

パーマロイ薄膜における磁化リップルと磁気抵抗効果

Magnetization Ripple and Magnetoresistance in a Permalloy Film

道田典明・有田正志・浜田弘一・高橋庸夫

北海道大学大学院情報科学研究科, 札幌市北区北 14 条西 9 丁目 (〒060-0814)

N. Michita, M. Arita, K. Hamada, and Y. Takahashi

Graduate School of Information Science and Technology, Hokkaido Univ., Kita 14 Nishi 9, Kita-ku, Sapporo 060-0814, Japan

Magnetic microstructure and anisotropic magnetoresistance (AMR) were simultaneously investigated for a permalloy film with dimensions of 2 mm x 100 μ m x 35 nm by means of Lorentz microscopy. The ripple contrast of the magnetic domain in which the average magnetization is parallel to the external field was fainter than that of the domain with anti-parallel magnetization. The difference of the resistivity of these domains was experimentally confirmed.

Key words: permalloy, Ni-Fe, magnetization ripple, anisotropic magnetoresistance, thin film, Lorentz microscopy

1. はじめに

古くから知られている強磁性体薄膜の異方性磁気抵抗効果 (AMR) が磁気素子へ応用されて以来, 巨大磁気抵抗効果 (GMR), トンネル磁気抵抗効果 (TMR) 等々, 種々の磁気抵抗効果 (MR) がスピントロニクス分野において注目され, 精力的に研究が行われている¹⁾. その特性は磁区等の磁気微細構造により左右されるため, (磁化過程の実時間観察が可能な) ローレンツ顕微鏡法による観察が多々なされている²⁻⁴⁾. しかしその多くは磁化分布の静的・動的観察に限られており, 同一試料に対して磁化と抵抗の直接対比になっていない. 透過型電子顕微鏡 (TEM) によるローレンツ像観察と TEM 内での抵抗測定を同時に行えば, 磁気微細構造と MR 特性を直接対比できるはずであるが, そのような例は少ない^{5, 6)}.

良好な素子特性を得るためには磁気微細構造の制御が有用であり, 例えば反強磁性-強磁性体交換結合を用いたスピンバルブ構造が広範囲に利用されている⁷⁾. また近年ではサブミクロンサイズの強磁性体薄膜を用いて, 磁壁の効果的利用に関する研究が進んでいる⁸⁾. 他方 1 つの磁区内部の磁化は均一ではなく, 磁化リップルと呼ばれる磁化異方性分散の存在する場合がある. これは古くから種々の強磁性薄膜において認識されており¹⁰⁻¹³⁾, その起源, 磁気特性に及ぼす影響等の研究がなされている¹⁴⁾. 磁化リップルの生じている場所では, 局所磁化が平均磁化のまわりに揺らいでいる. 従って局所的な AMR 効果は場所ごとに異なるはずである. 磁化リップルは単層強磁性薄膜のみならず多層の GMR 膜や TMR 膜においても観察されており^{4, 6)}, 影響の大小は試料により異なるが, 磁気抵抗特性に影響を与える要因の一つであると考えられる. これまでにリップルに関する研究は多々あるが, このような観点からの報告例はほとんどない^{15, 16)}.

上記 2 つの観点から, 本研究では帯状パーマロイ ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$) 単層膜 (Fig.1) の磁化過程におけるローレンツ顕微鏡観察と AMR

測定を TEM 内で同時に行い, その関係について調べた. リップルの強弱および磁壁の有無による電気抵抗の違いについて注目するために短軸に沿った一軸異方性膜を採用し, 磁化の回転を極力抑えた.

