

巨大交換磁気異方性のメカニズム解明と
高性能マンガン基反強磁性材料の開発

課題番号：18360144

平成 18 年度～平成 19 年度科学研究費補助金
(基盤研究(B)) 研究成果報告書

平成 20 年 4 月

研究代表者 角田 匡 清
東北大学大学院工学研究科准教授

は し が き

強磁性／反強磁性積層膜で観測される交換磁気異方性は、通常印加磁界方向に追従する強磁性体のスピが一方向に固着される現象であり、スピン相対角の人工制御性を生み出すため、磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM）を始めとするスピントロニクスデバイスや超高密度磁気記録用スピバルブヘッド等に既に実用化されている。

近年では、超高密度垂直磁気記録媒体の裏打ち軟磁性膜の磁区制御、マイクロ波帯用薄膜磁気デバイスの共鳴周波数制御への応用など、これまでにない広い応用分野での検討がなされており、ナノスピンマニピュレーションに不可欠の要素技術となっている。さらにその将来技術に目を向けると、従来の強磁性体磁化の反転が常にスピンの歳差運動（プリセッション）を伴うため、サブナノ秒程度の反転時間を要するのに対し、反強磁性スピンの再配列現象はプリセッションを伴わず、数ピコ秒オーダーの磁化反転が実現されるため、交換磁気異方性材料では、レーザー誘起の超高速磁化反転が期待できるとする提案["*Laser-induced ultrafast spin reorientation in the antiferromagnet TmFeO₃*", A. V. Kimel et al., *Nature* **429**, 850-853 (2004)]がなされ、次々世代の超高速書込 MRAM 等の基礎技術としての期待が高まっている。

一方で、およそ半世紀前の交換磁気異方性の発見以来、その物理的理解と特性開発が多く研究者によって行なわれてきたものの、現在に至るまで、本事象の統一的解釈と特性導出のための材料設計指針を欠いているのが世界的に見た研究の実状である。交換磁気異方性の特性の内、応用上最も重要なスピン固着力（一方向異方性定数： J_K ）に関してすら、その定量的理解ならびに理論上限値が明らかとなっていない。研究代表者らのグループでは、90年代後半から交換磁気異方性の研究に着手し、種々の薄膜材料ならびにその形成プロセスの検討により、 J_K の増大が可能であることを見出し、近年、巨大な交換磁気異方性（ $J_K = 1.3 \text{ erg/cm}^2$ ）の導出に成功した。本研究成果は、実用材料としての性能の高さはもとより、80年代後半の理論で定量解釈が成り立ったとする当時の値に比較して数倍の J_K を有しており、交換磁気異方性研究の大きな転機となった。

本研究では、この巨大交換磁気異方性の発現機構の解明を通じて、交換磁気異方性の完全理解とそれに基づいた高性能材料開発を世界に先駆けて行うことを目的とした。具体的には、①積層膜の微細構造と交換磁気異方性との相関の明確化、②軟X線磁気円二色性（XMCD）元素選択性磁化測定（ESMH）による反強磁性層のスピン構造ならびに磁化過程の解明、③反強磁性材料の物性値の評価、④得られた反強磁性層の磁気構造・物性値に関する知見を元にした交換結合膜のミクロスコピッ

ク解析モデルの構築と高性能交換結合膜材料の理論設計、⑤理論設計された実用交換結合膜材料の作製と実証、を行うこととした。

申請者らのグループでは、交換磁気異方性の熱安定性の改善を主目的に、反強磁性層の結晶粒子サイズの増大等、薄膜微細構造に関する検討を進めてきた。その結果として得られた下図は、申請者らのグループで近年発見した、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の巨大交換磁気異方性を報告する図であり、Mn-Ir 層の成膜時の基板温度を制御することによって、交換磁気異方性が大きく変化することを示している。[”Giant exchange anisotropy observed in Mn-Ir/Co-Fe bilayers containing ordered Mn₃Ir phase”, K.Imakita, M.Tsunoda, M.Takahashi, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3812-3814 (2004)]. 成膜時の基板温度は結晶粒径等の薄膜微細組織制御に対して極めて重要なパラメータであり、主として基板表面に到達したスパッタ粒子のモビリティ変化を通じて薄膜微細構造に影響を与えている。X 線回折法による詳細な構造解析の結果、巨大交換磁気異方性を示す積層膜においては、通常 A1 型の不規則合金となる Mn-Ir 層内に L₁₂ 型規則相の形成が認められ、その規則度が基板温度に対する J_k の変化とよく対応して変化することが明らかとなった。

従来、交換結合膜用の実用反強磁性材料の相として知られていたのは、A1 型の不規則 Mn 合金と PtMn に代表される Mn:X=1:1 の組成比を有する L₁₀ 型規則合金だけであり、本 L₁₂ 型規則合金は実用反強磁性材料として全く新しい材料である。本研究は、申請者らのグループで交換結合膜に適した反強磁性層材料として、独創的に見出した L₁₂ 型反強磁性規則相をベースとした巨大な交換磁気異方性の発現メカニズムを探り、高性能材料を開発する点に特色がある。

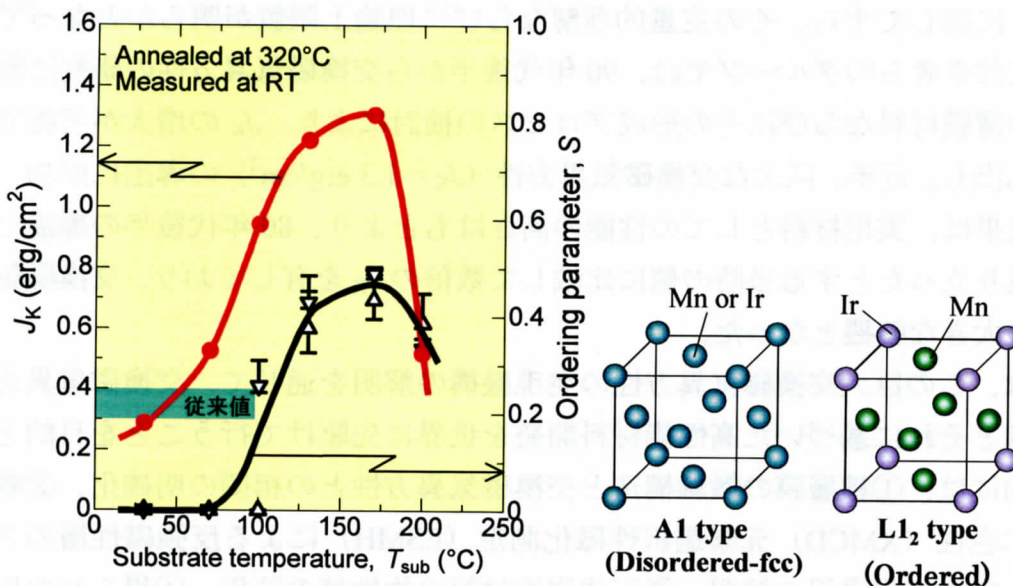


Fig. Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の巨大交換磁気異方性と Mn-Ir 層の結晶構造

また近年、XMCD-ESMH の手法により、通常の磁化計測の手法では窺い知ることのできなかった、積層膜中の反強磁性層の磁化過程の知見が得られることが報告され [“Correlation between Exchange Bias and Pinned Interfacial Spins”, H. Ohldag et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 017203-1~4 (2003)], 交換磁気異方性の起源に関するより詳細な研究の道が拓かれた。しかしながら、XMCD-ESMH で得られる反強磁性層の磁化と反強磁性スピン構造との対応関係は 1 対 1 でなく、現状では多くの推測を含む解釈に留まっている。実際、上記 Ohldag 論文においても、界面で固着した反強磁性スピンの交換磁気異方性を決める主要因であると論じているが、反強磁性層の磁化を界面固着スピンとした根拠は乏しい。これに対して、本研究は、XMCD-ESMH 実験と、ミクロスコピックな交換結合膜モデルの磁化過程計算（下図）との、相互のフィードバックを含めた相補的研究として遂行したため、これまで推測するしか術のなかった反強磁性層磁化とスピン構造の対応関係を、確実に明確化できる。このような実験と理論の相補的な研究はこれまでに為されておらず、本研究の大きな特色・先進性の一つとして挙げる事ができる。

さらに、同 L1₂ 型規則相と、従来の反強磁性材料 (L1₀ 型規則相ならびに不規則 γ -Mn 合金) との対比検討を通じて、交換磁気異方性の性能を更に向上させるための材料設計指針の確立が期待できる。また、新規 L1₂ 型反強磁性層材料は、デバイス応用上、重要な熱安定性の観点からも、従来材料 (L1₀ 型規則相) と同等もしくは、それを凌駕する性能を有しており、本研究計画推進によって期待される研究成果は、直ちに産業応用が可能である点も大きな特色である。

一方で、国内外の研究動静に目を向けると、欧州ではドイツでスピントロニクス研究プロジェクト (SFB 491) の課題研究の一つとして 2000 年から交換磁気異方性の研究プロジェクトがスタートし、またフランスで “New Trends in Magnetic Exchange Bias”

