

面内高配向 Ni-Fe / Mn-Ni 交換結合膜の 磁気トルク解析から求めた反強磁性層の磁気異方性

Magnetic Anisotropy of the Antiferromagnetic Layer of Ni-Fe / Mn-Ni Exchange-Coupled Epitaxial Bilayers Determined by Magnetic Torque Analysis

甲野藤 真・角田 匡清・高橋 研

東北大学大学院工学研究科電子工学専攻、仙台市青葉区荒巻字青葉 05 (〒980-8579)

M. Konoto, M. Tsunoda and M. Takahashi

Department of Electronic Engineering, Tohoku University, Aoba-yama 05, Sendai 980-8579

(1999 年 10 月 29 日受理、2000 年 1 月 25 日採録)

The magnetic anisotropy of the antiferromagnetic layer of Ni-Fe/Mn-Ni exchange-coupled bilayers was investigated by magnetic torque analysis. The Ni-Fe/Mn-Ni bilayers were highly oriented in their crystallographical axes in the film plane by epitaxial growth on MgO{110} single-crystal substrate. The magnetic anisotropy energy estimated from the saturated amplitude of torque curves is 6.4×10^5 erg/cm³. The symmetry of the magnetic anisotropy reflects the crystallographic symmetry of the antiferromagnetic layer. The easy axis of the magnetic anisotropy is independent of the direction of the applied field during the film deposition. We conclude that the origin of the magnetic anisotropy of the antiferromagnetic layer is magnetocrystalline anisotropy.

Key words: exchange anisotropy, antiferromagnetic layer, magnetocrystalline anisotropy, anisotropy constant, crystal orientation, Mn-Ni

1. はじめに

強磁性層 / 反強磁性層積層膜に働く交換磁気異方性はスピンバルブヘッドに応用されている。交換磁気異方性の起源に関してこれまでに幾つかのモデル^{1)~3)}が提案されているが、現在のところ様々な系の交換磁気異方性を統一的に説明できるモデルは存在しない。これまで筆者らは、Ni-Fe/Mn_{1-x}Ni_x (0.11 ≤ x ≤ 0.23) 積層膜における交換磁気異方性について、Meiklejohn らによって提案された Single spin model¹⁾を用いて検討し、①交換結合磁界および ②保磁力の増大が、それぞれ ①強磁性層 / 反強磁性層界面での結合エネルギー (J) よりも磁気異方性エネルギー ($K_{AF}d_{AF}$) が大きな反強磁性結晶粒子による寄与、および ② J が $K_{AF}d_{AF}$ より大きな反強磁性結晶粒子による寄与として定性的に説明できることを報告している^{4)~6)}。しかしながら、このモデルで仮定された、結合エネルギー (J) および反強磁性層の一軸磁気異方性 (K_{AF}) の物理的起源については全く解釈が与えられていない。特に反強磁性層の一軸磁気異方性に関しては、ブロッキング温度以上からの磁界中冷却により、任意の方向に交換磁気異方性が誘導され得ること、あるいは膜面内の結晶方位がランダム

な多結晶膜の場合でも異方性が発現することなどの実験事実から、一種の誘導磁気異方性とも考えられるが、その詳細は現在のところ全く不明である。また、反強磁性体の磁気異方性定数は、NiO 単結晶において磁気トルク計測から直接に決定された例⁷⁾、あるいは Ni-Fe / Fe-Mn 交換結合膜において、磁化曲線に交換結合磁界が発生する反強磁性層の臨界膜厚 (d_{AF^c}) と一方向異方性定数(K)の飽和値から計算するという間接的な方法で値を決定した報告⁸⁾がわずかに知られているが、実用に供されている数多くの反強磁性膜に関して、その値が知られていないのが実状である。

