

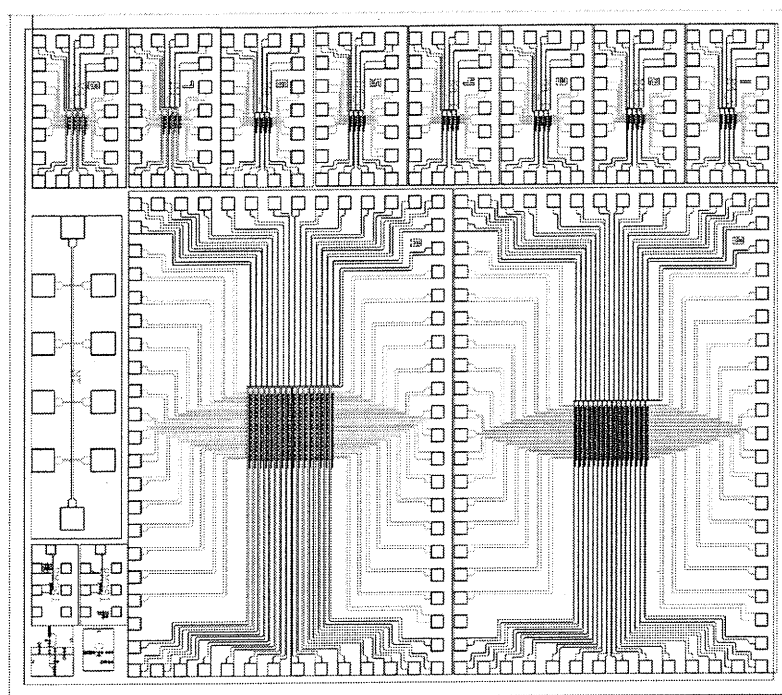


图 2.4: 4 英寸基片上 256 个重复单元中一个单元的隧道结阵列分布图。

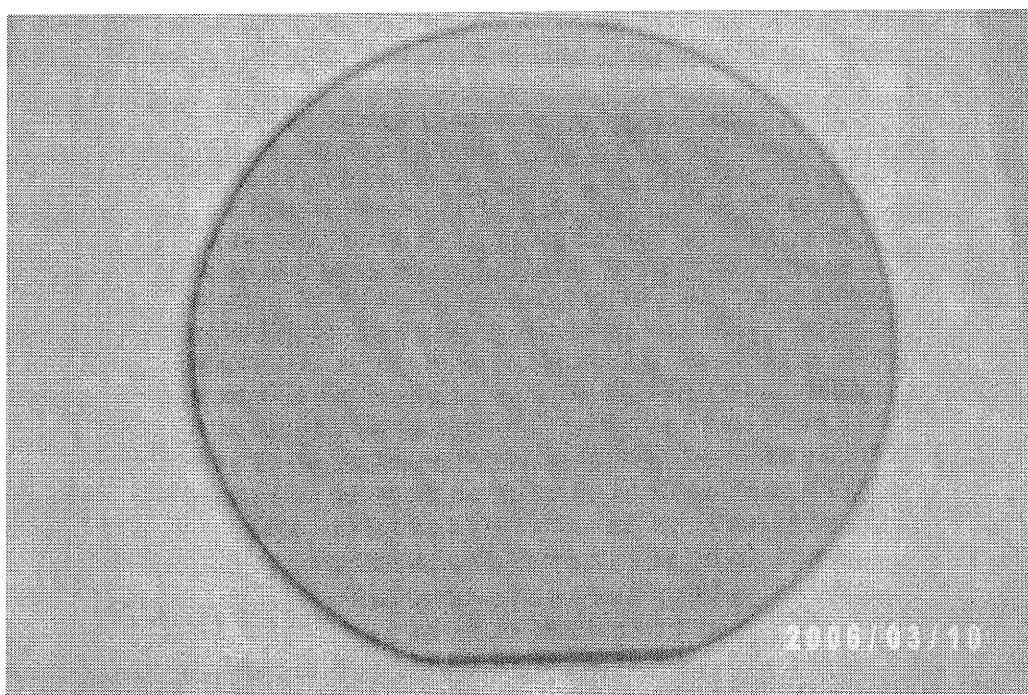


图 2.5: 利用光刻技术中的刻槽和打孔工艺方法在 4 英寸硅 / 二氧化硅基片上制备的磁性隧道结。

个磁性隧道结薄膜的沉积过程都在高真空中进行,从而提高了磁性隧道结本身的质量,而且和后边将要介绍的光刻去胶剥离法相比,避免了沉积绝缘隔离层后去胶困难等问题。但是,此方法通常对光刻对准精度要求较高,而且与去胶剥离法相比多了一次光刻和一次化学反应刻蚀过程,从而增加了工艺步骤,使制备过程较为复杂。

§2.2.3 光刻技术结合离子束刻蚀的去胶剥离 (lift-off) 工艺法

首先利用磁控溅射仪在热氧化硅 Si/SiO_2 衬底上沉积多层膜(例如一个典型的磁性隧道结结构 $\text{Ta}(5\text{nm})/\text{Cu}(30\text{nm})/\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}(5\text{nm})/\text{IrMn}(10\text{nm})/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}(4\text{nm})/\text{AlO}_x(1\text{nm})/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}(4\text{nm})/\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}(20\text{nm})/\text{Cu}(20\text{nm})/\text{Ta}(5\text{nm})$),主沉积室本底真空优于 1×10^{-7} 帕,金属铝沉积和氧化室本底真空优于 1×10^{-6} 帕,整个薄膜的制备都是在高真空的环境下进行的。 AlO_x 势垒层是在 1.0 帕的氧气和氩气的混合气体氛围中,用等离子体氧化方法氧化铝膜适当的时间形成的。衬底可以选择 2 英寸和 4 英寸的热氧化硅硅片 Si/SiO_2 。通常,我们选用 $25\text{mm} \times 25\text{mm}$ 和 $25\text{mm} \times 50\text{mm}$ 的热氧化硅衬底和几套配套的光刻板。利用这些配套光刻板可以制备结区面积在 $4 \times 8\mu\text{m}^2$ 至 $20 \times 40\mu\text{m}^2$ 或 $5 \times 5\mu\text{m}^2$ 至 $30 \times 60\mu\text{m}^2$ 大小的磁性隧道结。利用去胶剥离法对 MTJ 多层膜进行光刻加工,每一轮工艺一般包括涂胶、曝光、显影、刻蚀、去胶等步骤(图 2.6)。首先,通过第一次光刻掩膜和紫外曝光及氩离子刻蚀,在 $25\text{mm} \times 25\text{mm}$ 热氧化硅衬底上加工出 450 个条状的磁性隧道结薄膜,图 2.7 所示为 Lift-off 工艺中一个典型的步骤;第二次氩离子刻蚀后并不去胶,根据隧道结薄膜的厚度和实际需要,直接将样品放入磁控溅射仪沉积 50-100 nm 左右的 SiO_2 ,如第 2.7(a) 所示, SiO_2 用来隔开底部导电层和后来要沉积的顶部导电层,使底部导电层和顶部导电层只能通过磁性隧道结连接。沉积 SiO_2 后,再将样品放入丙酮中去胶,光刻胶在丙酮浸泡下膨胀,如图 2.7(b) 所示,超声后,光刻胶被去掉的同时把结区上方的 SiO_2 剥离掉,使结区和顶部导电层能够导通,如图 2.7(c) 所示。然后再将样品放入磁控溅射仪沉积 50 nm 左右的铜作为顶部导电层,接着进行第三次涂胶并利用第三块光刻版进行紫外曝光,显影后放入刻蚀机中用氩离子刻蚀出顶部导电层及底部导电层形状,最后用丙酮去胶得到图 2.7(d) 所示的十字型磁性隧道结单元。同光刻技术结合 Ar 离子束和化学反应刻蚀的刻槽和打孔工艺法一样,光刻技术结合离子束刻蚀的去胶剥离工艺法也可以保证整个磁性隧道结薄膜的沉积过