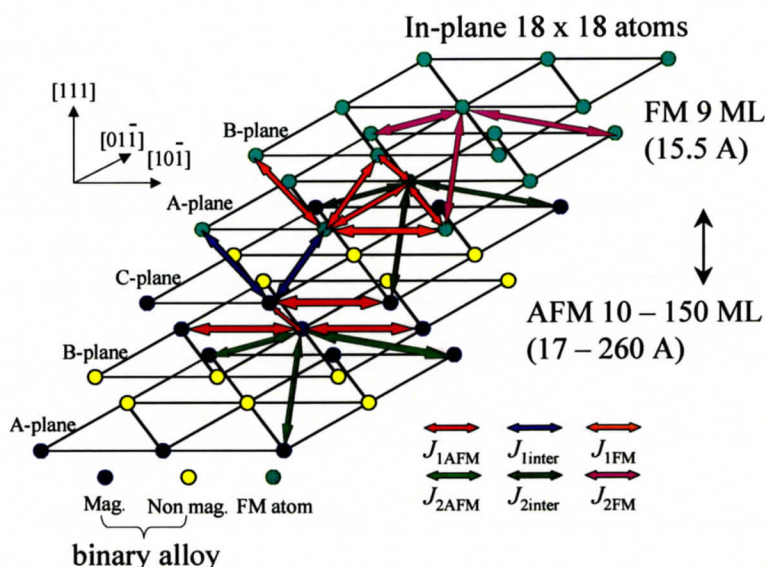


Fig. 交換結合膜のスピン構造・磁化過程の理論計算に用いたハイゼンベルグ模型の一例

と題した国際会議（2004/09）が開催され、交換磁気異方性の物理の解明に向けた研究が着実に進行している。一方、半導体産業に次ぐ規模の磁性材料・磁気デバイス産業を抱える我が国では、スピナルブヘッド開発のために、1980年代後半～1990年代初頭にかけて、磁気記録関連企業を中心に種々の反強磁性材料の開発競争が行なわれたものの、事象の本質的理解には至らず、確たる研究体制を整えないまま、少数の研究者が個別に細々と研究を継続する現況を迎え、欧米との実力差が今後ますます開くことが懸念されている。このような状況の中で、本研究は、我が国が得意とする材料開発研究でのアドバンテージを拡げ、産業応用のための高性能交換磁気異方性の材料・プロセス設計指針の確立を目標とする研究と位置づけられ、実施された。

本報告書は、これら研究の成果についてまとめたものである。また、本研究の成果を発表した雑誌論文の別刷りを本報告書後半に添付した。本文と併せてご参照願いたい。

本研究成果報告書が、磁気物性工学、薄膜工学、磁気記録工学等の分野における今後の発展に対して、少しでも寄与することを願ってやまない。

研究組織

- 研究代表者：角田匡清 (東北大学大学院工学研究科 准教授)
- 研究協力者：三俣千春 (日立金属(株)先端エレクトロニクス研究所
主任研究員)
- 研究協力者：金東栄 (東北大学未来科学技術共同研究センター
客員教授)
- 研究協力者：仲真美子 (東北大学大学院工学研究科 博士課程前期)
- 研究協力者：吉滝慎一郎 (東北大学大学院工学研究科 博士課程前期)

交付決定額 (配分額)

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成18年度	8,500,000	2,550,000	11,050,000
平成19年度	5,800,000	1,740,000	7,540,000
総計	14,300,000	4,290,000	18,590,000

研究発表

(1) 雑誌論文等

- ① M. Tsunoda, K. Imakita, M. Naka, and M. Takahashi
“ L_{12} phase formation and giant exchange anisotropy in $Mn_3Ir/Co-Fe$ bilayers”
J. Magn. Magn. Mat., 304, 55-59 (2006). 査読有
- ② D. Y. Kim, C. G. Kim, C. O. Kim, M. Tsunoda, and M. Takahashi
“Angular dependence of exchange bias and coercivity in polycrystalline $CoFe/MnIr$ bilayers”
J. Magn. Magn. Mat., 304, e56-e58 (2006). 査読有
- ③ M. Tsunoda, M. Naka, D. Y. Kim, and M. Takahashi
“Tunable magnetic anisotropy of antiferromagnetic superlattice and resultant exchange bias of ferromagnetic layer on it”
J. Magn. Magn. Mat., 304, e88-e90 (2006). 査読有
- ④ D. Y. Kim, C. G. Kim, C. O. Kim, M. Tsunoda, and M. Takahashi
“Effect of surface roughness and field annealing on interlayer coupling in $MnIr$ -based magnetic tunnel junction”
J. Magn. Magn. Mat., 304, e267-e269 (2006). 査読有
- ⑤ M. Tsunoda, T. Nakamura, M. Naka, S. Yoshitaki, C. Mitsumata, and M. Takahashi
“Soft x-ray magnetic circular dichroism study of $Mn-Ir/Co-Fe$ bilayers with giant exchange anisotropy”
Appl. Phys. Lett., 89, 172501-1-172501-3 (2006) 査読有
- ⑥ M. Tsunoda, M. Naka, K. Imakita, S. Yoshitaki, and M. Takahashi
“Exchange Anisotropy of $L_{12}-Mn_3X$ ($X = Ir, Rh, Ru$) / $Co-Fe$ Bilayers”
IEEE Transaction on Magnetism, 42(10), 2999-3001 (2006) 査読有
- ⑦ D. Y. Kim, C. G. Kim, C. O. Kim, M. Naka, M. Tsunoda, and M. Takahashi
“Critical Angle Behavior of Exchange Bias and Coercivity in $CoFe/MnIr$ Bilayers”
IEEE Transaction on Magnetism, 42(10), 3011-3013 (2006). 査読有
- ⑧ 角田匡清、三俣千春、中村哲也、高橋研

“Mn₃Ir 反強磁性合金による巨大交換バイアス”
日本応用磁気学会 第 150 回研究会資料, p. 19-28 (2006). 査読無

- ⑨ M. Tsunoda, S. Yoshitaki, Y. Ashizawa, C. Mitsumata, T. Nakamura, H. Osawa, T. Hirono, D. Y. Kim, and M. Takahashi
“Uncompensated antiferromagnetic spins at the interface in Mn-Ir based exchange biased bilayers”
J. Appl. Phys., 101 (9), 09E510-1-09E510-3 (2007) 査読有
- ⑩ D. Y. Kim, C. O. Kim, M. Tsunoda, M. Yamaguchi, S. Yabugami, and M. Takahashi
“Magnetic viscosity phenomena in exchange coupled CoFe/MnIr bilayers”
J. Appl. Phys., 101 (9), 09E511-1-09E511-3 (2007) 査読有
- ⑪ K. Komagaki, K. Yamada, K. Noma, H. Kanai, K. Kobayashi, Y. Uehara, M. Tsunoda, and M. Takahashi
“Large Exchange Bias and High Blocking Temperature of MgO-Barrier-MTJs with L1₂-Ordered Mn₃Ir”
IEEE Transaction on Magnetism, 43 (8), 3535-3537 (2007). 査読有
- ⑫ M. Tsunoda, S. Yoshitaki, Y. Ashizawa, D. Y. Kim, C. Mitsumata, and M. Takahashi
“Enhancement of exchange bias by ultra-thin Mn layer insertion at the interface of Mn-Ir/Co-Fe bilayers”
phys. stat. sol. (b), 244 (12), 4470-4473 (2007) 査読有
- ⑬ D. Y. Kim, B. Parvatheeswara Rao, C.-O. Kim, M. Tsunoda, and M. Takahashi
“Annealing temperature dependence of microwave permeability in CoFe/MnIr bilayers”
phys. stat. sol. (c), 4 (12), 4388-4391 (2007) 査読有
- ⑭ 角田匡清
“交換バイアス反強磁性材料”
金属, 77 (9), 58-65 (2007) 査読無
- ⑮ M. Tsunoda, T. Nakamura, and C. Mitsumata
“Microscopic origin and role of uncompensated antiferromagnetic spins in Mn-Ir based exchange biased bilayers”
Spring-8 Research Frontiers 2006, 85-86 (2007) 査読有

(2) 学会発表等

- ① M. Tsunoda, T. Nakamura, M. Naka, S. Yoshitaki, C. Mitsumata, M. Takahashi
“XMCD study of Mn-Ir/Co-Fe bilayers with giant exchange anisotropy”
19th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces, 16P-20,
August 16, 2006 (仙台国際会議場)
- ② D. Kim, C. Kim, C. Kim, M. Tsunoda, M. Yamaguchi, M. Takahashi
“Antiferromagnetic thickness dependence of microwave permeability in MnIr/CoFe bilayers”
19th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces, 16P-17,
August 16, 2006 (仙台国際会議場)
- ③ 駒垣幸次郎、山田浩二、野間賢二、金井均、小林和雄、上原裕二、角田匡清、高橋研
“L₁₂型規則合金 Mn₃Ir の形成と MgO バリア TMR 素子への応用”
第 30 回日本応用磁気学会学術講演会, 11aC-5, 2006 年 9 月 11 日 (島根大学工学部)
- ④ D. Y. Kim, C. G. Kim, C. O. Kim, M. Tsunoda, M. Yamaguchi, M. Takahashi
“Exchange coupling effect on permeability spectra in CoFe/MnIr bilayers”
第 30 回日本応用磁気学会学術講演会, 12aB-1, 2006 年 9 月 12 日 (島根大学工学部)
- ⑤ 角田匡清、仲真美子、吉滝慎一郎、今北健一、高橋研
“L₁₂-Mn₃X(X=Ir, Rh, Ru)/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性”
第 30 回日本応用磁気学会学術講演会, 12aD-2, 2006 年 9 月 12 日 (島根大学工学部)
- ⑥ 角田匡清、中村哲也、仲真美子、吉滝慎一郎、三俣千春、高橋研
“XMCD による Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の研究”
第 30 回日本応用磁気学会学術講演会, 12aD-3, 2006 年 9 月 12 日 (島根大学工学部)
- ⑦ 中村哲也、角田匡清、仲真美子、吉滝慎一郎、岡田京子、三俣千春、高橋研
“XMCD による Mn-Ir/Co-Fe の Mn 反強磁性帯磁率”
第 30 回日本応用磁気学会学術講演会, 12aD-5, 2006 年 9 月 12 日 (島根大学工学部)
- ⑧ K. Komagaki, K. Yamada, K. Noma, H. Kanai, K. Kobayashi, Y. Uehara, M. Tsunoda, M. Takahashi
“Large Exchange Bias and High Blocking Temperature of MgO-Barrier-MTJs with L₁₂-Ordered Mn₃Ir”

*10th Joint MMM/Intermag Conference, AV-08, January 8, 2007 (ボルチモア
マリオットホテル, 米国)*

