

# 同步辐射异常散射研究超薄金属多层膜

罗光明 刘翠秀 王勇

(中国科学院物理研究所凝聚态物理中心 北京 100080)

王俊 吴忠华 丁永凡

(中国科学院高能物理研究所 北京 100039)

**摘要** 近些年来, 巨磁电阻金属多层膜由于其在信息存储和其它传感器方面的应用而广受关注. 但是, 由于金属多层膜中每层厚度都很薄, 界面及层内微结构研究很困难. 本文介绍利用同步辐射异常散射技术和反射技术相结合, 研究超薄金属多层膜中元素分布的原理, 及其在不同系统中的应用.

**关键词** 同步辐射 异常散射 金属薄膜

## 1 引言

自 1986 年 P. Grunberg<sup>[1]</sup>用 MBE 方法在 Fe/Cr 三明治结构中发现层间耦合振荡, 1998 年 G. Baibich<sup>[2]</sup>在(100)取向的 Fe/Cr 多层膜中发现巨磁电阻效应(GMR)以来, 巨磁电阻金属多层膜受到广泛关注. 1990 年 S.S.P. Parkin<sup>[3]</sup>用水冷基片的办法, 利用磁控溅

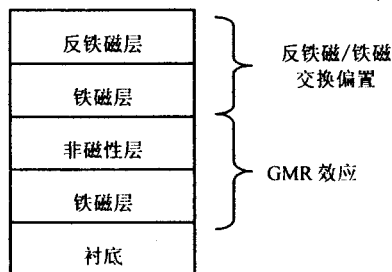


图 1 自旋阀结构示意图

射技术, 在多种金属多层膜中观察到巨磁电阻效应. 从此, 磁控溅射技术在巨磁电阻金属薄膜生长和研究中得到广泛应用. 1991 年, B. Dieny<sup>[4,5]</sup>提出自旋阀 (Spin-Valve) 结构, 为利用巨磁电阻效应开发实用器件提供了一种低噪声、高灵敏度的多层膜结构(如图 1).

自旋阀结构中包括两种物理机制, GMR 和反铁磁/铁磁层间交换偏置效应. GMR 与铁磁层/非磁性层间界面处电子自旋相关散射有关.

而反铁磁/铁磁层间交换偏置效应自 1956 年 Meiklejohn 和 Bean<sup>[6]</sup>发现该效应以来, 其物理机制还不是很清楚. 很多理论对不同的系统提出了不同的解释. 但大部分理论认为交换偏置效应是一种短程相互作用, 交换偏置效应应该是发生在界面区域. 合金的

反铁磁/铁磁交换偏置系统由于原子占位不确定而相对更为复杂. 1999 年 Antel 等人<sup>[7]</sup>用 X 射线磁圆二色谱(XMCD)的方法测量 FeMn/Co 薄膜的原子磁矩, 发现反铁磁材料 FeMn 中的 Fe 原子磁矩不为 0, 而 Co 的原子磁矩减小. 该结果认为是在界面区域存在反铁磁的 CoMn 导致. 可见, 在合金的反铁磁/铁磁系统中, 界面区域的成分分布对理解反铁磁/铁磁交换偏置很重要.

X 射线反射技术作为一种非破坏性工具被广泛应用于界面结构研究. 但是, 在 3d 元素组成的超薄金属多层膜中, 由于元素的原子系数很接近, 原子密度也很靠近, 常规的技术很难确定界面区域的元素分布. 为此, 我们将 X 射线反常散射技术和反射技术相结合, 研究界面区域的元素分布. 结果证明, 该方法能够唯一确定不同元素在界面的分布情况. 以下介绍该方法的原理以及我们近年来在北京同步辐射(BSRF) 4B9A 束线衍射站利用该方法得到的一些实验结果.

## 2 原理

X 射线在 A/B 界面上的反射系数:  $r_{\text{AB}} \propto \Delta(\rho \cdot f)$ , 其中  $\Delta$  表示 A, B 层的区别,  $\rho$  和  $f$  代表各层的原子密度和原子散射因子. 在低角度条件下, 原子的散射因子为

$$f = f_0 + f_0' + if_0'' + f_0''' \chi, \quad (1)$$

式中  $f_0$  为 Thompson 散射项, 低角度时等于原子系数, 即电子数目.  $f_0'$  和  $f_0''$  为孤立原子的异常散射因子的实部和虚部.  $f_0''' \chi$  为近邻原子对吸收原子散射因子的贡献.  $\chi$  包括实部和虚部两部分,  $\chi = \chi_1 + i\chi_2$ . 其中虚部是 EXAFS 中测量的周围原子对吸收原子吸收系数的贡献.

