

NiFe/IrMn交換結合膜の磁気特性

Magnetic Properties of NiFe/IrMn Exchange-Coupled Films

沢崎立雄・鈴木功一・花房謙二・亀井一人・田ノ上修二・上野昌紀*・永井秀康*・樋上文範*
住友金属工業(株)、兵庫県尼崎市扶桑町1-8 (☎660-0891)

*リードライト・エスエムアイ(株)、大阪府三島郡島本町江川2-15-17 (☎618-0013)

T. Sawasaki, K. Suzuki, K. Hanafusa, K. Kamei, S. Tanoue, *M. Ueno, *H. Nagai, and *F. Hikami

Sumitomo Metal Industries, Ltd., 1-8 Fuso-cho, Amagasaki 660-0891

*Read-Rite SMI Corporation, 15-17 Egawa 2-chome, Shimamoto-cho, Mishima-gun, Osaka 618-0013

(1998年 10月 15日受理, 1998年 12月 4日採録)

The magnetic properties of NiFe/IrMn exchange-coupled films were investigated. The exchange-coupling field (H_{ex}) of a thick ($>150\text{Å}$) IrMn sample decreased as a result of annealing, but was not affected by annealing for a second and third time. The magnetization curves of samples with low blocking temperatures moved toward the 0 field and shrank along the field axis during successive measurements. The H_{ex} of the as-deposited sample increased after deposition. These phenomena suggest that the spin structure at the interface between IrMn and NiFe fluctuates at room temperature.

Key words: spin-valve, antiferromagnetic film, IrMn, exchange coupling

1. はじめに

近年の急激なハードディスク装置の面記録密度の上昇に伴い、再生ヘッドにはNiFe(パーマロイ)膜の異方性磁気抵抗(AMR)効果を利用した磁気抵抗(MR)ヘッドが用いられている。また、MRヘッドよりも大きな出力と高い感度が得られる巨大磁気抵抗(GMR)効果を用いたスピバルブヘッドの研究開発が精力的に進められており、すでに一部で実用化が始まっている。スピバルブヘッドの実用化においては反強磁性材料の選択が重要であり、これまでにFeMn, NiO, NiMn, PtMn, PdPtMn, RhMn, IrMnなどの材料が報告されている¹⁾⁻⁷⁾。その中で不規則合金のIrMnは、 100Å 以下に薄くしても反強磁性を示す、熱処理を必要としない、大きな交換結合磁界(H_{ex})が得られる、 H_{ex} がゼロになる温度(ブロッキング温度)が高い、耐食性が良いことなどが報告されている⁷⁾。

本研究では反強磁性材料としてIrMnに注目し、NiFe/IrMn交換結合膜の磁気特性の室温における安定性とIrMn膜厚の関係について詳しく検討した。

2. 実験方法

試料の作製方法を以下に示す。DCマグネトロンスパッタ装置を用いて、あらかじめTa(50Å)をスパッタ成膜したガラス基板上に、NiFe($50\sim 200\text{Å}$)とIrMn($30\sim 200\text{Å}$)を静磁界中(40Oe)で成

膜した。成膜前到達真空度は $5.0\times 10^{-7}\text{Torr}$ とし、スパッタArガス圧はNiFeにおいては 1.5mTorr 、IrMnにおいては 10mTorr とした。ターゲットの組成はNi80Fe20at%, Ir15Mn85at%である。

以上の方法で作製した試料の熱処理前後の交換結合磁界(H_{ex})と保磁力(H_{cc})を、振動試料型磁力計(VSM)を用いて調べた。熱処理には真空磁場中アニール炉を用い、熱処理温度は 230°C 、真空度は $1.0\times 10^{-5}\text{Torr}$ 以下、磁場は成膜時磁場と同方向に 800Oe を印加した。またX線回折、電子顕微鏡(TEM)、Auger電子分光で熱処理前後の試料の結晶構造・組織を調べた。