Single spin model においては、反強磁性層厚 d_{AF} が臨界厚 d_{AF^c} ($\equiv J / K_{AF}$) よりも小さい場合、外部磁界によって強磁性層のスピンが運動する際には、反強磁性層のスピンは強磁性層のスピンに追従して運動する⁹⁾。従って、その磁気トルクは反強磁性層の磁気異方性を良く反映すると考えられるが、Ni-Fe / Mn-Ir 積層膜の磁気トルク解析においては、 $d_{AF} < d_{AF^c}$ で磁気トルク曲線の磁界依存性が Single spin model による計算結果と大きく異なっており、その原因は反強磁性層が多結晶構造を持ち、その結晶方位が膜面内でランダムであることに因ると推察されている¹⁰⁾。そこで本報告では、反強磁性層の結晶方位が膜面内で揃った強磁性層 / 反強磁性層積層膜を作製し¹²⁾、磁気トルク法を用いてその磁気異方性を測定し、Single spin model の計算結果と比較しながら解析することによって、モデルで仮定された反強磁性層の磁気異方性の物理的起源およびその大きさに関する知見を得ることを目的とした。

2. 実験方法

試料作製は、対向ターゲット式 DC スパッタリング装置により、合金ターゲットを用いて行った。基板には MgO{110}単結晶板を用いた。成膜室内を 1×10^{-9} Torr 以下に排気後、Ar ガス圧 3 mTorr、投入電力 100 W の条件で、基板表面を RF プラズマで 180 秒間エッチングした。基板表面のエッチング量にすると 3 Å 以下に相当し、表面のクリーニングのみが行われていると考えられる。その後、Ar ガス圧 1 mTorr、基板温度が室温の状態、基板に RF 電力を印加しながら、基板側の Ni-Fe を 200 Å 堆積した。

バイアス電圧 (DC 成分) は -200 V とした。バイアスの印加を停止後、作製された Ni-Fe 膜上に 18at%Ni-Mn d_{AF} ($d_{AF} = 50 \sim 1000$ Å) と酸化防止膜として Ni-Fe 300 Å を積層した。磁気トルク測定用の試料は、上層 Ni-Fe 層のトルク曲線への影響を避けるため、MgO{110} / Ni-Fe 200 Å / Mn-Ni 50 Å 二層膜の上に酸化防止膜として、純 N_2 でスパッタリングを行って、磁化を消失させた Ni-Fe (N_2) 膜を積層した。構造解析の結果から、基板側の Ni-Fe および Mn-Ni は (110) 面配向であり、かつ膜面内の結晶方位が揃っており、基板との方位関係は MgO[110] // Ni-Fe[110] // Mn-Ni[110] であることがわかった¹²⁾。成膜時には基板面内に磁界 H_{sub} を印加した。 H_{sub} の強度は約 30 Oe で、印加方向は特に断らない限り、MgO[110] 軸に平行とした。

積層膜の磁気特性は磁化曲線およびトルク曲線から評価した。

磁化曲線の測定は、VSMにて行った。磁化容易方向の磁化曲線から次式によって一方向異方性定数 J_k を算出した。

$$J_k = M_s \cdot d_F \cdot H_{ex}$$

ここで、 M_s は Ni-Fe の飽和磁化、 d_F は Ni-Fe 層厚、 H_{ex} は磁化曲線のシフト量である交換結合磁界である。

トルク曲線の測定は感度 1×10^{-3} dyn·cm のトルク磁力計にて行った。トルク曲線の測定時の印加磁界の 0 rad. 方向は H_{sub} の方向とした。