在运动学情况下,  $n$  个周期重复的多层膜结构低角度衍射峰强度可以为

$$I \propto |F|^2 \propto |F_{\text{period}}|^2 \cdot \left| \frac{1 - \exp(in \cdot k_z \cdot \Lambda)}{1 - \exp(ik_z \cdot \Lambda)} \right|^2, \quad (2)$$

$$F_{\text{period}} = \sum r_i \cdot \exp(ik_z \cdot z_i),$$

式中求和包括周期内所有界面,  $r_i$  表示 X 光在第  $i$  个界面处的反射系数,  $z_i$  表示周期内第  $i$  个界面垂直膜面方向的位置,  $\Lambda$  表示重复周期的厚度,  $k_z$  表示 X 射线波矢在垂直膜面方向的分量.

对于超薄金属多层膜而言, 周期厚度很小, 甚至小于 20Å. 这时界面反射方法得到的衍射峰只能观察到一级峰, 无法单独得出周期内每个界面的信息. 当界面两侧是合金时, 如 NiFe/Cu, FeMn/NiFe, FeMn/Co 等, 即使得到多级衍射峰, 也无法单独确定界面处各种元素的分布. 由于异常散射具有元素的可分辨性, 衍射峰强度中包括界面的位置、成分和几何粗糙的信息, 如果测量衍射峰强度随 X 射线能量变化曲线, 应该可以得到更丰富的结果.

从方程(2)可以看出, 方程中只有  $r_i$  与入射 X 射线能量有关. 以  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(\text{Py})/\text{Cu}$  界面为例, 图 2 给出在  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}$  界面  $\Delta(\rho \cdot f)$  随 X 射线能量变化曲线. 从图中可以看出,  $r$  随 X 射线能量变化非常明显. 而且,  $r$  非常敏感于界面各层的成分.

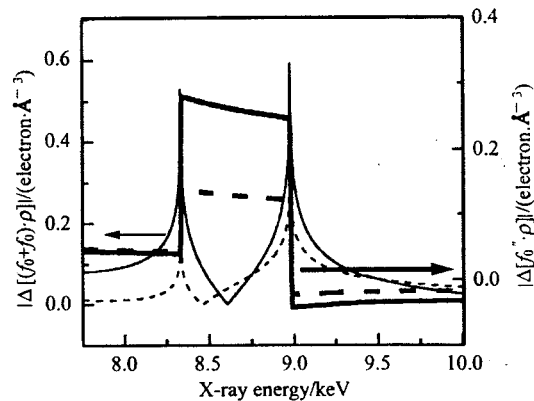


图 2  $|\Delta[(f_0 + f_0') \cdot \rho]|$  (细线) 和  $|\Delta[f_0'' \cdot \rho]|$  (粗线)  
随 X 射线能量变化曲线

— $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(\text{Py})/\text{Cu}$  界面; -- $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni}_{50}\text{Cu}_{50}$  界面.

各层原子密度分别为  $\rho_{\text{Py}} = 0.0875 / \text{\AA}^3$ ,  $\rho_{\text{Cu}} = 0.0845 / \text{\AA}^3$ .

从图 2 还可以看出,  $\Delta(\rho \cdot f)$  的实部和虚部在不同能量区域的相对大小不相同. 例如, 在 Ni 的 K 吸收边和 Cu 的 K 吸收边之间, 虚部远远大于实部, 而在 Cu 的 K 吸收边以上能量区域, 实部远大于虚部. 由此可以看出, 不光  $r$  的模随 X 射线能量变化显著,  $r$  的位相也在不同的能量区域有显著变化. 这样, 就可以通过测量多层膜衍射峰强度随能量变化曲线, 来确定方程(2)中周期结构内的几何结构因子  $\exp(ik_i \cdot z_i)$ , 同时也可以确定  $r_i$ , 即层内和界面的元素分布. 在实际模拟中, 由于低角度情况下需要考虑吸收等因素, 需要用 X 射线动力学理论来计算衍射峰强度.

### 3 实验

北京同步辐射 4B9A 衍射站能够提供能量连续可调 X 射线光源. 实验中, 束斑  $\sim 0.2\text{mm}$ , 束流强度用电离室监测. 反射/散射光强度用 NaI 探测器计数. NaI 探测器前有  $0.4\text{mm}$  狭缝. NaI 探测器和电离室计数效率在不同能量下不同, 可以通过两探测器同时测量不同能量下直射光强度来确定.

