3，所以我們利用棉棒沾丙酮將其擦拭，否則在曝光時會因為光阻厚度不均勻而造成影響。



圖 3-3 光微影塗佈示意圖。

(2) 預烤

將塗佈好的基板放到加熱板上，以 90°C 預烤 90 秒，將光阻劑中的溶劑蒸發掉。

(3) 曝光

光罩使用前要先用丙酮擦拭並吹乾才可放上光罩對準機(Mask aligner)，將光罩上的圖型對準我們的基板，本實驗是使用接觸式曝光(contact exposure)，將基板與光罩間的空氣抽走，使光罩跟基板緊密貼和，以波長 365nm ，光源強度為 $20\text{mW}/\text{cm}^2$ 的紫外光曝光 0.8 秒，如圖 3-4。

接觸式曝光的優點是在圖型轉移的過程中因為直接與樣品接觸，所以解析度較高；缺點是光罩跟光阻劑直接接觸，容易對光罩造成汙染，過程中要隨時注意光罩清潔，若是光罩髒了則必須重新擦拭，使用一段時間後則必須替換光罩。

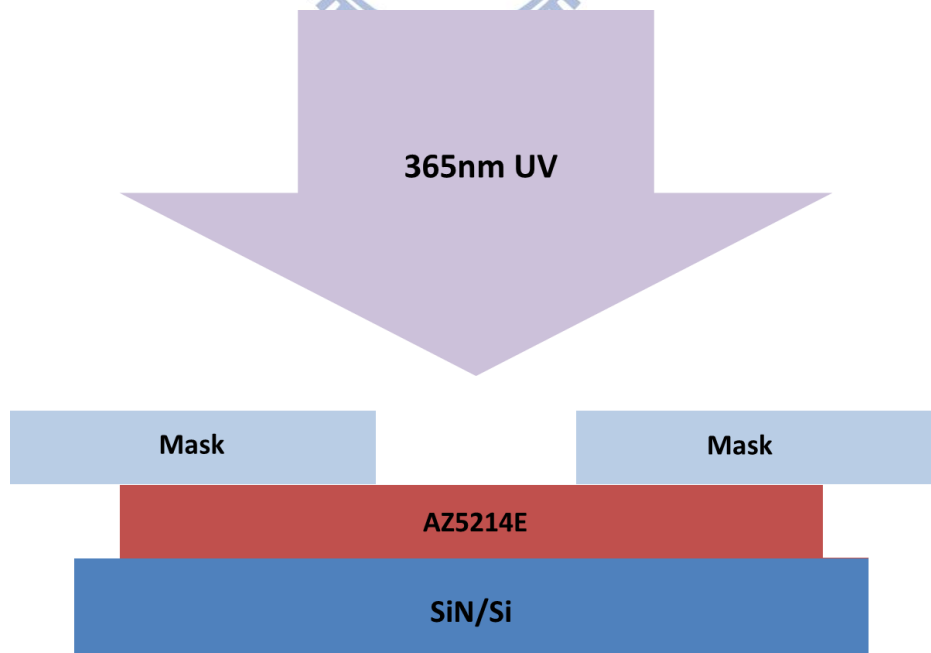


圖 3-4 光微影曝光示意圖。

(4) 反轉烤

光阻經過曝光後，放在加熱器上以 120°C 烤 90 秒；因為本實驗所使用的光阻劑 AZ5214E 為正光阻，此種光阻的特性為經過曝光後的部分在 120°C 的溫度下會改變其結構，使其不溶於顯影液，以達到圖型反轉的效果，所以稱做反轉烤。

(5) 全曝

將反轉烤後的基板，以光源強度為 $20\text{mW}/\text{cm}^2$ 的紫外光曝光 20 秒，此步驟會將原本未曝光的光阻經過曝光，溶於顯影液。

(6) 顯影

將完成上述步驟之基板泡入顯影液(AZ400K:DI Water = 1:4)中，放入超音波震盪器震洗 20 秒，再拿出來浸泡 5 秒後，放入去離子水浸泡 30 秒再用氮氣吹乾，如圖 3-5。



圖 3-5 光微影顯影示意圖。

(7) 蒸鍍

利用蒸鍍系統蒸鍍 10nm 厚的鈦與 70nm 厚的金，如圖 3-6。

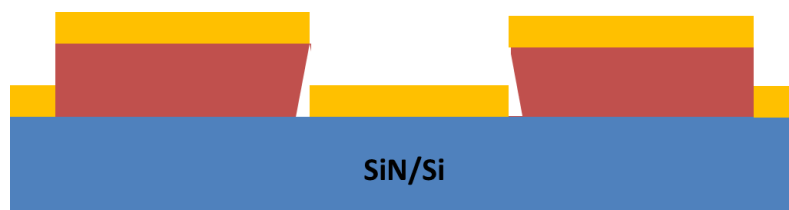


圖 3-6 光微影蒸鍍示意圖。

(8) 舉離

將蒸鍍完的樣品泡入丙酮以超音波震盪器震洗 20 秒，在放入去離子水內 10 秒，即可完成我們的微米尺度電極，如圖 3-7。



圖 3-7 光微影舉離示意圖。

3-2 電子束微影製程

電子束微影是用來製作我們的樣品線，以及與外層微米電極接觸的跨線，其原理與光微影類似，但因為我們的樣品線的尺度更小(最小到 $0.2\mu\text{m}$)，已超過我們光微影所能達到的極限，所以利用電子束微影的方式來製作。

我們所用到的機台是 HITACH S-3000H 的掃描式電子顯微鏡(Scanning electron microscope, 簡稱 SEM)，是一種熱阻式電子顯微鏡，通過一電流來加熱鎢絲，當達到特定溫度會發射電子束，之後外加一個 20 kV 的加速電壓，經過一連串的電子透鏡聚焦後打在我們的電子阻劑上造成曝光。

3-2.1 電子束微影實驗步驟

電子束微影的實驗步驟如下：塗佈→預烤→曝光→顯影→鍍膜→舉離。接下來會對各步驟做詳細說明。

(1) 塗佈

將基板放上塗佈機並滴上 6% 的 PMMA，以 55 秒 3000 r.p.m. 塗佈，塗佈出來的

電子阻劑厚度約 330nm；或製作樣品線實，以 55 秒 2000 r.p.m.塗佈，塗佈出來的電子阻劑厚度約 380nm。

(2) 預烤

將塗佈好的基板放在加熱板上，以 180°C 的溫度烘烤 5 分鐘，其目的是為了將阻劑中的溶劑蒸發掉。

(3) 曝光

與光微影不一樣的地方在於電子束微影並不是使用光罩，而是使用電腦中的 Design-CAD 將我們的圖型設計好，搭配 NPGS 系統做定位以及自動掃描，過程中經由 Beam blanker 來控制電子束的開關，將電子束按照我們所設計的圖形照射在電子阻劑上來完成曝光。



(4) 顯影

將曝光完的基板放入顯影液(MIBK:IPA=1:3)中浸泡 75 秒，在泡入定影液(IPA)中 25 秒，最後在泡入去離子水 20 秒將定影液洗掉，即可完成顯影

(5) 鍍膜

製作樣品線時是利用濺鍍機濺鍍 Co 及 CoO，若是製作跨線則是利用蒸鍍機蒸鍍 140nm 厚的銀及 10nm 厚的金。

(6) 舉離

將完成鍍膜的樣品放入丙酮中，將阻劑洗掉即可完成舉離。樣品完成圖如下

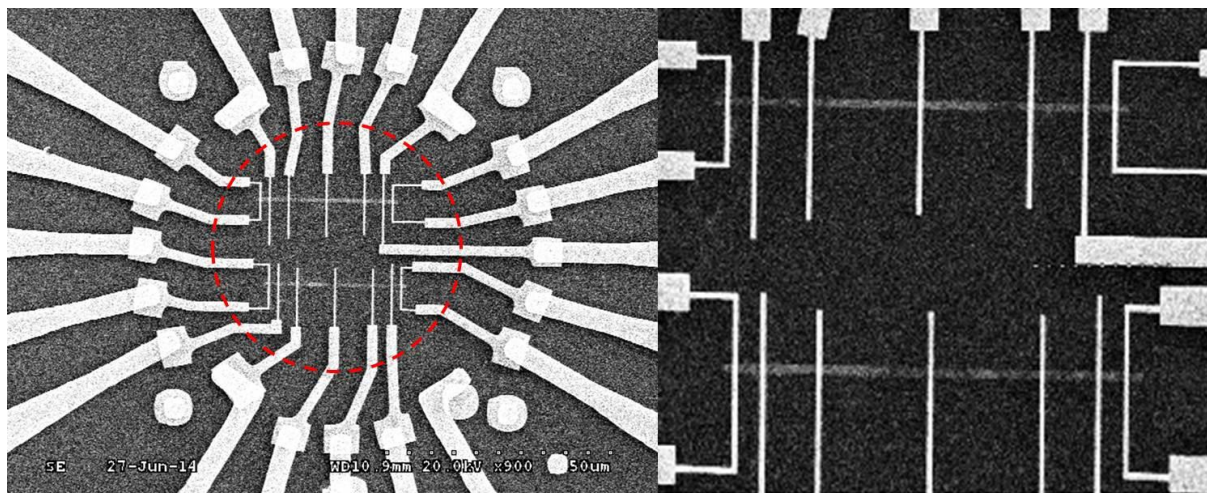


圖 3-8 右圖為我們電子束微影樣品完成圖，正中心兩條橫線為我們的第一道樣品線，外圍部分是我們第二道跨線；左圖為紅色圈圈部分的放大圖。

3-2.2 參數與舉離方法對樣品線製作的影響

當我們再製作 Co 的樣品線時，發現到有翹邊的情形發生，如圖 3-9 所示，翹邊容易造成樣品線與跨線的接觸不良，所以我們藉由改變幾項參數與舉離方法來解決翹邊的問題，以下將會討論各參數對樣品線的影響。

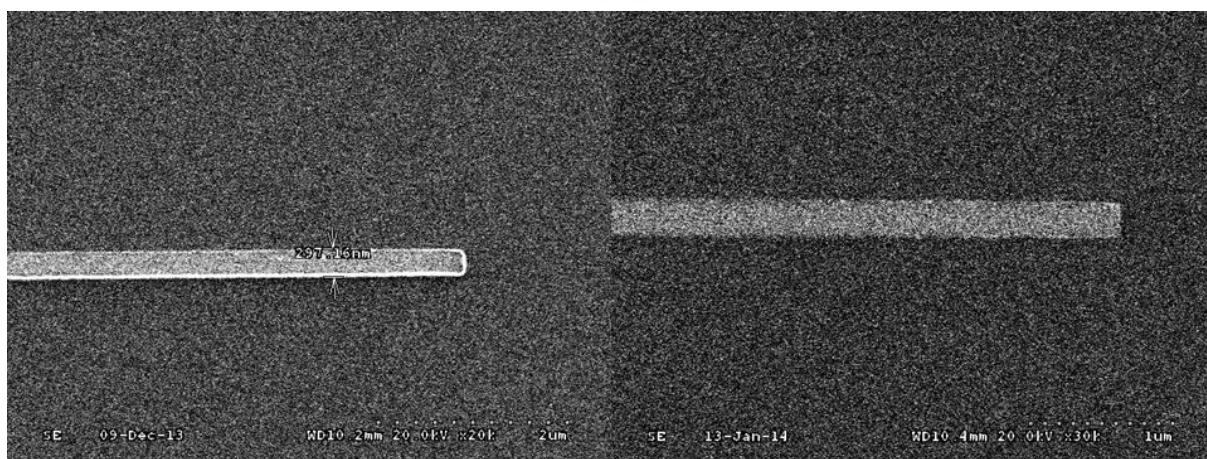


圖 3-9 兩邊圖形皆是設定 $0.3\mu\text{m}$ 的線寬，左圖為有翹邊的情況發生的樣品線；右圖為我們經由改變參數所得到的樣品線。

(1) 劑量

劑量表示單位面積所照射的電子束濃度，劑量太大會造成圖形膨脹，且較容易發生翹邊的情形；劑量不夠會造成樣品線有缺陷，不同線寬需對應到不同的劑量，以 $0.3\mu\text{m}$ 的樣品線為例，左圖的劑量為 1.2 nC/cm ，右圖為 1.0 nC/cm 。

(2) 阻劑厚度

旋轉塗佈的轉速以及阻劑的濃度會影響電子阻劑的厚度，我們使用 5%PMMA 製作樣品線時發現無論再任何劑量下都會有翹邊的情形發生，最後是利用 6%PMMA，以 55 秒 2000 r.p.m.塗佈，塗佈出來的電子阻劑厚度約 380nm，所以阻劑較厚較不容易出現翹邊。

(3) 舉離方法

原本我們在舉離時僅將濺渡好的樣品浸泡在丙酮中 30 min，但發現較溫和的舉離方式無法完全的舉離乾淨，於是我們改為將樣品浸泡在 60°C 左右的丙酮並放入超音波震盪器內震洗 10 min，可以解決我們舉離不乾淨的問題。



3-3 濺鍍系統

直流濺鍍系統主要利用在沉積金屬薄膜，我們實驗中是使用直流濺鍍來沉積我們的 Co 以及其氧化物的樣品線。

直流濺鍍的工作原理為在真空腔體內通入氬氣後，在濺鍍槍的正負極間外加一高電壓，此高電壓會使得腔體內的氬氣游離形成帶正電的 Ar^+ plasma，經過電場加速後的 Ar^+ 離子撞擊 Co 靶材後，Co 原子得到一能量擺脫靶材而濺射出來，最後在我們的基板上沉積出一層 Co 的薄膜。