3. 実験結果および考察

3.1 モデルと計算結果

Meiklejohn¹⁾に従い、強磁性層 / 反強磁性層積層膜の単位面積当たりのエネルギーを

$tE = -M_s d_F H \cos(\theta - \beta) + K_{AF} d_{AF} \sin^2 \alpha - J \cos(\beta - \alpha)$, とおく。 t は積層膜の膜厚、 J は強磁性層と反強磁性層間の単位面積当たりの結合エネルギー、 $M_s d_F$ は強磁性層の単位面積当たりの飽和磁化、 H は印加磁界強度、 K_{AF} は反強磁性層の単位体積当たりの磁気異方性エネルギー、 d_{AF} は反強磁性層の厚さである。 θ 、 α 、 β は、それぞれ印加磁界、反強磁性スピン、強磁性スピンの角度で、 K_{AF} の方向を基準とする。簡単のために強磁性層の磁気異方性は省略した。反強磁性層の磁気異方性には一軸異方性が仮定されており、第二項に与えられている。 $M_s d_F H / J$ 、 $K_{AF} d_{AF} / J$ をパラメータとして数値計算を行い、 H および θ の変化に対して、エネルギーを極小にする α 、 β を決定することによりトルク曲線を計算した¹⁰⁾。

トルク曲線の計算結果を Fig. 1 に示す。単位体積当たりのトルクを L とし、単位面積当たりのトルク tL を J で規格化した値で示した。反強磁性層の磁気異方性が反映される $K_{AF} d_{AF} / J < 1$ の場合の典型例として $K_{AF} d_{AF} / J = 0.5$ の場合の計算結果を示す。この条件では、反強磁性層の異方性エネルギー ($K_{AF} d_{AF}$) が界面での結合エネルギー (J) よりも小さいために、印加磁界の回転に際して、強磁性スピンと反強磁性スピンの両スピンの方向がほぼ一体となって運動する。低磁界の場合、両スピンの方向は印加磁界の回転に伴って、反強磁性層の異方性の容易軸を中心に振れるので、1 回対称の成分が支配的なトルク曲線を示す。 $M_s d_F H / J =$

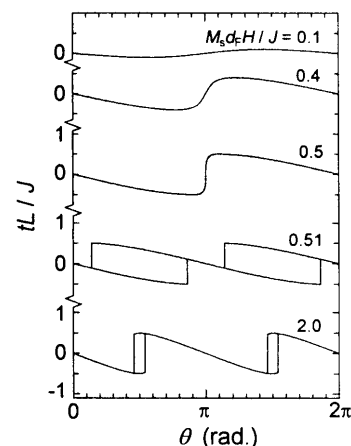


Fig. 1 Calculated torque curves as a function of the applied field for the case of $K_{AF} d_{AF} / J = 0.5$.

0.5 までは、磁界強度が増加するにつれて、容易軸からの振れ角が増大して、トルク曲線の振幅が増大する。 $M_s d_F H / J > 0.5$ となり、ゼーマンエネルギー ($M_s d_F H$) が反強磁性層の異方性エネルギー ($K_{AF} d_{AF}$) よりも大きくなると、 $\theta = 0.5\pi, 1.5\pi$ rad. 付近で両スピンの方向が不連続的に変化するようになり、2 回対称の成分が支配的なトルク曲線となる。これは、反強磁性層の一軸異方性を反映したものである。また、両スピンの不連続的な変化に伴い回転ヒステリシス損失が生じるが、印加磁界強度の増加と共に、両スピンの方向が磁界の回転に追従するようになるため、損失の大きさは減少してゆく。以下では、トルク曲線の形状が 1 回対称から 2 回対称に変化する磁界を臨界磁界 H_c と呼ぶ。

Fig. 2 には、 $K_{AF} d_{AF} / J \leq 1$ の範囲内で $K_{AF} d_{AF} / J$ を変化させて計算した、トルク曲線の振幅 tL/J の印加磁界強度 $M_s d_F H / J$ 依存性を示す。 $K_{AF} d_{AF} / J = 0.5$ の場合に注目すると、Fig. 1 に示したように、 $M_s d_F H / J \leq 0.5$ では磁界強度の増加に伴い tL/J は増大してゆくが、 $M_s d_F H / J > 0.5$ では飽和することがわかる。他の $K_{AF} d_{AF} / J$ の場合も同様の变化を示す。ここで、 tL/J の飽和値と $K_{AF} d_{AF} / J$ との関係に着目すると、全ての場面で両者は一致している。このように $K_{AF} d_{AF} / J \leq 1$ の場合には、 tL/J の飽和値と $K_{AF} d_{AF} / J$ の値が一致することになり、トルクカーブの振幅 tL の