衍射峰强度随 X 射线能量变化的测量如下: 在 X 射线能量变化的同时, 改变样品和 NaI 探测器的位置, 以确保它们的位置在衍射峰的位置. 在测量该谱线的同时, 需要不时地测量不同能量下的反射率谱线, 以确保样品和 NaI 探测器的位置在多层膜衍射峰的位置.

## 4 结果

### 4.1 [Py/Cu]<sub>50</sub> 多层膜界面研究

图 3 给出不同结构模型下模拟的[Py/Cu]<sub>50</sub> 多层膜衍射峰强度随 X 射线能量变化谱

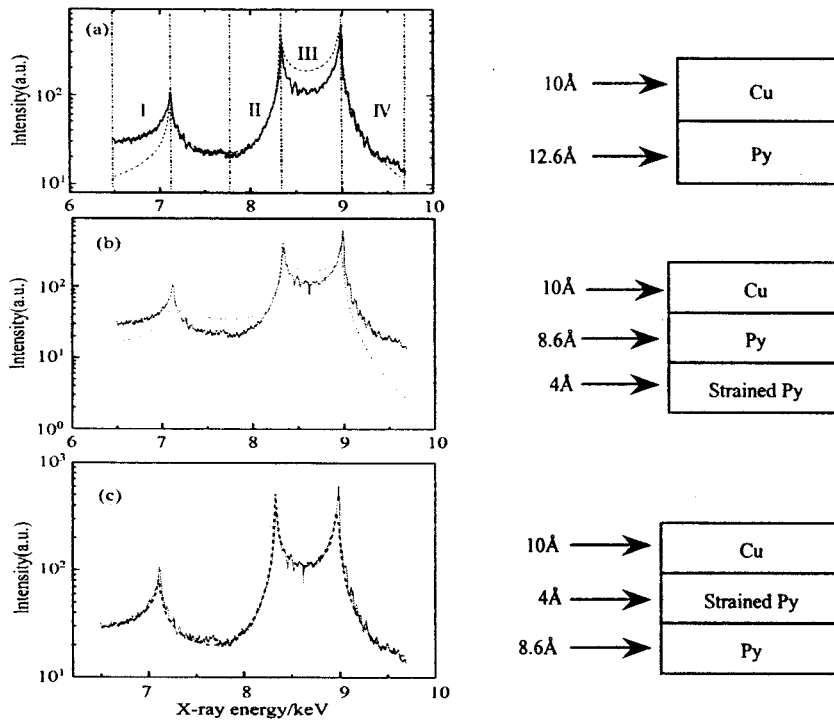


图 3 [Py/Cu]<sub>50</sub> 多层膜衍射峰强度随 X 光能量变化谱线模拟

—实验曲线, ---模拟曲线; 图右侧显示模拟的周期结构参数.

线. 从图中可以看出, 不同结构模型下谱线的区别很明显. 模拟结果表明, 在 Cu/Py 界面处有 2—3 原子层的 Py 应变层. 如前所述, 通过模拟衍射峰强度随能量的变化, 不仅可以确定各层的成分, 同时还可以独立地确定各层的厚度. 因此, 通过以上模拟, 可以确定在 Cu/Py 界面有 2—3 原子层的 Py 应变层, 而 Cu 层内部是均匀的.

为了证实在 Py/Cu 界面不存在扩散, 图 4 给出了 [Py(18Å)/Cu(7Å)]<sub>30</sub> 多层膜的衍射峰强度随能量变化的实验曲线及模拟曲线. 由于多层膜内 Cu 层实际上只有 3—4 原子层, 如果 Py/Cu 界面处存在 Py 和 Cu 混合的话, 那么在 Cu 层两侧界面处的扩散一定能够很严重地改变 Cu 层的成分. 而模拟结果表明, 多层膜内 3—4 原子层厚的 Cu 层内没

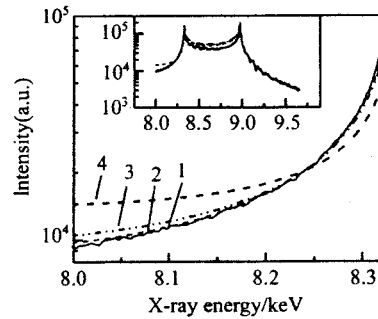


图 4  $[\text{Py}(18\text{\AA})/\text{Cu}(7\text{\AA})]_{30}$  多层膜衍射峰强度随 X 射线能量变化曲线

1: 实验曲线; 2: 没有扩散模型的模拟曲线; 3: Cu 层内含 15% 的 Ni 的模拟曲线;

4: Cu 层内含 30% Ni 的模拟曲线. 图内插图是整个曲线的模拟情况.