我們實驗所使用的濺鍍機的腔體內有兩個部分，一個是濺鍍系統，用來沉積我們的 Co，而另一部分是蒸鍍系統，用來蒸鍍一層薄薄的金來防止 Co 表面與空氣接觸造成氧化，圖 3-10 是我們的濺鍍系統的示意圖，接下來會詳細介紹濺鍍機的操作流程

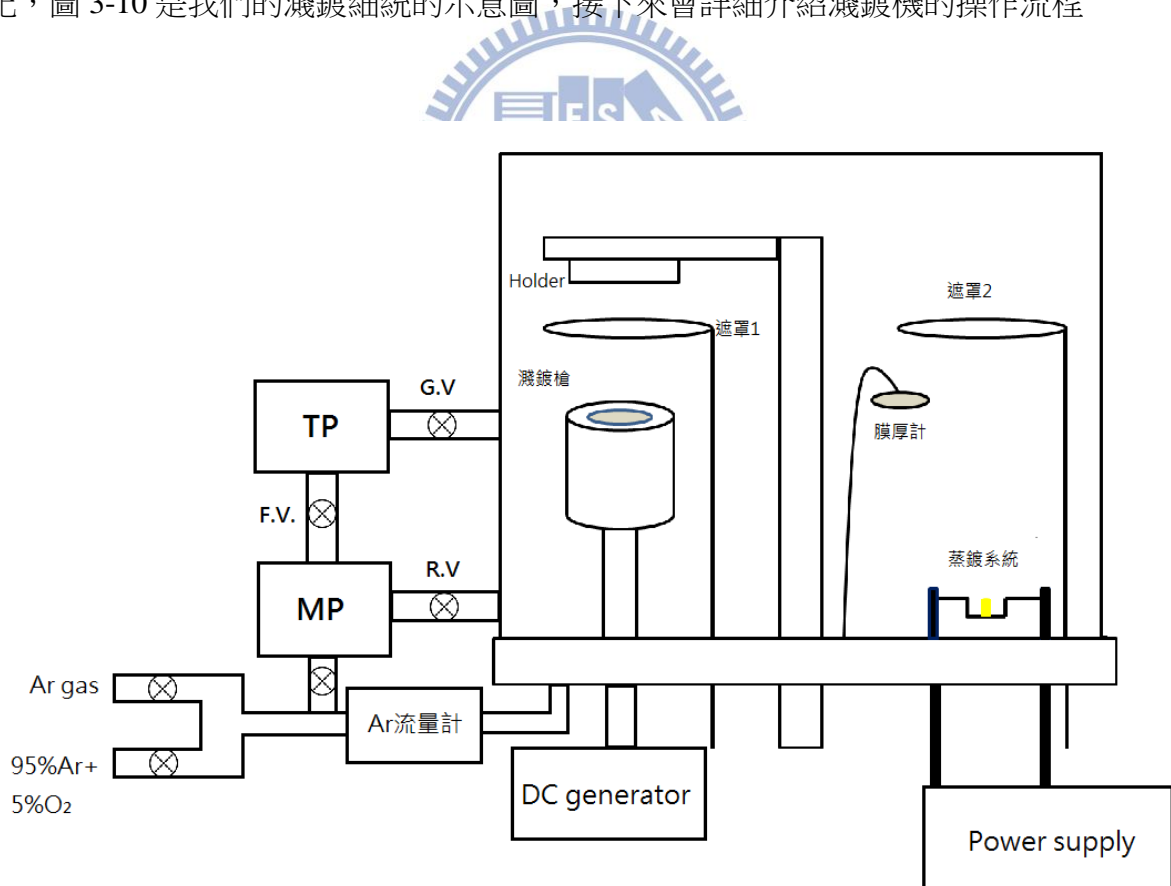


圖 3-10 濺鍍系統示意圖。

- (1) 首先利用氬氣槍清理整個腔體，以及仔細的清理濺鍍槍，因為若有雜質或者是之前濺鍍所殘留的碎屑會影響到我們濺鍍出來樣品的品質，也有可能造成濺鍍槍不能運作。清理完成之後利用三用電表確認靶材與內電極為短路，而內電極與外電極大約為 $0.8 \text{ M}\Omega$ 的電阻，若與外電極短路會也會造成濺鍍槍無法運作。
- (2) 清理氬氣的管線，在濺鍍前我們會先將腔體抽到高真空，再通入氬氣，但必須確認管線內為純粹的氬氣才能保證我們的樣品的品質，所以我們會將氬氣充滿管線後，再用機械幫浦(Mechanical pump)抽掉，重覆這步驟 4 次後再次將管線中充滿 Ar 氣體，若是要濺鍍 Co 的氧化物時，則是改為通入 $95\% \text{ Ar} + 5\% \text{ O}_2$ 的氣體。
- (3) 將樣品放入樣品台上並對準靶材的正中心，並確認蒸鍍系統的位置後，打開粗抽閥(Rough valve, R.V.)，用機械幫浦將腔體抽到 $1 \times 10^{-2} \text{ torr}$ 左右。開啟循環水系統，關掉粗抽閥，開啟前置閥(Foreline valve, F.V.)以及主閥(Gate valve, G.V.)，按下渦輪幫浦(Turbo pump)開關，將腔體壓力抽到 $3 \times 10^{-6} \text{ torr}$ 以下。
- (4) 將主閥關閉，利用流量計控制 Ar 氣體的流量，使得壓力達到 $9 \times 10^{-3} \text{ torr}$ 左右，若過程中超過 $3 \times 10^{-2} \text{ torr}$ ，則先用機械幫浦抽到 $3 \times 10^{-2} \text{ torr}$ 以下，再將主閥開一小縫使得壓力能穩定的控制在 $9 \times 10^{-3} \text{ torr}$ 左右；若是要濺鍍 Co 的氧化物時，則是改為通入 $95\% \text{ Ar} + 5\% \text{ O}_2$ 的氣體。
- (5) 開啟直流產生器(DC generator)，設定功率，電壓，電流三個參數，並按下開關，預鍍 15 分鐘待其鍍率穩定後，再開啟遮罩，鍍到我們所想要的厚度之後，再關閉遮罩。在我們的儀器中，上述三個參數為影響鍍率之關鍵因素，因為濺鍍槍只有在正中心的部分有鍍率，所以我們無法一邊濺鍍一邊使用石英震盪片來偵測膜厚，所以我們在之前會先將石英震盪片對準我們濺鍍槍的正上方，來測量在各個參數下所對應的鍍率，並在旁邊放置一片空基板，可在濺鍍完成後利用 α -step 作二次校正，來確認

我們濺鍍時所使用的鍍率。

(6) 濺鍍完成之後，開啟前置閥以及主閥，等待一段時間讓樣品降溫，若是製作 Co/CoO 兩層結構時，則重回到步驟(4)，在濺鍍一層 Co。

(7) 轉到蒸鍍系統上方，蒸鍍一層約 3nm 厚的金，防止樣品在空氣中氧化。

(8) 利用氮氣將腔體破真空，將樣品取出舉離。

表 2-1 濺鍍機各樣品使用參數

| | 壓力(torr) | 功率(kW) | 電壓(V) | 電流(A) | 鍍率(Å/s) |
|-------------------------|------------------------------|--------|-------|-------|---------|
| 設定參數 | $9.1\sim 9.7 \times 10^{-3}$ | 0.04 | 790 | 0.3 | |
| 實際參數 1 (A1,B1) | $9.1\sim 9.7 \times 10^{-3}$ | 0.04 | 287 | 0.14 | 4.2 |
| 實際參數 2 (A2,B2,B3,B4) | $9.1\sim 9.7 \times 10^{-3}$ | 0.05 | 279 | 0.17 | 3.3 |

3-4 熱蒸鍍系統

我們在前面微影製程結束後，利用熱蒸鍍系統來沉積我們需要的金屬薄膜，其原理是在高真空的腔體內，在鎢舟上放上我們所要蒸鍍的金屬，利用鎢的高熔點來加熱我們的金屬使之氣化，沉積在我們的樣品上形成薄膜。接下來會詳細介紹我們蒸鍍系統的操作流程。

- (1) 將我們所要使用的鎢舟以及要蒸鍍的金屬放入裝有丙酮、酒精的試管，利用超音波震盪器震洗 15 分鐘後，用氮氣槍吹乾，才能放到腔體中。
- (2) 打開腔體並將要蒸鍍的金屬放置在鎢舟正中心後，要確認中央電極與預鍍電極短路，且與腔體不導通(若導通的話要重新檢查，否則在蒸鍍過程中會發生危險)。將樣品放到樣品台上並對準鎢舟正中心，並蓋上遮罩，關上腔體。
- (3) 利用機械幫浦(Mechanical pump)將腔體內氣壓抽到 1×10^{-2} torr 左右，關掉粗抽閥，開啟前置閥(Foreline valve)以及主閥(Gate valve)，啟動渦輪幫浦(Turbo pump)，將腔體抽到 1×10^{-6} torr 左右，才可開始進行蒸鍍。
- (4) 如果樣品是經過電子束微影所製作的，則再蒸鍍前要先打氬氣電漿(Ar plasma)，其目的是為了清除在樣品上顯影後所殘留的電子阻劑。先關閉主閥，之後將氬氣管線作清理，清理數次後在通入腔體內，使腔體內的氬氣氣壓達到 8×10^{-3} torr。外加一個 800V 的高電壓，將氬氣游離成 Ar^+ plasma，打開遮罩 2 分鐘，完成後將電壓歸零，再打開主閥，將腔體抽到 1×10^{-6} torr 左右。若是要蒸鍍光微影的的樣品則可省略此步驟。
- (5) 在系統中選擇我們所要蒸鍍金屬的參數，緩慢的上升電流，期間要隨時注意壓力的變化以及鍍率的大小，都會影響到蒸鍍出來樣品的好壞。等到鍍率穩定時(鍍率大小與電流大小以及金屬氣化熱的大小有所不同)，打開遮罩，利用石英震盪片可以觀察目前鍍了多少厚度。達到我們想要的厚度後關閉遮罩，再將電流歸零。若是要蒸鍍兩層的金屬，則必須等待 5~10 分鐘等到樣品上的金屬冷卻，才可進行下一次蒸鍍。
- (6) 蒸鍍完成後，須等待 30 分鐘以上讓整個腔體降溫，以氮氣將腔體破真空後，取出樣品並舉離。

3-5 低溫系統

本次實驗所是用的使用我們實驗室的 He^4 低溫系統，整個腔體類似一個杜瓦瓶的結構，其量測溫度範圍從 300K~1.3K，以下分做兩個部份介紹，第一部份先介紹整個低溫系統的構造；第二部份詳細介紹整個低溫系統的操作流程。

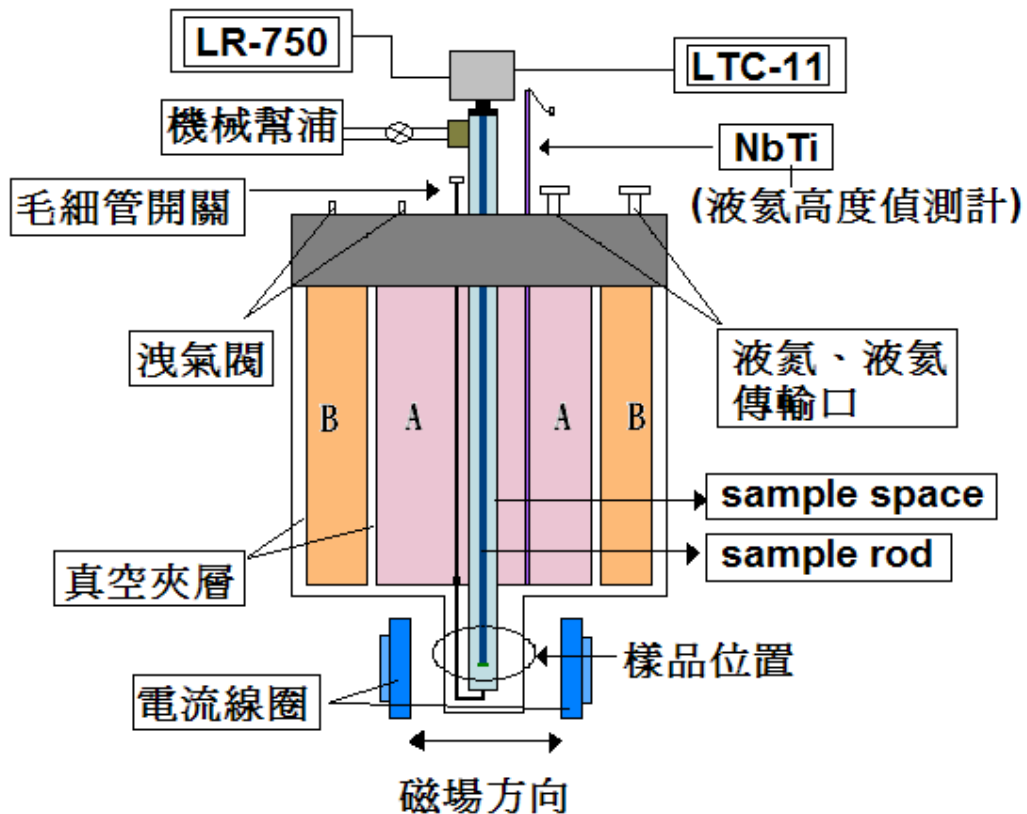


圖 3-11 低溫系統內部構造示意圖 [22]。

- 整個腔體的基本構造如圖所示，最外層有一層真空夾層，用來防止與系統與外界產生熱對流；接下來 C 部份為液氮夾層(jacket)，為一保溫層，我們會在裡面填充液態氮來減少中間的主容器內的液氮或液氮消耗，量測其間大約 12 個小時要補充一次;B 部份為 container，用來存放液態氮或液態氮，主要利用輻射的方式來冷卻我們的樣品。