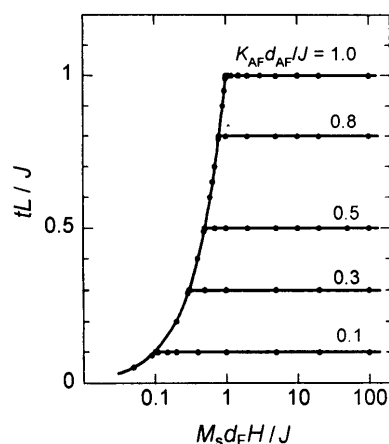


Fig. 2 Calculated amplitude of torque curves as a function of the applied field for various $K_{AF} d_{AF} / J$.

飽和値から反強磁性層の異方性エネルギー $K_{AF}d_{AF}$ が求められることがわかる。

3.2 磁化曲線から評価した交換磁気異方性の膜厚依存性

Fig. 3 に、Ni-Fe 200 Å / Mn-Ni d_{AF} / Ni-Fe 300 Å 三層膜の下層の界面の方向異方性定数 J_k の反強磁性層厚 d_{AF} 依存性を示す。Single spin model による計算結果では、 $d_{AF} > d_{AF}^c$ の場合には磁化曲線上に交換結合磁界 H_{ex} が発生し、 $d_{AF} < d_{AF}^c$ の場合には保磁力 H_c が発生する。測定結果では、 J_k は $d_{AF} = 100$ Å 付近から急激に増大し、200 Å を過ぎると約 0.04 erg/cm^2 の飽和値を示す。 $d_{AF} = 50$ Å では $J_k = 0$ であり、明らかに $d_{AF} < d_{AF}^c$ となっていることがわかる。そこで、以下では $d_{AF} = 50$ Å の二層膜を作製しトルク曲線を測定した。

3.3 磁気トルク法で評価した積層膜の磁気異方性

Fig. 4 (a) は Ni-Fe 200 Å / Mn-Ni 50 Å 二層膜のトルク曲線の測定結果である。縦軸は面積当たりのトルク tL で示してある。また、比較の為にを行った Ni-Fe 200 Å 単層膜の磁気トルク曲線の印加磁界依存性を Fig. 4 (b) に示す。Ni-Fe 単層膜の作製方法は

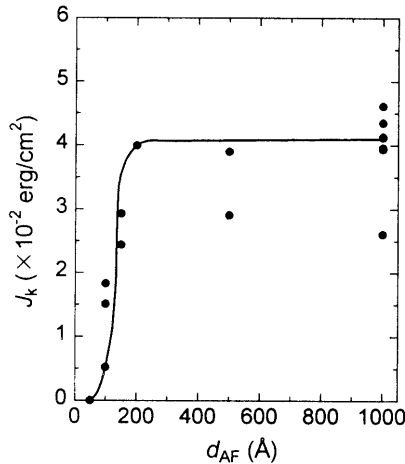


Fig. 3 Changes in the measured unidirectional anisotropy constant J_k as a function of antiferromagnetic layer thickness d_{AF} .