2. 実験方法

TEM 内での MR 測定のためには, パーマロイ蒸着用の基板は厚さ 100 nm 以下の平滑な絶縁体でなくてはならない. ここでは Si(001) 上に SiN 膜 (窒化シリコン膜) を形成した基板を準備した⁹⁾. ローレンツ像観察可能範囲は $\phi 0.2$ mm 以上である. この基板上にパーマロイ合金インゴット (Ni: 79%) をタングステンヒーターに充填し, 真空蒸着 (10^{-6} torr) した. 成膜時にはメタルマスクを用い, 長さ 2 mm, 幅 100 μ m, 厚み 35 nm の帯状膜を形成した. パターン短軸 (つまり幅) 方向に誘導一軸異方性を付加するために, 成膜温度 500 $^{\circ}$ C における磁場中蒸着 (300 Oe) を行った. その後, 直流 4 端子測定用の金電極 (電圧端子間隔: 400 μ m) をマスク蒸着し, 測定試料とした. 得られた試料に対して, フレネル法によるローレンツ像観察と電気抵抗計測を TEM 内で同時に行った. その際, 電圧端子で挟まれた全領域, つまり MR 測定に寄与する全領域に対して像観察している. 使用した TEM は電気抵抗測定用試料ホルダー⁹⁾ を備えた JEOL JEM200CX (200 kV) である.

試料膜面内への磁場印加は試料傾斜法により行った^{3, 8)}. TEM 内の試料は対物レンズの磁場中 H_0 (膜面に垂直) にある. このとき試料を θ だけ傾斜すると, 膜面内に $H = H_0 \sin\theta$ の磁場が印加されるという簡便な手法である. しかし通常の観察モードでは

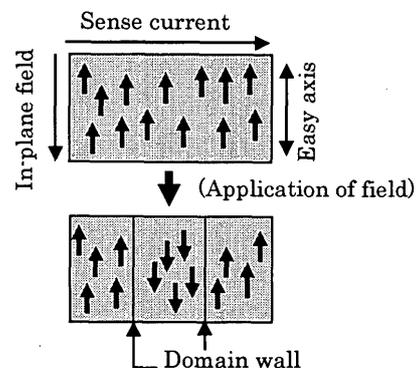


Fig. 1 Schematic illustration of the sample.

$H_0 = 6 \text{ kOe}$ 程度であり、強すぎる。ここでは、レンズの励磁電流を外部から制御し、 $H_0 = 248 \text{ Oe}$ に設定した。この程度の磁場が膜面垂直方向に印加された場合の磁化は 1 emu/g よりも十分小さいので、膜面垂直方向の磁化成分を無視することができる。

誘導磁気異方性、印加磁場方向、測定電流方向の関係を Fig.1 に示す。図中の太い矢印は局所磁化を模式的に示したものである。通常の測定とは異なり、異方性を短軸方向に付加した。このような方位関係を設定することにより、磁化回転を伴わないリップル変化の AMR 効果への影響、磁壁の発生・消失と電気抵抗の関係を直接観測できるものと期待できる。

3. 実験結果と考察

上記の方法により TEM 内で測定した MR 曲線を Fig.2 に示す。抵抗最大値で規格化した磁気抵抗比 (MR 比) は 200 Oe において 0.86% であった。MR 曲線のスプリットは $\pm 45 \text{ Oe}$ 程度であり、パーマロイの値としては大きい。この理由としては、 500°C での膜成長を行ったために結晶成長が推進され異方性が強くなった、あるいは短軸に沿って磁場を印加していることによる反磁場の影響などが考えられる。抵抗が最大値を取る付近の変化を詳しく検討するために、 $+20 \sim 125 \text{ Oe}$ の範囲での測定を詳細に行った。その際、一旦 -200 Oe (Fig.1 において上向きにほぼ飽和) 印加した後、測定を開始した。その結果を Fig.3 に、また同時に観察したローレンツ像を Fig.4 に示す。Fig.3 の a ~ d は Fig.4 のそれに対応している。また Fig.4 の左右両端に見える黒いコントラストは電圧測定端子であり、Fig.3 の測定に寄与する全領域が観察されている。Fig.4 の各図における中央右上の黒い丸は基板裏面についているよごれであり、結果への影響はなかった。またその右上の白い部分ではパーマロイが蒸着されておらず、磁壁ピン止めへの寄与が確認された。

