

## 極薄軟磁性薄膜の誘導一軸磁気異方性

### Induced Uniaxial Magnetic Anisotropy in Very Thin Soft Magnetic Films

片田裕之, 島津武仁, 渡辺 功, 村岡裕明, 中村慶久, 杉田 恒\*

東北大学電気通信研究所, 〒980-8577 仙台市青葉区片平2丁目1番1号

\*東北工業大学, 〒982-8577 仙台市太白区八木山香澄町35番1号

H. Katada, T. Shimatsu, I. Watanabe, H. Muraoka, Y. Nakamura, and Y. Sugita\*

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577 Japan

\*Tohoku Institute of Technology, Yagiyamakasumicho 35-1, Taihaku-ku, Sendai 982-8577 Japan

(2000年10月5日受理, 2001年1月24日採録)

The induced uniaxial anisotropy field  $H_k$  in very thin permalloy films, sandwiched by seed and protective Ta and Cu layers, was investigated. The value of  $H_k$  of the Ta/Cu/ $\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}$ /Cu/Ta films was found to decrease as the film thickness decreases below 20 nm, even after an annealing procedure in a magnetic field. This  $H_k$  reduction is similar to that of Ta/ $\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}$ /Ta films, indicating that the  $H_k$  reduction is independent of the surface energy or crystal structure of the seed and protective layers. Thickness dependence of film magnetostriction  $\lambda_{p-p}$  of these films did not show any clear correlation with that of  $H_k$ , indicating that the  $H_k$  reduction is not simply caused by the magnetostrictive effect at thin films. The higher mobility of surface atoms may disrupt the alignment of atom-pairs parallel to the field direction during film deposition and annealing, resulting in the smaller induced anisotropy of very thin films.

**Key words:** thin permalloy film, induced uniaxial anisotropy, anisotropy field, surface anisotropy, film magnetostriction

#### 1. はじめに

近年, 高密度磁気記録の達成のために, GMR, TMR などの磁気抵抗効果を利用した高感度な再生ヘッドの研究が広く行われている。この GMR, TMR などのピン層, フリー層には現在非常に薄い数 nm の極薄軟磁性膜が用いられており, それらの磁気特性を的確に制御するためには一軸磁気異方性の制御が重要となる。

われわれは NiFe 膜(77~81at%Ni)の異方性磁界  $H_k$  が 20 nm 以下の膜厚の減少にともなって大きく低下し, 膜厚 3 nm の  $H_k$  は膜厚 20 nm 以上の半分程度にまで低下することを報告している<sup>1,2)</sup>。また, このような膜厚の減少にともなう  $H_k$  の低下は CoZrNb アモルファス膜でも同様に観察されている<sup>1,2)</sup>。このような膜厚の減少にともなう  $H_k$  の低下の原因は未だ明らかではないが, 表面異方性<sup>3)</sup>などの表面物性に起因している可能性がある。

Song 等は, 表面異方性と間接的に関係のある膜表面の弾性

異常により, 数 nm 以下のパーマロイ薄膜の薄膜磁歪が急激に増加することを報告している<sup>4)</sup>。実際に, GMR ヘッドの作製にあたっては, この薄膜磁歪の増加を補うように磁性膜の組成の制御などが行われている。このような極薄膜における薄膜磁歪の増加が異方性磁界の大きさに影響を与えている可能性を示唆する報告がなされているが<sup>5,6)</sup>, 両者の関係は不明な点も多く, その詳細については明らかになっていない。

そこで今回は Ta および Cu をシード層に用いたパーマロイ薄膜を作製した。これらの元素は結晶構造, 表面エネルギー, そして NiFe との固溶度等が異なるため, 製膜される極薄パーマロイ薄膜の微細構造が異なるものと期待される。これらの薄膜の膜厚と異方性磁界, ならびに薄膜磁歪との関係について検討を行った。