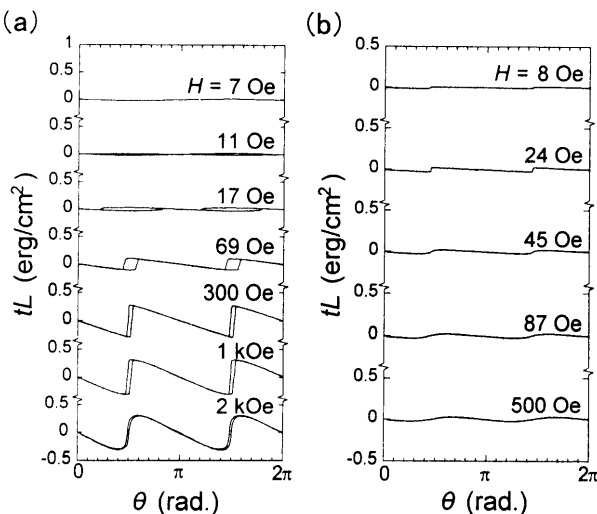


Fig. 4 Measured torque curves for (a) MgO{110} / Ni-Fe 200 Å / Mn-Ni 50 Å bilayers and (b) MgO{110} / Ni-Fe 200 Å film as a function of the applied field.

二層膜の場合と同様であり、膜面内の結晶方位が揃い、MgO[110] // Ni-Fe[110]の関係にあることがわかっている。まず、Ni-Fe 200 Å 単層膜の磁気トルク曲線 (Fig. 4 (b)) についてみる。全ての印加磁界の下で、2 回対称の成分が支配的なトルク曲線となっており、 H の増加に伴って振幅が増大する。飽和振幅から異方性定数を算出した結果、 $K_u \sim 1 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ を得た。

次に強磁性層 / 反強磁性層積層膜の測定結果 (Fig. 4 (a)) を Fig. 1 の計算結果と比較してみる。まず、 $H = 7 \text{ Oe}$ の場合には、1 回対称の成分が支配的なトルク曲線となっている。これは $H < H_c$ の場合のトルク曲線の計算結果に一致している。 $H \geq 300 \text{ Oe}$ の場合には、 $\theta = 0.5 \pi, 1.5 \pi \text{ rad}$ 付近でスピンの不連続な反転が生じており、2 回対称の成分が支配的なトルク曲線となっている。このことから、積層膜の磁気異方性は一軸的であり、 $0, \pi \text{ rad}$ 方向が容易軸となっていることがわかる。また、トルク曲線の振幅は H の増加に対して飽和しており、スピンの方向の不連続的な変化に伴って回転ヒステリシス損失が発生していることがわかる。これらの特徴は、 $H > H_c$ の場合の計算結果に一致している。ここでトルク曲線の振幅に着目すると、その大きさは Fig. 4 (b) に示した Ni-Fe 200 Å の K_u では説明できないことがわかる。このことから、Fig. 4 (a) に見られた一軸磁気異方性は反強磁性層に起因していることがわかる。

次に、 $H = 11 \sim 69 \text{ Oe}$ の場合についてみる。トルク曲線は 2 回対称の成分が支配的でありながら振幅が印加磁界の増大に伴って増加していることがわかる。Fig. 1, Fig. 2 に示した計算結果によれば、2 回対称の成分が支配的なトルク曲線の振幅は、印加磁界の強度には依存せず一定値を示す。このような実験結果と計算結果との不一致の原因は熱エネルギーであり、 $H = 11 \sim 69 \text{ Oe}$ の場合のトルク曲線は、本来 1 回対称の成分が支配的なトルク曲線が 2 回対称の成分が支配的なトルク曲線に変化したためであると考えられる¹⁰⁾。

以上のことから、膜面内の結晶方位が揃った積層膜のトルク曲線は Single spin model に基づいた計算結果と良く一致していると結論できる。そこで、トルク曲線の飽和振幅から反強磁性層の磁気異方性エネルギー K_{AF} の大きさを評価する。Fig. 5 には測定したトルク曲線の振幅の印加磁界強度依存性を示す。 $H > 1 \text{ kOe}$ では振幅が飽和していることがわかる。この時の飽和振幅から、 $K_{AF}d_{AF} = 0.32 \text{ erg/cm}^2$ が得られる。 $d_{AF} = 50 \text{ Å}$ であることを考慮すると、 $K_{AF} = 6.4 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 程度であると見積もられる。