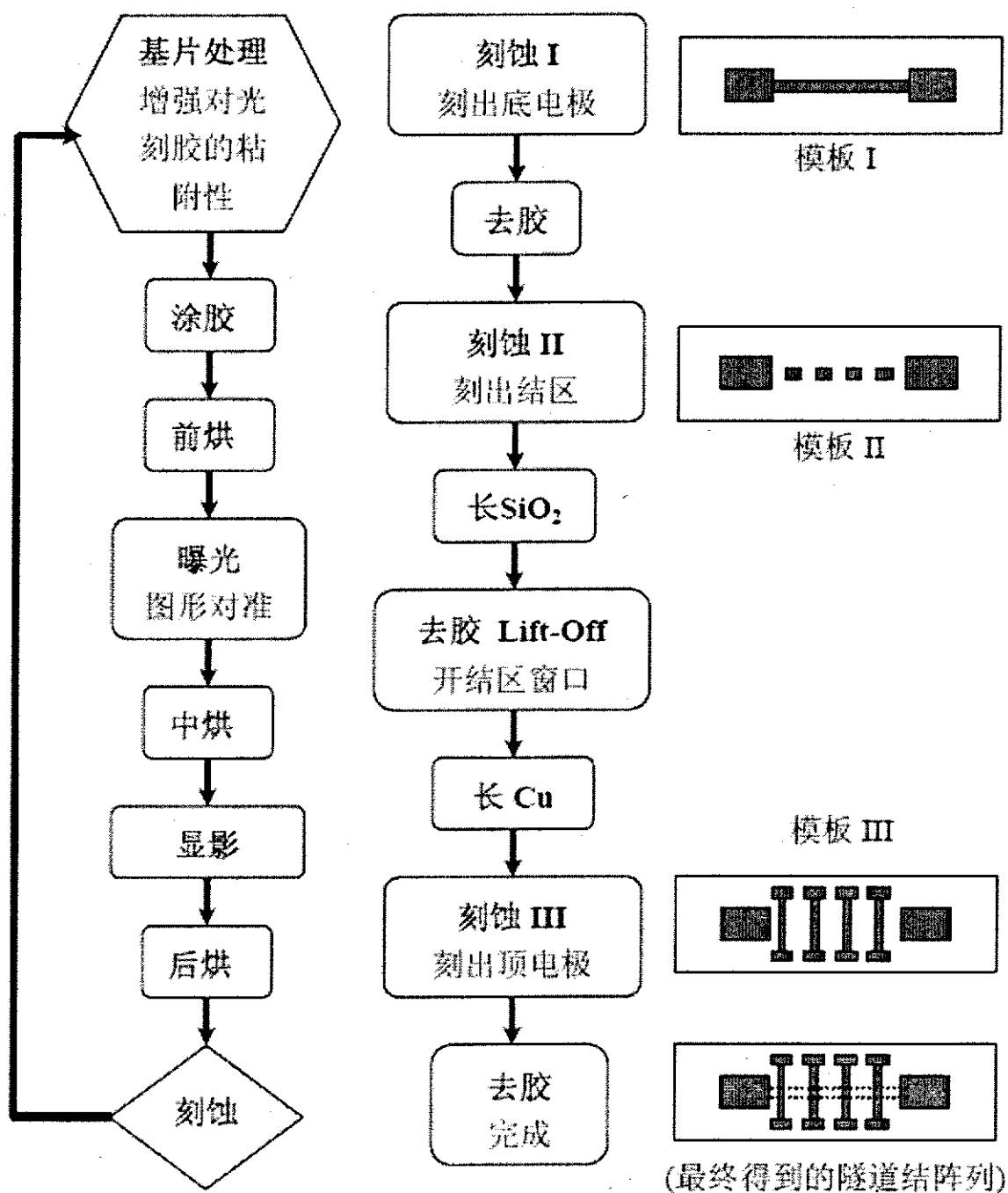


图 2.6: 一种利用光刻去胶剥离法制备磁性隧道结的工艺流程图。 (Thanks to: Weining Wang)

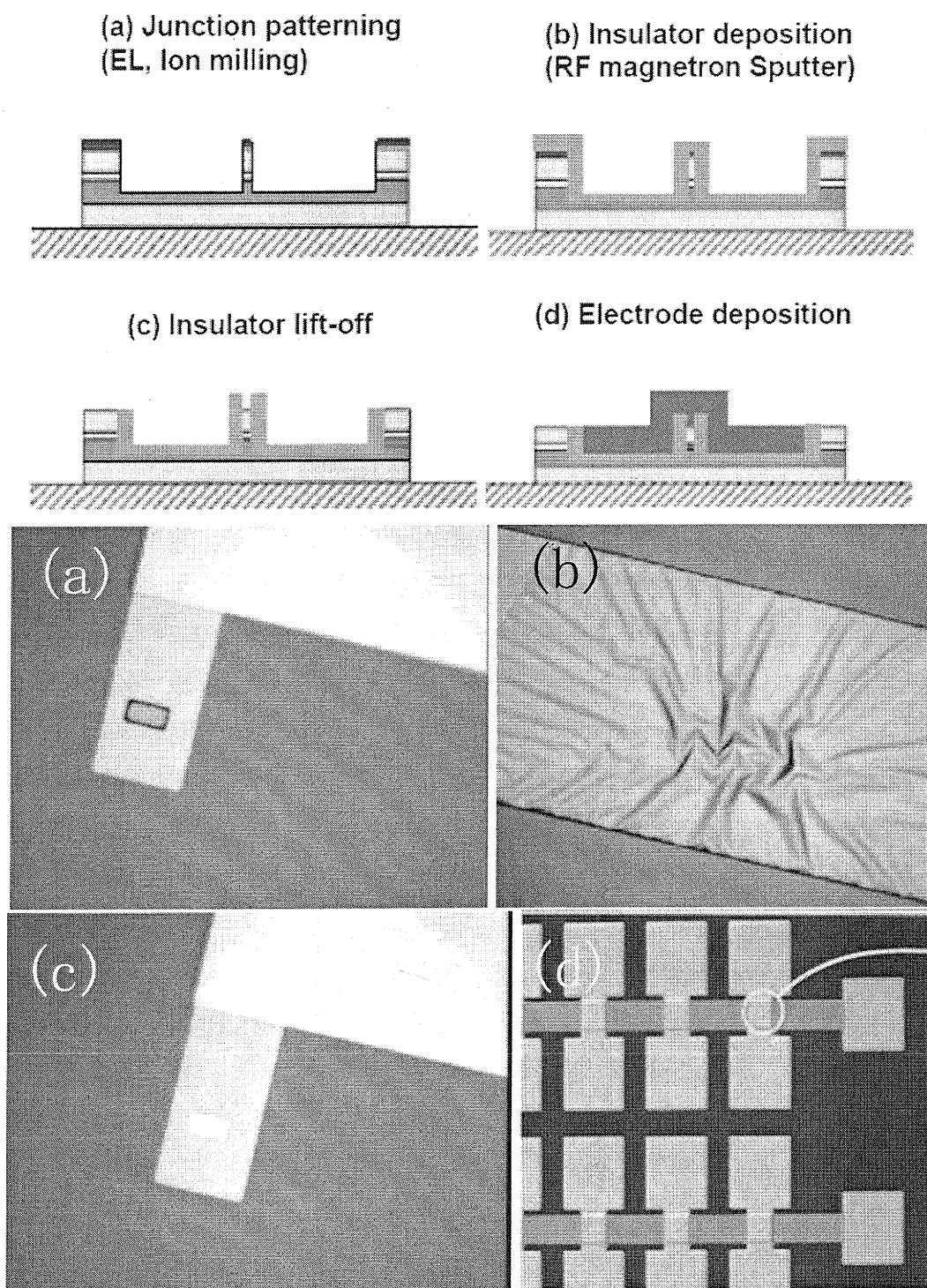


图 2.7: 一种利用光刻去胶剥离法制备磁性隧道结的样品示意图和实物图。实物图所示的典型步骤分别为: 长过二氧化硅后去胶前, 光刻胶在丙酮浸泡下膨胀, 超声去胶后露出隧道结和经过顶电极刻蚀后最终形成的一种隧道结阵列。

程都在高真空中进行,而且工艺相对简单,甚至底部电极和顶部导电层都可以通过金属掩膜来沉积,只有结区通过光刻来加工,使工艺更加简单。光刻去胶剥离法的主要问题在于生长 SiO_2 绝缘层后,去胶剥离相对困难,对光刻胶的选择及光刻工艺条件的控制提出了较高要求。

§2.3 小结

本章讨论了普通隧道结样品的制备过程。从一般的镀膜和势垒层的形成到采用不同的光刻工艺最终制备成可以应用的隧道结。其中,镀膜配合金属掩模方法较为简单,耗时较短。但是所制备的隧道结的结区尺寸很难小于 $50\mu\text{m}$,适合于快速初步对隧道结进行条件摸索。掀胶剥离工艺是目前最为常用的一种方法。它经历的步骤较少、操作简单、容易掌握。存在的问题是在剥离工艺中,二氧化硅覆盖层的生长条件需要良好掌控,生长温度太高或覆盖层过厚都会造成剥离困难。打孔工艺需要步骤较多,但它避开了掀胶剥离问题,会使样品的成功率增加。适合于大面积、高质量的隧道结制备。需要注意的问题是;二氧化硅覆盖层的厚度不能太薄,一般要达到隧道结多层膜总厚度的 1.5 倍以上,以避免由于绝缘不良导致下一步镀顶电极引起的短路。另外,在采用反应刻蚀的打孔过程中,务必保证打透二氧化硅掩埋层,同时又不能时间过长,以至于破坏铁磁性电极,甚至于势垒层。

第三章 四英寸热氧化硅衬底上磁隧道结的微制备

§3.1 引言

未来可能商业化的磁随机存取器 (MRAM) 具有非挥发、高速、高密度、低能耗、低成本和抗辐射性能好等诸多优良特性, 它综合了半导体静态随机存取器 (SRAM)、动态随机存储器 (DRAM)、闪存 (FLASH) 等所有现有的随机存取器的各种优点。作为通用记忆体 [91], 它将具有巨大的市场竞争力。另外高容量和高密度的磁随机存取器, 还有最终可将硬盘驱动器 (HDD) 和随机存取器 (RAM) 集成为一体的发展空间和前景, 即能实现数据的运算和处理, 同时又能完成数据的即时存储, 可省去计算机硬盘 (HD) 和随机存取器 (RAM) 之间的数据调用和传递过程, 能完全避免数据在传递过程产生的出错率, 进一步减小“电脑”的体积, 仿真和模拟“人脑”的优异功能。

1995 年, 高磁电阻的磁隧道结材料的发展, 显示出很大的磁阻变化和信号输出 [59,60]。磁隧道结材料类似于巨磁阻自旋阀 (GMR) 材料, 但磁性层间的隔离层为绝缘材料, 一般是氧化铝、氧化镁等材料。由于量子隧穿机制, 极化电流在垂直膜平面穿过势垒层时, 由于势垒层上下两个磁电极的磁矩平行或反平行取向不同而呈现低或高的磁电阻状态。由于制作 MTJ 的技术和材料方面的不断提高和改善, 目前 TMR 变化率可以较容易达到 30%-50% [63,92]。MTJ 材料具有以下几方面的特性使其成为制造 MRAM 的理想材料: 通过改变势垒层的种类和厚度, 结电阻在相当宽的范围内可以调节, 容易与半导体电路匹配; TMR 输出信号强度远大于 GMR, 采用电流垂直于电极平面通过 (CPP) 的结构可使单元尺寸减小, 得到高的存储密度。因此, 利用磁隧道结作为 MRAM 的存储单元能实现两种非常稳定的磁电阻状态, 并可以在无外加电压的情况下仍然保持写入后的高阻态或低阻态, 不同的阻态可作为二进制“0”或“1”数据的稳定写入和读出。这种建立在隧穿磁电阻基础上的数据存储方法不同于其它通常的商业存储器, 如动态随机存储器 (SRAM) 和动态随机存储器 (DRAM)。它们通过存取电荷来设定不同的状态, 无外加电压时存储的信息会丢失。