#### 2. 実験方法

試料は RF スパッタリング法により室温基板上に作製した。基板にはコーニング 7059 ガラス基板を用いた。パーマロイの組成は  $\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}$  組成(at%)を用いた。試料の形状は, 直径 5 mm  $\phi$  の円形とし, 製膜中には 240 Oe の直流磁界を基板表面に印加している。 $\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}$  の膜厚は 3~300 nm の範囲で変化させた。Ta 膜をシード層に用いた試料では, 5 nm の Ta 膜をシード層および保護層として用い, Ta(5nm)/ $\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}$ /Ta(5nm)の膜構成とした。Cu をシード層とした試料の場合にも, 5 nm の Cu 膜をシード層および保護層として用いたが, その膜構成は Ta(5nm)/Cu(5 nm)/ $\text{Ni}_{79}\text{Fe}_{21}$ /Cu(5nm)/Ta(5nm)とした。磁界中熱処理は 200 Oe の直流磁界を磁化容易軸方向に印加しながら,  $10^{-6}$  Torr 台の真空中で行った。

構造解析には X 線回折を用いた。飽和磁化の測定は VSM により行った。薄膜磁歪の測定は高感度の光拡散法により行った。異方性磁界  $H_k$  の計測は, マイクロ Kerr 効果測定装置を用いて Torok の方法<sup>7)</sup>により行った。この手法を用いることにより, 数 nm の薄い膜でも 0.1 Oe 以下の精度で, かつ磁区構造の影響を受けることなく  $H_k$  を評価することが可能である。なお, 膜面内の反磁界の影響は, 試料形状を偏平楕円体近似することにより計算し, これを補正した。この補正した反磁界の大きさは,

膜厚 200 nm で 0.32 Oe, 膜厚 20 nm 以下では約 0.03 Oe 以下の値である(いずれも飽和磁化 800 emu/cm<sup>3</sup> の場合の計算値)。

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 誘導磁気異方性磁界の大きさ

Fig.1 には Ta/Cu/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Cu/Ta 膜ならびに Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta 膜<sup>1,2)</sup>における  $H_k$  の膜厚依存性を示す。図中には製膜直後、ならびに磁化容易軸方向に磁界を印加しながら 250°C で磁界中熱処理を行った際の結果が示してある。それぞれの膜厚で複数個の試料について測定を行った結果について、測定値の分布をエラーバーで示している。

Cu をシード層として用いた Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub> 膜の場合でも、Ta をシード層として用いた場合と同様に、製膜直後ならびに熱処理後のいずれの場合も 20 nm からの膜厚の減少にともない、 $H_k$  の値は低下していくことがわかる。その結果、膜厚 3 nm の  $H_k$  値は 20 nm 以上の薄膜の約半分になっており、これは Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta 膜の場合と定量的にも一致している。このように NiFe 膜の界面の材料を変えて全く同様な  $H_k$  の変化が観察された。なお、いずれのシード層を用いた場合でも、膜厚の低下による飽和磁化の変化は実験誤差の範囲で確認されなかった。また、いずれの試料でも、Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub> 薄膜は fcc(111)面が膜面に平行に配向しており、X 線回折の結果からは膜厚の低下による配向等の構造変化を示す結果は得られなかった。

このような膜厚の減少にともなう  $H_k$  の低下が、膜表面の弾性異常などにより引き起こされる表面異方性に起因している場合には、薄膜の局所異方性分散量<sup>8,9)</sup>が増加するものと考えられる。その場合、薄膜の軟磁気特性は大きく劣化することが予想される<sup>9)</sup>ため、膜厚に対する保磁力の変化を検討した。Fig.2 は Ta/Cu/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Cu/Ta 膜の製膜直後における磁化容易軸方向の保磁力  $H_c^{EA}$  の膜厚依存性を示した。中には Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta 膜の結果も破線で示した。また、Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>(3 nm)/Ta 膜の製膜直後における磁化容易軸方向の典型的な磁化曲線も示してある。