3.4 K_{AF} の起源

次に、 K_{AF} の物理的起源について考察する。Fig. 4 から、Ni-Fe / Mn-Ni 積層膜の磁化容易方向は、 $0, \pi \text{ rad}$ の方向、すなわち MgO[110] 方向であり、成膜時の印加磁界 H_{sub} の方向に平行であることがわかった。そこで次に、成膜時の印加磁界 H_{sub} の方向が、積層膜の磁化容易方向に与える影響を検討した。MgO[110] 軸に垂直に H_{sub} を印加しながら同様の二層膜を作製し、同様にトルク解析を行った。 $H = 2 \text{ kOe}$ の磁界印加時のトルク曲線を Fig. 6 (b) に示す。Fig. 4 (a) の結果も Fig. 6 (a) に再掲した。 $H_{sub} \perp$ Mn-Ni[110] の条件で作製した積層膜の場合 (b) には、 $H_{sub} \parallel$ Mn-Ni[110] の場合 (a) と位相が 90° ずれており、積層膜の磁化

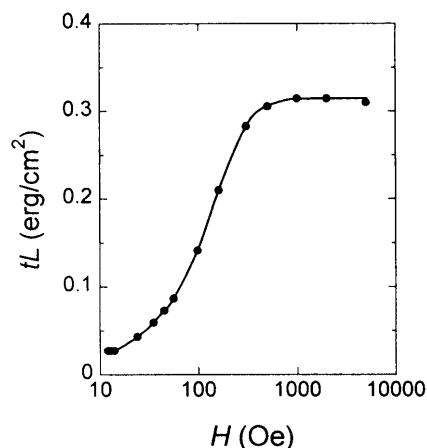


Fig. 5 Measured amplitude of torque curves for MgO{110} / Ni-Fe 200 Å / Mn-Ni 50 Å bilayers as a function of the applied field.

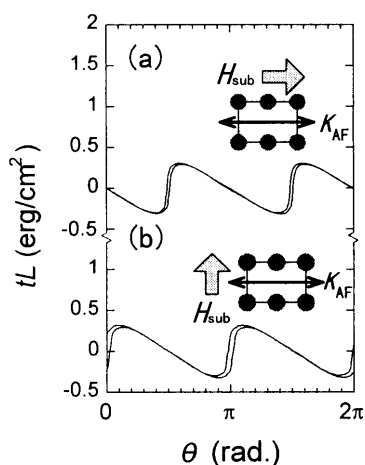


Fig. 6 Measured torque curves for MgO{110} / Ni-Fe 200 Å / Mn-Ni 50 Å bilayers. The measurement field was 2 kOe. The directions of the applied field during the deposition, H_{sub} , were (a) parallel and (b) perpendicular to the Mn-Ni [110] axis.

容易方向は $\theta = 0.5\pi, 1.5\pi$ rad. の方向である。 H_{sub} の方向を 0 rad. に対応させていることから、積層膜の磁化容易方向は H_{sub} の方向に因らず、Mn-Ni[110]軸に平行となることがわかった。Single spin model に基づき、強磁性層磁化と反強磁性層スピンの結合していると仮定すれば (cf. $-J\cos(\beta - \alpha)$)、積層膜の磁化容易方向は反強磁性層の磁気異方性 K_{AF} の容易方向に一致する。このことを考慮すれば、以上の実験結果は K_{AF} の容易方向が積層膜面内で2回の対称性を持った Mn-Ni[110]軸に常に平行であり Mn-Ni の結晶の対称性を強く反映していることを意味し、 K_{AF} の起源が結晶磁気異方性であることを示唆する。

次に、以上の実験から求めた K_{AF} の容易軸方向とバルク材のスピンの配列に関する知見から予想される反強磁性層の結晶磁気異方性の容易軸方向の関係について議論する。今回作製された積層膜では、 γ -Mn-Ni は基板面に対して $(1\bar{1}0)$ 面配向し、結晶構造は $c/a < 1$ の fct 構造であった¹²⁾。 γ -Mn-Ni の結晶構造とスピンの構造の対応関係^{13), 14)}に着目して、積層界面での γ -Mn-Ni のスピ