近几年来, 由于薄膜磁电阻器件技术的不断发展和改善, 磁隧道结的实用性能不断得以提高, 通过 MTJ 和半导体 CMOS 电路的微电子集成等技术, 美国和日本等先进国家在研制和开发基于 1 MTJ+1 Transistor 结构的磁随机存取

器方面取得了巨大进展, 到 2003 年已制备成功容量达到 1 和 4 兆的磁随机存取器 [93,94]。中国科学院物理研究所、南京大学和中国科技大学等单位, 亦在磁性隧道结的自旋电子极化隧穿理论和材料制备等研究方面, 获得了一些重要进展 [95-103]。但在今后进一步开发实用型 256M 或更大容量和高密度磁随机存取器方面, 如何控制结电阻和磁电阻的均匀性、MTJ 单元状态的转变特性以及 MTJ 与 CMOS 的集成与匹配, 是发展磁隧道结材料和开发 MRAM 技术的关键性问题。本文中, 我们基于国内的实验条件, 就如何在四英寸热氧化硅衬底上沉积高质量的磁隧道结纳米多层薄膜材料和如何微加工制备均匀性较好的磁性隧道结, 做了初步研究, 并对磁性隧道结的磁电性质及其工作特性给予阐述。

§3.2 MTJ 单元材料及制作过程

最简单的 MTJ 单元包括一个绝缘势垒层 (I) 和上下两个铁磁性 (FM) 层构成 FM/I/FM, 形成一个三明治结构。我们所制备的磁性隧道结采用了自旋阀钉扎型结构, 即 Ta(5 nm)/Cu(20 nm)/Py(5 nm)/IrMn(10 nm)/CoFe(4 nm)/Al(1.0 nm)-oxide/CoFe(4 nm)/Py(20 nm)/Cu(20 nm)/Ta(5 nm)。隧穿磁电阻效应可简单地由双带模型来理解: 在费米面附近, 一般认为过渡族元素的 d 带分裂为有不同态密度的自旋向上和自旋向下态, 而且 d 带中费米能级附近自旋向上和向下的电子数不相等, 这种不平衡由自旋极化来描述。对于正常的隧穿过程, 自旋守恒, 不发生自旋翻转散射, 一个磁性电极中靠近势垒层介面处的自旋向上或向下的电子通过量子隧穿必须到达另一个磁性电极的自旋向上或向下态中。当两电极的磁矩平行时, 主自旋带的电子遂穿到另一电极的主自旋带, 对于次自旋带亦然。当两磁性电极的磁矩反平行时, 主自旋带的电子遂穿到另一电极的次自旋带, 对应的有效隧穿态密度减少, 导致隧穿电流减小, MTJ 单元显示出相对于平行态时大得多的磁电阻。由

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2} \quad (3.1)$$

$$P_i = \frac{\rho_i^{\uparrow} - \rho_i^{\downarrow}}{\rho_i^{\uparrow} + \rho_i^{\downarrow}} \quad (3.2)$$

R_P 表示两磁性电极的磁矩平行时的结电阻, R_{AP} 为其反平行时的电阻,

P_i 为磁性电极的极化率, ρ_i 为其费米面处的态密度, $i=1, 2$ 。由此可见, 对于费米能级处主、次自旋态密度差别大的材料可以获得较高的磁阻率。事实上, 真实的情况要比这种简化的图像复杂得多, 势垒材料对于 TMR 的大小及符号有很大影响 [102]。样品中, TMR 的大小依赖于电极表面的有效极化、磁电极和势垒层间界面的质量以及介电势垒材料的特性。另外, TMR 具有偏压依赖和温度依赖, 对于第三主族过渡金属和铝的氧化物构成的 MTJ, TMR 随偏压、温度升高而下降 [92, 103]。偏压依赖可能存在多种起源, 包括态密度效应和结的界面处与能量有关的自旋翻转散射及各种激发态的存在 [92, 104]。由于 MRAM 单元一般工作在一定的偏压下, 实际的 TMR 值会略低于低压下的测量值。本文中的 TMR 值在 1 mV 左右偏压下测定。对于小尺寸的, 特别是亚微米尺寸的 MTJ 单元, 要使其结电阻和磁电阻值都满足 MRAM 器件的要求, 其势垒层厚度应在 1.0 nm 左右或更薄。由于结电阻以指数率依赖于势垒层厚度, AlO_x 厚度的微小变化会导致结电阻在较大范围内的变化。这种指数依赖关系对于在大面积基底上制作适用于半导体生产、具有一定稳定性和均匀性的 MTJ 单元无疑是一个挑战。

我们利用 4 英寸热氧化硅片作基底和日本真空高真空三室大型磁控溅射仪 (ULVAC TMR R & D Magnetron Sputtering System) 来沉积磁性隧道结薄膜材料。在不中断真空 (10^{-7} Pa) 的情况下, 先在主沉积室用磁控溅射方法进行种子层、底部导电层、反铁磁钉扎层、下部磁电极的沉积; 然后在中间沉积和氧化室进行铝层的溅射沉积和等离子体氧化, 形成中间势垒层。最后, 再进入主沉积室完成顶部磁电极 (自由层) 和导电层及保护层的沉积。由于我们目前用于沉积二氧化硅绝缘层的磁控溅射仪的均匀区仅在 1~2 平方英寸大小, 故我们将磁性隧道结薄膜沉积完毕后的四英寸衬底, 分割成面积为 $25 \times 25 \text{ mm}^2$ (1 平方英寸大小) 八个大单元样品 (8 samples), 然后采用常规的光刻工艺逐块儿进行微加工和隧道结制备。所用的光刻板为两种, 曝光面积均设计为 $25 \times 25 \text{ mm}^2$, 每块光刻板再分为 9 个小区域。第一种光刻板在每一个区域 (Block) 中包含 50 个不同尺寸的磁性隧道结, 结区形状包括长方形和圆形, 每种尺寸构成 1×5 阵列, 即每种尺寸单元的隧道结有 5 个, 用作规律性研究, 为本文提供数据。隧道结面积分别为 $\phi 5 \mu\text{m}$, $5 \times 5 \mu\text{m}^2$, $5 \times 10 \mu\text{m}^2$, $5 \times 15 \mu\text{m}^2$, $5 \times 20 \mu\text{m}^2$, $\phi 15 \mu\text{m}$, $15 \times 15 \mu\text{m}^2$, $15 \times 30 \mu\text{m}^2$, $15 \times 45 \mu\text{m}^2$ 和 $15 \times 60 \mu\text{m}^2$, 其中 $\phi 5 \mu\text{m}$ 和 $\phi 15 \mu\text{m}$ 分别表示直径为 $5 \mu\text{m}$ 和 $15 \mu\text{m}$ 的圆形。因此, 利用第一种光刻板制备出

的一个样品中共含 450 个隧道结。第二种光刻板设计结分布只有 $15 \times 30 \mu\text{m}^2$ 和 $20 \times 40 \mu\text{m}^2$ 两种尺寸, 分别构成 1×2 、 2×2 、 2×4 阵列, 制备完毕的样品可进行 MRAM 演示器件的应用性研究。利用第二种光刻板制备出的每一个样品中共含 44 个隧道结。如图 3 所示一个 4 英寸硅片可以切割出 8 片 $25 \times 25 \text{mm}^2$ 的样品, 本实验中第 1 片样品用第一种光刻板制作, 其它 7 片样品用第二种光刻板制作。所以我们在一个 4 英寸热氧化硅衬底上分割出的 8 片样品区域中共制备了 758 个隧道结。

我们对利用第一种光刻板制备出的样品 1 中 9 个区域里所包含的 450 个隧道结进行了常规的 I-V 和 TMR 测试, 由于这个样品中第 6 个区域 (Block 6) 在退火前被漏测 (但测量了退火后的数据), 故我们这里只给出样品 1 其它 8 个区域退火前的测量结果。图 3.1 和 3.2 给出了样品 1 种第一个区域里 (任选一个 Block) 每个隧道结电阻和面积的积矢 (RA) 值及其磁电阻 (TMR) 的实际测量值 (绝对值)。可以看到, 每个隧道结 RA 的绝对值基本落在 $15 \pm 1 (\text{k}\Omega \mu\text{m}^2)$ 以内, 其平均值为 $15.4 \text{k}\Omega \mu\text{m}^2$, 即 RA 的绝对误差在 10% 以内; 而每个隧道结的 TMR 的绝对值基本落在 $18 \pm 1 (\%)$ 以内, 其平均值为 17.8%, 即 TMR 的绝对误差在 7% 以内, 因此一个区域里的 50 个磁隧道结具有较好的均匀性和一致性。每个磁性隧道结的性能, 基本满足制备 MRAM 演示器件的需要。

样品 1 中其它七个区域与第一个区域的结果十分相近。图 3.3 给出了样品 1 的九个区域里 (九个 Block) 任选一种特定的单元尺寸 (如: $30 \times 15 \mu\text{m}^2$) 的典型 TMR 比值和结电阻值的平均值。图 3.4 给出了样品 1 的九个区域里 (九个 Block) 任选一种特定的单元尺寸 (如: $30 \times 15 \mu\text{m}^2$) 的典型 TMR 比值和结电阻值的平均值。可以看出, 一个样品的九个区域里的隧道结, 均具有较好的一致性。

我们利用第二种光刻板制作的其它 7 片样品, 亦做出了类似的测量和数据分析, 它们呈现出同样类似的结果, 即 4 英寸热氧化硅衬底上切割出的八个样品均有较好的均匀性和一致性。图 3.5, 3.6 给出了全部八个样品的磁隧道结的结电阻和面积的积矢 (RA) 和磁电阻的平均值结果。实验结果显示样品制备具有一定的工艺稳定性和均匀性。从具体数值来看, RA 值均小于 $20 \text{k}\Omega \mu\text{m}^2$, 落在制备 MRAM 需求的参数范围之内 [105]。