- ⑨ M. Tsunoda, S. Yoshitaki, C. Mitsumata, T. Nakamura, M. Takahashi
“Microscopic origin and a role of uncompensated AFM spins in exchange
biased Mn-Ir/Co-Fe bilayers”
*10th Joint MMM/Intermag Conference, DC-04, January 9, 2007 (ボルチモア
マリオットホテル, 米国)*
- ⑩ D. Y. Kim, C. Kim, C. Kim, M. Tsunoda, M. Takahashi
“Magnetic viscosity phenomena in exchange coupled CoFe/MnIr bilayers”
*10th Joint MMM/Intermag Conference, EQ-19, January 10, 2007 (ボルチモア
マリオットホテル, 米国)*
- ⑪ M. Tsunoda, T. Nakamura, C. Mitsumata, M. Takahashi
“Microscopic Origin and a Role of Uncompensated Antiferromagnetic Spins
in Mn-Ir Based Exchange Biased Bilayers” (INVITED)
*The 1st International Symposium on Advanced Magnetic Materials and
Applications, AC-01, May 29, 2007 (済州島 ラマダホテル, 韓国)*
- ⑫ M. Tsunoda, S. Yoshitaki, Y. Ashizawa, D. Y. Kim, C. Mitsumata, M.
Takahashi
“Exchange Bias Enhancement by Ultra-thin Mn Insertion at the Interface of
Mn-Ir / Co-Fe Bilayers”
*The 1st International Symposium on Advanced Magnetic Materials and
Applications, AC-05, May 29, 2007 (済州島 ラマダホテル, 韓国)*
- ⑬ D. Y. Kim, C. O. Kim, M. Tsunoda, M. Takahashi
“Annealing Temperature Dependence of Microwave Permeability in
CoFe/MnIr Bilayers”
*The 1st International Symposium on Advanced Magnetic Materials and
Applications, RE-12, May 30, 2007 (済州島 ラマダホテル, 韓国)*
- ⑭ M. Takahashi, M. Tsunoda
“Process and materials for high performance spintronics devices” (INVITED)
*3rd Taiwan International Conference on Spintronics, August 1, 2007 (雲林大
学, 台湾)*
- ⑮ 角田匡清、三俣千春、中村哲也、高橋研
“Mn-Ir 基交換結合膜における非補償反強磁性スピンの微視的起源と交換磁気異
方性に及ぼす役割”
第 31 回日本応用磁気学会学術講演会, 14aD-7, 2007 年 9 月 14 日 (学習院大学)
- ⑯ 角田匡清、吉滝慎一郎、芦澤好人、金東栄、三俣千春、高橋研
“Mn-Ir/Co-Fe 積層膜界面への極薄 Mn 層挿入による交換磁気異方性の増強”

第 31 回日本応用磁気学会学術講演会, 14aD-9, 2007 年 9 月 14 日 (学習院大学)

- ⑰ 三俣千春、深道和明、角田匡清、高橋研
“交換結合バイアス積層膜における反強磁性層臨界膜厚の低減”
第 31 回日本応用磁気学会学術講演会, 14aD-10, 2007 年 9 月 14 日 (学習院大学)

- ⑱ M. Tsunoda, C. Mitsumata, T. Nakamura, M. Takahashi
“Mechanism of giant exchange anisotropy of Mn-Ir / Co-Fe bilayers containing ordered Mn₃Ir phase”
The 6st International Symposium on Metallic Multilayers, THU-08, Oct. 18, 2007 (西オーストラリア大学, 豪州)

(3) 図書

なし

研究成果による産業財産権の出願・取得状況

なし

付記. 文中で用いた記号および略号の定義

- AF ... Anti-Ferromagnetism : 反強磁性
F ... Ferromagnetism : 強磁性
as depo. ... as deposited : 成膜直後の処理の行われていない状態
 T_a ... 熱処理温度
 t_a ... 熱処理保持時間
 d_{AF} ... 反強磁性層厚
 d_{AF}^{cr} ... 一方向異方性定数 J_K を生じる反強磁性層の臨界膜厚
 d_F ... 強磁性層厚
 H_c ... 保持力
 H_{ex} ... 交換結合磁界
 H^{cr} ... 臨界磁界
 M_s ... 強磁性層の飽和磁化
 J ... Single spin model における強磁性層／反強磁性層界面に働く結合エネルギー。
 J_K ... 一方向異方性定数
 K_{AF} ... 反強磁性膜の磁気異方性エネルギー
 K ... ボルツマン(Boltzmann)定数 (1.3807×10^{-23} J/K)
 E_a ... 活性化エネルギー
sub. ... substrate : 基板
U.L. ... under layer : 下地層
SV ... Spin Valve : スピンバルブ
 T_B ... ブロッキング温度 (一方向異方性定数 J_K が消失する温度)
 T_N ... ネール(Néel)温度
F.C.C. ... Face-Centered Cubic : 面心立方構造
F.C.T. ... Face-Centered Tetragonal : 面心正方構造
B.C.C. ... Body-Centered Cubic : 体心立方構造

研究成果

第1節 はじめに

ハードディスク用磁気再生ヘッドと強磁性/反強磁性積層膜の交換磁気異方性

近年の急速なマルチメディアの進展や世界規模での情報通信ネットワークの拡大によりストレージデバイスに対する高速化・大容量化の要請は強まっている。なかでもハードディスクドライブ(HDD)は低コスト・大容量の高速ストレージデバイスとして中心的な役割を担っている。さらに HDD は従来のコンピュータ用記録装置としての用途以外に、ポータブル AV プレーヤー、パーソナルビデオレコーダ、カーナビゲーション等、多くの新たな用途へ使用され、製品化されている。これに伴い、例えば長時間の動画記録等、従来用途に比べ格段に大きい記録容量が必要となってきた。しかも、記録装置としての大きさは各種情報機器への組み込みを前提とするために小型化が要求され、同時に民生への普及を図るために部品点数を減らす等のコスト削減が求められている。このため、ハードディスク(HD)の記録密度の向上に伴った、HDD の小型化、低価格化がよりいっそう必要となっている。HD の面記録密度の向上は、3.5 インチで 1980 年代では年率 30%の上昇率であったが、1990 年に入って年率 60%増になり、さらに、1990 年代後半からは年率 100%増になっている^{1,2}。その背景には、主に、磁気再生ヘッドの著しい性能向上がある。開発当初の電磁誘導の原理を利用した誘導型薄膜ヘッドから、異方性磁気抵抗(AMR)効果^{3,4}を利用した MR ヘッド³が登場した。一方で、1988 年 Fe/Co 多層膜において発見された巨大磁気抵抗効果(GMR 効果)^{5,6}は、得られる抵抗変化率が AMR 効果に比べて格段に大きいことから、早くから MR ヘッドに変わる次世代磁気ヘッドとして、その応用に対する期待が高まっていた。そして最近になり実用化されたのが、

GMR 効果⁷を利用したスピバルブ型 GMR 膜⁸⁻¹⁰(Fig.1-1)の発明とそれを用いた再生ヘッドである。これにより、面記録密度は飛躍的に向上した。

スピバルブ型 GMR ヘッドは、基本的に、反強磁性層と非磁性層を挟む 2 つの強磁性層で構成されている。反強磁性層と隣接している強磁性層との界面では交換磁気異方性¹¹が発現し、強磁性層のスピンの方向が一方向に固定されている(一般にこの強磁性層を固定層と呼ぶ)。そして、これら 2 つの強磁性層のスピンの方向に角度差が生じたときに、2 つの強磁性層とそれらに挟まれている非磁性層との界面で起こるスピン依存散乱¹²⁻¹⁴の散乱確率が変化し、磁気抵抗に変化が生じる。2 つの強磁性層のスピンの平行状態のときは低抵抗を示し、反平行状態のときは高抵抗を示す。

このようなスピバルブ型 GMR ヘッドの強磁性層磁化の固定に用いられている交換磁気異方性は、1956 年に W. H. Meiklejohn および C. P. Bean によって Co 微粒子の表面を少し酸化し、磁界中で 77K まで冷却することによって発見された^{11,15}。Fig.1-2 に、この微粒子の磁界中および無磁界中で冷却した場合の 77K での磁化曲線を示す。磁界中で冷却した場合では、冷却時の磁界の方向に磁化が向こうとする一方向異方性が見られることがわかる。このような現象を交換磁気異方性という。そして、この一方向異方性が存在するということは、磁場反転に対するスピンの非対称性が存在することを意味する。Meiklejohn らは、この交換磁気異方性を説明する現象論的モデルとして Single spin model¹⁶を提案している。

磁気再生ヘッドに用いられる反強磁性材料

HDD の線記録密度の向上に伴って、スピバルブ素子に許される膜厚はますます減少し、膜厚の大部分を占める反強磁性層の極薄化が求められている。反強磁性材料としては、これまでに Mn 基合金、Cr 基合金、酸化物、希土類合金などが検討されてきた。Fig.1-3 には、一例として種々の Mn 基合金反強磁性材料を用いた交換結合膜における一方向異方性定数(J_K)の反強磁性膜厚(d_{AF})依存性を示す。Mn-Ir は、強磁性/反強磁性積層膜(以下交換結合膜)において、交換磁気異方性が導出される反強磁性層の最小膜厚(臨界膜厚)が他の反強磁性よりも薄いため¹⁷、超高密度 HDD 用スピバルブの反強磁性材料として期待されている。Mn-Ir を用いた交換結合膜の一方向磁気異方性定数(J_K)は、同材料の開発当初は 0.15 erg/cm^2 程度の値であり¹⁸⁻¹⁹、L1₀ 型規則合金である PtMn や NiMn を反強磁性層材料に用いた交換結合のそれ($0.3 \sim 0.4 \text{ erg/cm}^2$)^{20,21}に及ばなかった。しかし、その後の積層膜構造²²⁻²⁴や成膜プロセス^{25,26}の改良、さらには強磁性層材料組成の検討によって 0.5 erg/cm^2 を超える大きな値を示すようになった。近年、研究代表者のグループでは、Mn₇₅Ir₂₅/Co₇₀Fe₃₀ 多結晶積層膜