A 部份為 Sample space，用來放置我們的 Sample rod 以及 Sample，其底端有一毛細管與 Container 做結合，可經由 Needle valve 來做開關；Sample rod 用來連結我們的樣品跟量測系統。

b. 接下來開始介紹低溫系統的操作

- (1) 將樣品放上 **Sample rod** 並放入 **Sample space**，利用機械幫浦清理氮氣管線及 **Sample space**，再將氮氣管線以及 **Sample space** 充滿氮氣，這步驟是為了防止 **Sample space** 裡面有空氣殘留，使得 **Needle valve** 結冰。
- (2) 將 **Container** 裡灌入所要降溫的液體，本次實驗是在 100K 左右量測，所以我們在 **Container** 內灌入液態氮(若是要在更低溫下量測，則在此層灌入液態氦)，利用 **NbTi** 棒來估計液態氮的高度，**NbTi** 為一種超導材料，所以當腔體內的液態氮越多，其電阻值會越小；之後在將 **Jacket** 內灌滿液態氮。
- (3) 待樣品自然降溫到 100K 左右，我們在 **Sample rod** 底端以及毛細管靠近 **Sample space** 的各裝了一個 **GaAlAs diode** 以及 **Silicon diode** 的溫度感應器，連結到溫控器 **LTC-11**，藉由溫控器給予兩個 **diode** 一個定電流並且量測其電壓值，即可得到我們這兩個位置的溫度；而在 **Sample Space** 的部份，我們有外加一電阻加熱器，給予電阻一個小電流使得其得到焦耳熱，利用控制這個加熱器溫度，使得樣品溫度大約控制在 100K 左右。即可開始量測。
- (4) 要更換樣品時，要先將樣品附近的溫度升回室溫，並將 **Sample space** 維持氮氣正壓，將 **Sample rod** 取出之後要立刻將蓋子蓋上，防止 **Needle valve** 結冰堵塞。

3-6 量測系統

我們的量測系統是 **LR-750**，此儀器利用兩條電流 **BNC** 線以及兩條電壓 **BNC** 線，可用來做兩點量測以及四點量測。兩點量測是將正電流以及正電壓的 **BNC** 線串在一起，負電流及負電壓的線串在一起，連接樣品兩端量測，此量測方法會包含 **BNC** 線以及接線本身的電阻，主要是用來確認連接樣品的各個接腳是否導通。而四點量測則是將電流

BNC 線分別接在我們樣品線的兩端，而兩隻電壓 BNC 線接在我們所想要觀察的區域，因為電壓計電阻遠大於我們的樣品線，所以在並聯的情況下電流會全部通過我們樣品線，經由歐姆定率 $V=IR$ 可以得到我們所要量測的樣品線區域的電阻。

在外加磁場下所量測到的電阻值稱做磁電阻，我們外加磁場是經由位在 Sample space 兩旁的電磁鐵產生的，將大量的線圈纏繞在軟磁鐵上，利用法拉第定律，我們外加一電流在線圈上，線圈所產生的磁場會將軟磁鐵磁化，在我們的磁鐵中心生成一個均勻磁場。我們利用 Power supply 來控制電流大小以及方向使得我們樣品兩端生成一可調變的均勻磁場，實驗中最大磁場強度為 2500 Oe。最後利用一校正的 InAs Hall sensor 來得知通過我們樣品的磁場大小。

利用不同的樣品台(Holder)，我們可以決定通過樣品磁場為 in-plane(磁場平行樣品表面)或者是 out-of-plane(磁場垂直樣品表面)，本次實驗是採用 in-plane 的方式，在 Sample rod 正上方有兩個 180° 的量角器，可以用來決定我們通過要樣品的電流與磁場方向的夾腳，角度誤差大約再一度左右。

磁電阻量測部份我們透過電腦中設計好的 Labview 程式，在程式中我們可以設定從 +2600 Oe 到 -2600 Oe 各個量測區間取點的密度，電腦透過 Ni-488.2 的 GPIB USB 以及 GPIB 線將指令傳送到我們的 Power supply，Power supply 會按照我們所設定的區間而改變磁場強度；而每改變一次磁場，我們的數位三用電表 Keithley2000 會經過 GPIB 線去讀取 LR750 的電阻值以及溫控器 LTC-11 的溫度，並重複讀取 5 次，在經由 GPIB 線傳回電腦，電腦讀取到之後會將五個結果取一平均值並記錄，即可得到我們在此磁場大小下樣品的電阻值以及溫度。

第四章 實驗結果分析與討論

在本次實驗中，我們製作了一系列長度 $30\mu\text{m}$ 且寬度在 $1\mu\text{m}$ 以下的 Co 平板線，並且可以在濺鍍時於 Ar 氣體中參雜氧氣，濺鍍出一層約 2nm 厚的 CoO 鈷氧化層，以探討此鈷氧化層對 Co 平板線的影響，並進而討論 Co/CoO 兩層結構所產生的效應與線寬之間的關係。

4-1 Co 平板線與 Co/CoO 兩層結構平板線樣品分類

我們樣品在製作時因為濺鍍程序的不同，可以分類為 Co 平板線以及 Co/CoO 平板線兩大類，其中每次濺鍍過程中又有些許的差異所以兩類別可再細分為幾個系列，分類如下表：

表 4-1 Co 平板線(濺鍍 Co 後直接蒸鍍 3nm 厚的金)

| 類別 | 線寬 $w(\mu\text{m})$ | $R_{\square}(\Omega)$ at 100K | 厚度 $t(\text{nm})$ |
|----|---------------------|-------------------------------|-------------------|
| A1 | 1.07 | 17.1 | 30 |
| | 0.87 | 18.4 | |
| | 0.54 | 22.4 | |
| | 0.45 | 18.6 | |
| A2 | 1 | 17.1 | 30 |
| | 0.65 | 14.6 | |
| | 0.55 | 14.4 | |
| | 0.46 | 13.9 | |
| | 0.33 | 17.7 | |
| | 0.23 | 21.8 | |

表 4-2 Co/CoO 平板線(濺鍍一層 CoO 後再濺鍍一層 Co 最後蒸鍍 3nm 厚的金)

| 類別 | 線寬 w(μm) | $R_{\square}(\Omega)$ at 100K | 厚度 t(nm) |
|----|-----------------------|-------------------------------|-----------------|
| B1 | 1.08 | 35.2 | Co 30nm/CoO 2nm |
| | 0.72 | 24.2 | |
| | 0.64 | 22.7 | |
| | 0.54 | 28.3 | |
| | 0.3 | 33.3 | |
| | 0.23 | 33.2 | |
| B2 | 1 | 22.8 | Co 28nm/CoO 2nm |
| | 0.75 | 15.8 | |
| | 0.55 | 16.8 | |
| | 0.46 | 15.7 | |
| | 0.33 | 14.6 | |
| B3 | 0.73 | 15.2 | Co 28nm/CoO 2nm |
| | 0.62 | 16.3 | |
| | 0.53 | 13.7 | |
| | 0.3 | 15.5 | |
| | 0.26 | 23.1 | |
| B4 | 0.62 | 17.1 | Co 28nm/CoO 2nm |
| | 0.55 | 16.5 | |
| | 0.46 | 14.5 | |
| | 0.37 | 15.7 | |
| | 0.25 | 20.1 | |

4-2 Co 平板線的特性探討

我們先介紹 Co 平板線的磁電阻特性，以便與我們 Co/CoO 兩層結構做比較，所以下面會先介紹異向性磁阻效應，再來分類 Co 平板線磁區結構，並探討單磁區與多磁區結構的磁電阻曲線的差別。

4-2.1 異向性磁阻效應(AMR effect)

在章節 2-3 我們提到的異向性磁阻效應會呈現 Co 平板線的磁區資訊，異向性磁阻效應中電阻值的改變與電流方向與磁化向量間的夾角 ϕ 有關，由式子 2-18 我們知道：

$$R(H, \phi) = R_{\perp} + \Delta R \cos^2(\phi(H, \theta)) \quad (4-1)$$

本實驗中，電流加在樣品長軸方向， ϕ 為磁化向量對長軸方向的夾角； θ 為外加磁場對長軸的夾角，當外加磁場大於樣品的內部磁矩的飽和磁場時，所有磁矩會平行於外加磁場方向，所以在飽和磁場的情況下，表示 $\phi = \theta$ ， R_{\perp} 為外加磁場垂直樣品長軸時之飽和電阻值，我們稱做橫向磁阻(TMR)； R_{\parallel} 為外加磁場與樣品長軸平行時的飽和電阻值，我們稱做縱向磁阻(LMR)； $\Delta R = R_{\parallel} - R_{\perp}$ ，即為縱向與橫向的飽和電阻值的差值。

由圖 4-1(a)可以看到我們 Co 平板線(A2 系列，線寬 $0.46\mu\text{m}$)樣品在外加磁場與長軸夾不同夾角的磁電阻曲線， $\theta=0^{\circ}$ 時在小磁場內電阻曲線呈現不可逆的遲滯現象，並且有反應出單一磁區的 switching 特徵磁區翻轉，而 $|H| > 750 \text{ Oe}$ ，磁電阻即維持一定值，代表已達到飽和磁電阻的狀態。而在長軸與外加磁場夾角 30° 、 45° 、 60° 時，除了小磁場仍有不可逆的遲滯現象外，在高磁場下則呈現出可逆的磁電阻曲線，也表示了樣品內部為單一磁區的磁矩做整體翻轉。而隨著磁場增加到我們所能提供最大磁場 2.6kOe 時，除了 $\theta=0^{\circ}$ 以外的磁電阻曲線阻有些微下降的趨勢，代表尚未到達該角度的飽和磁場。我們發現在高磁場下的磁電阻曲線呈現一個指數函數遞減的趨勢，所以可以利用數值擬合的方式，外插一趨勢線，以得到飽和磁場得到各角度的飽和磁電阻值，如圖 4-1(b)所示。而由式子 4-1 可知道，隨著外加磁場與樣品長軸夾角 θ 減少，飽和磁電阻值應隨著 $\cos^2 \theta$

關係式增加，如果我們可以得到此趨勢的話，即可證明飽和磁電阻主要來自異向性磁阻效應。

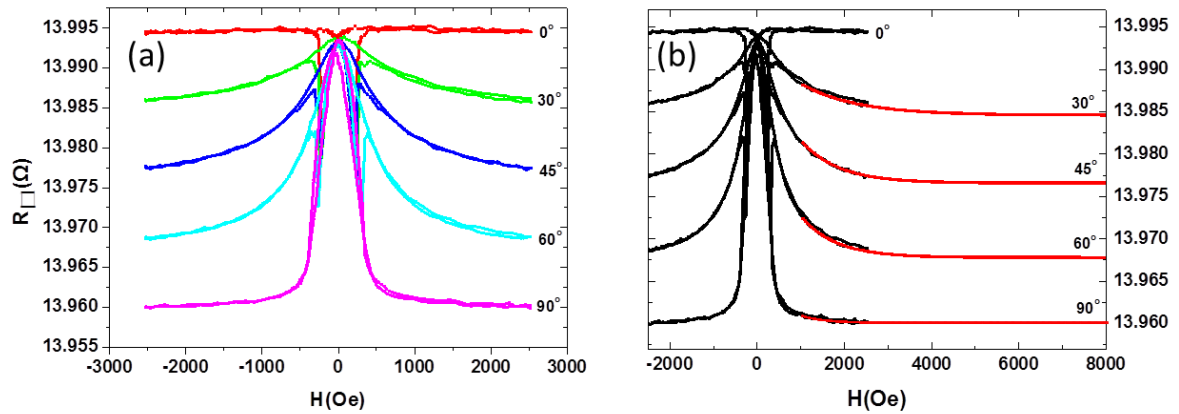


圖 4-1 (a)A2 系列 0.46 μm 樣品在 100K 下的磁電阻曲線圖，曲線旁的數字為對應的 θ 值；
(b)黑色曲線為左圖之磁電阻曲線圖，紅色曲線為擬合下外插至 8 kOe 下的飽和磁電阻值，角度標示在曲線旁。

圖 4-2 為 A2 系列的 Co 平板線各線寬在長軸與外加磁場夾不同角度的飽和磁電阻值，其中綠色實心綠點為在外加磁場在 2.6 kOe 下的磁電阻值，藍色空心三角形為擬合得到的飽和磁電阻值，紅色虛線是利用 LMR 的飽和磁電阻值和擬合的 TMR 飽和磁電阻值帶入數學式 4-1 所得到飽和磁電阻值與 $\cos^2 \theta$ 間的趨勢線。可以發現到其實在 2.6 kOe 下各線寬的磁電阻已經接近飽和磁場的磁電阻值，但經過擬合過後的飽和磁電阻值又更接近我們由式子 4-1 所得到的趨勢線，而在 A1 系列的四個線寬也可以得到一樣的結果，所以我們製作的 Co 平板線隨著外加磁場與長軸夾角越大，電阻隨之減小的現象，是由異向性磁阻效應所產生的。