ン配列を推測すると、スピンは $(1\bar{1}0)$ 面内で強磁性的に配列し、Mn-Ni[001]軸と平行になる。このため反強磁性層の磁気異方性の容易軸の方向は Mn-Ni[001]軸の方向と考えられる。これはトルク曲線から求めた K_{AF} の容易軸方向である Mn-Ni[110]軸の方向とは一致しない。この原因としては、測定した積層膜において、強磁性層のスピンと反強磁性層のスピンとの結合の状態が前述した Single spin model の仮定と異なっていることが考えられる。Koon はマイクロマグネティクスに基づく計算によって、反強磁性体の compensate 面と強磁性体が結合した界面においては、強磁性体のスピンと反強磁性体のスピンの 90° の相対角度を保って結合することを示した¹⁵⁾。今回作製された積層膜のスピン配列のような場合に、そのような結合が生じるか現時点では明らかではないが、Koon の結果を取り入れれば、上記の K_{AF} の容易軸の不一致は説明することができる。この点に関してはより詳細な検討が必要である。

4. まとめ

基板に対して $(1\bar{1}0)$ 面配向し、膜面内の結晶方位が揃った Ni-Fe / Mn-Ni 積層膜の磁気異方性に関して磁気トルク法による解析を行った。Single spin model によるトルク曲線の計算結果と測定結果の比較から、反強磁性層の磁気異方性エネルギー K_{AF} の起源は結晶磁気異方性と考えられ、その大きさは $6.4 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 程度と見積もられた。

文 献

- 1) W.H.Meiklejohn: *J.Appl.Phys.*, **33** (Suppl.), 1328 (1962).
- 2) D.Mauri, H.C.Siegmann, P.S.Bagus, and E.Kay: *J.Appl.Phys.*, **62**, 3047 (1987).
- 3) A.P.Malozemoff: *Phys.Rev. B*, **35**, 3679(1987).
- 4) M.Tsunoda, Y.Tsuchiya, M.Konoto, and M.Takahashi: *J.Magn.Magn.Mat.*, **171**, 29 (1997).
- 5) M.Tsunoda, M.Konoto, K.Uneyama, and M.Takahashi: *IEEE.Trans.Magn.*, **33**, 3688 (1997).
- 6) M.Konoto, M. Tsunoda, and M. Takahashi: *J.Appl.Phys.*, **85**, 4925 (1999).
- 7) E.Uchida, N.Fukuoka, H.Kondoh T.Takeda Y.Nakazumi, and T.Nagamiya: *J.Phys.Soc.Jpn.*, **23**, 1197 (1967).
- 8) D.Mauri, E.Kay, D.Scholl, and J.K.Howard: *J.Appl.Phys.*, **62**, 2929 (1987).
- 9) I.S.Jacobs and C.P.Bean; in *Magnetism*, vol. III, edited by G.T.Rado and H.Suhl (Academic Press, New York, 1963) pp. 323 - 332.
- 10) M.Tsunoda, Y.Tsuchiya, T.Hashimoto, and M.Takahashi: *to be published in J.Appl.Phys.* (1999).
- 11) M.Tsunoda and M.Takahashi: *submitted to J.Appl.Phys.* (MMM'99 Proceeding).
- 12) 甲野藤 真, 角田 匡清, 高橋 研: 日本応用磁気学会誌, 投稿中.
- 13) H.Uchishiba: *J.Phys.Soc.Jpn.*, **31**, 436 (1971).
- 14) S.Kawarazaki, et al.: *Phys.Rev.Lett.*, **61**, 471(1988).
- 15) N.C.Koon: *Phys.Rev.Lett.*, **78**, 4865(1996).