に磁界中で長時間の熱処理を施すことによって、 J_K の値が著しく増大し、 0.87 erg/cm^2 に至ることを見出した²⁷。このような大きな交換磁気異方性は、膜面内寸法が微細化し続けているスピバルブ素子において問題となりつつある、熱エネルギーや反磁界によるピン層磁化の不安定性に対して、有効な解決策を与えるものである。

Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の HDD 応用に関して残された問題は、その交換磁気異方性の熱安定性であった。Mn-Ir/Co-Fe 積層膜では、交換結合磁界が消失する温度(ブロッキング温度、 T_B)が L_{10} 型規則合金を反強磁性層材料に用いた交換結合膜のそれに比較して低く、前述の長時間熱処理によって大きな J_K が導出された積層膜でも、Mn-Ir 層厚 7.5 nm において $T_B = 230^\circ\text{C}$ である。このため、同交換結合膜では、HDD の動作温度 150°C において、 J_K の値はおよそ半減してしまう²⁹と同時に、ヘッド加工工程における静電気放電による瞬間的な大電流でピン層磁化が反転する現象(ESD 破壊)に対する耐性が L_{10} 型規則合金を用いた交換結合膜よりも低いと考えられ、 T_B を向上させることが Mn-Ir/Co-Fe 交換結合膜の実用化の鍵であった。これに対し、近年今北らは、Mn-Ir 成膜時に真空中加熱を施すことにより L_{12} 相を有する Mn_3Ir が形成されるを明らかにした³⁰⁻³²。そこで、Mn-Ir 層厚 10 nm において 1.3 erg/cm^2 という γ -Mn-Ir に比べてはるかに巨大な J_K と 360°C という L_{10} 型規則合金に匹敵する高い T_B を両立できることを示した(Fig.1-4)。したがって、今後 L_{12} 相を有する Mn_3Ir のスピバルブ素子などへの実用化が大いに期待される。

L_{12} 規則相を有する Mn 基合金反強磁性材料

L_{12} 相を有する Mn_3Ir は、Mn-Ir 成膜時に真空中加熱を施すことにより形成されることがわかっている。更に、Mn-Ir 成膜時基板温度を変化させることにより、 Mn_3Ir 相の規則度が変化し、Fig.1-5 に示すように、規則度の増加と共に J_K ならびにブロッキング温度が増大することが明らかとなっている³²。したがって、規則度をさらに向上させることにより更なる特性向上が期待される。しかしながら、現在実現されている規則度は最大で 0.5 程度であり、規則度 1 は実現されていない。よって、今後いかに規則度を向上するか検討する必要がある。

また、 L_{12} 相形成による巨大交換磁気異方性の誘導を考慮すると、他の L_{12} 型 Mn 基合金においても巨大交換磁気異方性を誘導できる可能性が考えられる。巨大交換磁気異方性を発現可能な材料を探索するために参考とすべき物性値のひとつにネール温度が挙げられる。Fig.1-6 に Umetsu らによってまとめられた不規則相である γ 相ならびに規則相である L_{12} 相を有する Mn 基合金のバルクにおけるネール温度を示す³³。Mn-Ir は、 γ 相でありながら、比較的高いネール

温度を示し、L1₂相への規則化により更に高いネール温度を示すことが明らかとなっている。交換結合膜において、先に述べた Mn-Ir の規則化によるブロッキング温度の上昇は、ネール温度の向上によるものであると考えられる。したがって、応用上ネール温度の高い反強磁性材料を用いた交換結合膜の検討が必要である。

Mn-Rh は、ネール温度は Mn-Ir に劣るが、Fig. 1-7(a)に示すバルクにおける Mn-Rh の平衡状態図³⁴からわかるように、Rh 組成 13 at.%付近から 33 at.%の付近で L1₂相の存在が確認されている。したがって、L1₂相の高規則度を実現すれば、Mn₃Ir を超える特性向上が期待され、また、L1₂相が交換磁気異方性に及ぼす影響について検討を行うにあたり、最も有望な材料であると言える。

Mn-Ru は、Fig.1-7(b)に示すバルクにおける Mn-Ru の平衡状態図³⁵からわかるように、L1₂相の存在は未確認であるが、不規則相において Mn-Ir を超えるネール温度が示されている。したがって、薄膜において L1₂相を形成出来れば、Mn₃Ir を超える特性の向上が期待される。

これら Mn-Rh, Mn-Ru の交換磁気異方性の検討は、既に、Araki ら、Nakabayashi ら、Takiguchi らによって行なわれている³⁶⁻³⁸。Fig.1-8 (a) に示すように、Mn-Ru の場合、 J_K は d_{AF} が 100Åで最大 0.11 erg/cm²、Mn-Rh の場合、150Åで最大 0.13 erg/cm²が得られている。(b) に示した Ru と Rh の三元合金の場合の熱安定性の検討結果からわかるように、ブロッキング温度は 200℃ ~ 250℃程度であることが報告されている。これらの値は、いずれも Mn-Ir の開発当初の性能と同程度の値であるため、これらを規則化させることによって、Mn-Ir 同様、交換磁気異方性が飛躍的に向上する可能性が十分にある。

交換磁気異方性の発現機構に関するモデル

磁気記録への工業利用をきっかけにして、さまざまな材料系についての研究が広まった強磁性/反強磁性積層膜では、交換磁気異方性の発現機構に関する研究も盛んに行われるようになった。Meiklejohn らの Single spin Model は、定性的な理解を与える初期のモデルとしては十分だが、交換磁気異方性の発現機構を説明するためには、次の二つの問題点を説明する必要がある。第一の問題は、交換磁気異方性が強磁性層と反強磁性層の界面において、それぞれの磁性層の間で交換相互作用が働くことによって発生するにもかかわらず、実際に観測される交換磁気異方性の大きさが交換エネルギーから期待される値よりもかなり小さくなる点である。第二の問題点は、界面における反強磁性層のスピン配列の問題である。反強磁性材料内部では結晶の格子点にある磁気モーメントの向きが互いに打ち消し合う方向に配列しており、磁気モーメントの総和

が 0 になることで材料の内部には磁場を出さない。強磁性材料と反強磁性材料を積層したときには、反強磁性層の結晶方位によって磁気モーメントの総和が 0 になる界面を形成する場合と、有限の値になる界面を形成する場合がある。前者の界面は **compensated** 界面、後者は **uncompensated** 界面と呼ばれる。Fig.1-9 に強磁性/反強磁性積層界面のスピンの配列の模型を示す。Fig.1-9(b)では界面において反強磁性層のスピンの向きが揃っており、強磁性層との交換相互作用によって自然に交換磁気異方性が発現可能な模型となっている。一方、Fig.1-9(a)に示すように積層界面のスピンの配列が **compensated** 界面を形作った場合、強磁性層中のスピンの交換エネルギーの総和も 0 となり、交換磁気異方性の発生を説明できないというのが、第二の問題であった。

そこで近年これらの問題を解決させるべく、様々なモデルが提案されてきた。以下に代表的なモデルを示す。いずれのモデルにおいても、前項で述べた、磁場反転に伴うスピンの非対称性を生み出すために、強磁性材料と反強磁性材料を積層した時には、**uncompensated** 界面が存在すると仮定している。

しかし、反強磁性層中のわずかな非補償成分は、通常の磁化測定では埋もれてしまうため、実験において反強磁性体の非補償スピン成分ならびに磁化過程の明確化が必須であると考えられる。

1. Single spin model¹⁶

交換磁気異方性の発見者である Meiklejohn は交換磁気異方性のミクロスコピックな発現機構に関するモデルとして **Single spin model** を提案している。**Single spin model** は、Fig.1-10 に示したように強磁性層と反強磁性層を単磁区とし、更に磁気異方性が存在すると仮定し、更に強磁性層/反強磁性層界面において結合エネルギー(J)を仮定している。このモデルは、極薄の反強磁性層厚での交換磁気異方性をよく説明する反面、仮定した強磁性/反強磁性層界面の結合エネルギー(J)に関して具体的な物理起源を与えていない欠点を有する。

Single spin model で与えられる系の面積あたりの自由エネルギーは

$$tE = -M_s d_F H \cos(\theta - \beta) + K_{AF} d_{AF} \sin^2 \alpha - J \cos(\beta - \alpha) \quad \text{Eq.1-1}$$

と表される。ここで、 H は磁界、 θ は磁界方向の容易軸方向からの角度、 α 、 β は反強磁性スピンおよび強磁性スピンの容易軸方向からの角度である。また、 M_s は強磁性体の単位体積あたりの飽和磁化、 d_F と d_{AF} はそれぞれ強磁性体と反強磁性体の厚さである。強磁性体の磁気異方性は簡単のため省略している。第一項がゼーマンエネルギー、第二項が反強磁性体の一軸磁気異方性エネルギー、第三項が界面でのスピン間の結合エネルギーを表している。

Single spin model から求められた計算結果を Fig.1-11 に示す。本モデルでは、 J_K の大きさは強磁性/反強磁性層界面の結合エネルギー(J)の大きさにおよ

そ等しく，交換結合磁界($M_s d_F H_{ex}/J$)の反強磁性層厚($K_{AF} d_{AF}/J$)依存性では， $K_{AF} d_{AF}/J = 1$ を境に交換結合磁界が発現していることがわかる．したがって，Single spin model では臨界膜厚は $d_{AF}^{cr} = J/K_{AF}$ で表される．