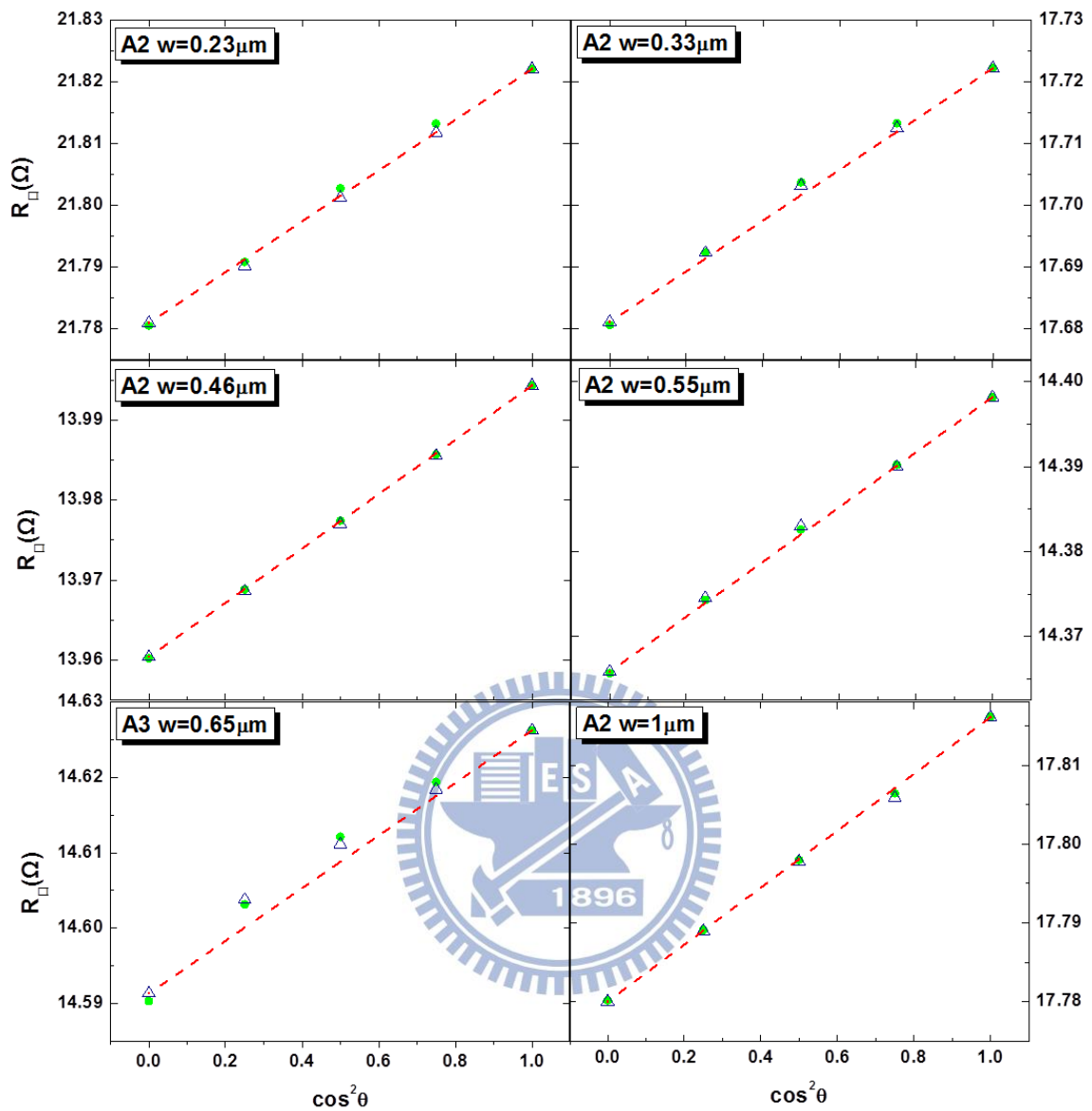


圖 4-2 A2 系列 Co 平板線飽合磁電阻與 $\cos^2 \theta$ 關係圖，樣品線長度為 $30\mu\text{m}$ ，線寬分別為 0.23 、 0.33 、 0.46 、 0.55 、 0.65 、 $1\mu\text{m}$ ，綠色實心圓點為外加磁場 2.6kOe 下的電阻值；藍色空心三角形為各角度用數值擬合得到的飽合磁電阻值；紅色虛線為理論上異向性磁阻所表現的趨勢線。

而如果我們將 4-1 式同除 R_{\parallel} 可以得到：

$$\frac{R(\theta)}{R_{\parallel}} = \frac{R_{\perp}}{R_{\parallel}} + \frac{\Delta R}{R_{\parallel}} \cos^2 \theta \quad (4-2)$$

其中 $\cos^2 \theta$ 項前面的係數 $\Delta R/R_{\parallel}$ 我們稱作 AMR ratio，是用來定義一個樣品的 AMR 效應

強弱的參考依據，如果 AMR ratio 的數值越大，則表示此樣品的 AMR 效應越強。圖 4-3 是將 AMR ratio 對樣品在 LMR 的飽合磁場下的方塊電阻值作圖，可以看到同系列的樣品線有類似的 AMR ratio 值，在之前實驗室的姜智鈞學長所製作的 Co 樣品線中，方塊電阻值大於 $14\ \Omega$ 的樣品裡，有著隨著方塊電阻值上升而使 AMR ratio 下降的趨勢，而從我們兩批不同系列的樣品來看，A2 系列有著類似的趨勢，而 A1 系列則大致呈定值，若不考慮最右邊的一點，也是有下降的趨勢在。

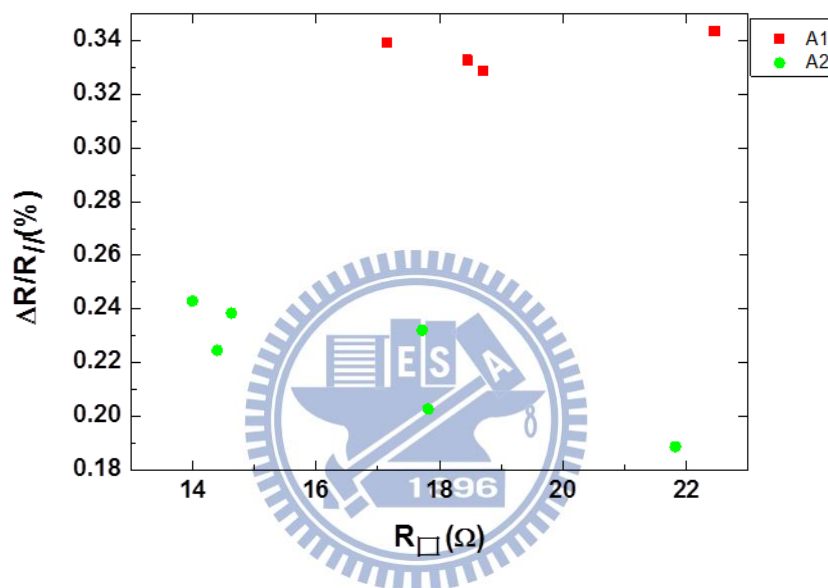


圖 4-3 AMR ratio 與樣品在溫度 100K 時的飽合磁場下方塊電阻值關係圖。

4-2.2 磁電阻曲線特性

我們在第二章利用理論計算得到長寬比大於 25 的 Co 平板線會出現單磁區的特性，但在我們的樣品的長寬比皆大於 30，卻也發現有多磁區的情況產生，所以下面我們會分別介紹單磁區與多磁區的磁電阻線的特性，並且對我們的樣品加以分類。

單磁區(single domain)特性

圖 4-4 為我們 A2 系列樣品 $w=0.46\mu\text{m}$ 的 LMR 曲線，從圖中我們可以看到在 LMR 的情況下，外加磁場由高磁場降到零磁場，樣品中的磁矩仍沿著長軸排列，殘餘磁阻與飽合磁阻相同，隨著磁場往負磁場增加，有少部分的磁矩開始隨著磁場強度逐漸轉向，磁電阻緩慢降低，但大多數的磁矩還是維持原本的方向，但到達某個磁場後，所有的磁矩會瞬間作一個不可逆的翻轉，如圖 4-4 箭頭所指的部分，我們稱作 **Switching field**， H_{sw} ，翻轉後磁矩會全部躺在長軸上，並隨著負磁場的方向排列，為單磁區的特性。

在 TMR 的情況，我們從圖 4-5 可以看到在外加磁場最大時，磁矩隨著外加磁場方向排列，躺在短軸上，隨著外加磁場減小，磁矩也隨著慢慢翻轉到的長軸上，而當磁場再往負方向增加時，磁矩也漸漸隨著磁場方向翻轉到短軸的方向，不像 LMR 有不可逆的翻轉發生，此時內部磁矩翻轉為 **coherent rotation**。且由 TMR 曲線判斷，從正磁場掃到負磁場以及從負磁場掃回正磁場的電阻曲線兩者沒有明顯的偏移，表示只有些微的遲滯現象產生，以及 TMR 曲線的峰值接近 LMR 的飽合磁阻值，也是樣品接近單磁區結構的性質之一。

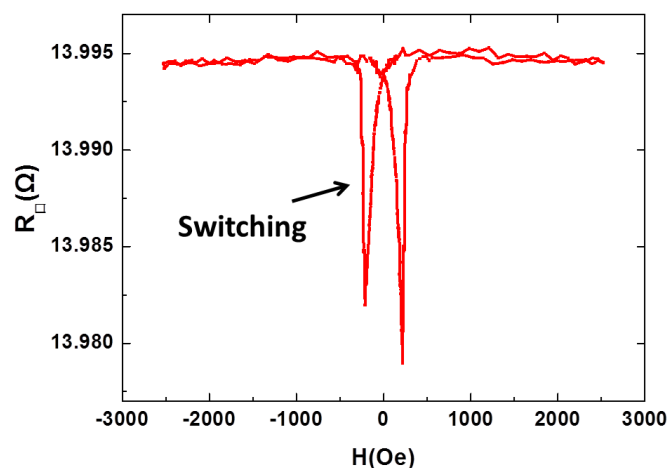


圖 4-4 A2 系列線寬為 $0.46\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下的 LMR 曲線。

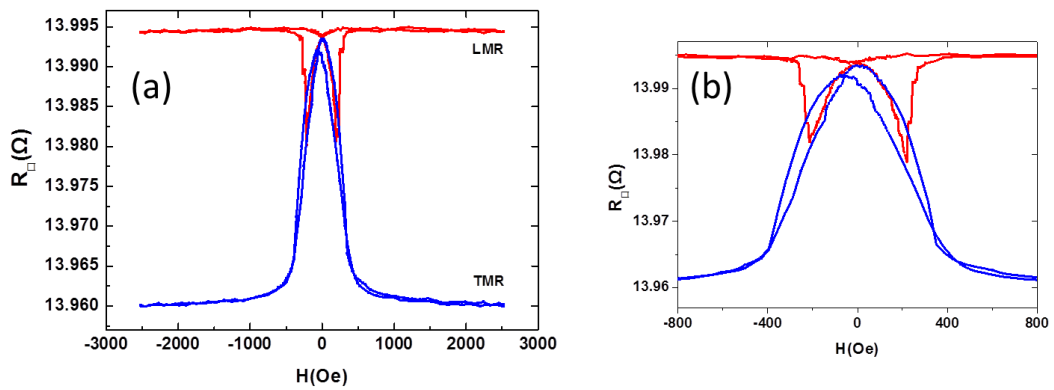


圖 4-5 A2 系列線寬為 $0.46\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下的 LMR 與 TMR 曲線，右圖為磁場在 -800 到 800Oe 的放大圖。

多磁區(multi-domain)特性

圖 4-6(a)為我們 A1 系列線寬為 $0.87\mu\text{m}$ 的樣品在外加磁場與長軸夾不同夾角的磁電阻曲線圖。在縱向的情況，在高磁場下所有磁矩會平行外加磁場方向，此時有較高的電阻值，隨著磁場變小，磁矩慢慢的翻轉，磁區間有磁壁生成以降低靜磁能，磁電阻會逐漸減少，當磁場持續往負方向增加，達到一最低點時，此時的磁場我們稱作矯頑場 (coercive field, H_c)。過了矯頑場之後磁電阻會漸漸上升，而不是像單磁區結構有出現明顯的 Switching 情況，表示樣品內部的磁區結構會隨著磁壁的生成與消失而改變，直到所有磁矩都轉至負磁場方向排列，而回到較高電阻值的狀態，這就是多磁區結構的特性。圖 4-6(b)為圖 4-6(a)在 -800 到 800Oe 的磁場下的橫向與縱向的磁電阻曲線圖，可以看到此時 TMR 曲線，從正磁場掃到負磁場以及從負磁場掃回正磁場的電阻曲線並未相互重合，表示有在磁矩翻轉的過程中有磁壁生成，產生遲滯現象，在零磁場時，殘磁磁阻明顯小於 LMR 下的飽合磁電阻值，代表為多磁區結構。且雖然我們看到可能因為側邊氧化而造成稍微的偏移產生，但並不影響我們的 Co 平板線在高磁場下呈現可逆的翻轉線象。

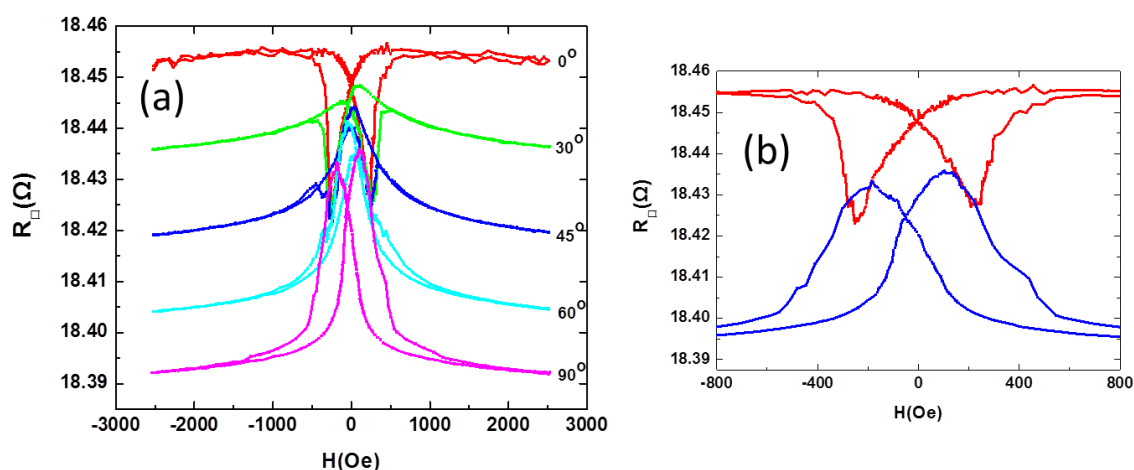


圖 4-6 (a) A1 系列線寬為 0.87 μm 樣品在 100K 下在不同磁場方向的磁電阻曲線，圖(b) 為此樣品在磁場介於-800 到 800 Oe 間的 LMR 與 TMR 放大圖。