Fig.4(a) に示すように、帯状薄膜は 30 Oe 付近において上向きの平均磁化をもつ単一磁区 (磁区 A) となっている。この磁場領域では、磁場の増加に伴い抵抗値は単調増加した (Fig.3)。 43 Oe において印加磁場方向の磁化を持つ磁区 (磁区 B) が発生し、その後の磁場増加に対してその面積が増加した (Fig.4(b))。磁区 B の発生時には、抵抗変化に顕著な変化が見られなかった (Fig.3 の矢印)。磁区 B が発生した後、少しの間は抵抗値は増加を続けたが、約 50 Oe で最大値を示した。更なる磁場印加により磁区 B はそれまで同様に成長を続けたが (Fig.4(c))、抵抗値は単調に減少し続けた。Fig.3 を見ると、約 60 Oe において抵抗の減少速度は緩やかになっている。これは Fig.4 における右側の磁壁がパーマロイの蒸着されていない所 (Fig.4 の右上の白い部分) にピン止めされたことに依っている。約 105 Oe で全体が下向きの磁区 B となった (つまり電圧端子間の磁壁がなくなった) が、抵抗値に顕著な変化はなかった。磁壁の消失後も抵抗値の減少は続き、減少率は小さくなり、ほぼ一定値に近づいた。

上述のように、最大値を示した後の抵抗は磁区 B の成長に伴い単調に減少した。その関係を見るために、抵抗値を磁区 B の面積に対してプロットした (Fig.5)。図中の a ~ d は Fig.3, Fig.4 のそれに対応している。b ~ d の範囲において、電気抵抗が面積に

対して線形に減少していることがわかる。つまり H に反平行な磁化を持つ磁区 A と平行な磁化を持つ磁区 B では、その抵抗率に違いのあることがわかる。Fig.4(a) を詳細に見ると、水平方向に縞状コントラストが認識できる。これは磁化リップルに起因するコントラストである。Fig.4(b) 以降の磁区 B においては、これが非常に弱い。磁場に平行、反平行な磁化を持つ磁区におけるリップルコントラストの違いは、過去の論文でのローレンツ像においても認識することができる^{2),4),6),11)}。Fig.6 にその拡大図を比較してある。明瞭なコントラストを示す磁区 A においては、磁化の異方性分散が大きく、局所磁化は上方向から大きく揺らいでいる。それに対し、磁区 B では分散が小さく、局所磁化はほぼ下を向いていると理解できる。

AMR 効果は、磁化 (M) と電流 (I) のなす角度 θ を用いて現象論的に

$$\rho(\theta) = \rho_{\perp} \sin^2 \theta + \rho_{\parallel} \cos^2 \theta \quad (1)$$

(ρ_{\perp} , ρ_{\parallel} : $M \perp I$ および $M \parallel I$ の抵抗率) と表せることが知られている。今回の実験における両磁区において平均磁化は I に垂直であるが、磁区 A の分散が大きく、局所磁化が 90° からよりずれている。従って磁区 A の抵抗率は磁区 B のそれに比べ大きい。これが Fig.5 における抵抗減少の理由であると理解できる。また、Fig.5 の小面積領域における

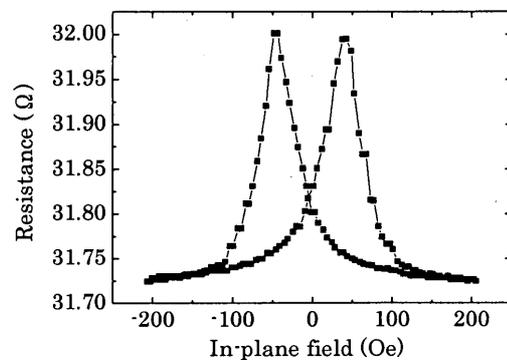


Fig. 2 MR curve measured with a TEM.

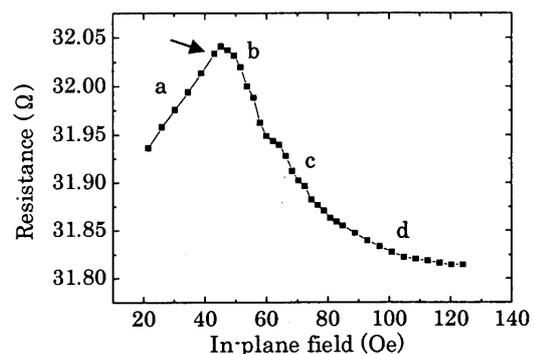


Fig. 3 Margin of the MR curve.