3 nm の薄い薄膜における磁化容易軸方向の磁化曲線は、膜厚が厚い場合と同様に角形比がほぼ 1.0 であり、磁壁移動を反映する磁化機構を示している。一方、枕木状磁壁が形成される膜厚 20 nm の  $H_c^{EA}$  は 1.5 Oe 近い値を示しているが、膜厚 10 nm 以下の薄膜における  $H_c^{EA}$  は膜厚 200 nm とほぼ同程度の約 1 Oe である。このように膜厚を減少させた場合でも、膜表面における大きな磁気異方性の存在を示唆するような軟磁気特性的劣化は観察されなかった。

#### 3.2 薄膜磁歪の膜厚依存性

Fig.3 は Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta ならびに Ta/Cu/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Cu/Ta 膜における、製膜直後の薄膜磁歪  $\lambda_{pp}$  の膜厚依存性を示している。図中のエラーバーは測定装置のバックグラウンドノイズによる測定誤差を示している。ここで、界面の弾性異常に起因した薄膜磁歪の変化は、Neel により示された表面異方性の現象論的な式と

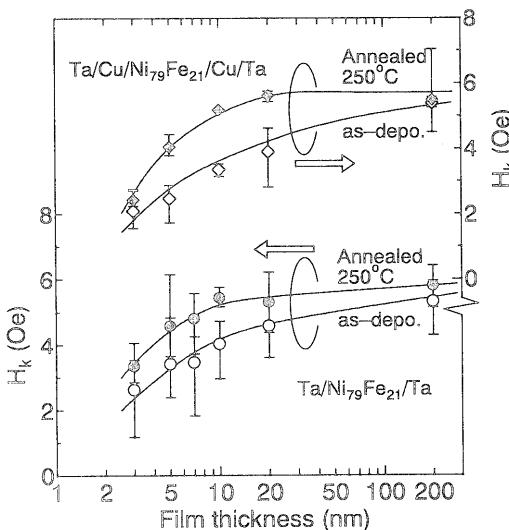


Fig. 1 Thickness dependence of  $H_k$  of the Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta and Ta/Cu/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Cu/Ta films.

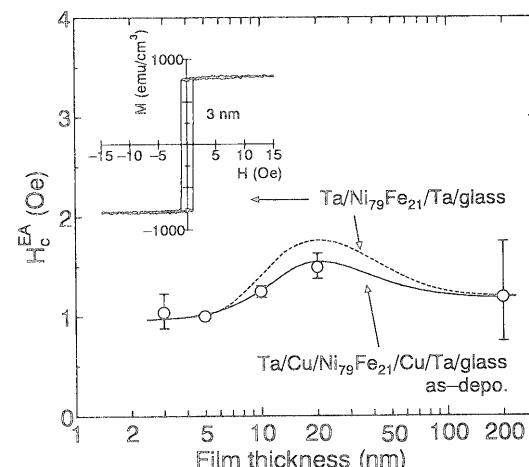


Fig. 2 Thickness dependence of  $H_c^{EA}$  of the Ta/Cu/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Cu/Ta and Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta films and representative magnetization loops of the Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>(3 nm)/Ta films.

同様に、次のように表すことができる<sup>3,4)</sup>。

$$\lambda_{pp} = \lambda_{bulk} + \lambda_{surf.} / (t - t_{diffusion}). \quad (1)$$

ここで  $\lambda_{bulk}$  は線磁歪と結晶粒配向により定まるバルクの薄膜磁歪を表す係数であり、 $\lambda_{surf.}$  は膜表面における弾性異常による薄膜磁歪を表す係数である。 $t$  は膜厚であり、 $t_{diffusion}$  は界面の拡散層の厚みを示している。図中には Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta 膜の結果について、このような現象論的な(1)式に最小二乗法によりフィッティングさせた結果を破線で示している。フィッティングにあたっては、拡散層の厚みは 0 とした。

Ta/Ni<sub>79</sub>Fe<sub>21</sub>/Ta 膜の場合、 $\lambda_{pp}$  の値は膜厚によらず  $1 \times 10^{-6}$