图 3.7 给出了第一个样品任选一个区域 (block2) 内磁隧道结电阻的统计平均值曲线, 单元结电阻值随结区面积的变化接近倒数关系, 对于目前的单元

16	16	B	16	16	16	16	16	16	16
B	15	15	15	15	16	15	15	15	15
15	15	15	15	15	16	16	B	16	15
14	14	14	14	B	16	16	16	16	16
15	15	14	14	B	16	16	16	16	16

图 3.1: 样品 1 第一个区域里 (任选一个 Block) 各个隧道结电阻和面积的积矢 (RA) 的实际测量值 (绝对值), B 表示测量时被击穿的结。可以看到, RA 的绝对误差在 10% 以内。

17	17	B	17	17	19	18	18	17	17
B	17	17	18	17	18	18	17	17	17
18	18	18	18	18	18	18	B	17	17
19	19	18	19	B	18	18	18	18	18
18	18	18	18	B	18	18	18	18	18

图 3.2: 样品 1 第一个区域里 (任选一个 Block) 各个隧道结磁电阻 (TMR) 的实际测量值 (绝对值), B 表示测量时被击穿的结。可以看到, TMR 的绝对误差在 7% 以内。

34 Ω 18%	35 Ω 19%	35 Ω 20%
Missed	34 Ω 18%	34 Ω 18%
34 Ω 18%	35 Ω 19%	34 Ω 18%

图 3.3: 一个尺寸为 $25 \times 25 \text{mm}^2$ 的样品内共有 9 个小区域 (Block), 每个小区域共有隧道结 50 个, 其尺寸分布从 5×5 到 $15 \times 60 \mu\text{m}^2$, 共有十种尺寸, 每种尺寸的隧道结有五个。表中给出分布在 9 个小区域内典型尺寸为 $15 \times 30 \mu\text{m}^2$ 的隧道结其结电阻 R 和隧穿电阻比值 TMR 的平均值。

43	42	41
Missed	43	42
45	44	45

图 3.4: 一个尺寸为 $25 \times 25 \text{mm}^2$ 的样品内共有 9 个小区域 (Block), 每个小区域共有隧道结 50 个, 其尺寸分布从 5×5 到 $15 \times 60 \mu\text{m}^2$, 共有十种尺寸, 每种尺寸的隧道结有五个。表中给出分布在 9 个小区域内典型尺寸为 $15 \times 30 \mu\text{m}^2$ 的隧道结其矫顽力 H_c 的平均值, 单位为 Oe。

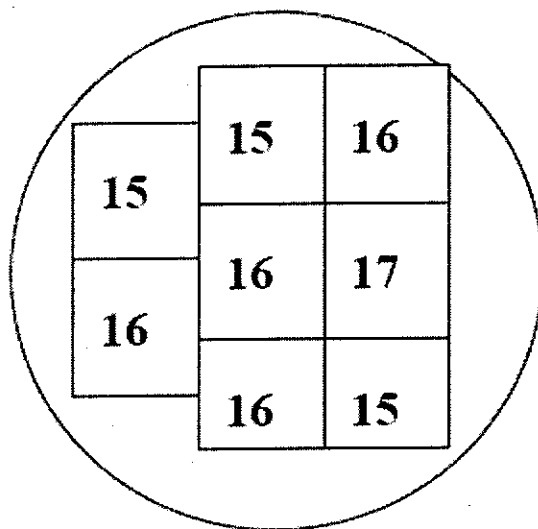


图 3.5: 在四英寸热氧化硅衬底上制备出八个样品的磁性隧道结的结电阻与面积的积矢的平均值, 单个样品面积为 $25 \times 25 \text{mm}^2$, 每个样品共分 9 个单元. 图中所示为电阻与面积的积矢平均值, 单位为 $k\Omega\mu\text{m}^2$.

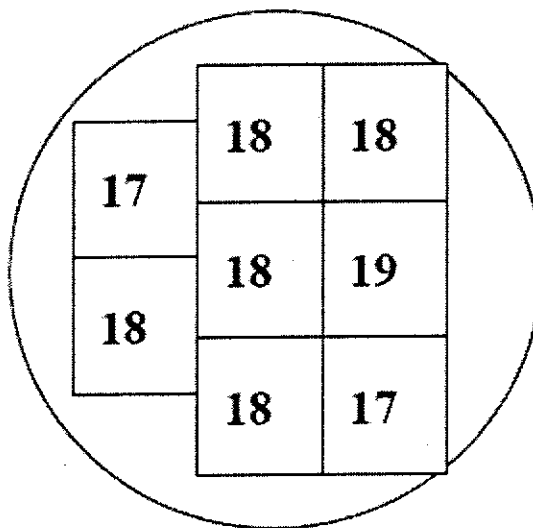


图 3.6: 在四英寸热氧化硅衬底上制备出的八个样品磁性隧道结的磁电阻的平均值, 单个样品面积为 $25 \times 25 \text{mm}^2$, 每个样品共分 9 个单元. 图中所示为磁电阻的平均值, 单位为 %.

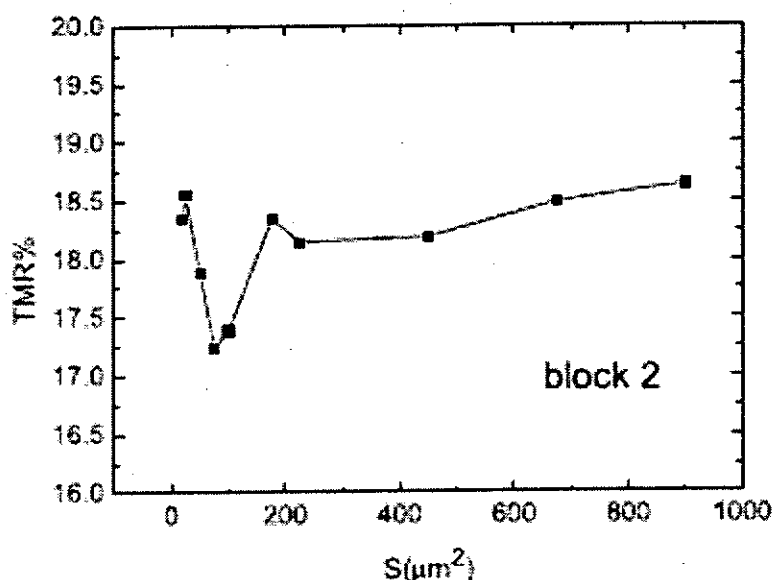


图 3.7: 一个 $25 \times 25 \mu m^2$ 样品其第二个小区域内各种尺寸下的磁性隧道结的结电阻随结面积变化的典型曲线。

尺寸, 其结电阻阻值也比较合理, 从介观尺度上基本满足欧姆定律的变化趋势。图 3.8 给出了第一个样品第二个区域内全部磁隧道结的磁电阻的平均值随结面积变化的关系曲线。在 $20 \times 5 \mu m^2$ 位置附近, 曲线发生很大偏离, 这种偏离主要来源于形状各向异性 [106], 对于长宽比较大的结区, 由于能量最低原理, 涡旋磁畴结构的形成及易轴方向与隧道结的形状和大小尺寸及磁电极的材料相关, 可以通过光刻板图型的设计来改善, 原因详见下一节矫顽力部分。这种偏离效应随边长比的减小, 这种效应逐渐减弱。总体来看, 直接沉积和微加工制备出的磁性隧道结其未退火时的 TMR 值均大于 16%, 未退火前磁隧道结的磁电阻比值和结电阻具有较好的均匀性。

随着磁隧道结制备及其和半导体 CMOS 电路集成技术的发展, MRAM 的密度和容量会越来越高, 因而要求 MTJ 单元尺寸不断减小, 但为保持或增加信号的读出速度, 同时会要求 MTJ 单元的结电阻不随之增加, 否则会产生难以接受的 RC 延迟。因此在结区面积减小而保持结电阻满足 CMOS 外电路的需求值情况下, 将会不得不减小电阻和面积的积矢值 (RA)。由于 TMR 对于势垒变化非常敏感, 通过优化铝层厚度和氧化时间, 可以保持 AlO_x 的化学成分而同时改变绝缘层厚度 (或势垒层高度) 达到调制结电阻的目的。目前, 采用

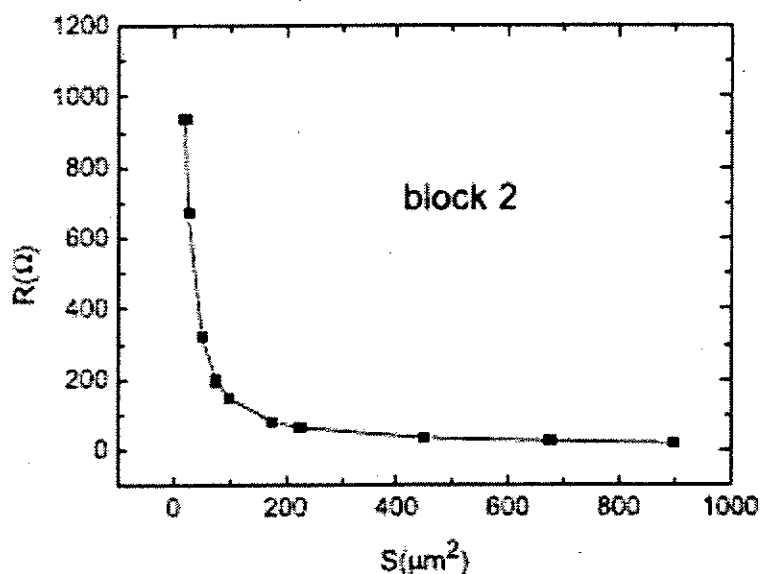


图 3.8: 一个 $25 \times 25 mm^2$ 样品其第二个小区域内各种尺寸下的磁性隧道结的磁电阻比率随结面积的变化曲线。

AlN [107,108], MgO [109] 等其它势垒材料以及其它元素注入 AlO_x 的合金化方法 [110], 已显示出较低的势垒高度, 并且对于给定的势垒层厚度, 减小了 RA.