3. 結果および考察

3.1 IrMn膜厚依存性

記録密度を向上するためには、スピバルブ膜の膜厚は薄いことが要求される。そこでIrMnの膜厚を $30\sim 200\text{Å}$ まで変化させ H_{ex} と H_{cc} のIrMn膜厚依存性を調べた。NiFeの膜厚は 100Å に固定した。また磁気ヘッドの製造プロセスにおいては様々な熱処理工程があるため、磁気特性の耐熱性が求められる。そこで、磁場中熱処理前後の特性を比較した。ただし熱処理時間は1時間とした。

熱処理前(Fig. 1a)の H_{ex} はIrMn膜が薄くなるにつれて徐々に減少し、約 100Å 以下で急激に減少した。 H_{cc} は、 H_{ex} が急激に減少する領域で増加しており、この領域ではIrMnの磁気異方性エネルギーが小さいために、IrMnのスピニングがNiFeのスピニングに引きずられて不可逆的に回転していることが予想される⁸⁾。これらの試料に熱処理を施すと、IrMnが $70\sim 100\text{Å}$ では H_{ex} はあまり変化せず、IrMnの膜厚が 150Å 以上の領域で低下した。結果的に H_{ex} はIrMnが 80Å 前後で最大を示した(Fig. 1b)。 H_{cc} の傾向は熱処理前後で変化しなかった。

3.2 熱処理効果

IrMn膜厚が 150Å 以上では、交換結合磁界に平行に外部磁場をかけているにも関わらず熱処理により H_{ex} が低下した。その理由を調べるために熱処理回数と熱処理時間をパラメーターとして磁場中熱処理を施した。

3個のNiFe(100Å)/IrMn(150Å)に、それぞれ1, 5, 10時間の熱処理を施した。この3種類の試料を比較すると熱処理前後の H_{ex}

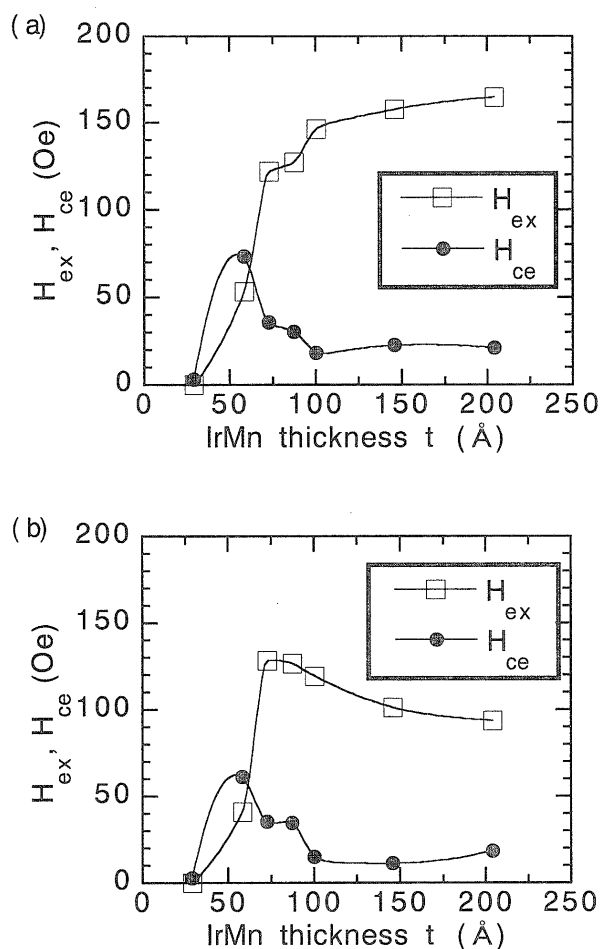


Fig. 1 H_{ex} and H_{ce} vs. IrMn thickness (a) before and (b) after annealing.