由上述兩種磁區結構，我們可以大致將我們的樣品分成兩類：

1. 類似單磁區結構：LMR 磁電阻線在某一磁場下有明顯的 Switching 現象產生，且沒有明顯的遲滯現象，此磁場我們定義作：

$$H_{\text{sw}} = \frac{|H_{\text{sw1}} - H_{\text{sw2}}|}{2} \quad (4-3)$$

2. 類似多磁區結構：翻轉過程中內部磁區間有磁壁生成，在 LMR 下過了轉折點過後磁電阻緩慢增加，此時的磁場稱為 H_c ，且有明顯的遲滯現象發生。

$$H_c = \frac{|H_{c1} - H_{c2}|}{2} \quad (4-4)$$

所以我們的 Co 平板線可分類如下表所示，可以發現 A1 系列在線寬 0.45 μm 時才有出現單磁區結構的特性，不同於 A2 系列，在 1 μm 的線寬就開始有單磁區的特性出現，我們猜測可能是因為沉積時的條件不同所造成的影響，A1 系列 Co 的鍍率為 4.3 $\text{\AA}/\text{s}$ ，A2 系列的鍍率為 3 $\text{\AA}/\text{s}$ ，且在前面也有看到 A1 與 A2 系列兩樣品的 AMR ratio 有所差距，表示這兩次的鍍膜的確有所不同，且會影響到內部磁區結構。

表 4-3 Co 樣品單磁區與多磁區分類表

| 類別 | 線寬 w(μm) | H _{sw} | H _c |
|----|----------|-----------------|----------------|
| A1 | 1.07 | | O |
| | 0.87 | | O |
| | 0.54 | | O |
| | 0.45 | O | |
| A2 | 1 | O | |
| | 0.65 | O | |
| | 0.55 | O | |
| | 0.46 | O | |
| | 0.33 | O | |
| | 0.23 | O | |

H_{sw} 有著線寬變小而隨之變大的趨勢，而在我們的樣品也有看到同樣的現象，圖 4-7 是我們 A2 系列樣品的 H_{sw} 與線寬的關係圖，H_{sw} 隨著線寬變大而呈現單一雙曲線的遞減的趨勢，其式子可表示為[23]：

(4-5)

$$H_{sw}(w) = H_{sw}(w \rightarrow \infty) + \frac{1}{\pi} M_s t \frac{1}{w}$$

H_{sw}(w → ∞) 表示理論推算的 Co 薄膜的 switching field 值；M_s 為 Co 的飽合磁矩；t=30nm；w 為線寬，因此我們利用雙曲線方程去擬合，得到此趨勢線。而 H_{sw} 與線寬有此遞減趨勢存在是因為去磁效應(demagnetizing effect)導致線寬較小的樣品形狀異向性能(shape anisotropy energy)提高，使得樣品內部磁矩需要較大的反方向磁場才能克服形狀異向性能而翻轉到反平行方向排列。

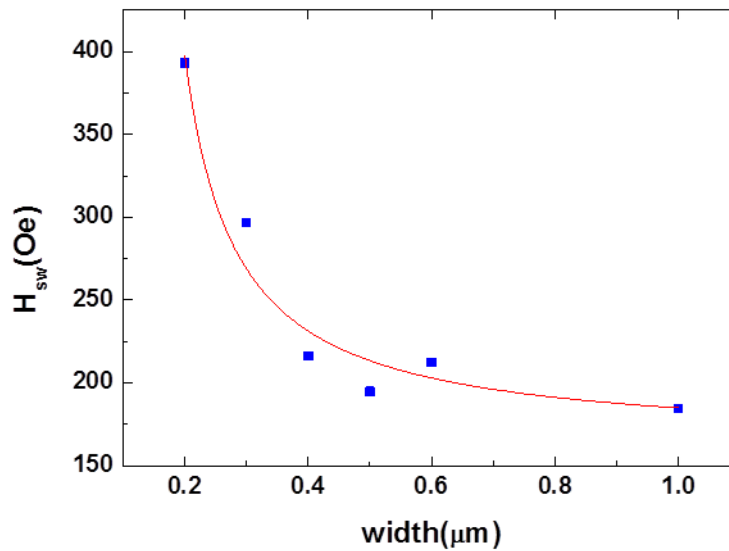


圖 4-7 A2 系列樣品的 H_{sw} 與線寬關係圖。

4-3 Co/CoO 兩層結構的特性探討

在上個小節裡我們探討了單一 Co 平板線的磁矩翻轉形式，並發現在線寬小於 $1\mu\text{m}$ (長寬比大於 30) 的樣品線裡，都有發現類似單磁區結構的特性，所以我們濺鍍一層 2nm 厚的 CoO 反鐵磁層之後，在上面沉積一層 Co 鐵磁層，除了 B1 系列的 Co 厚度為 30nm 以外，其餘 B2、B3、B4 的 Co 厚度都是 28nm，來探討此層氧化層如何影響我們 Co 平板線內的磁矩翻轉形式，並探討長寬比對 Co/CoO 兩層結構的各種特性的影響。

4-3.1 磁電阻曲線

我們量測時，是先將樣品降溫到 100K 之後，外加一正 2.6 kOe 的磁場，再從正磁場往負磁場掃，之後在由負磁場往回掃到正磁場。圖 4-8 是我們線寬在 $0.3\mu\text{m}$ 左右，但不同系列的樣品線 LMR 磁電阻曲線圖，A2 為未氧化的 Co 30nm，B1 為 Co 30nm/CoO 2nm，B2、B3、B4 都是 Co 28nm/CoO 2nm。有氧化層的樣品，皆沒有 Switching 的現象產生，表示氧化層會抑制 Co 層發生 Switching 的現象，增加磁壁的生成，而形成多磁

區結構。在變化率方面，相較於未氧化的 Co 樣品的 LMR 曲線，變化率都有顯著的增加，表示反鐵磁層會對 Co 層內部磁矩翻轉有所影響。除此之外，也發現了磁電阻曲線的不對稱性更加明顯，但並不是一致的往負磁場方向偏移，在 B1、B2 兩系列 0.4 μm 以下的線寬以及 B3 的 0.53 μm 線寬都有往正磁場方向偏移的情況，而其他線寬都是往負磁場方向偏移，所以我們接著討論這兩個不同的情況。

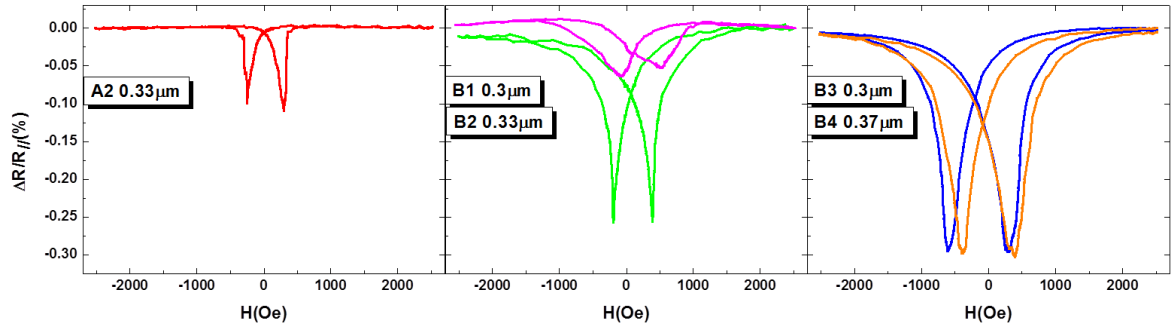


圖 4-8 由左而由右分別是 A2 $w=0.33\mu\text{m}$ (紅)、B1 $w=0.3\mu\text{m}$ (紫)、B2 $w=0.33\mu\text{m}$ (綠)、B3 $w=0.3\mu\text{m}$ (橘)、和 B4 $w=0.37\mu\text{m}$ (藍) 五個樣品在 100K 下的 LMR 曲線圖。

圖 4-9(a)是 B4 系列 0.46 μm 樣品在 100K 下的外加磁場與長軸夾不同角度的磁電阻曲線圖，LMR 曲線往負磁場偏移，且其在 30°、45°、60° 的角度的磁電阻曲線的呈現右高左低的現象。在高磁場時，鐵磁層內部磁矩皆沿著磁場方向排列，而 Co 與 CoO 交界處的磁矩也是與磁場同方向排列，而其餘呈反平行排列，此時有最大的磁電阻值。隨著磁場逐漸減少，反鐵磁層因為晶格異向性能較大，內部磁矩不隨著磁場翻轉，而原本鐵磁層應在接近零磁場前就開始翻轉，但因為鐵磁層與反鐵磁層間交換耦合作用，使得鐵磁層被固定在原來的方向上，需要較大的磁場才能翻轉；磁場持續往負磁場增加，磁矩開始逐漸翻轉來到最低點後在緩慢的翻轉回到長軸上，但因為反鐵磁層的影響，鐵磁層與反鐵磁層間的磁矩並不會完全平行於負磁場的方向，造成飽合磁電阻下降，之後由負磁場往正磁場掃，由於反鐵磁層會給予鐵磁層一力矩使他翻轉回到原來的方向，表示鐵磁反鐵磁介面的磁矩偏好平行排列，所以在接近零磁場前磁矩即開始翻轉導致開始下降，經過轉折點後，回到一開始正磁場的飽合磁阻值，。

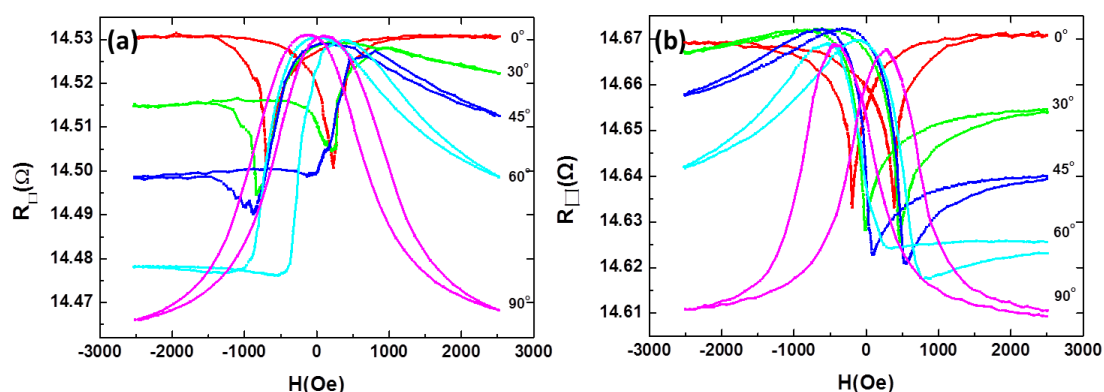


圖 4-9 圖(a) 為 B4 系列 $w=0.46\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下的磁電阻曲線圖，LMR 曲線往負磁場方向偏移，其餘角度呈現右高左低的不對稱性；圖(b)為 B2 系列 $w=0.3\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下的磁電阻曲線圖，LMR 曲線往正磁場方向偏移，其餘角度呈現左高右低的不對稱性。

而當磁場與長軸夾 30° 時，反鐵磁層不隨著磁場改變，反鐵磁層介面的磁矩與電流同向，依然在長軸上呈反平行排列，如圖 4-10 所示；在高磁場下，鐵磁層由於外加磁場方向改變，原本磁化向量應和長軸間夾角 θ 應該大約等於 30° ，但由於反鐵磁層的交互作用影響，使得 $0^\circ < \theta < 30^\circ$ (圖 4-10 (a))，而隨著磁場逐漸減小到零磁場附近，此時磁矩大致上躺在長軸上，而得到電阻最大值(圖 4-10 (b))；當磁場往負磁場增加，此時磁矩往負方向翻轉，此時的 $\theta < 0^\circ$ ，當負磁場達到一定值時，鐵磁層的磁矩克服與反鐵磁層的交互作用力，而作一不可逆的翻轉(圖 4-10 (c))，到負高磁場逐漸趨於一定值，表示達到該角度的飽和磁電阻值， $\theta \cong -150^\circ$ (圖 4-10 (d))。接著由負磁場往正磁場掃，反鐵磁給予鐵磁層一力矩使得剛經過正磁場後立刻達到矯頑場而翻轉(圖 4-10 (e))，電阻值逐漸上升值到磁矩與長軸平行後在回到一可逆的電阻值回到高磁場。且上述現象隨著外加磁場與長軸夾角越大，負磁場的磁電阻值與正磁場的磁電阻值差值會越大[24][25]。而在磁場與長軸夾 90° 時，此時鐵磁層與反鐵磁層內部磁矩都隨著磁場作 coherent rotation，而交換偏耦合效應明顯變小。