我们已经能够在相当宽的 RA 范围内获得 $MR \geq 18\%$ 的磁性隧道结。这些结果有助于研制更小尺寸和更高性能的隧道结。这是因为能用于高密度 MRAM 的更小尺寸的隧道结单元, 其参数指标要求更高。例如, 如果在隧道结尺寸为 $0.162 \times 0.324 \mu m^2$ 时, 要满足 $RA = 1000 \Omega \mu m^2$ 的磁性隧道结, 其合理结电阻约为 $19 k\Omega$, 而磁电阻比值不能低于 20%。这对于我们目前 1 nm AlO_x 势垒层的样品, 外推到该尺寸, 电阻值会远大于这个上限。这个困难虽然可以通过减小势垒层厚度来解决, 但是如果铝层厚度接近 0.5 nm 时, 低 RA 材料受到势垒层缺陷的严重制约, 厚度仅为几个原子层的 AlO_x 势垒很难无缺陷地大面积制备 [111]。由于实验获得的 TMR 值随 RA 的减小通常表现出下降的趋势, 所以制备具有较低 RA 值但同时却能保持较高磁电阻比值的磁性隧道结材料目前在国际上仍然是个具有挑战性的难题。

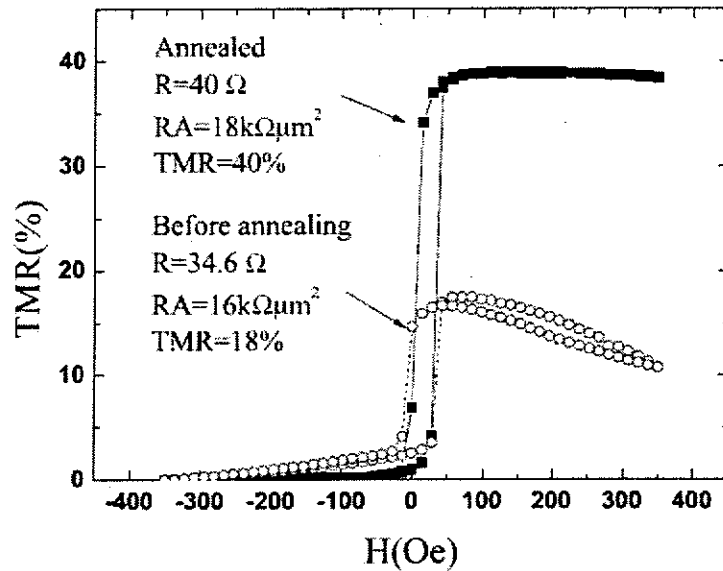


图 3.9: 典型的 TMR 实验曲线, 隧道结尺寸为 $15 \times 30 \mu m^2$, $\circ$ 为退火前的实验曲线, $\blacksquare$ 为退火后的实验曲线。

§3.3 记忆单元的控制和矫顽力

MTJ 单元通过流经一对正交线 (位线和数字线) 的电流来反转其自由层。自由层通常取一定的形状 (如椭圆或矩形), 形状各向异性会对其自由层翻转产生一能量势垒。脉冲电流经过数字线, 提供一半或部分翻转 MTJ 单元所需要的磁场。然后, 流经位线的脉冲提供所需要的另一部分磁场, 它们的合成场把位于数字线和位线交叉点的单元自由层翻转。其它只受到数字线或位线脉冲作用的隧道结单元只受到部分磁场作用不受操作。理想情况下, 这种翻转应为一单能量势垒。事实上, 多种多样的缺陷会使其成为多能量势垒, 意味着存在不只一种翻转模式。这样, 隧道结单元位与位之间的翻转场会不一致, 使单元的翻转操作的一致性受到影响 [112]。另外, 即使是单能量势垒, 热缺陷也会对他们有一定的分布性影响, 但是, 单能量势垒会使这种影响最小化。对于单元阵列, 由于操作过程和材料变动, 也会存在翻转场的分布, 导致一些单元会对热波动相当敏感。因此, 要是数据在阵列中保存十年, 对于线宽为 $0.1 \mu m$ 、长宽比为 $1.5 \mu m$ 的结必须具有至少 $80 k_B T$ 的半选择能量势垒 [110]。

图 3.9 给出了单元尺寸为 $5 \times 20 \mu m^2$ 的 TMR 曲线, 分别为退火前和退火后。曲线形状具有多势垒的特征, 但很接近于单能量势垒, 具有较好的翻转特

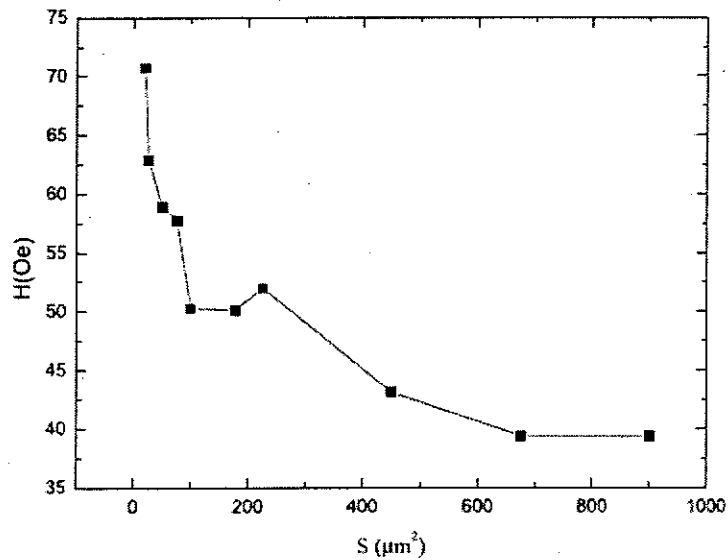


图 3.10: 八个区域内不同尺寸结单元的矫顽力平均值。

性。退火后，结电阻略有一点儿增大，而单元磁电阻比值增加两倍多，并且翻转特性进一步改善，矫顽力也相应减小。但是，本工作中，退火后大面积上的隧道结的电阻和磁电阻的均匀性并未得到很好的保持，磁电阻的具体数值在 33%-40% 范围内，有关这方面的实验研究还需进一步开展。图 3.10 给出了 8 个区域内不同尺寸结单元的矫顽力平均值。从图中可以看到，在材料不变的情况下，随单元尺寸减小，矫顽力逐渐增加。另外，我们制备的磁隧道自由层矫顽力相对较大，随磁性隧道结大小和形状不同，在 35-70 Oe 之间，可以不考虑热波动的影响。但大的矫顽力势必要求强的操作电流，导致功耗增加和对 CMOS 电路要求的提高。尺寸为 $\phi 15\mu\text{m}$ 和 $20 \times 5\mu\text{m}^2$ 的结偏离了曲线，然后随结区形状逼近矩形，TMR 值逐渐回升到曲线总体具有的趋势。考虑到我们设计的结区形状与易轴之间的关系，结的长边与易轴垂直，可以确定对于 $20 \times 5\mu\text{m}^2$ 的结，这种偏离主要源于形状各向异性 [105]。对于 $\phi 15\mu\text{m}$ 的隧道结，矫顽力偏低与边长与其直径相等的正方形，其原因可能在与尺寸较大的圆形磁性隧道结区内易形成涡旋状磁畴结构，其内在的规律我们也在进一步研究。对于面积较大矩形的结区，形状各向异性对于结的性质没有明显影响。

§3.4 结论

实验结果表明,大面积制备磁性隧道结其均匀性和一致性受到许多因素的影响。因此在大面积衬底上制备均匀、稳定的磁隧道结相对较为困难。而我们利用现有的光刻工艺初步在4英寸热氧化硅衬底上开展了磁隧道结大面积的制备研究,通过室温直接沉积磁隧道结薄膜材料和微加工制备,获得的数百个磁性隧道结基本上具有合理的结电阻(R)、积矢(RA)和较高的磁电阻比值(TMR),其均匀性和一致性也基本上可以满足我们目前研制MRAM存储单元演示器件的要求。

第四章 自旋极化探测与安德鲁反射

长期以来, 铁磁 / 绝缘体 / 超导体 (F/I/S) 已成为一种灵敏的探测金属膜中自旋极化的方法 [35]。同时, 它也表明了电流在隧穿过绝缘体后仍然可以保持自旋极化。基于达到原子层次成像水平的最终目的, 这些实验也刺激了近来基于自旋极化扫描隧穿电镜成像技术的发展 [113-115]。在许多应用中, 例如决定隧道结 (MTJ) 中隧穿磁电阻 (TMR) 的大小, 自旋极化度是相当重要的。通常情况下, 对于一个同样均匀的样品, 不同的自旋极化探测方法会得到显著差别的结果。在实际的隧道结中, 所测量的自旋极化并不是铁磁区的本征特性。它会依赖于界面特性以及势垒层的选择。

高温超导体电极近来也被采用作为自旋探测器进行自旋隧穿研究 [116-119]。尽管它可以很大程度的扩展隧穿试验的温度范围, 但对于高温超导机制理解的欠缺使这种尝试仍处于基础物理研究范畴而不能作为一个有效的工具去探测自旋极化 P 。高温超导体与传统低温超导体之间存在几个很大的差异。超导对的对称特征不再具有各项同性能隙, 即使对于类似于 BCS 图像的超导体, 态密度亦需要进行相应的修正。对势 (pair potential) 符号改变可以在 $T \rightarrow 0$ 的情况下导致 $G(V=0) > 0$, 甚至在强势垒情况下可以导致零偏压电导峰 [120-122]。这被解释为安德鲁反射 (见下节) 的双粒子过程。除通常的准粒子隧穿外, 它也对 F/I/S 结的 I-V 特性具有贡献 [123-127]。扫描隧穿显微镜所测量的零偏压峰压制近来被用于探测高温超导体中的自旋极化注入 [128]。