2. 拡張 Single spin model³⁹

本モデルでは，強磁性/反強磁性層界面は部分的に uncompensated 界面 (Fig.1-12)となっており，界面の強磁性/反強磁性スピン対の大部分は外部磁界に付随して磁化反転するが，一方で一方向に固着され外部磁界に付随しないスピン対がわずかに存在すると仮定している．交換磁気異方性は，この一方向に固着されたスピン対により引き起こされる (Fig.1-13)．本モデルでは， J_K の大きさは，界面のスピン量に対する固着スピン量の割合(ρ)と強磁性/反強磁性スピン間の交換エネルギー(J)の積に等しく，

$$J_K = \rho J \quad \text{Eq.1-2}$$

で表現される．

固着スピン量の割合(ρ)は，反強磁性層の磁化曲線により見積もることが出来る． Fig.1-14 にこのモデルが適用可能である場合の反強磁性層の磁化曲線の図を示すが，横方向にシフトするだけでなく縦方向にもシフトすることがわかる．この反強磁性層の磁化曲線において，磁化曲線の高さは uncompensated 界面のスピン大きさ(M_{rot})を示し，磁化曲線の縦方向のシフト量は固着スピンの大きさ(M_{pin})を示す． Ohldag らは，一方向異方性を誘導した場合と誘導しない場合の Co/Ir_{0.8}Mn_{0.2} 積層膜において，軟 X 線 MCD による Mn と Co の元素選択的磁化曲線の観察を行った (Fig.1-15)．一方向異方性を誘導した場合，Mn の磁化曲線には縦シフトが見られるが，一方向異方性を誘導しない場合は縦シフトが見られないことがわかる．この磁化曲線から uncompensated 界面のスピン大きさは 0.56 ± 0.14 ML, 固着スピンの大きさは $0.03-0.04$ ML と見積もられた．このスピンの大きさは，Table 1-1 に示すように，積層膜を Co/NiO, CoFe/PtMn とした場合もほぼ等しいと報告している．これらの実験結果から，本モデルは交換磁気異方性の一般的メカニズムであると論じている．しかしながら，研究代表者らが行った詳細な XMCD 実験の結果からは，MnIr/CoFe 積層膜において，uncompensated Mn スピンに固着成分は存在せず、Table.1-1 相反する結果が得られている．

3. Domain wall model⁴⁰

Fig.1-16 に D. Mauri らによって提案された Domain wall model を示す．本モデルは，交換磁気異方性によって発現する結合エネルギーを強磁性/反強磁性層の界面における結合エネルギーで説明することが困難と考え，反強磁性層内

のスピンのねじれを生ずることによる説明を考えたものである。このモデルでは強磁性層/反強磁性層界面における交換結合エネルギー J_K について物理的な起源を与えているという利点を有する一方で、反強磁性層が磁壁幅よりも十分厚い場合を仮定しており、極薄の反強磁性層厚での交換磁気異方性を説明できていないという欠点を有する。

本モデルでは、外部磁界によって一方向異方性が発現した場合には、反強磁性層内に厚さ $\pi\sqrt{A/K_{AF}}$ のスピンのねじれが生じ、その系のエネルギー δ は

$$\delta = 2\sqrt{AK_{AF}}(1 + \cos\theta) + A_{12}/\xi(1 - \cos\theta) \quad \text{Eq.1-3}$$

と与えられる。ここで、第一項は反強磁性層のスピンのねじれに蓄えられるエネルギー、第二項は強磁性層/反強磁性層界面に蓄えられたエネルギーである。ここで、 K_{AF} は反強磁性層の磁気異方性エネルギー、 A は反強磁性層の交換スティフネスであり、 A_{12} は強磁性スピンと反強磁性スピンの交換スティフネスである。この場合、一方向異方性定数は $2\sqrt{AK_{AF}}$ である。

しかしながら、FeMnを用いた交換磁気異方性の発現に必要な磁壁幅は約50 nmとなり、Ni-Fe/FeMn積層膜より薄い反強磁性層厚で交換磁気異方性が発現していることを説明できていない。

4. Random Field Model⁴¹

Fig.1-17にMalozemoffらによって提案されたRandom Field Modelを示す。本モデルでは、Fig.1-17で示されるように強磁性/反強磁性積層界面に原子レベルのラフネスを考慮し、これに起因する交換結合エネルギーを導入している。このモデルでは、界面の面荒れによって反強磁性層の磁気モーメントの配列は、スピンの方向が全て同じ向きに揃っているuncompensated界面に変化し、交換結合の発現条件を満足することを示している。このモデルでは一方向異方性定数は $\sqrt{AK_{AF}}$ のオーダーになることが示されている。

5. Spin Flop Model⁴²

Fig.1-18にKoonらによって提案されたSpin flop Modelを示す。

本モデルでは、Fig.1-18で示されるようにスピンの表現としてベクトルスピンのモデルを採用し、強磁性/反強磁性積層界面のスピンの緩和により交換結合エネルギーを導入している。このモデルは、強磁性層側のスピンと反強磁性層側のスピンの角度が約90°の角度で交差する形となっており、反強磁性体のspin-flopo構造

に似た構造を持つ。この時反強磁性層側のスピンは界面における交換相互作用の効果で緩和されており、緩和によって生じたスピン相関のずれは、反強磁性層の界面において 2 つの副格子からなるスピン対に垂直の方向に有限の磁化成分を生じさせている。ここで生じた磁化成分が強磁性層のスピンの相互作用することで compensated 界面における交換磁気異方性の発現が可能になると説明される。このモデルでは一方向異方性定数の大きさは、Mauri らの磁壁模型と同様に界面に平行な磁壁を構成することで説明され、 $\sqrt{AK_{AF}}$ に一致するとした。

6. Spin frustration model⁴³

本モデルは、Single spin model や Domain wall model などのように反強磁性層のスピンの反平行配列を持つ共線型スピン構造に限定せず、面心立方構造の Mn 系合金材料のような磁性原子と非磁性原子を含む不規則合金や規則合金を考慮した現実的な系における交換磁気異方性の発現に関して検討を行っている。解析には

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} S_i \cdot S_j - \sum_{\langle i,k \rangle} J_{2ik} S_i \cdot S_k - \sum_i D_i (S_i \cdot n)^2 - g\mu_B \sum_i S_i \cdot H \quad \text{Eq.1-4}$$

で表されるハミルトニアンを用いて強磁性/反強磁性積層膜のスピン構造を決定している。ここで、 J_1 および J_2 は第一近接および第二近接原子間の交換相互作用を示す。また、 D は磁気異方性定数、 n は磁化容易方向、 H は磁界のベクトルであり、第三項および第四項は磁気異方性エネルギーと磁界によるゼーマンエネルギーを示す。Fig.1-19 にこのモデルの模式図を示す。

このようなスピン構造を持つ反強磁性層 100 原子層に強磁性層を 9 原子層積層し、計算を行った場合の磁化曲線を Fig.1-20 に示す。このように反強磁性のスピンにも自由度を与え磁化曲線の計算を行うと、反強磁性層内のスピンの 3 次元にねじれ、交換磁気異方性の起源になりうることを示されている。

反強磁性体の非補償スピン成分の検出

反強磁性体の非補償スピンを検出しようとする試みは、これまでに幾つかのグループにより行われてきた。

1997 年 Takano らの Gr. は、反強磁性体 CoO の非補償スピン成分を SQUID によって熱残留磁化として観測した (Fig.1-21)。彼らは、交換結合膜を作製した場合に、その反強磁性体の非補償スピンが交換磁気異方性に寄与しているのではないかと報告している⁴⁴。

1999 年には W.J.Antel らにより、交換結合膜における Mn スピンの強磁性成

分の検出が報告された⁴⁵。彼らは Fig.1-22 に示すように FeMn/Co 膜を XMLD (X-ray Magnetic Linear Dichrom) と XMCD (X-ray Magnetic Circular Dichrom) の 2 種類の軟 X 線の手法を用いて, Mn の強磁性成分を報告している。

そして, 2003 年には H. Ohldag らにより, 交換結合膜における反強磁性体の非補償スピンの磁化過程(Fig.1-15)が報告された³⁹。H. Ohldag らは, Fig.1-14 に示すように, この反強磁性体の ESMH に縦シフトが存在し, それが交換磁気異方性の起源だと主張している。彼らの主張によると, 反強磁性体の非補償スピンの成分には, 磁場とともに回転する成分 M_{rot} と磁場により反転しない固着成分 M_{pin} が存在し, M_{pin} が存在することにより反強磁性体の ESMH に縦シフトを生じさせ, 交換磁気異方性の起源になると述べている(Fig.1-13)。

本研究の目的

これまで述べてきたように, ハードディスク装置の高記録密度化および小型化に伴う磁気再生ヘッドの特性向上の実現のためには, そこに用いられる交換磁気異方性の諸特性(d_{AFcr} , J_K , T_B)の向上が必要不可欠である。L1₂相を有する Mn 基合金反強磁性材料は, これらを実現可能であると考えられる。また, 交換磁気異方性の発現機構については未だ実験的に明確な回答が得られていないと言えない。特に反強磁性体の非補償スピン成分が交換磁気異方性に果たす役割はまったく明確でないと考えられる。

そこで, 本研究では, L1₂-Mn₃X 相を用いた高性能交換磁気異方性材料の開発, ならびに, 巨大交換磁気異方性の発現機構の明確化を目的とする。さらに, 反強磁性体の非補償スピンの磁場反転に対する非対称性を生み出す起源と考え, 非補償スピンの起源を明らかにし, 非補償スピンの大きさと交換磁気異方性の相関関係を検討することで, 交換磁気異方性の発現機構の解明を目的とする。

第 2 節では, 交換結合膜における Mn₃Ir の規則度向上に関する検討を行う。交換結合膜の下地層(下地材料, 下地層厚)ならびに, Mn-Ir 組成, Mn-Ir 成膜時のプロセスパラメータを変化させ, それらが, Mn₃Ir の規則度ならびに, 積層膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べる。また, Mn₃Ir の規則度が巨大交換磁気異方性に与える影響について検討するに当たり, 粒子一つ一つの規則度を調べる必要があり, それを TEM による観察により検討を行う。

第 3 節では, Mn 基合金の添加元素を, Ru, Rh へと拡張し, L1₂相を有する Mn₃Ru, Mn₃Rh の薄膜における形成を目指す。Mn₃Ru, Mn₃Rh を反強磁性材料として用いた交換結合膜において, Mn₃Ir を用いた場合を超える巨大交換磁気異方性の誘導を目指し, L1₂相が交換磁気異方性に及ぼす影響について調べる。