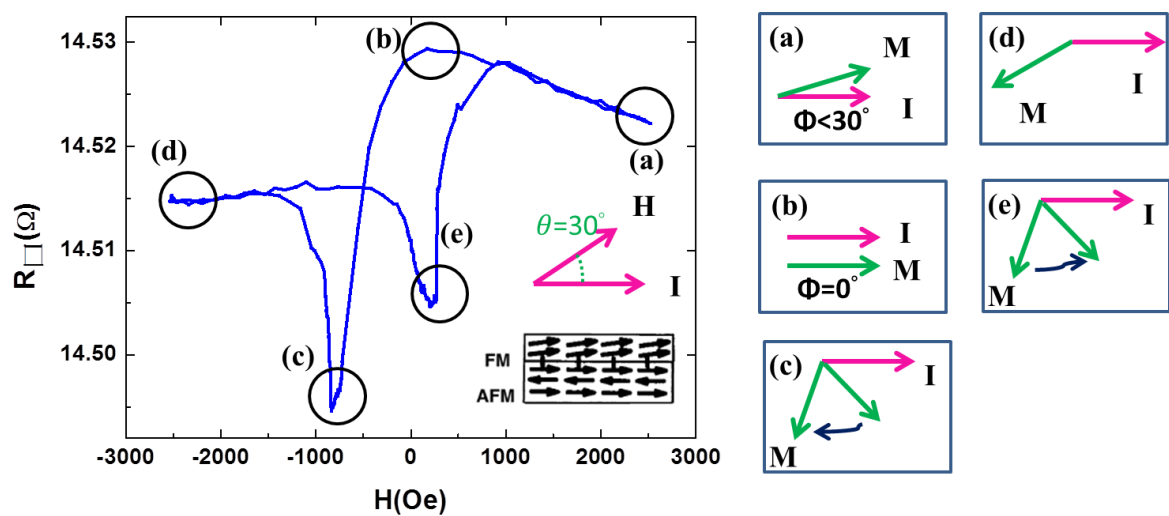
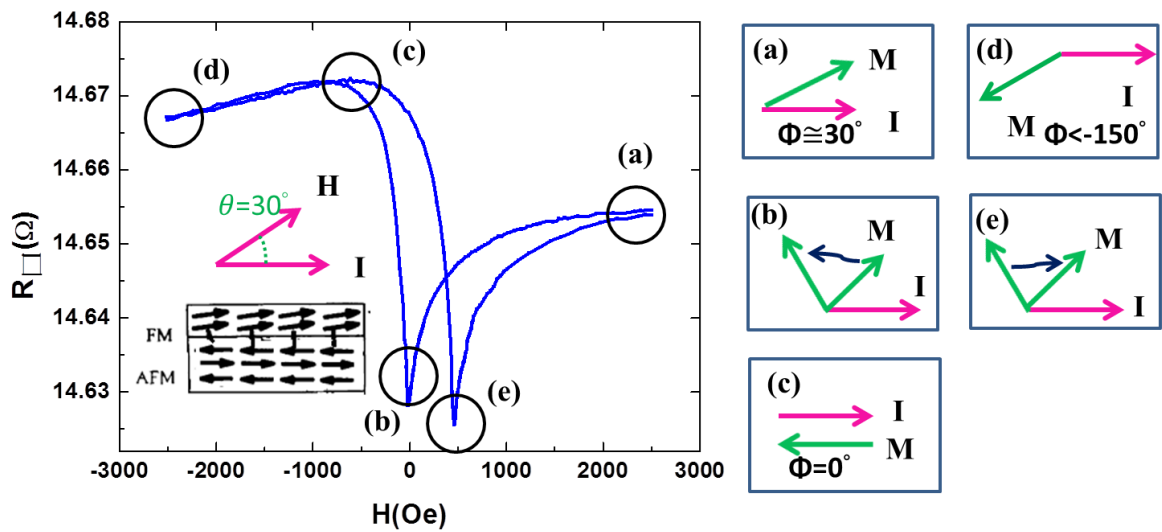


圖 4-10 左圖為 B4 $w=0.46\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下磁場與長軸夾 30° 角時的磁電阻曲線，以及當時的鐵磁/反鐵磁介面剖面圖；右邊五張圖為左圖各個特徵位置的磁化方向示意圖，其中 M 表示鐵磁層的磁化向量、I 表示電流方向。

接下來討論正磁場偏移的情況，我們僅有在四個樣品有發現這樣的情形，在一般的鐵磁反鐵磁層介面，我們是假設在飽合磁場下介面處的鐵磁和反鐵磁層是平行排列的，但由於介面的粗糙程度的不同，或者是製程過程中反鐵磁層即固定內部磁矩排列，導致在高磁場下，介面處的鐵磁層與反鐵磁層恰好為反平行排列，隨著磁場逐漸減弱，由於鐵磁反鐵磁介面的磁矩偏好平行排列，所以反鐵磁層給予鐵磁層一吸引力矩，使得鐵磁層內部磁矩接進零磁場即開始進行反轉，達到矯頑場後，隨著磁場往負方向增加，磁矩在緩慢翻轉回到長軸上；而由負磁場往正磁場掃的過程，由於介面間的交互作用，所以需要較大的正磁場能使鐵磁層內部翻轉，所以 $|H_{c2}| > |H_{c1}|$ ，最後再回到高磁場達到飽和磁電阻，造成 LMR 曲線往正磁場偏移，整個翻轉機制恰好與往負磁場偏移的樣品完全相反。



4-11 左圖為 B2 $w=0.3\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下磁場與長軸夾 30° 角時的磁電阻曲線，以及當時的鐵磁/反鐵磁介面剖面圖；右邊五張圖為左圖各個特徵位置的磁化方向示意圖，其中 M 表示鐵磁層的磁化向量、 I 表示電流方向。

而當外加磁場與長軸間夾角 θ 大於 0° 時，以 $\theta=30^\circ$ 為例，在正高磁場的情況，反鐵磁層仍然因為強異向性能而不隨磁場改變磁矩排列方向，且此時介面的磁矩與鐵磁層磁矩夾大約 150° 角，而鐵磁層磁化向量與電流方向間夾角 $\phi \cong 30^\circ$ ，為飽和磁電阻的情況(圖 4-11(a))；當磁場到接近零磁場時，由於反鐵磁層與鐵磁層介面間的磁矩傾向平行排列，所以鐵磁層在接近零磁場時就產生翻轉(圖 4-11(b))；翻轉後隨著磁場往負方向逐漸增加，當內部磁矩與電流方向相反時，有電阻最大值(圖 4-11(c))，最後達到我們能提供最大的 -2.6 kOe 的磁場下，磁電阻尚未達到飽和磁場(圖 4-11(d))。反向掃磁電阻曲線的過程中，由於反鐵磁層會抑制鐵磁層的翻轉，所以需要更大的正磁場才能克服反鐵磁層的吸引力矩而翻轉(圖 4-11(e))，最後回到高磁場下達到飽和磁場。

由前面分析我們可以知道，鐵磁/反鐵磁介面間的磁矩偏好同向排列，所以鐵磁層內磁矩隨著磁場變化而翻轉時，會受到反鐵磁層介面的磁矩排列方向的影響，造成磁電阻曲線往負磁場偏移或者正磁場偏移的情況；而我們也發現，雖然是同系列樣品，但在高磁場下，鐵磁/反鐵磁介面卻會出現平行排列以及反平行排列兩種情況，表示就算是同

一批鍍膜的樣品，也可能有不同的效應產生，可能與樣品介面的粗糙程度以及反鐵磁層內晶格排列有關。

當利用 AMR ratio 對 LMR 時的飽合磁場時的方塊電阻值作圖，則有著大致上有著方塊電阻值越大 AMR ratio 越小的趨勢，與我們在先前 Co 平板線中所得到的趨勢大致相同。且 B1 系列方塊電阻值皆偏大，AMR ratio 也明顯比其他系列的樣品來的小，在後面的分析也發現到 B1 與其他系列有不同的趨勢存在。

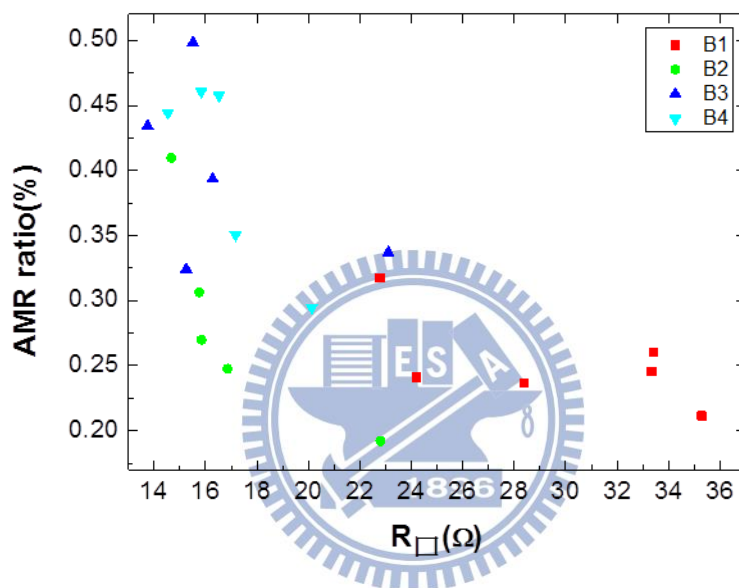


圖 4-12 Co/CoO 兩層結構四個系列的 AMR ratio 與飽合磁場時的方塊電阻值關係圖。

4-3.2 交換偏耦合(exchange bias coupling)

隨著外加磁場變化，在 Co/CoO 兩層結構下，由於 Co 與 CoO 之間有很強的交換偏耦合(exchange coupling)，所以會造成磁阻曲線的偏移。如圖 4-13 所示，由正磁場往負磁場掃的最低點我們定義為 H_{c1} (coercive field 1)，由負磁場往正磁場的最低點定義為 H_{c2} (coercive field 2)，則磁電阻曲線的偏移量我們可以表示為[27]：

$$H_{eb} = \frac{|H_{c1} + H_{c2}|}{2} \quad (4-5)$$

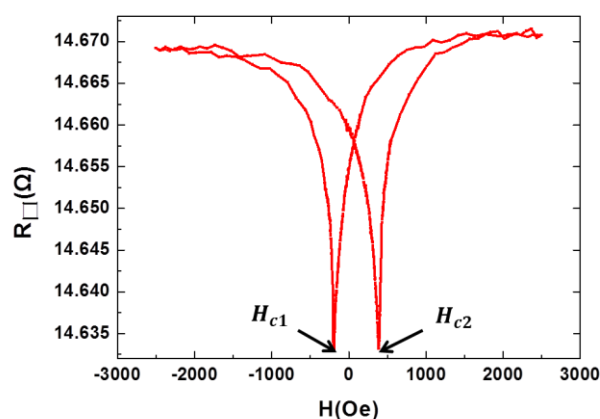


圖 4-13 B2 系列 $w=0.3\mu\text{m}$ 樣品在 100K 下的 LMR 曲線圖， H_{c1} 與 H_{c2} 為最低點的磁場值。

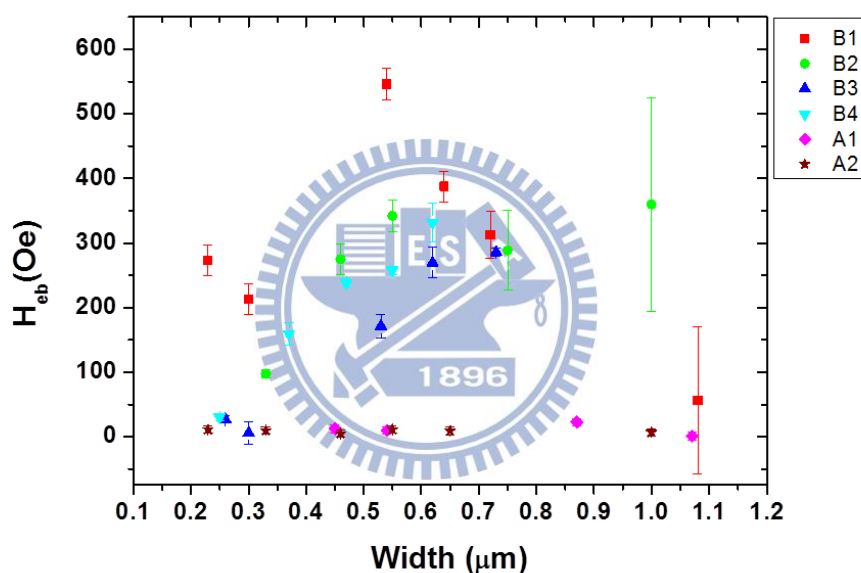


圖 4-14 各系列樣品交換偏耦合磁場與線寬關係圖。

由圖 4-14 可以看到單一的 Co 平板線的 H_{eb} 值大約都在 10 Oe 左右，表示幾乎沒有交換偏耦合的情形發生，表示側邊氧化在 100K 的溫度下，對我們的樣品影響並不大，雖然在章節 2-5.1 有提到側邊氧化對交換偏耦合也會有所影響[3]，但可能因為製程上的差異，他們的氧化層是將 Co 樣品靜置在純氧下進行氧化，而我們的 CoO 層是先濺鍍製成的，在腔體未破真空前，又依序覆蓋 Co 層與 3nm 厚金，所以我們的樣品中的側邊氧化程度可能比較輕微，側邊氧化對我們的樣品影響不大，因此以下探討我們都省略了側邊氧化所帶來的效應。