抵抗の増大は、平均磁化と逆向きの磁場が印加された事により異方性分散が大きくなったからであると考えられる。以上、磁化リップルによる局所磁化の分散が抵抗値に与える影響を実験的に検証することができた。なお、磁壁の抵

抗への効果は磁壁の厚さが数十 nm 以上である場合には無視できる、との報告がある¹⁷⁾。磁壁の生成・消失による抵抗変化を観測できなかった理由はそのあたりにあると考えられる。

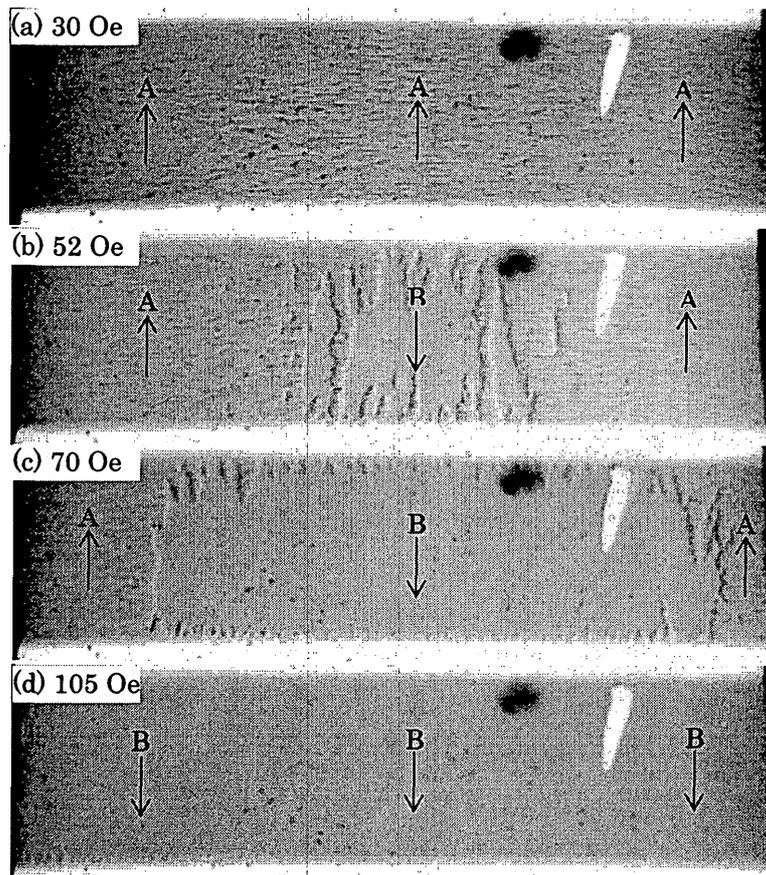


Fig. 4 Lorentz-TEM images. Dark parts on both sides are the voltage terminals for the resistance measurements.

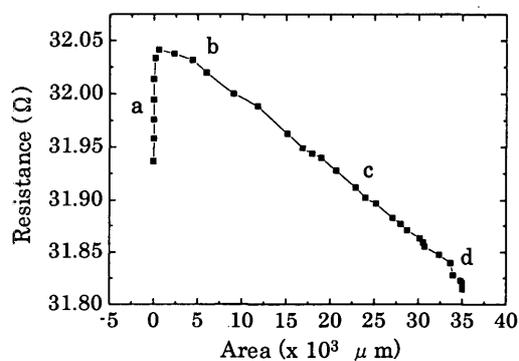


Fig. 5 Resistance as a function of the area of domain B.