第 4 節では、Mn 非補償スピンの起源の検討を行う。XMCD を用い、観測される Mn-MCD から Mn 非補償スピン成分を同定し、MnIr 膜厚依存性や強磁性材料依存性を調べることにより、非補償スピンの起源解明を目指す。

第 5 節では、界面状況を積極的に変化させると交換磁気異方性に大きな影響を与えると考え、積層界面に異種金属を挿入し交換磁気異方性の変化について検討を行う。

第 6 節に本研究の結論を述べた。

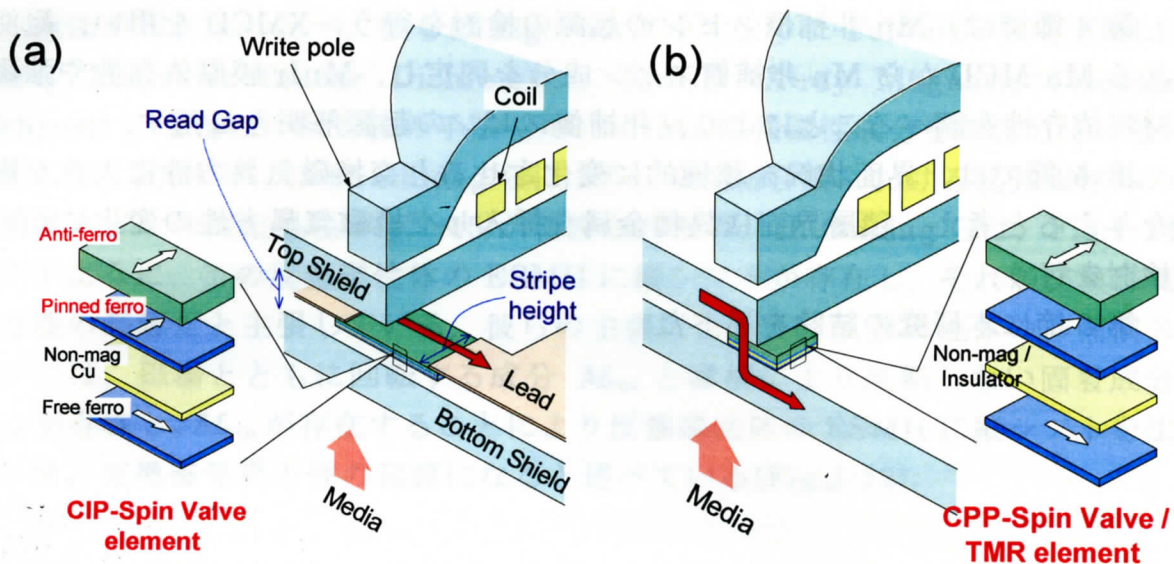


Fig.1-1 ハードディスク用磁気再生ヘッドの概略図.

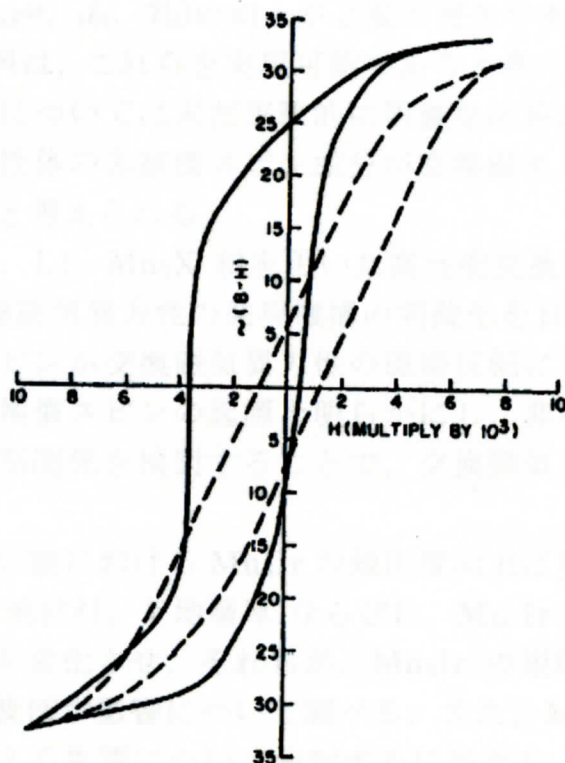


Fig.1-2 表面を酸化された Co 微粒子の 77K における磁化曲線²⁸. 実線は磁界中で冷却した場合を示し, 破線は無磁界中で冷却した場合を示したものである.

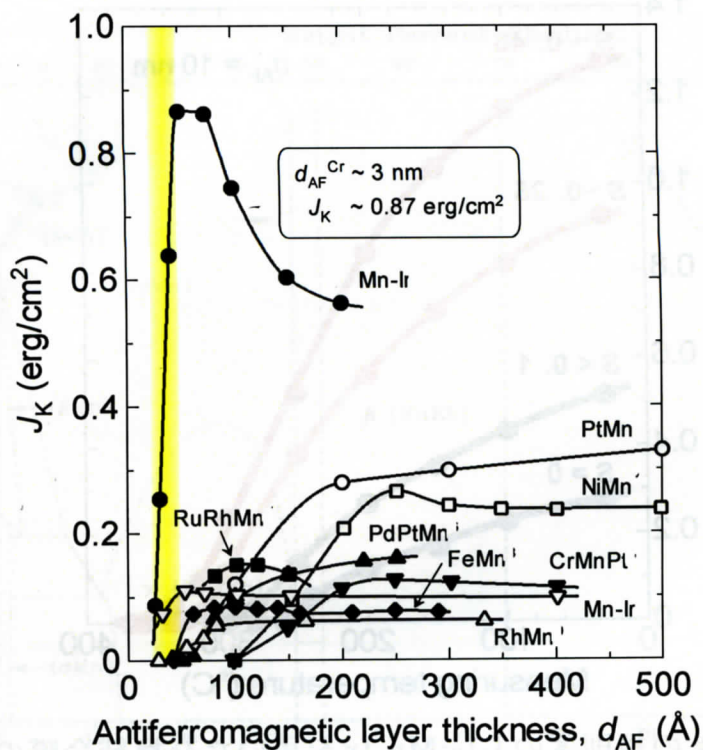


Fig. 1-3 種々の反強磁性材料を用いた交換結合膜の一方方向異方性定数 J_K の反強磁性層厚 d_{AF} 依存性.

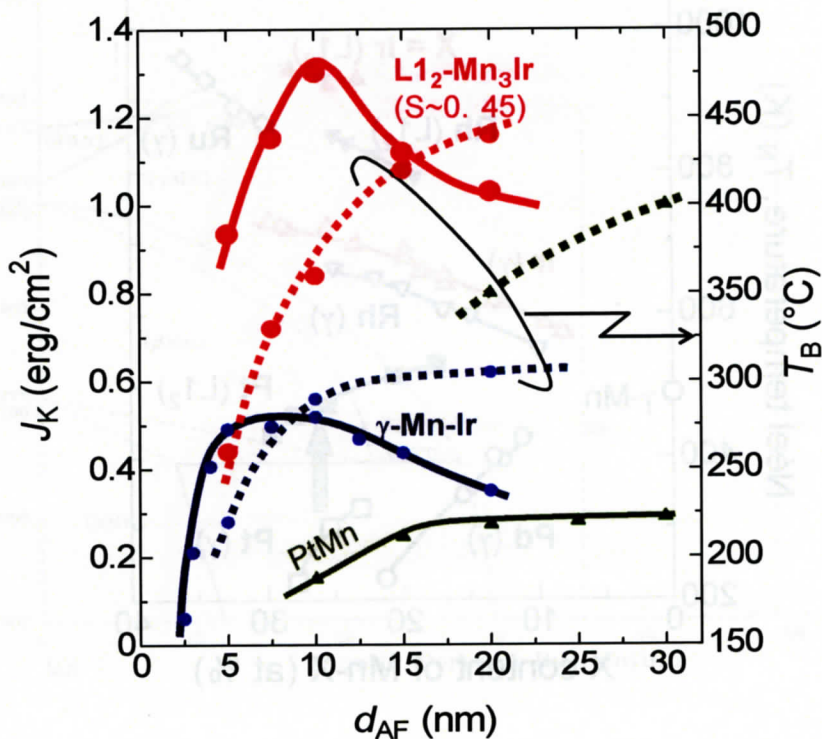


Fig. 1-4 PtMn, $\gamma\text{-Mn-Ir}$, $L_{12}\text{-Mn-Ir}$ を用いた交換結合膜の一方方向異方性定数 J_K ならびにブロッキング温度 T_B の反強磁性層厚 d_{AF} 依存性.