接著看到 Co/CoO 兩層結構內，交換偏耦合的現象就變得十分明顯，先看到 B2、B3、B4 系列都有隨著線寬變小，交換偏耦合有逐漸下降的趨勢，由其在 B3、B4 的 $0.3\mu\text{m}$ 以下的線寬， H_{eb} 更是降到 50 Oe 以下，表示線寬越小， H_{eb} 會越小；F. Radu *et al.* 在 10K 溫度下量測 $\text{CoO}(2.5\text{nm})/\text{Co}(27\text{nm})$ 的塊材，其厚度與我們的樣品類似，所得到的 H_{eb} 為 2321 Oe [28]，遠大於我們的平板線樣品。上述現象與我們在章節 2-5.2 所看到 NiO/Ni 兩層結構在室溫下有類似的趨勢[2]，此樣品是屬於 AFM/FM，也就是反鐵磁層在上的兩層結構，而本次實驗中的 FM/AFM 改為反鐵磁層在下，雖然結構組成與材料種類不同，但同樣得到有隨線寬變小，交換偏耦合跟著減弱的趨勢，推論是因為隨著線寬減小，能影響交換偏耦合的反鐵磁壁(antiferromagnetic domain wall)也隨之減少，才導致 H_{eb} 隨線寬縮小而遞減；但在其它的鐵磁/反鐵磁研究中也發現到 H_{eb} 與線寬 w 成反比的趨勢[30]，所以現在尺寸對於交換偏耦合效應的影響至今仍然沒有一個定論。而 B1 系列在 $0.54\mu\text{m}$ 樣品有 H_{eb} 最大值，而線寬變寬或變窄都會造成 H_{eb} 變小，在前一節有提到 B1 系列的 AMR ratio 與其他系列相比來的較小，我們推測是因為 B1 系列鍍膜時的條件不同，沉積時的鍍率比其餘三組樣品來的大，且 Co 厚度較厚，可能造成 Co 與 CoO 間的交換偏耦合強度不同，而出現不一樣的趨勢。

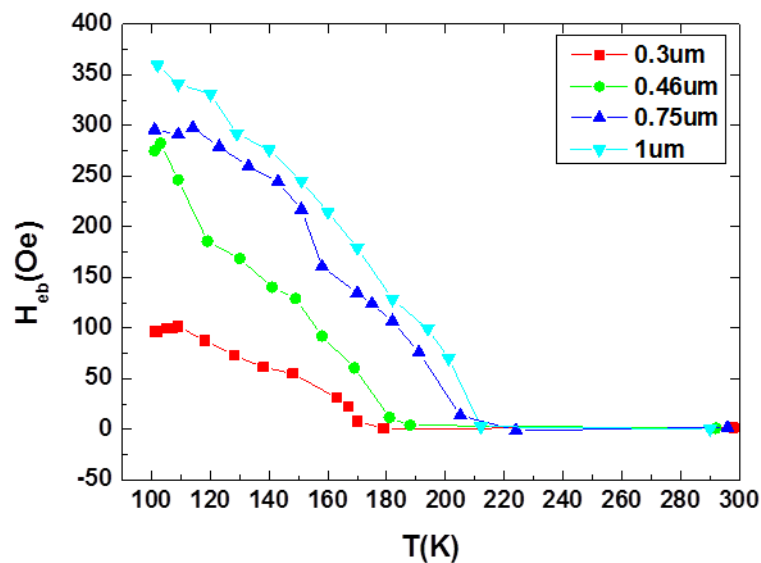


圖 4-15 B2 系列四個不同線寬的溫度與 H_{eb} 關係圖。

我們討論溫度對 H_{eb} 所造成的影響，圖 4-15 為我們 B2 系列在四個不同線寬下的溫度與 H_{eb} 的關係圖，我們大約上升 10K 左右會掃一次 LMR 曲線，掃一次完整的磁電阻曲線時間溫度變化大概在 2K 左右。當溫度逐漸上升， H_{eb} 就隨之變小，而當 H_{eb} 變為零時，表示 CoO 與 Co 間的交換耦合強度減小到不足已影響 Co 平板線內的磁矩翻轉而造成偏移， H_{eb} 變為零的溫度我們稱做 blocking temperature， T_B ，我們的樣品大約在 180~210K 之間 H_{eb} 變為零，且隨著線寬變大 T_B 會逐漸增加，表示 CoO 線寬較粗的樣品所呈現的反鐵磁性越明顯。而 CoO 晶體的 Néel temperature 大約在 297K 左右，而由圖 2-12(b) 我們看到隨著反鐵磁層厚度越薄，blocking temperature 與 Néel temperature 都會隨之下降，但在反鐵磁層厚度小於 50Å 時，blocking temperature 的下降幅度大於 Néel temperature 的下降幅度，由於我們樣品的 CoO 厚度為 2.0 nm，所以推測在我們的樣品中， $T_N > T_B$ [17]。在章節 2-4.4 中的圖 2-12(a) 中，我們的樣品與他們 CoO 厚度為 25Å 的樣品有類似的趨勢，樣品的 T_N 都是大於 T_B ，且在溫度接近 100K 時斜率有變的較為平緩。

Takano 藉由研究 $Ni_{81}Fe_{19}(30nm)/CoO(t)$ ， $t=1.5, 2.5, 5.0, 10.0$ nm，發現隨著厚度越薄 ($t \geq 2.5nm$)， H_{eb} 在 50K 的溫度下有逐漸上升的趨勢，他們利用 TEM plan view micro-graphs 來觀察不同厚度的 CoO 的顆粒直徑 (grain diameter)，推測是因為 CoO 的顆粒直徑 (grain diameter) 隨著厚度變小，導致非補償性自旋 (uncompensated spins) 的增加所造成的 [16]。

4-3.3 磁場相對長軸角度對交換偏耦合的影響

本實驗進行量測時，先由外加磁場與長軸夾角 $\theta=0^\circ$ 開始，接著依序量測 $\theta=30^\circ$ 、 45° 、 60° 最後量測 90° ，因此反鐵磁層的層層磁矩會隨著樣品長軸方向呈現交替反平行排列，且當樣品長軸與外加磁場夾角在 $0^\circ < \theta < 90^\circ$ 之間時，由於 CoO 晶體的強異向性能，其內部磁矩不會隨著外加磁場而改變方向，仍然與鐵磁層產生的交互耦合作用，影響磁矩翻轉。

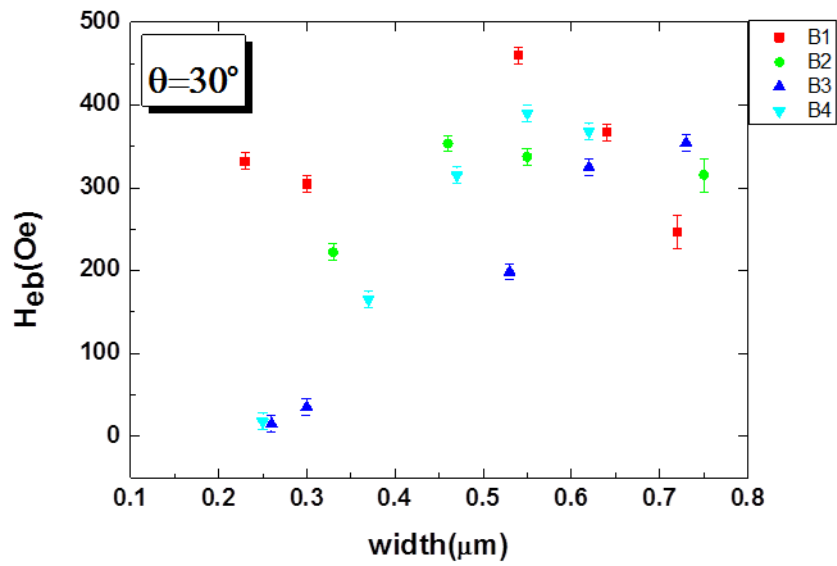


圖 4-16 外加磁場與長軸夾角 $\theta=30^\circ$ 時的交換偏耦合磁場與線寬之關係圖。

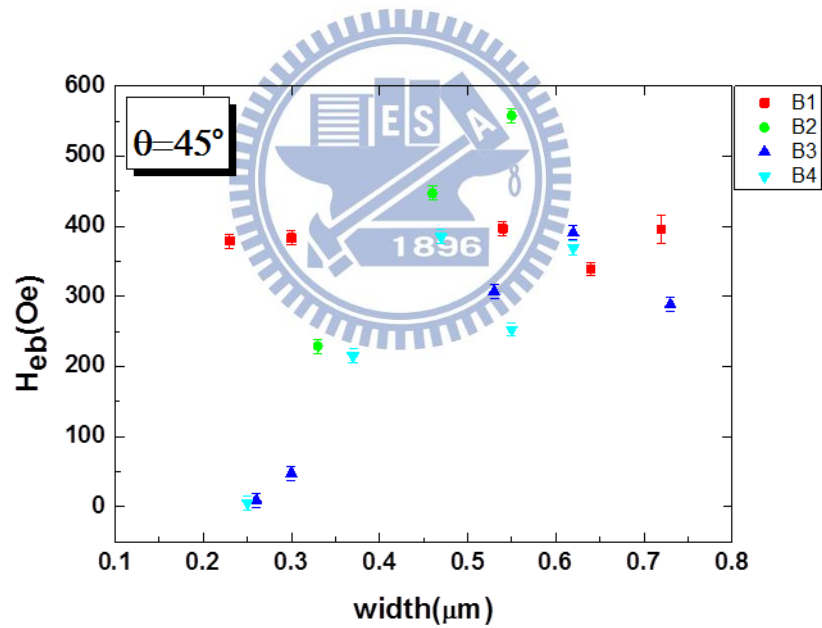


圖 4-17 外加磁場與長軸夾角 $\theta=45^\circ$ 時的交換偏耦合磁場與線寬之關係圖。

圖 4-16 以及圖 4-17 分別為外加磁場與長軸夾角 $\theta=30^\circ$ 及 45° 時的交換偏耦合與線寬之關係圖，與 $\theta=30^\circ$ 與 $\theta=0^\circ$ 的時情況有一樣隨著線寬減小而 H_{eb} 變小的趨勢，但當 $\theta=45^\circ$ 時，在線寬小於 $0.5\mu\text{m}$ 仍然擁有相同趨勢，線寬大於 $0.5\mu\text{m}$ 後並非都隨著線寬變大而 H_{eb} 上升，表示在大線寬的反鐵磁磁矩較容易受到外加磁場方向的影響，而改變與鐵磁層間

的交換偏耦合強度。而有些較大的線寬如 B1 $1.08\mu\text{m}$ 及 B2 $1.0\mu\text{m}$ 的樣品因為轉角度後的矯頑場不容易辨識，因此沒在數據中呈現。

而當 $\theta=90^\circ$ 時，與先前三組數據相比，交換偏耦合場的大小明顯降低許多，是因為反鐵磁層此時的形狀異向性能(uniaxial anisotropy)主導內部磁矩的翻轉，使得樣品的鐵磁層以及反鐵磁層內部磁矩皆隨著外加磁場做 coherent rotation[31]。但其中 B1 $w=0.23\mu\text{m}$ 及 $w=0.3\mu\text{m}$ 兩個樣品沒有顯著的交換偏耦合下降，可能當時磁場相對長軸角度有些為誤差，或由於樣品本身反鐵磁層的磁矩稍微偏離長軸，因此在鐵磁層磁矩作 coherent rotation 時，兩反方向短軸磁場下磁矩的翻轉不一而有交換偏磁場。

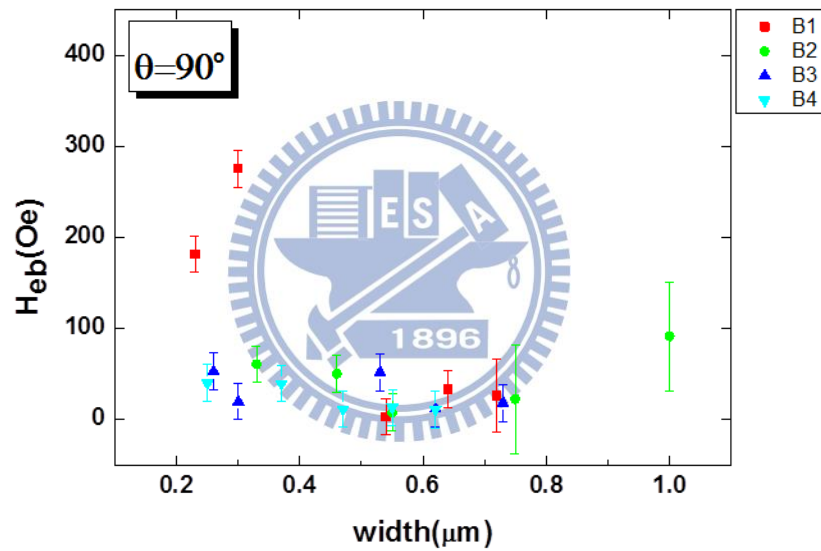


圖 4-18 外加磁場與長軸夾角 $\theta=90^\circ$ 時的交換偏耦合磁場與線寬之關係圖。

4-3.4 矯頑場(Coercive field, H_c)

在 Co/CoO 兩層結構的樣品裡，不論任何線寬的樣品都是在過了磁阻曲線的最低點後，磁矩緩慢的翻轉回到長軸方向，沒有明顯的 Switching 現象發生，代表樣品內部呈多磁區的狀態分布，表示 CoO 層確實會影響 Co 層的磁矩翻轉，並促進磁壁的生成。

而在章節 2-4.3 中有提到說因為 Co 與 CoO 的交互作用，會使得矯頑場有增大的現象，由圖 4-19 為 B. Leven 和 G. Dumpich 的研究中分別利用 SQUID 量測差不多線寬的 Co 陣列和磁電阻量測 Co 平板線[23]，我們可以看到 H_{sw} 大致上與磁滯曲線的寬度相對應，所以我們若將矯頑場也以相同的方式去做換算，即可比較是否有因為 Co 與 CoO 的交換耦合作用而造成矯頑場的上升。

圖 4-20 即為我們所有系列樣品的 H_c 與 H_{sw} 與線寬的關係圖，可以發現 Co/CoO 兩層結構的 H_c 幾乎都大於 Co 的 H_{sw} ，表示的確有矯頑場增益的情形發生；而 Co 樣品有著隨著線寬減小， H_{sw} 逐漸變大的趨勢，而在 Co/CoO 中卻沒有看到 H_c 與線寬有較明顯的關聯性存在，這也再次證明了 CoO 確實會影響 Co 磁矩翻轉的形式。