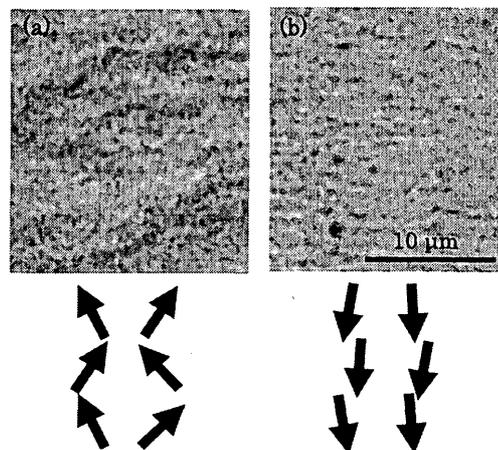


Fig. 6 Enlarged Lorentz-TEM images of ripple contrast in domains (a) A and (b) B.

4. まとめ

帯形状 (2 mm × 100 μm × 35 nm) の短軸方向に磁化容易軸を付加した Ni_{0.8}Fe_{0.2}に対して、(容易軸) // (磁場) ⊥ (電流) の方位関係で、ローレンツ像観察と磁気抵抗測定の同時実験を行った。磁場印加方向平行・反平行の磁化を持つそれぞれの磁区において、リップルコントラストに違いのあることがわかった。これは両磁区における異方性分散の大きさが異なることを示している。同時実験の結果、両磁区の電気抵抗に違いのあることが確認された。このように一つの磁区内における磁化異方性分散は、磁気抵抗効果に影響を与える。なお、磁壁の発生・消失による抵抗変化は磁化リップルの影響と比べ、検知できないほど十分小さかった。

謝辞 本研究の一部は科学研究費基盤 C (No. 13650708) の補助により行われた。

References

- 1) E. Hirota, H. Sakakima, and K. Inomata: Giant Magneto-resistance Devices, (Springer, Berlin 2002), related references therein.
- 2) L. J. Heyderman, J. N. Chapman, M. R. Gibbs, and C. Shearwood: *J. Magn. Magn. Mater.*, **148**, 433 (1995).
- 3) K. Hamada, E. Hirota, I. Ishida, A. Okada, K. Uchiyama, and N. Kaminaka: *J. Mag. Soc. Jpn.*, **19**, 893 (1995).
- 4) C. C. Yu, A. K. Petford-Long, and J. P. Jakubovics: *J. Magn. Magn. Mater.*, **198-199**, 503 (1999).
- 5) K. Hamada, M. Chimura, M. Arita, I. Ishida, and A. Okada: *J. Electron Microscopy*, **48**, 595 (1999)
- 6) A. C. C. Yu, A. Petford-Long, and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**, 4891 (2001).
- 7) X. Portier, A. K. Petford-Long, T. C. Anthony, and J. A. Brug: *J. Magn. Magn. Mater.*, **187**, 145 (1998).
- 8) M. Arita, K. Hamada, T. Ono, and A. Okada: *Trans. Magn. Soc. Jpn.*, **4**, 9 (2004).
- 9) A. D. Kent, J. Yu, U. Rudiger, and S. S. P. Parkin: *J. Phys. Condens. Matter*, **13**, R461 (2001), related reference therein.
- 10) H. W. Fuller, and M. E. Hale: *J. Appl. Phys.*, **31**, 1699 (1960).
- 11) T. Ichinokawa: *Memories School. Sci. Eng. Waseda Univ.*, **25**, 80 (1961).
- 12) A. Balz, and W. D. Doyle: *J. Appl. Phys.*, **35**, 1814 (1964).
- 13) S. Tsukahara: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **23**, 189 (1967).
- 14) Recently for example, L.Hua, J. E. L. Bishop, and J. W. Tucker: *J. Magn. Magn. Mater.*, **140-144**, 655 (1995), H. Hauser, and P. L. Fulmek: *J. Magn. Magn. Mater.*, **254-255**, 293 (2003).
- 15) H. Roux-Buisson, and J. C. Bruyere: *J. Vac. Sci. Technol.*, **6**, 673 (1969).
- 16) T. Stobiecki, J. Spalek, and H. Jankowski: *Acta. Phys. Polonica A*, **41**, 657 (1972).
- 17) G. G. Cabrera, and L. M. Falicov: *Phys. Status Solidi B*, **61**, 539 (1974).

2004年10月12日受理, 2004年12月14日採録