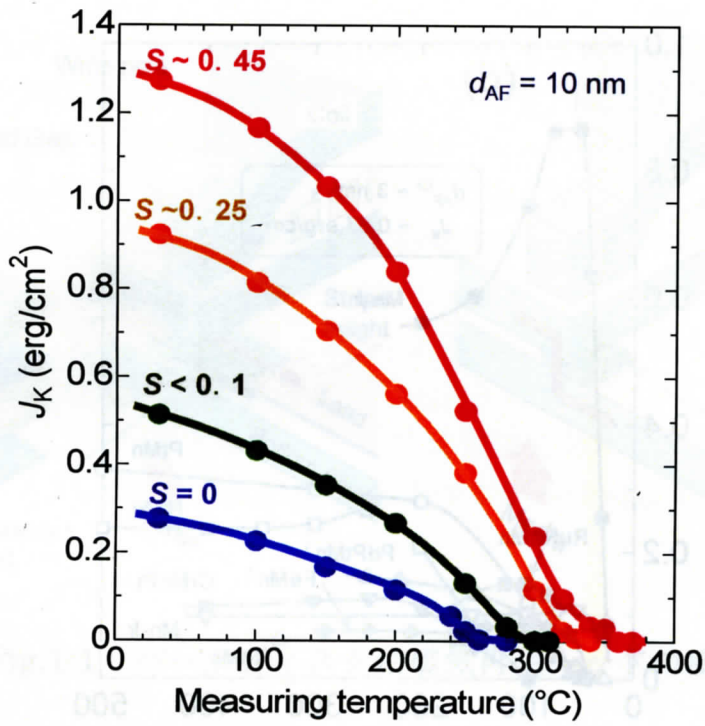


Fig.1-5 種々の規則度の $L1_2$ -Mn-Ir を用いた交換結合膜の一方向異方性定数 J_K の測定温度依存性

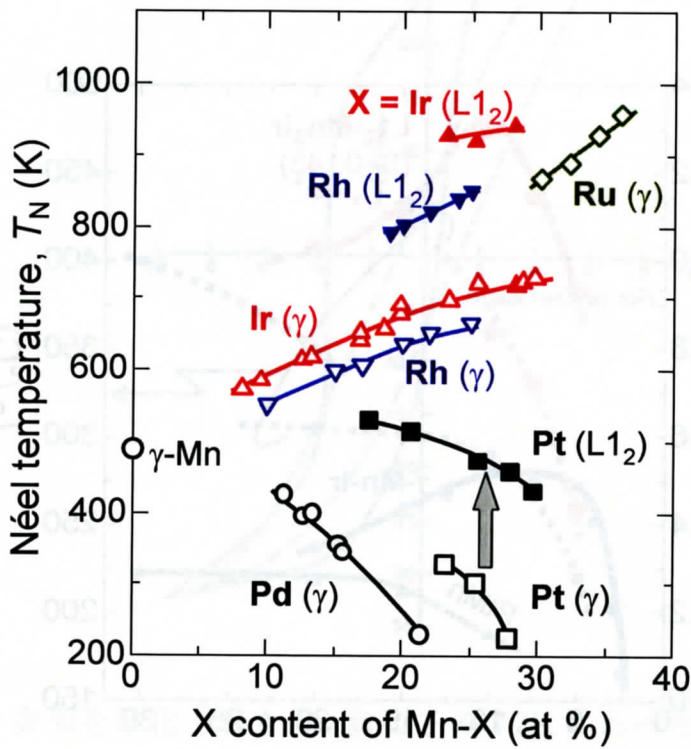


Fig. 1-6 バルクにおける γ -Mn ならびに $L1_2$ -Mn 基合金のネール温度

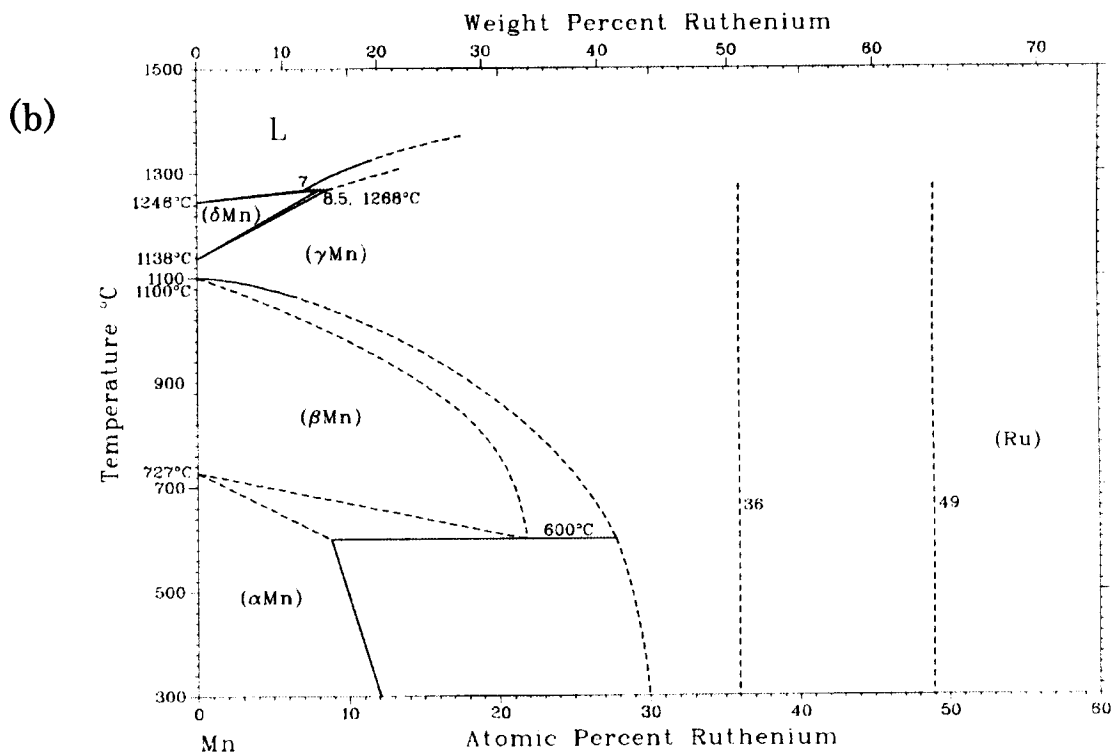
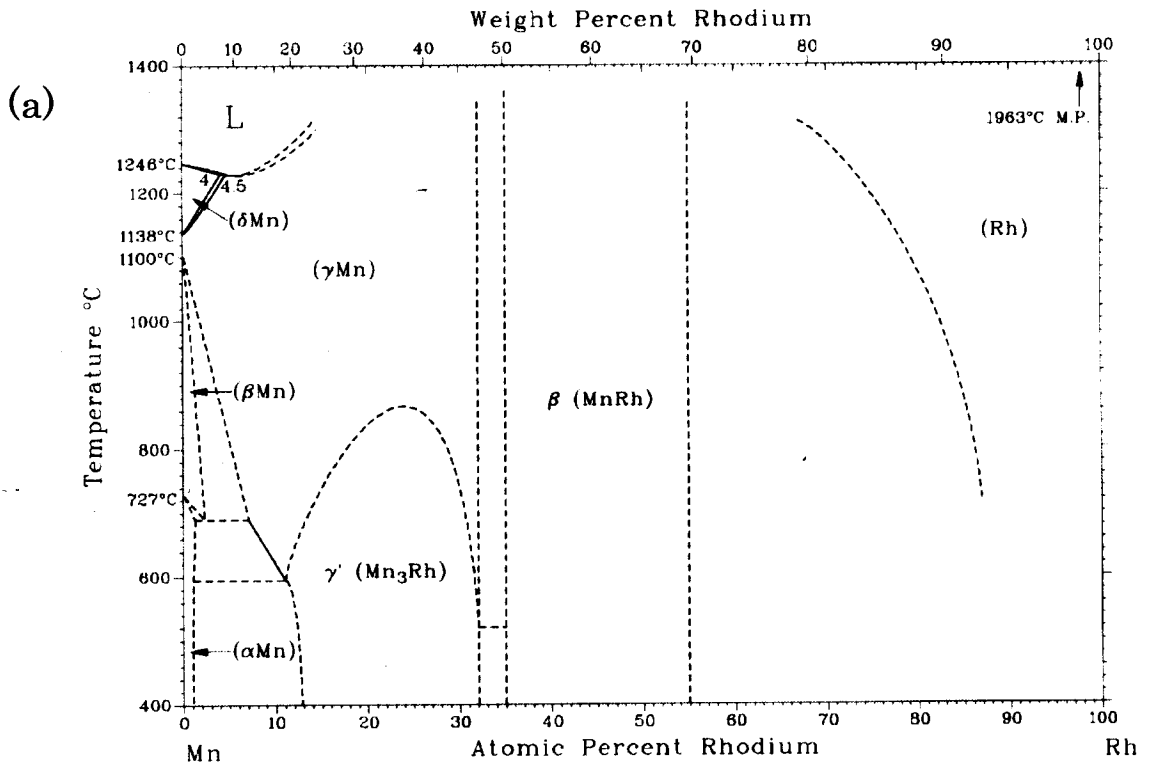