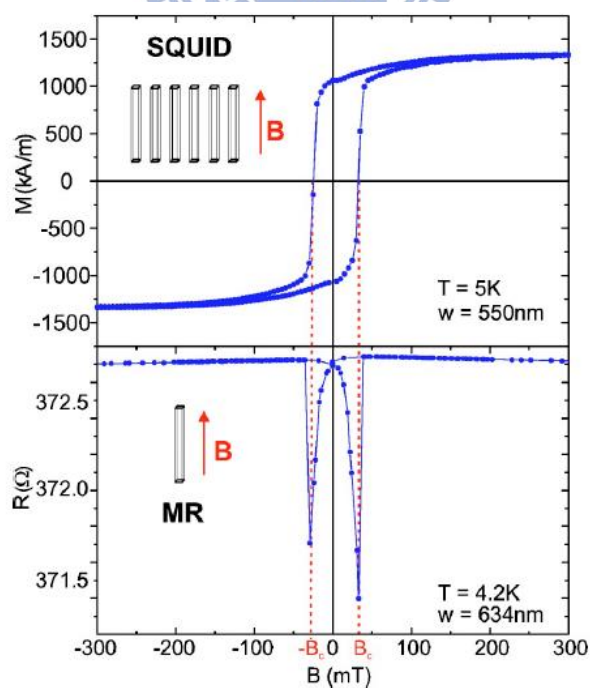


圖 4-19 上圖為利用 SQUID 量測 Co 陣列所得到的遲滯曲線；下圖為利用磁電阻量測 Co 平板線所得到的磁電阻曲線，兩者的 H_{sw} 對應到相同的位置[23]。

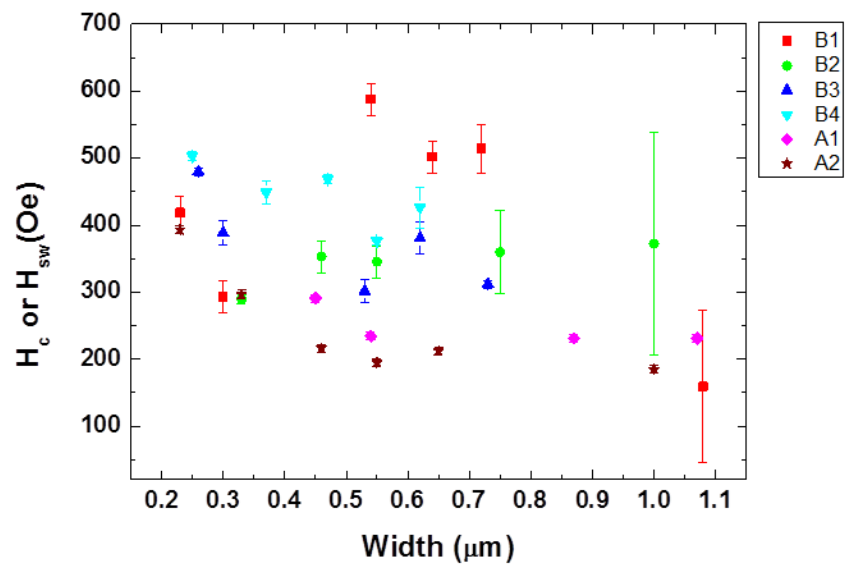


圖 4-20 各系列樣品的 H_c 或 H_{sw} 與線寬的關係圖。



4-3.5 Training effect

在量測時，我們一律由正磁場往負磁場掃，再由負磁場往正磁場掃回來，來回掃個三次左右，會發現的第一次掃的磁電阻與第二、第三次有明顯的不同，而我們上面章節所討論的 H_c 與 H_{eb} 都是以第二次和第三次的 LMR 曲線來做討論。在我們做的兩批 A1 以及 A2 平板線內，並沒有發現明顯的 training effect，而 Co/CoO 兩層結構第一次量測出的磁電阻曲線與第二次和第三次的磁電阻曲線有明顯的不同。

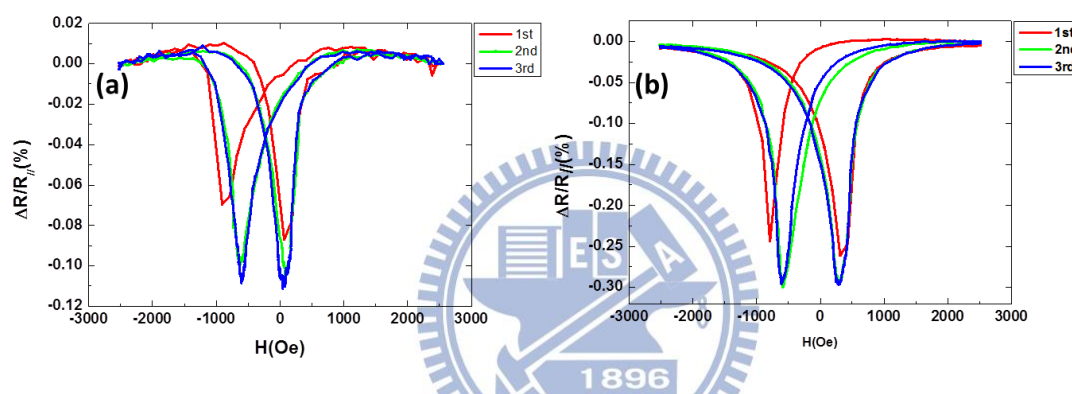


圖 4-21 (a)B2 系列 $w=0.47\mu\text{m}$ 樣品的前三次 LMR 曲線；(b)B4 系列 $w=0.37\mu\text{m}$ 樣品的前三次 LMR 曲線，兩圖都可以看到第一次的曲線與第二、三次曲線有明顯的差異。

圖 4-21 是我們兩批不同樣品中的三次 LMR 曲線圖，雖然在我們 Co/CoO 兩層結構裡皆有 Training effect 的發生，但並沒有發現 Training effect 與線寬之間有非常明顯的關係存在，而之前有研究發現 Training effect 會隨著 CoO 厚度越薄而有越明顯的趨勢[21]，而我們所濺鍍的 CoO 固定在 2nm 左右，所以也無法比較與厚度之間的關係。

第五章 結論與未來研究方向

5-1 結論

本論文做了多個系列的 Co/CoO 兩層結構平板線，並利用磁電阻量測分析樣品內部的磁矩翻轉形式，以及尺寸效應對交換偏耦合的影響，並與單一的 Co 平板線相互比較。

第一部分先討論單一的 Co 平板線，在 100K 的溫度下，在我們製作的兩個系列 Co 平板線都發現他們符合異向性磁阻的預期，即隨著電流方向與磁場方向間的夾角 θ 越大，磁電阻以 $\cos^2\theta$ 的趨勢遞減。而在這兩系列的樣品中，我們發現小於 $0.4\mu\text{m}$ 的線寬都會出現類似單磁區的形式存在，而大於 $0.5\mu\text{m}$ 的線寬有一系列類似單磁區的結構、而另一系列出現類似多磁區結構的磁區形式，可能與鍍膜的條件有關。且 Co 平板線如形狀異向性理論預期有隨著線寬減小， H_{sw} 呈單一雙曲線增加的趨勢

第二部份我們先分析了磁電阻曲線與單一 Co 平板線之間的差異，包括 LMR 曲線有明顯的交換偏耦合現象，以及在電流方向與磁場方向間的夾角 θ 不為零時，有不對稱的磁電阻曲線，更發現在所有的兩層結構內皆沒有明顯的 switching 現象產生，表示內部磁區都以多磁區的形式存在。接著討論磁阻曲線往負磁場以及正磁場偏移兩種不同情況，大部分的樣品都出現常見的往負磁場偏移的情況，表示在高磁場下，鐵磁與反鐵磁層介面間的磁矩呈平行排列，所以隨著磁場改變，Co 需要較大的負磁場才能抵抗反鐵磁層間的交互作用力才能夠翻轉，導致磁電阻曲線往負磁場偏移；而正磁場偏移的情形，可能因為介面間粗糙程度不同，使得在高磁場下，介面間磁矩呈反平行排列，所以有往正磁場偏移的磁電阻曲線。但由磁矩翻轉的機制，我們可以得到介面間的磁矩皆是傾向平行排列，偏好延著樣品長軸，只是一開始在高磁場下的鐵磁/反鐵磁介面間的磁矩排列有所不同，才有不同的翻轉形式。

最後探討尺寸效應與交換偏耦合間的關係，發現隨著線寬變小，交換偏耦合有隨之遞減的趨勢，表示影響鐵磁層的反鐵層磁矩減少，而降低了交換偏耦合效應。而當外加

磁場與長軸角度夾 90° 時，由於反鐵磁層的交替反平行磁矩延長軸方向，因此導致之偏耦合磁場會大幅縮小，代表此時鐵磁層內部磁矩在此方向磁場下，由飽合磁場的磁矩排列在磁場方向(即短軸)，隨著隨磁場減弱做 coherent rotation 而轉向至零磁場下的易軸(即長軸)。除此之外，Co/CoO 兩層結構平板線的矯頑場皆大於同線寬 Co 平板線，以及有更明顯的 training effect，但兩者與線寬並沒有關聯性存在。

5-2 未來研究方向

首先，我們發現在溫度約 100K 時有隨著尺寸減小而遞減的交換偏耦合效應，也許我們可以將溫度降到 10K 左右，去看是否會有不同的趨勢產生，以證明是否與此下降趨勢是否與溫度相關。而原本我們希望可以在兩層結構也有發現單磁區結構的特性，但我們並沒有發現此特性，可以試著改變 CoO 與 Co 間厚度的比例關係，或許有機會得到類似單磁區的 Switching 現象產生，可以讓我們更了解鐵磁/反鐵磁介面間的交換偏耦合作用。



參考文獻

- [1] M.N. Baibich, *Phys. Rev. Lett.* 61, 2472 (1988).
- [2] M. Fraune, U. Rüdiger, G. Güntherodt, S. Cardoso, and P. Freitas, *Appl. Phys. Lett.* 77, 3815 (2000).
- [3] S. Laureti, S. Y. Suck, H. Haas, E. Prestat, O. Bourgeois, and D. Givord, *Phys. Rev. Lett.* 108, 077205 (2012).
- [4] C. C. Chiang, *Master thesis, Natl. Chiao Tung University, Taiwan (2011.)*
- [5] S. Bobbio, *Electrodynamics of Materials, Academic Press, San Diego (1999).*
- [6] C. L. Dennis, *J. Phys.:Condens. Matter* 14, 1175 (2002).
- [7] J. A. Osborn, *Phys. Rev.* 67, 351 (1945).
- [8] C. Kittel, *Introduction to solid state physics, John Wiley & Sons, New Jersey, 2005.*
- [9] B. D. Cullity, *Introduction to Magnetic Materials. Addison-Wesley, Massachusetts, 1972.*
- [10] A. Aharoni, *Introduction to the theory of ferromagnetism, Oxford University Press, Oxford, 2000.*
- [11] E. Seynaeve, G. Rens, A. V. Volodin, and K. Temst, C. V. Haesendonck, and Y. Bruynseraede, *J. Appl. Phys.* 89, 531 (2001).
- [12] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, J.-E. Wegrowe, L. Thomas, B. Barbara, and D. Mailly, *Phys. Rev. B* 53, 3341 (1996).
- [13] E. H. Frei, S. Shtrikman, and D. Treves, *Phys. Rev.* 106, 446 (1957).
- [14] C. A. F Vaz, M. Kläui, L. J. Heyderman, D. David, F. Nolting, and J. A. C. Bland, *Phys. Rev. B* 72, 224426 (2005).
- [15] X. Liu, J. N. Chapman, S. Mc Vitie, and C. D. W. Wilkinson, *Appl. Phys. Lett.* 84, 4406 (2004).

- [16] A. E. Berkowitz and R. H. Kodama, *Exchange anisotropy — a review*, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Elsevier (1999).
- [17] K. Takano, F. Hellman, and A.E. Berkowitz, *Phys. Rev. Lett.* 77, 3451 (1996).
- [18] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, *Phys. Rev.* 102, 1413 (1956).
- [19] J. Nogués, J. Sort, V. Langlais, V. Skumryev, S. Surñach, J. S. Muñoz, and M. D. Baró , *Physics Report* 422, 65 (2005).
- [20] J. Nogue´s and I. K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* 192, 203 (1999).
- [21] S. Brems, D. Buntinx, K. Temst, and C. V. Haesendonck, *Phys. Rev. Lett.* 95, 157202 (2005).
- [22] P. S. Liao, *Master thesis, Natl. Chiao Tung University, Taiwan* (2010).
- [23] B. Leven and G. Dumpich, *Phys. Rev. B* 71, 064411 (2005).
- [24] T. Gredig, I. N. Krivorotov, and E. D. Dahlberg, *J. Appl. Phys.* 91, 7760 (2002).
- [25] T. Gredig, I. N. Krivorotov , and E. D. Dahlberg, *Phys. Rev. B* 74, 094431 (2006).
- [26] J. Nogués and I.K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* 192, 203 (1999).
- [27] X. P. Huang, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 42, 185004 (2009).
- [28] F. Radu, M. Etzkorn, R. Siebrecht, T. Schmitte, K. Westerholt, and H. Zabel, *Phys. Rev. B* 67, 134409 (2003).
- [29] J. Nogue´s and I. K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* 192, 203 (1999).
- [30] A. Nemoto, Y. Otani, S.G. Kim, K. Fukamichi, O. Kitakami, and Y. Shimada, *Appl. Phys. Lett.* 74, 4026 (1999).
- [31] A. Hoffmann, M. Grimsditch, J. E. Pearson, J. Nogués, W. W. A. Macedo, and I. K. Schuller, *Phys. Rev. B* 67, 220406 (2003).