はほぼ等しいことから、 H_{ex} の低下は熱処理時間によらないことが分かった(Fig. 2a). またNiFe(100 Å)/IrMn(200 Å)に30分間の熱処理を3回繰り返した結果、一度目の熱処理により H_{ex} が低下した後は、熱処理を繰り返しても H_{ex} は変化しないことが分かった(Fig. 2b). 以上から、 H_{ex} は短時間の熱処理で低下した後は安定であることが分かった.

熱処理による H_{ex} の変化の原因を調べるために、X線回折、TEM、Auger電子分光を用いて熱処理前後の試料を比較した。X線回折パターンに変化はなく、TEMによる断面観察や電子線回折の結果からは結晶組織や結晶配向に変化は見られなかった。またAuger電子分光による試料面の深さ方向の組成プロファイルにも顕著な変化は見られなかった。以上のことから、熱処理による H_{ex} の減少は結晶配向や組織の変化、界面拡散によるものではないことが分かった.

3.3 H_{ex} の温度依存性

これまでの結果から、 H_{ex} の大きさはIrMn膜の厚みに大きく依存することが分かった。次に H_{ex} の温度依存性とIrMn膜の厚みの関係を調べた。熱処理による H_{ex} の減少の効果を排除するために、

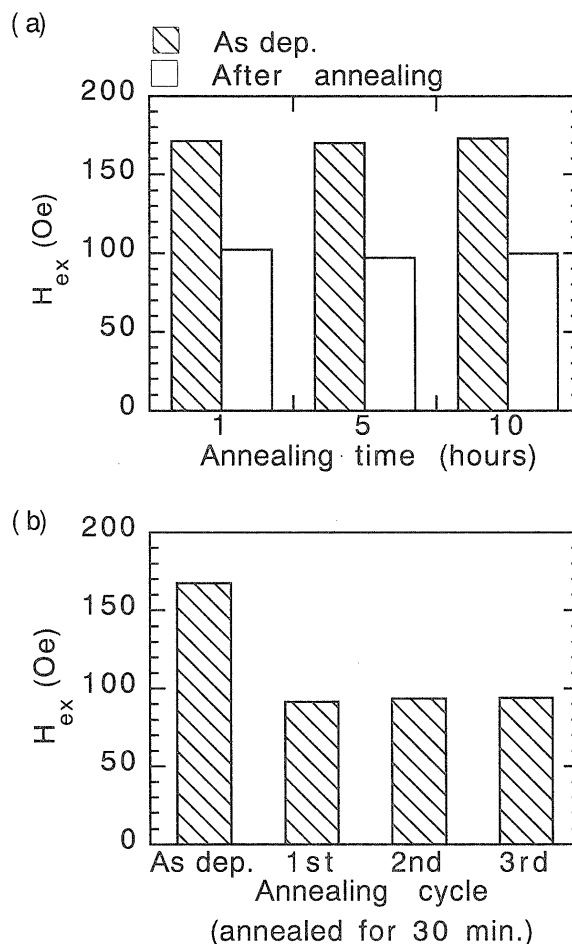


Fig. 2 Annealing effect on H_{ex} : (a) H_{ex} vs. annealing time, (b) H_{ex} vs. annealing cycles.

測定の前に試料にあらかじめ1時間の熱処理を施し H_{ex} を安定させた.

Fig. 3aはNiFe(100 Å)/IrMn(90 Å)の H_{ex} の温度依存性である。 H_{ex} は温度の上昇とともに単調に減少し、約140℃でゼロになった。 H_{ce} は若干上昇した後に減少に転じる。一方、Fig. 3bに示すNiFe(100 Å)/IrMn(200 Å)では、室温での H_{ex} はFig. 3aの場合より小さいものの、より高温まで H_{ex} は保たれており、約180℃でゼロになる。以上から、IrMnが薄い試料より厚い試料の方がブロッキング温度が高いことが分かった.

今回得られたIrMn交換結合膜のブロッキング温度は従来報告された値より約100℃も低い⁷⁾. 本実験で作製した試料のIrMn層は小さな柱状粒からなっており、また(111)配向が弱いことがTEM観察やX線回折から明らかであった。試料の結晶性が悪いためにブロッキング温度が低くなっていると考えられる.