§4.1 安德鲁反射

安德鲁反射 [49, 50] 是一个超导体界面处耗散性的准粒子流与非耗散性的超流相互转化过程中的散射过程。对于一自旋单态的超导体, 一个具有自旋上的电子 (空穴) 的注入将会导致一个自旋下的空穴 (电子) 反射回非超导区域。而一个库伯对会被输运到超导体中, 图 4.1。这是一个相自洽的散射过程。所反射的粒子会具有注入粒子相位以及超导体宏观相的信息。由于相关联被引入非超导材料。这样, 安德鲁反射被认为与近邻效应相关 [129-133]。对于低透明度的结区, 低压下 ($qV \leq 0$), 安德鲁反射的可能性与正常态发射系数的平方相关, 对于传统的超导体可以被忽略。相对而言, 对于高透明度的结区, 在低压下以

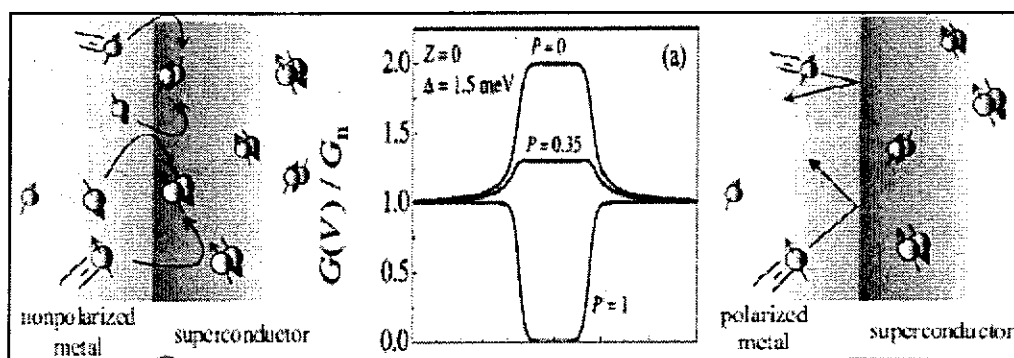


图 4.1: 安德鲁反射

及 $T = 0$, 单粒子隧穿消失, 安德鲁反射成为主要过程. 传统地由 Bogoliubov-de Gennes 方程描述 [134]

$$\begin{bmatrix} H_{\lambda} & \Delta \\ \Delta^* & -H_{\lambda^*} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} u_{\lambda} \\ v_{\lambda^-} \end{bmatrix} = E \begin{bmatrix} u_{\lambda} \\ v_{\lambda^-} \end{bmatrix} \quad (4.1)$$

通过不同区域处边界 (界面) 处的波函数匹配. 这里 H_{λ} 是自旋的单粒子哈密顿, $\lambda = \uparrow, \downarrow$, λ^- 表示自旋与 λ 相反 [127, 135]. Δ 为对势 (pair potential) [134], E 为激发能, u_{λ} 和 v_{λ^-} 分别是类电子和类空穴的准粒子幅度. Griffin 和 Demers 运用变动的 N/S 界面处方形势垒以及 Δ 函数势垒解出了 Bogoliubov-de Gennes 方程. 他们获得了一个介于干净的以及隧穿接触极限之间的结果 [136]. Blonder 等使用了类似的途径 [137], 使两个极限分别对应于 $Z \rightarrow 0$ 和 $Z \rightarrow \infty$, 称为 Blonder-Tinkham-Klapwijk 方法. 其中, Z 是 Δ 函数势垒的强度. 该途径的简洁易懂, 使它更适合于弹道自旋极化输运以及自旋注入的研究, 甚至于没有超导区域存在 [138–141].

N/S 结以及 F/N 结在输运上存在着一种类似性, 都存在着两种成份的输运, 类电子及类空穴的准粒子或者是自旋向上及自旋向下的载流子, 它们都导致电流转换并伴随着附加的边界电阻 [137, 142]. 在 N/S 结中, 安德鲁反射导致正常电流和超流间的转换. 对于 F/N 结, 存在着以自旋扩散长度为特征尺度的自旋极化电流和非自旋极化电流间的转化.

对于自旋极化载流子, 两个不同自旋的子带中的载流子的数目不同. 主自旋带中只有部分的注入电子在次自旋带中有对应的空穴使安德鲁反射得以发生. 这个过程在零偏压和零势垒情况下可以得到简化. 考虑全部的散射通道, 在费

米能级处, 对于每一个 $k_{\parallel}$, 存在 $N_{\lambda} = k_{F\lambda}^2 A / 4\pi$, 这里 A 是点接触区域, $k_{F\lambda}$ 为自旋极化的费米波矢. 假定在 F 和 S 区域存在球状的费米面, 而且不存在费米速度失配 (自旋平均). 当超导体处于正常态时, 零温 Sharvin 电导为

$$G_{FN} = \frac{e^2}{h} (N_{\uparrow} + N_{\downarrow}) \quad (4.2)$$

与 $R_{Sharvin}^{-1}$ 等价. 在超导状态下, 所有的 $N_{\downarrow}$ 通道, 也仅有 $(N_{\downarrow}/N_{\uparrow})N_{\uparrow}$ 通过 F/S 界面对安德鲁反射做出贡献, 输运 $2e$ 的电荷量, 得到 [135]

$$G_{FS} = \frac{e^2}{h} (2N_{\downarrow} + \frac{2N_{\downarrow}}{N_{\uparrow}} N_{\uparrow}) = 4 \frac{e^2}{h} N_{\downarrow} \quad (4.3)$$

在 $V = 0$ 和 $Z = 0$ 情况下, 得到归一化零偏压电导的压制 [135],

$$G_{FS}/G_{FN} = 2(1 - P_G) \quad (4.4)$$

随自旋极化的增加 $P_G = (N_{\uparrow} - N_{\downarrow}) / (N_{\uparrow} + N_{\downarrow})$

§4.2 一种用于安德鲁反射样品制备的新方法

近年来磁电子学器件的快速发展刺激了高自旋极化率材料的研究 [143,144]. 找到一种可靠的探测新材料自旋极化 (P) 的方法已成为迫切需要. 目前, 有几种方法已被用来探测自旋极化 P . 目前最广泛使用的是制备超导隧道结, 其基本结构为低温超导 / 绝缘层 / 被探测铁磁体 [145,146]. 超导材料通常采用铝, 然后在其表面形成氧化铝绝缘层. 利用在高磁场下超导体的态密度的劈裂变化可以得到被探测材料的自旋极化. 然而, 这种方法也存在相当的局限性. 和普通的隧道结类似, 隧穿发生在金属电极和绝缘层界面处的几个单层内 [147]. 界面处的自旋极化会和块体内的自旋极化特性存在显著差异. 另外, 制备 1 纳米左右的 pinhole-free 的绝缘层也相当困难. 而且, 势垒层的材料的选择也会通过跃迁矩阵元的差异而影响到所测定的自旋极化.

近来, 在理论以及实验上, 基于所谓的点接触安德鲁反射方法 (PCAR) [51, 52, 135], 人们从新对金属 / 超导结具有兴趣. 它可被用来测定多种材料的自旋极化, 尤其是对于许多很难做成隧道结的材料. 通过安德鲁反射, 一个低能电子 (能量低于超导体能隙 Δ) 从普通金属通过金属 / 超导界面进入到超导体内转化为库伯对, 同时在普通金属的对应相反自旋带内反射一个空穴 [137]. 对

于磁性材料, 由于上、下自旋带的态密度不对称, 安德鲁反射会因不对称性的差异而被不同程度的压制 [148]。金属内的自旋极化通常定义为 $P_n = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}}$, $n_{\uparrow}$ 和 $n_{\downarrow}$ 分别为金属内费米能级处主、次自旋带的电荷态密度。然而, 由 PCAR 或隧穿方法测定的自旋极化通常为 $P = \frac{I_{\uparrow} - I_{\downarrow}}{I_{\uparrow} + I_{\downarrow}}$, 即主、次自旋态电流密度的不对称性 [51]。在某些情况下, 例如所有自旋电流的费米矢量都相等时, 两种定义等价 $P = P_n$ [148]。另外, 尽管 $I_{\uparrow}$ 可以大于或小于 $I_{\downarrow}$, 利用 PCAR 方法, 我们只能测定自旋极化的绝对值 $|P|$ 。但是, 相对而言, PCAR 方法不存在势垒层质量的限制问题, 所探测的自旋极化也将不再局限于界面处几个单原子层的特性。它将取决于金属内平均自由层的长度, 因而更接近于块材料的性质。而且, PCAR 更适合于探测那些不适合或很难做成隧道结的新材料。

实验上最常用的方法是采用由化学或物理方法制成的超导针尖。针尖处的尺度为几个纳米。然后采用微分螺旋精细地对它的运动进行控制。针尖会被施加一个合适的力量压在所要探测的材料上形成一个力学接触。反之, 亦可以把要探测的材料做成针尖压在一个超导体上。相对于把材料做成隧道结而言, 这是一个简单易行的方法, 因而近年内被广泛采用。它可以灵活地改变被探测的材料, 通过适当地调节接触点处的压力来控制接触点的大小以及接触电阻。但是, 尽管这种方法在获取普通金属以及铁磁金属的信息方面获得了相当的成功, 它仍然存在着不尽人意的缺陷。界面的特性难以控制, 尽管针尖通常都进行超声清洗处理尽可能的去除可能的残留物。另外, 针尖与对应材料所形成的接触点的特性也难以表征和得到直接、可靠的控制。它的大小一般只能用 Sharvin 公式 [149, 150] 进行粗略的估计。界面处很容易形成源于不明残留物以及氧化而形成的复杂的势垒层。另外, 由于针尖和基底之间的晶格失配以及外加压力, 接触点处会存在应力以及由此引起的能带结构修正。所有这些因素很难在理论中给予适当的考虑, 尤其是给出一个合适、清晰的势垒参量 Z [137]。而这些存在的问题也会使从试验数据中提取出来的材料的自旋极化受到质疑。应力所导致的晶格畸变会对所测量的谱结构产生多大的影响, 目前还不清楚。因此, 不同的实验给出不同的结果 [51, 52, 151, 152] 也就不足为怪。一个自然形成的, 洁净的点接触也成为目前的迫切需要。