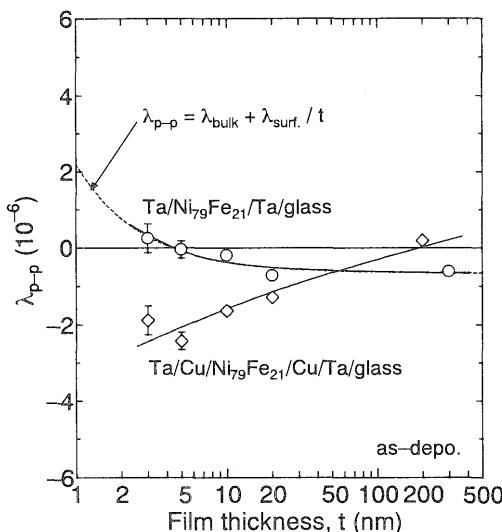


Fig. 3 Thickness dependence of  $\lambda_{pp}$  of the  $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  and  $Ta/Cu/Ni_{79}Fe_{21}/Cu/Ta$  films.

以下の小さな値を示している。しかし、膜厚の低下により $\lambda_{pp}$ は僅かに増加しており、膜表面における弾性異常の影響を考慮した関数(1)とも変化の傾向は一致している。ただし、この $\lambda_{pp}$ の増加が表面異方性に起因する現象であるか、膜厚の変化にともなう結晶粒配向等の僅かな構造変化に起因する現象であるかは明らかでない。これに対して  $Ta/Cu/Ni_{79}Fe_{21}/Cu/Ta$  膜の場合には膜厚が薄くなるほど $\lambda_{pp}$  が負の方向に変化している。これは、Cu は NiFe と拡散しやすいことから、界面における拡散層が負の磁歪を持っているため<sup>10)</sup>、体積に占める表面の割合の大きな薄い膜において、膜全体の $\lambda_{pp}$  が負になるためであると推察される。

Fig.4 には  $250^{\circ}\text{C}$  で熱処理を施したこれらの試料の $\lambda_{pp}$  の値を同様に膜厚に対して示した。ここで、熱処理による界面拡散の影響により薄い膜厚の試料では飽和磁化の低下が観察された。飽和磁化の減少率から拡散層の磁化が 0 であると仮定した場合、拡散層の厚みは  $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  膜において約  $0.15\text{ nm}$  程度、 $Ta/Cu/Ni_{79}Fe_{21}/Cu/Ta$  膜において約  $0.3\text{ nm}$  程度であると推察された。そこで、図中の  $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  膜について、(1)の  $t_{\text{diffusion}}$  にこれらの厚みを代入してフィッティングさせた結果を破線で示している。

製膜直後の場合に比較して、 $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  膜ならびに  $Ta/Cu/Ni_{79}Fe_{21}/Cu/Ta$  膜のいずれの薄膜にも、特に膜厚が薄い領域において $\lambda_{pp}$  が正の方に変化している。これは構造緩和の影響であると思われる。 $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  膜における $\lambda_{pp}$  の変化が表面異方性の変化であると仮定した場合、(1)式のフィッティングにより得られる $\lambda_{\text{surf.}}$  の値は、製膜直後の約 3 倍に増加することになる。しかし、 $\lambda_{pp}$  の値は  $20\text{ nm}$  の膜厚で既に増加し始めており、表面異方性の影響が薄膜磁歪に現れる膜厚<sup>4)</sup>よりも 1 柄以上大きい。一方、熱処理後の  $Ta/Cu/Ni_{79}Fe_{21}/Cu/Ta$  膜の $\lambda_{pp}$  の値は、 $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  膜の場合と異なり膜厚に対してほぼ一定の値を示している。