3.4 連続測定による H_{ex} の変化

NiFe/FeMn交換結合膜の磁化曲線を連続で測定すると、測定ごとに H_{ex} と H_{ce} がともに減少することが報告されている⁸⁾. 今回我々はブロッキング温度が約140℃と低いNiFe/IrMnにおいて同様の現象を観測した.

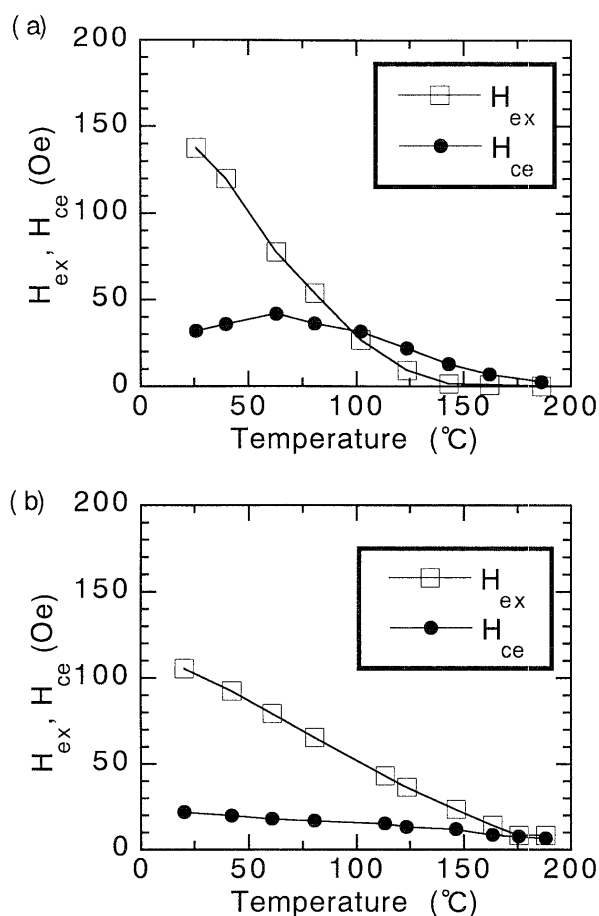


Fig. 3 H_{ex} and H_{ce} vs. temperature : (a) NiFe (10 nm)/IrMn(9 nm), (b) NiFe(10 nm)/IrMn (20 nm).

Fig.4に、熱処理前のNiFe(100 Å)/IrMn(80 Å)の磁化曲線を10回連続で測定した結果を示す。測定は室温で行い、1ループの測定時間は5分とした。測定を繰り返すごとにヒステリシスループは左側にシフトした。

連続測定による H_{ex} と H_{ce} の変化の様子をFig.5に示す。 H_{ex} は2回目の測定に大きく減少した後、その後は一定の割合で減少する。また H_{ce} は2回目の測定で増加した後、一定の割合で減少する。さらに、連続測定により減少した H_{ex} は、その後室温・無磁場中に放置するとほぼ元の値に戻ることも見いだした。連続測定による H_{ex} の低下は、試料に熱処理を施した後も観察された。

一方、NiFe(100 Å)/IrMn(200 Å)においては熱処理前後において連続測定による H_{ex} の変化は見られなかった。連続測定による磁化曲線の変化は、交換力と反強磁性体の局所異方性との競合で界面のスピンのふらつきためと考えられている⁸⁾。このことから、IrMn層が厚い場合に連続測定による H_{ex} の変化が見られないことは、IrMn膜の磁気異方性エネルギーが大きいために界面のスピンの状態が安定であるためと考えられる。