1998 年, Shashi 采用了一种办法去形成自然接触 [52]。他在优于 10^{-7} Torr 的真空下采用热蒸发方法在预先打孔的氮化硅两侧同时蒸镀所需要的金属层。氮化硅膜上的纳米孔洞则采用电子束曝光 (EBL) 和反应离子刻蚀 (RIE) 方法预

制 [153]。这种方法比较复杂,而且谱结构仍然显示出复杂的势垒特征,它可能来源于质地较为疏松的热蒸发膜。近年来,聚焦粒子束(FIB)已成为微制备技术中广泛使用的方法。采用精细粒子束刻蚀可以很容易的得到小于 30 纳米的微结构。我们将利用这种方法首先在氮化硅膜上得到小的纳米孔洞,然后采用高真空磁控溅射技术在氮化硅的两侧依次沉积超导膜和要探测的材料。利用这种方法,接触点的尺寸很容易通过调整 FIB 的刻蚀参量得到控制和调整。然后,采用低的溅射速率(小于 1 埃每秒),原子层次的接触点将会在孔洞处自然形成。所形成的点接触将不会有外界因素引起的应力而且在不中断真空的情况下,将会是干净的纯金属接触。但是,相对于通过 EBL 和 RIE 制成的碗状空洞而言 Shashi [52],由 FIB 制成的孔洞具有相当尖锐的形状。详情见下。

§4.2.1 样品制备

我们采用硅框架支撑的 100 纳米厚的氮化硅膜。使用 FIB 在上面刻出合适的纳米孔洞,使用参量为 10 pA、30 keV。孔洞的形状可以通过 FIB 剖面以及 SEM 成像测定。可以观察到,如果初始端的孔洞直径小于 40 纳米,那么锥状孔的末端直径一般在 3 纳米左右。如果初始端的孔洞直径大于 100 纳米,则得到近陡峭的侧壁。40 纳米的锥状空洞主要源于在刻蚀过程中溅射材料在孔洞侧壁上的再沉积。随着所刻蚀的洞的深度增加,所溅射出的材料难以逃逸而附着在侧壁上。

图 4.2 给出了 FIB 制备的纳米孔洞剖面的 SEM 图像 (in this example the hole was milled to 70 nm so the width of the pore was larger to increase the probability of it being cross-sectioned through its centre),它显示出锥状轮廓。孔洞制备完成之后,我们首先在孔洞的大孔径一侧沉积 100 纳米厚的 s-波超导材料钆,然后翻转氮化硅膜在另一侧沉积所要探测的磁性或非磁性金属。为防止氮化硅膜两侧的金属层在溅射过程中短路,在溅射过程中,我们采用真空铜带防护氮化硅膜的侧边同时起到固定样品的作用。另外,为防止在中断真空翻转氮化硅膜的时候金属层在空气中形成氧化层,在溅射第二层金属之前首先用氩离子轻轻地轰击样品表面除去可能形成的氧化物。

§4.2.2 结果及讨论

在 BTK 理论中,存在着两种不同的输运方式,弹道输运以及扩散型输运。

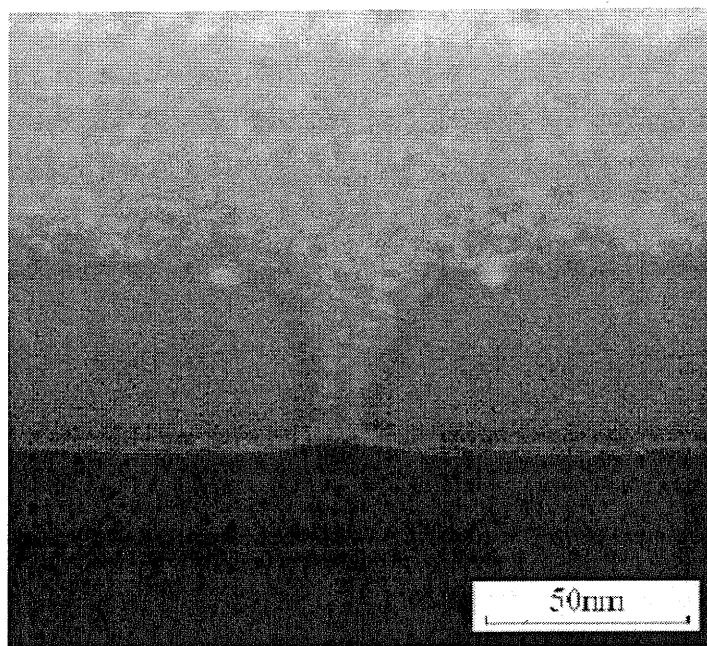


图 4.2: FIB 制备的纳米孔洞剖面的 SEM 图像。

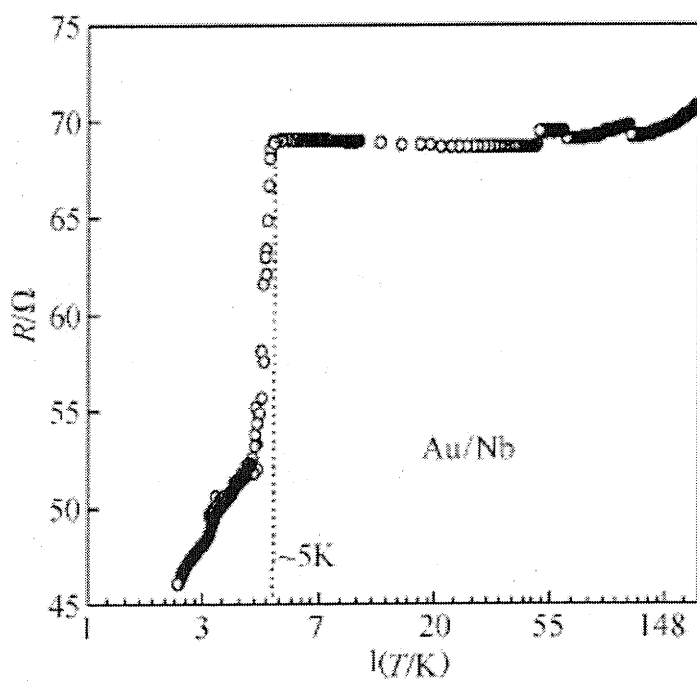


图 4.3: 金 / 钽接触的 R-T 曲线。

不同的输运特性由电子的平均自由程 l 和接触点半径 d 的比率来决定。通常情况下, 在 PCAR 实验中存在三种不同的类型: 弹道 (ballistic) ($d \ll l$), 扩散 ($d \gg l$) 以及介于其中 ($d \sim l$)。接触点处的直径 d 可以通过下面的方程利用接触电阻进行粗略的估计 [150, 154]

$$R_N = R_0(1 + Z^2) \approx (4\rho l / 3\pi d^2)(1 + Z^2) \quad (4.5)$$

表达式中第一项 R_0 即是所谓的纯金属接触的 Sharvin 电阻 [150, 151], 第二项是表达输运特性的 Maxwell 电阻, ρ 是所用材料的电导, Z 是点接触处的势垒强度。对于我们的样品, 由于势垒强度非常小 ($z < 0.1$), 可以使用 sharvin 公式去粗略的得到接触点的直径。另外, 从 SEM 图像来看, 我们所得到的孔径大致在 10 纳米左右, 所测的接触电阻范围在 30 到 50 欧姆, 从 sharvin 公式计算的结果与此是吻合的。对于金属钽而言, 电子的平均自由程大致为 30 纳米, 金属膜中的自由程会略小于块状材料, 但仍可以很好的近似认为输运为弹道型。而且, 从理论上而言, 弹道模型和扩散模型得出的结论在小势垒情况下, 所得到的自旋极化值并没有明显的差异 [155]。样品的测量采用了标准的四探针锁相技术。通过测量, 我们得到微分电阻 dV/dI , 然后转化 $dV/dI - I$ 曲线到微分电导 $dI/dV - V$ 。最后利用其在高偏压下的电导值得到归一化的电导曲线。

图 4.3 是所制备的金 / 钽接触的 R-T 曲线, 其它样品都显示出类似的 R-T 特性, 表明我们得到了可靠的超导 / 金属接触。图 4.4、4.5 给出了所测量的典型的谱结构。相对于其它工作 [51, 52, 151], 它们在超导能隙内部 (Au/Nb) 以及外部都显示出谷状结构, 类似于 Sheet 等所发表的工作 [152]。另外, 所有的谱都显示出了零偏压反常峰, 而且对于普通金属较为明显, 对于磁性单质及合金 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{48}\text{B}_{12}$ 稍弱。对于金 / 钽接触, 还发现了出现在谷状结构之外的强烈的震荡结构, 对于铜 / 钽则稍弱, 但铜 / 钽结的类安德鲁反射峰的峰值却超过了理论上限 2, 类似于 Shan 的工作 [156]。铁磁金属材料中, 没有发现类似的结构, 但是谷结构的位置远远落在超导能隙范围之外。所有这些特征还都不能在 BTK 理论中得到体现及解释 [137, 151, 157]。而且这些现象的原因目前还不清楚, 尽管有许多可能性的解释 [151, 152, 156]。因此, 目前还很难从中提取到可靠的信息。但是, 从定性的角度而言, 普通金属金、铜在超导能隙内导致了不同程度的电导增强。磁性金属及磁性合金镍 / 钽、 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{48}\text{B}_{12}$ / 钽结导致了在超导体能隙内电导的压制, 尤其对于 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{48}\text{B}_{12}$ 合金。即从定性的角度,