以上の結果から、今回作製した試料における薄膜磁歪の膜厚依存性は、表面異方性による弾性異常の他に結晶配向等の

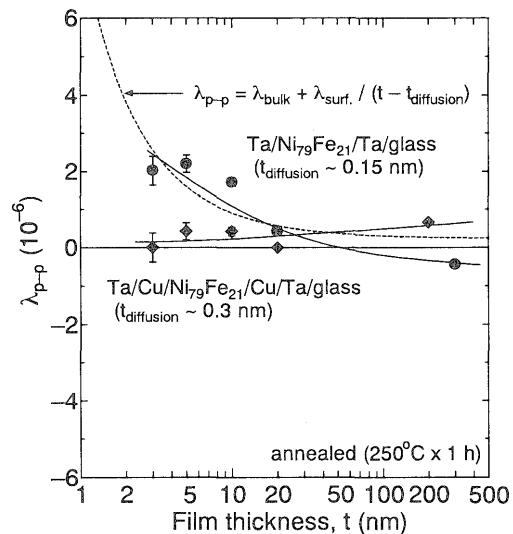


Fig. 4 Thickness dependence of  $\lambda_{pp}$  of the  $Ta/Ni_{79}Fe_{21}/Ta$  and  $Ta/Cu/Ni_{79}Fe_{21}/Cu/Ta$  films.

膜厚に対する僅かな変化、あるいは界面拡散層の磁歪の影響を受けているものと思われる。

一方、 $\lambda_{pp}$  の膜厚依存性と Fig. 1 に示した  $H_k$  の膜厚依存性の関係を見てみると、製膜直後、ならびに熱処理後のいずれの場合にも両者の間に明確な関係は観察されていない。ここで薄膜磁歪と膜の内部応力による磁気弹性効果により誘導される異方性磁界の大きさは、両者の積に比例する。したがって、 $H_k$  の膜厚依存性に対する磁気弹性効果の影響を明らかにするためには、膜厚に対する膜応力の変化を考慮した議論が必要である。そこで、79at%Ni 組成近傍の 77at%Ni ならびに 81at%Ni 組成の  $Ta/NiFe/Ta$  膜を作製し、その  $H_k$  と $\lambda_{pp}$  の膜厚依存性について同様に検討した。その結果、いずれの組成においても  $H_k^{1,2)}$  ならびに $\lambda_{pp}$  の膜厚に対する変化の傾向は 79at%NiFe 膜と同様であった。

Fig. 5 にはこれらの薄膜における  $\Delta H_k$  (膜厚  $200\text{ nm}$  の試料からの  $H_k$  の変化量) と $\lambda_{pp}$  の関係を、製膜直後ならびに  $250^{\circ}\text{C}$  热処理後についてそれぞれ示してある。いずれの組成も膜厚は  $200\text{ nm}$  から  $3\text{ nm}$  までの範囲で変化させており、図中には膜厚の低下にともなう  $\Delta H_k$  と $\lambda_{pp}$  の軌跡も示した。製膜直後の場合、 $\lambda_{pp}$  の値は Ni 組成の増加に対して約 -2, 0, +2 (いずれも  $\times 10^{-6}$ ) と変化しており、組成により $\lambda_{pp}$  の符号および大きさが全く異なる。しかし、 $H_k$  の変化量は $\lambda_{pp}$  の符号および大きさにほとんど依存していない。このような傾向は熱処理後の試料においても同様である。一方、検討を行った 79±2at%Ni 組成の狭い組成範囲では組成の違いによる内部応力の差は小さいものと推察される。即ち、膜厚の低下にともなう  $H_k$  の変化は、薄膜磁歪と内部応力による磁気弹性効果の影響では説明できない。

したがって、極薄膜における異方性磁界の低下は表面異方性による弾性異常とは別の表面物性により引き起こされているものと考えられる。表面異方性が弾性異常とは異なる物性を通して

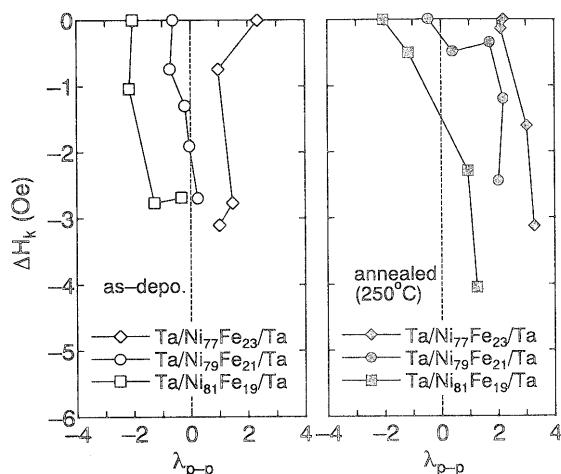


Fig. 5 The values of  $\Delta H_k$  as a function of  $\lambda_{p-p}$  for  $Ta/Ni_xFe_{100-x}(x = 77, 79, 81)/Ta$  films.