また3.1節と3.2節で述べた熱処理後に H_{ex} が減少する原因も、IrMn膜の磁気異方性エネルギーの大小で以下のように説明でき

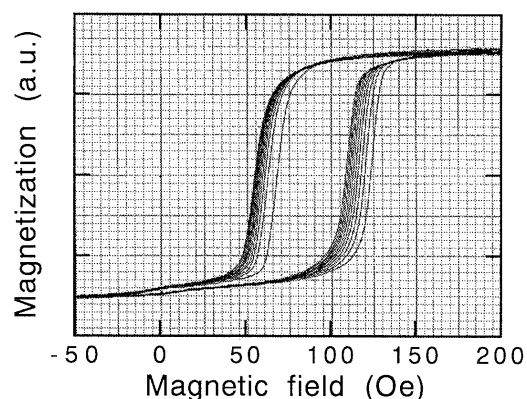


Fig. 4 Successive hysteresis loops of NiFe(100 Å)/IrMn(80 Å).

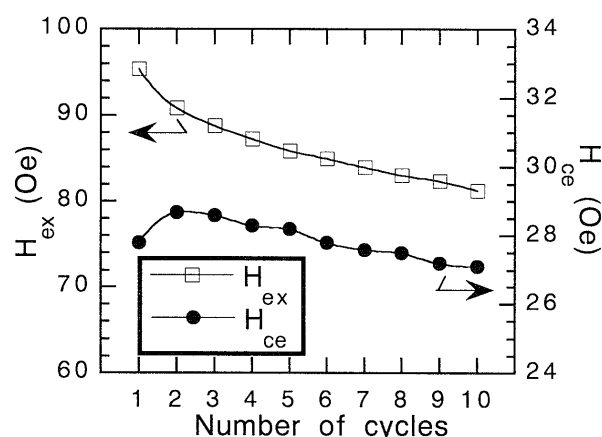


Fig. 5 H_{ex} and H_{ce} vs. the number of cycles.

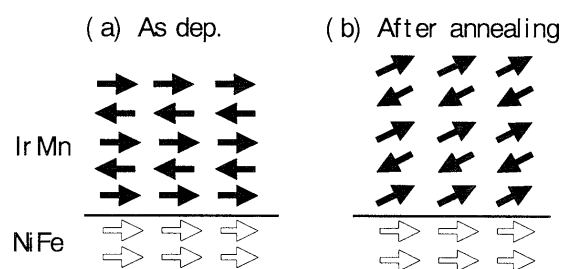


Fig. 6 Schematic illustration of the spin structure.

ると考えられる。 γ -Mnのスピンは[001]方向を向くことが一般的に知られており⁹⁾、今回作製した試料は(111)配向している。IrMnはNiFeと交換結合しながら成長するため、as depo.状態では界面のスピンは(111)面内成分のみを持つと仮定する(Fig.6a)。しかし、熱処理を施すとIrMnが厚い試料では磁気異方性エネルギーにより[001]方向を向こうとするためスピンは(111)面から傾き、その際に H_{ex} は低下する(Fig.6b)。一方、IrMnが薄い試料ではIrMnの磁気異方性エネルギーが小さく、界面の交換結合が相対的に大きいために、熱処理を施してもスピン構造は変化せず、 H_{ex} は変化しない。

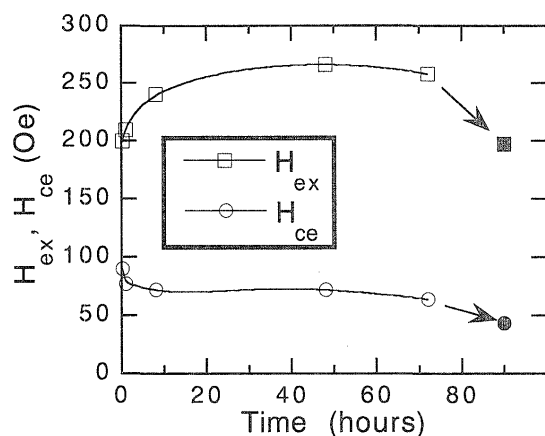


Fig. 7 Time dependence of H_{ex} and H_{ce} of NiFe (50 Å)/IrMn(90 Å). Solid symbols (■●) indicate H_{ex} and H_{ce} after annealing.