有明显的 Ni 存在. 该结果证实了在 Py/Cu 界面不存在混合. 同时也证明了通过模拟衍射峰强度随入射 X 射线能量的变化, 可以同时确定多层膜内各层的成分、原子密度变化和各层的厚度.

#### 4.2 $[\text{FeMn}/\text{Co}]_{25}$ 多层膜结构模拟

图 5 是  $[\text{FeMn}/\text{Co}]_{25}$  多层膜衍射峰强度随 X 射线能量变化曲线, 以及用不同结构模拟得到的理论曲线. 最佳拟合的元素分布情况在图 6 中显示. 可以看出, 在 FeMn/Co 界面存在明显的成分混合.

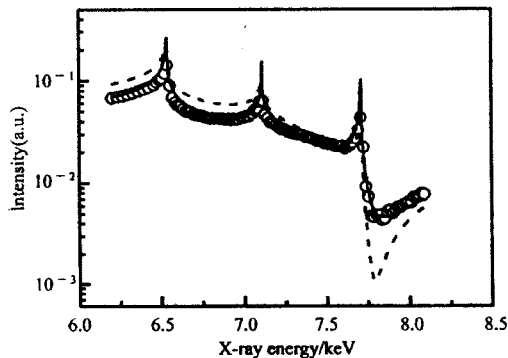


图 5  $[\text{FeMn}/\text{Co}]_{25}$  多层膜衍射峰强度随 X 射线能量变化曲线

□ 实验曲线, — 最佳模拟曲线, 模拟得到的元素分布见图 6,

--- 理想  $[\text{FeMn}/\text{Co}]_{25}$  多层膜的计算谱线.

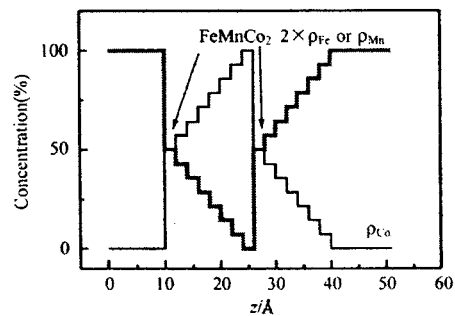


图 6  $[\text{FeMn}/\text{Co}]_{25}$  多层膜中单周期结构内成分分布的最佳模拟结果

为方便计算, 界面处成分混合区域用  $2\text{\AA}$  厚的均匀子层替代. 混合区域内各子层的成分及原子密度依次线性递变.

## 5 总结

本文介绍了将 X 射线异常散射和反射相结合, 通过测量衍射峰强度随 X 射线能量变化曲线的方法, 来分析超薄金属多层膜结构. 结果表明, 该方法能够有效地获得多层膜内, 包括层内和界面区域, 不同元素的成分分布情况.

### 参考文献(References)

- 1 Grunberg P et al. Phys. Rev. Lett., 1986, 57:2442
- 2 Baibich M N et al. Phys. Rev. Lett., 1988, 61:2472
- 3 Parkin S S P, More N, Roche K P. Phys. Rev. Lett., 1990, 64:2304
- 4 Diény B, Speriosu V S, Parkin S S P et al. Phys. Rev., 1991, B43:1297
- 5 Diény B, Speriosu V S, Mentin S et al. J. Appl. Phys., 1991, 69:4774
- 6 Meiklejohn W H, Bean C P. Phys. Rev., 1956, 102:1413
- 7 Antel W J, Perjeru Jr F, Harp G R. Phys. Rev. Lett., 1999, 83:1439

## Structural Analysis of Ultra-Thin Metallic Multilayers by X-Ray Anomalous Scattering Technique on Synchrotron Radiation

LUO Guang-Ming LIU Cui-Xiu WANG Yong

(Center for Condensed Matter, Institute of Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

WANG Jun WU Zhong-Hua DING Yong-Fan

(Institute of High Energy Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

**Abstract** In recent years, giant magnetoresistance (GMR) ultra-thin metallic multilayers has attracted much attention because of its application in read/write sensor and other sensors. However, the structural analysis of ultra-thin 3d metallic multilayers is difficult. In this paper, we reported the application of X-ray anomalous scattering combining with X-ray reflectivity to the elemental distribution analysis of the ultra-thin metallic multilayers and its principle.

**Key words** synchrotron radiation, anomalous scattering, metallic multilayers