して極薄膜における  $H_k$  の低下を引き起こしている可能性は必ずしも否定できない。しかし、薄膜の構造上の対称性から表面異方性は主に膜面垂直方向の磁気異方性として作用するものと考えられる。即ち、表面異方性が面内方向の一軸異方性の変化を引き起すほどの磁気エネルギーを有するのであれば、局所異方性の変化に敏感な軟磁気特性が 10 nm 以下の膜厚領域で全く変化しないことを説明し難い。

したがって、 $H_k$  の低下はその他の表面物性と関係しているものと思われる。その原因の一つとして、製膜中あるいは熱処理中のパーマロイ薄膜の表面では、原子の運動エネルギー(熱エネルギーによる拡散)が大きいため、原子の方向性規則配列を阻害していることなどが考えられる。

#### 4. まとめ

- (1) 表面エネルギーの異なる Ta, Cu で挟んだ  $Ni_{79}Fe_{21}$  薄膜における異方性磁界  $H_k$  の膜厚依存性を検討した結果、いずれの場合にでも  $H_k$  の大きさは 20 nm 程度からの膜厚の減少に伴って徐々に低下し、3 nm の膜厚における  $H_k$  値は 200 nm の膜厚における値の半分程度にまで低下した。
- (2) 薄膜磁歪の膜厚依存性はシード層の材料の違い、あるいは熱処理の有無の違いにより大きく異なっており、表面異方性

による弾性異常の他に結晶配向等の膜厚に対する僅かな変化、あるいは界面拡散層の磁歪の影響を受けているものと思われる。また、 $H_k$  の膜厚依存性とは対応していない。

- (3)  $79 \pm 2$  at%NiFe 膜における異方性磁界と薄膜磁歪の関係から、異方性磁界の変化量は薄膜磁歪の符号、ならびに大きさに依存しなかった。したがって、膜厚の減少にともなう  $H_k$  の低下は薄膜磁歪と内部応力による磁気弾性効果の影響ではないと考えられる。このことは、膜厚の減少にともなう  $H_k$  の低下は膜表面の弾性異常に直接的に関係する現象では無いことを示している。

**謝 辞** 本研究の一部は, ASET(NEDO, 通産省)ならびに SRC の支援により行われたものです。ここに深謝します。

#### 文 献

- 1) 片田裕之, 島津武仁, 渡辺功, 村岡裕明, 中村慶久: 日本応用磁気学会誌, 24, 539 (2000).
- 2) H. Katada, T. Shimatsu, I. Watanabe, H. Muraoka, Y. Sugita, and Y. Nakamura: *IEEE Trans. Magn.*, (The digests of InterMAG conference 2000, in press).
- 3) L. Neel: *J. de Phys.*, 15, 376 (1954).
- 4) O. Song, C. A. Ballantine, and R. C. O'Handley: *Appl. Phys. Lett.*, 64, 2593 (1994).
- 5) 星屋裕之, 田島康成, 渡辺克朗, 川辺隆: 日本応用磁気学会誌, 24, 643 (2000).
- 6) K. Aoshima, J. Hong, and H. Kanai: The digests of InterMAG conference 2000, BS-06.
- 7) E. J. Torok, R. A. White, A. J. Hunt, and H. N. Oredson: *J. Appl. Phys.*, 33, 3037 (1962).
- 8) H. Hoffmann: *IEEE Trans. Magn.*, 4, 32 (1968).
- 9) T. Shimatsu, M. Takahashi, and T. Wakayama: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 13, Suppl. No. S1, 577 (1989).
- 10) R. M. Bozorth: *Ferromagnetism*, p. 676 (D. Van Nostrand Company, Inc., 1951).