3.5 H_{ex} の経時変化

さらに、交換力と反強磁性体の局所異方性との競合で界面のスピンのふらついている証拠として、 H_{ex} が成膜直後から時間がたつにつれて増加するという興味深い現象を発見した。Fig. 7にNiFe(50 Å)/IrMn(90 Å)の H_{ex} と H_{ce} が時間とともに変化する様子を示す。室温・無磁場中に保管した試料の H_{ex} は、成膜15分後の値から約30%増加し、その後安定した。同様に、NiFe(50 Å)/IrMn(200 Å)の H_{ex} も時間とともに約15%増加した。しかしながらこれらの試料に熱処理を施すと、NiFe(50 Å)/IrMn(90 Å)の H_{ex} は成膜直後の値まで減少した。Fig. 1に示すように、IrMnが80 Å前後では熱処理前後で H_{ex} が変化しないことから、NiFe(50 Å)/IrMn(90 Å)の成膜後からの H_{ex} の増加分は熱処理によって失われることが分かる。また熱処理により H_{ex} が減少した後は、 H_{ex} の経時変化は消失した。

前節までに述べたように、 H_{ex} に対する熱処理の効果や繰り返し測定による H_{ex} の変化の様子は、IrMnの膜厚の大小によって大きく異なっていた。しかし成膜後から H_{ex} が増加する現象は、増加率に差があるもののIrMnの膜厚に依存せず見られた。

このように H_{ex} が小さくなる現象と大きくなる現象が同時に見

られるが、それらの詳しいメカニズムは明らかでない。しかしながらいずれも室温で観測されることから、交換結合界面のスピ構造はエネルギー的にほぼ等価な数多くの状態が存在し、それらの状態間を遷移するために H_{ex} が変化していると予想される。

4. まとめ

NiFe/IrMn交換結合膜において、 H_{ex} に対する熱処理の効果や H_{ex} の温度依存性の様子がIrMnの膜厚に大きく影響を受けることが分かった。

IrMnが薄い場合には、磁化曲線を連続測定すると H_{ex} が減少するが、その後室温・無磁場中放置するとほぼ元の値に戻ることを見いだした。この現象は熱処理前後ともに観測された。

IrMnの膜厚によらず、as depo.の試料の H_{ex} が成膜後から時間とともに増加することを見いだした。この現象は熱処理を施すと消失した。

以上の現象はすべて、交換結合界面でスピ構造が室温で不安定であることを示唆していると考えられる。

文 献

- 1) C. Tsang, N. Heiman, and K. Lee : *J. Appl. Phys.* **52**, 2471 (1981)
- 2) S. Soeya, S. Tadokoro, T. Imagawa, and M. Fuyama : *J. Appl. Phys.* **74**, 6297 (1993)
- 3) T. Lin, C. Tsang, R. E. Fontana, and J. K. Howard : *IEEE Trans. Magn.* **31**, 2585 (1995)
- 4) 斎藤正路, 柿原芳彦, 渡辺利徳, 長谷川直也 : 日本応用磁気学会誌, **21**, 505 (1997)
- 5) H. Kishi, Y. Kitade, Y. Miyake, A. Tanaka, and K. Kobayashi : *IEEE Trans. Magn.* **32**, 3380 (1996)
- 6) 瀧口雅史, 菅原伸浩, 岡部明彦, 林 一彦 : 第20回日本応用磁気学会学術講演概要集, p. 140 (1996)
- 7) H. N. Fuke, K. Saito, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, and M. Sahashi : *J. Appl. Phys.* **81**, 4004 (1997)
- 8) C. Schlenker, S. S. P. Parkin, J. C. Scott, and K. Howard : *J. Magn. Magn. Mater.* **54-57**, 801 (1986)
- 9) 近角聡信, 太田恵造, 安達健五, 津屋 昇, 石川善和 編 : 「磁性体ハンドブック」, p390 (朝倉書店, 1975)