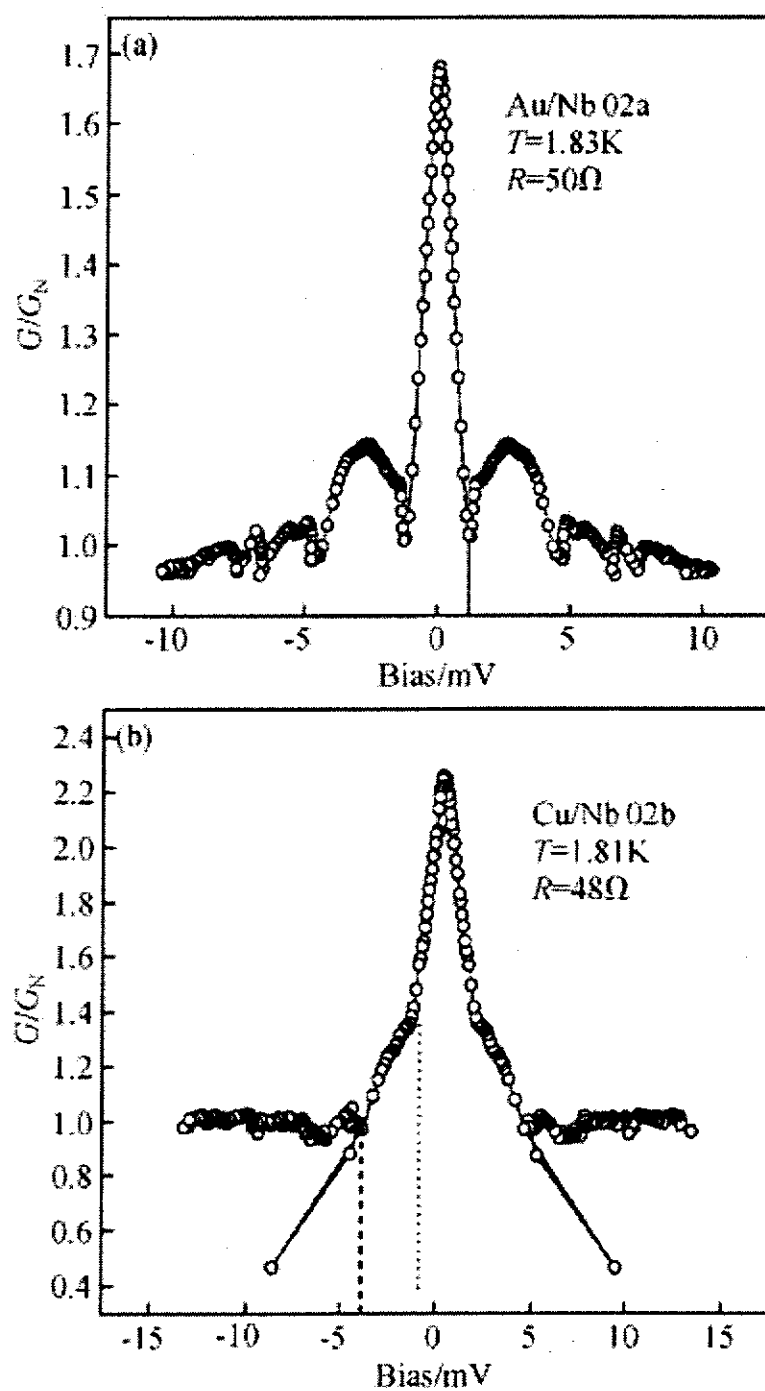
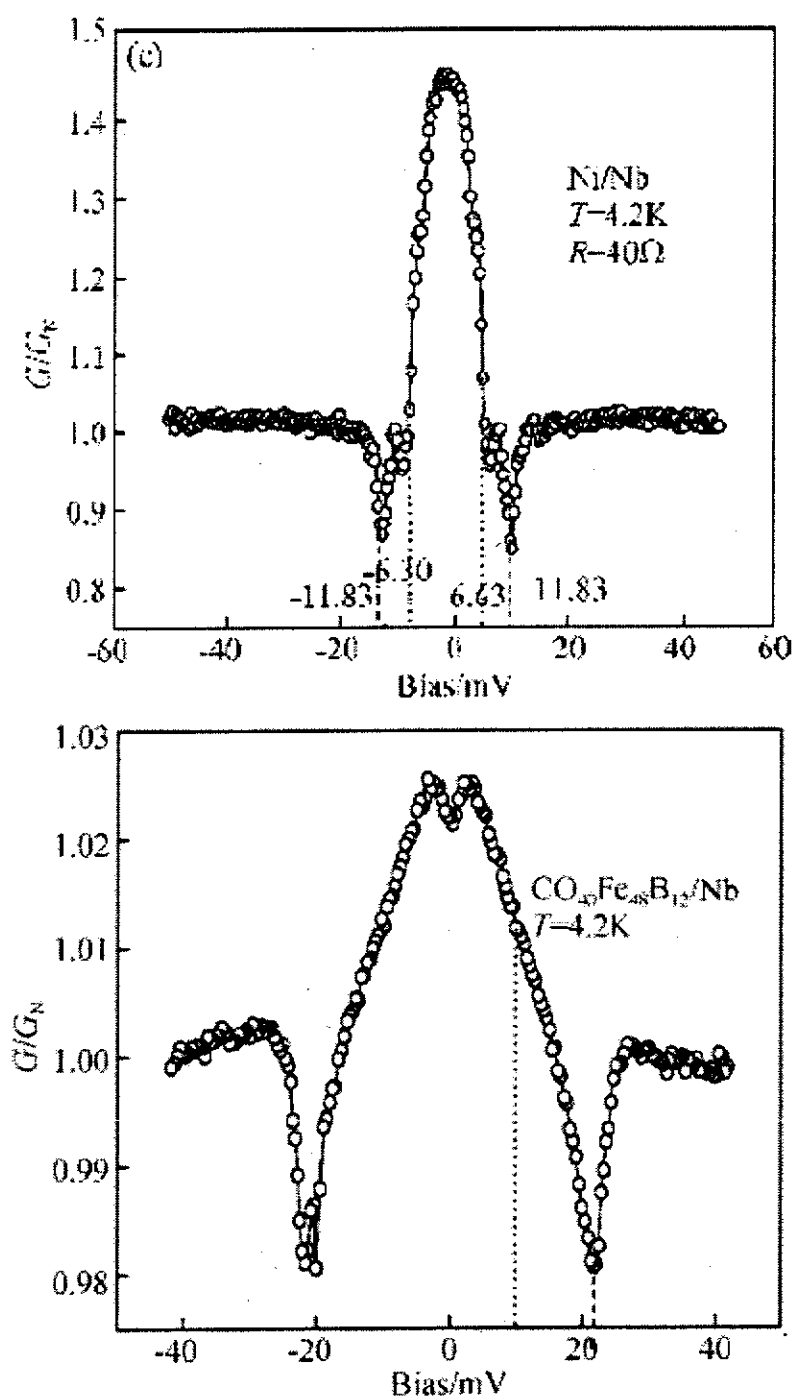


图 4.4: 归一化的 $G-V$ 曲线, Au/Nb 和 Cu/Nb .

图 4.5: 归一化的 $G-V$ 曲线, Ni/Nb 和 CuFeB/Nb.

$\text{Co}_{40}\text{Fe}_{48}\text{B}_{12}$ 合金相对有较高的自旋极化率。Sheet 等试图从临界电流的角度来解释微分电导谱结构中的谷状结构 [152]，并且认为铁磁金属是强烈的库伯对破坏者，进而否定了可能存在的临界效应 [151]。而对于我们的样品，除金 / 钽结之外，谷状结构并不能与超导体的能隙相对应，而且，接触点的尺寸并没有落在扩散型机制内。因而，我们将不得不寻找其它的解释。单等通过引入串联 Josephon 结的效应 (N/S) 去模拟隧穿 [156]，通过调整安德鲁反射电压与约瑟芬电压的权重，对于 MgCNi_3 得到了与 BCS s 波理论一致的结论。Chainali 等对于强耦合超导体 Pb 和 Nb 使用高灵敏度角集成光发射谱进行研究 [158]，发现了重新分布的达到 15 meV 的大的谱权重，远远超出了钽的能隙范围。考虑隙边准粒子的有限寿命，引入热扩展因子，然后使用 Dynes 函数对能隙值进行估计 [159]。对于钽得到 $2\Delta_0/k_B T_c = 3.7$ ，与热动力学的测量值 3.8 十分吻合。这可能是我们所得到的扩展谱结构的一种原因。

对于 ZBCP，有许多可能的原因。它包括界面处小势垒中磁性掺杂引起的近藤型散射 [160-163]，高透明度结内库伯对或无反射隧穿 [164, 165] 以及二维电子气间的隧穿反常 [166, 167]。为进行比较，我们采用简单的压针方法形成 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{Nb}$ 接触并进行了隧道谱测量 (图 4.6)。图中实线部分是采用 BTK 理论进行的拟和 (公式 §4.1)，拟和参量为 $T = 2 \text{ K}$ ， $\Delta = 1.225$ ， $Z = 0.03$ 。较大的谱扩展认为是来源于这种点接触测量中常见的热效应。但没有发现类似于前面的零偏压反常以及谷状结构。利用正常态下的测量值进行归一化后，我们得到极化率为 $P = 0.455$ ，略低于利用 Jullière 公式 [32] 从隧道结低温测量值反推得出的 0.5-0.6。

从我们的以及他人的工作来看，对于所用的低温超导体，ZBA 通常伴随着谷状结构同时出现 [152, 156]。也就是说，在很大程度上，他们可能来源于同一种原因。对于我们采用磁控溅射制备的样品，接触点界面处有可能存在两种不同材料轻微的混合，而这种混合程度会依赖于所制备膜的表面粗糙度。另外，镍以及钴铁硼合金不是简单的斯通那铁磁体。它们的带结构较为复杂，也许需要更完善的理论去考虑 s 带、 d 带电子以及它们的杂化。因此，目前而言；利用 PCAR 方法可靠地提取自旋极化信息，不仅仅需要一个高透明度的纳米接触，从理论上，我们还不得不考虑更多的因素。

然而，对所测得的自旋极化的定量解释仍需要考虑许多重要的附加因素。例如，费米面可能不是球型的 [148]，F/S 界面的尺寸以及粗糙度可能会引入扩