Fig. 1-7 バルクにおける平衡状態図.
 (a) Mn-Rh 合金 (b) Mn-Ru 合金

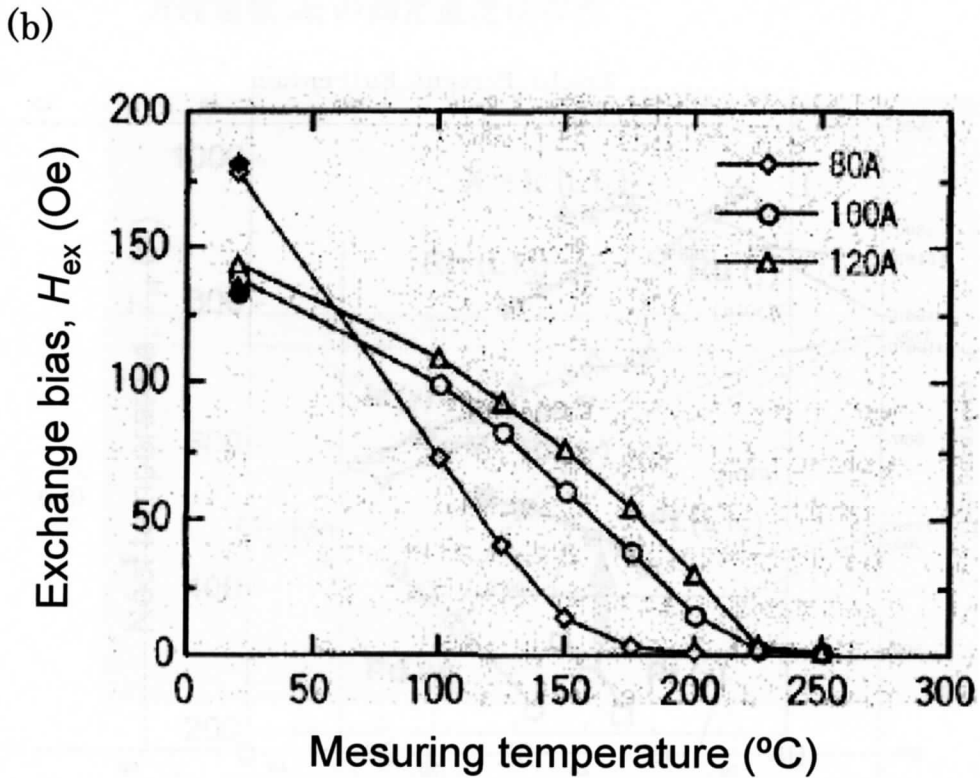
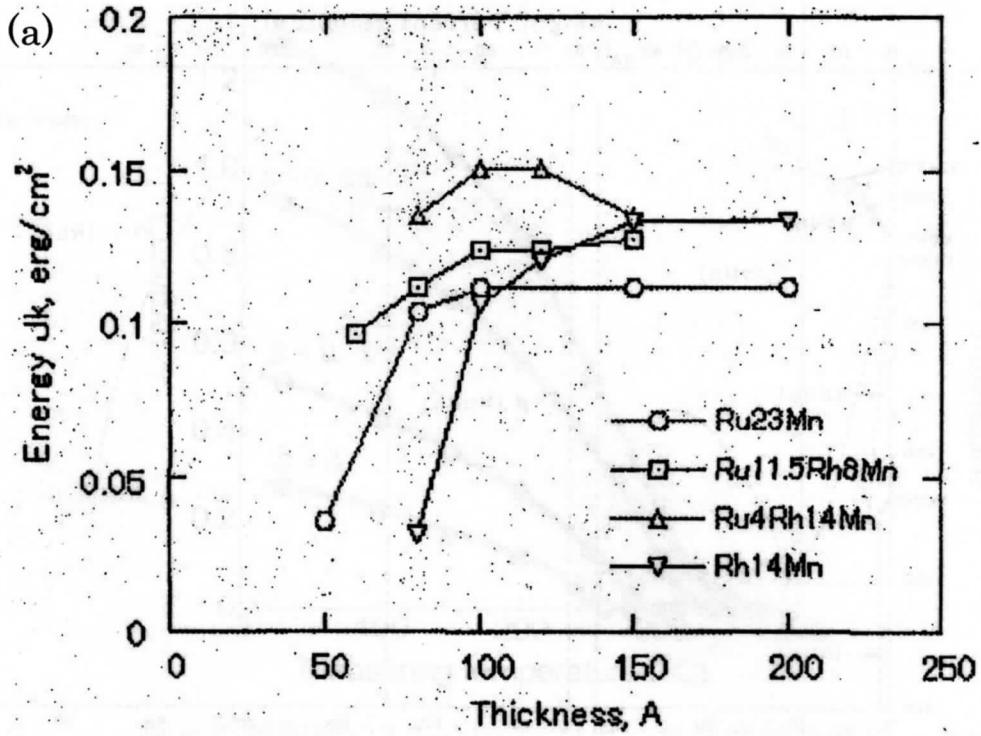
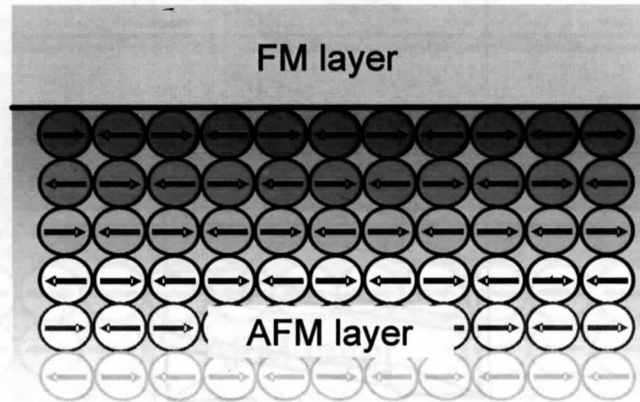


Fig. 1-8 Mn-Ru 合金, Mn-Rh 合金, Mn-Ru-Rh 合金を用いた交換磁気異方性.

(a) Mn-Rh, MnRh, Mn-Ru-Rh を用いた場合の J_k の反強磁性層厚 (d_{AF}) 依存性.

(b) Mn-Ru-Rh を用いた場合の交換バイアス磁界 (H_{ex}) の測定温度依存性.

(a) Compensated interface



(b) Uncompensated interface

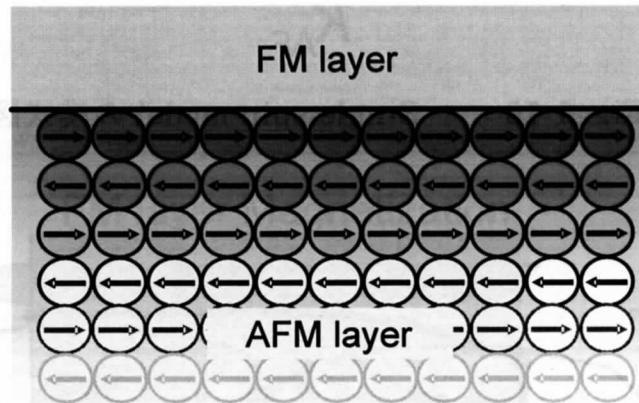


Fig. 1-9 強磁性(FM)/反強磁性(AFM)積層界面近傍におけるスピン配列の模型.
(a)界面の反強磁性層のスピンベクトルの総和が 0 となる Compensated 界面と
(b)界面の反強磁性層のスピンベクトルの総和が 0 にならない Uncompensated 界面.

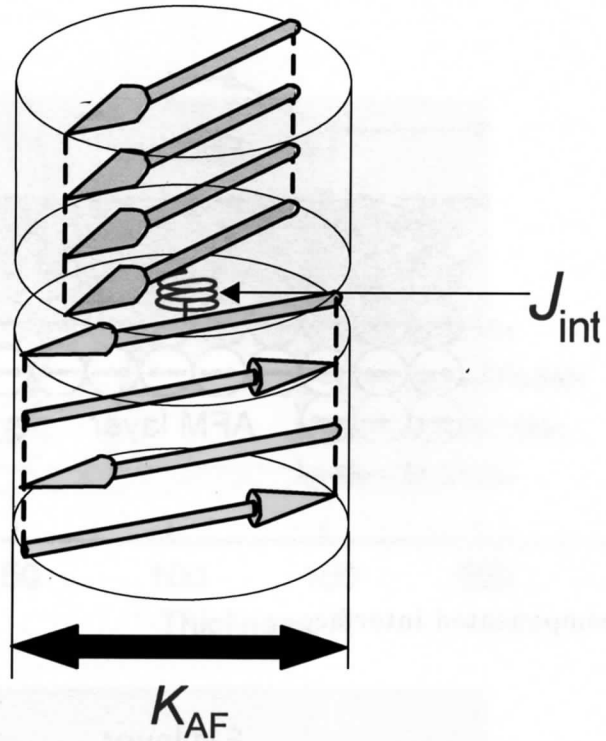


Fig. 1-10 Single spin model の模式図.

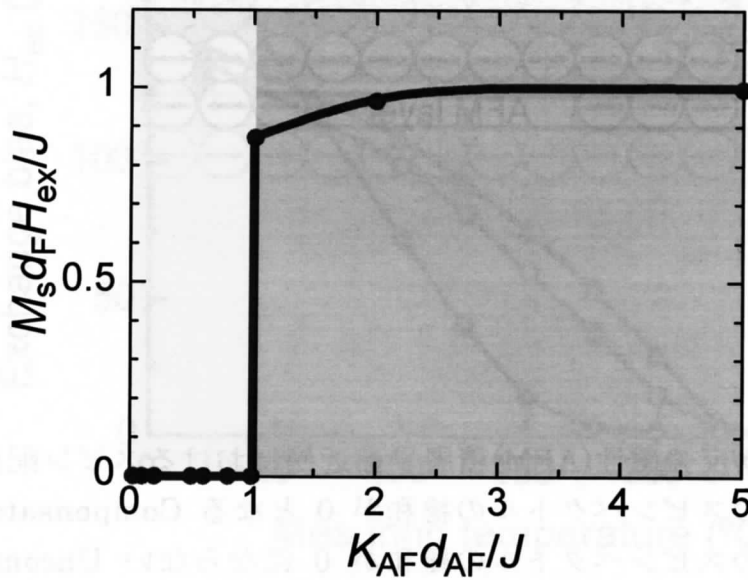


Fig. 1-11 Single spin model による交換結合磁界 H_{ex} の反強磁性厚 d_{AF} 依存性の計算結果.

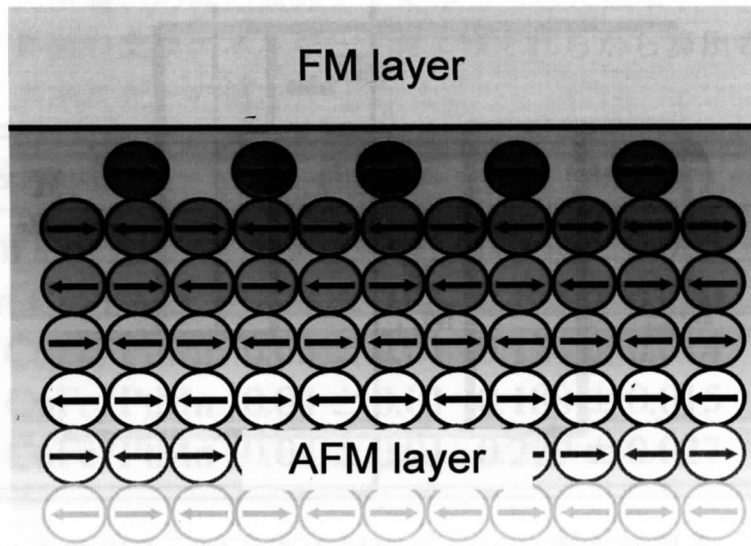


Fig. 1-12 原子ステップによる Uncompensated 界面の模式図.

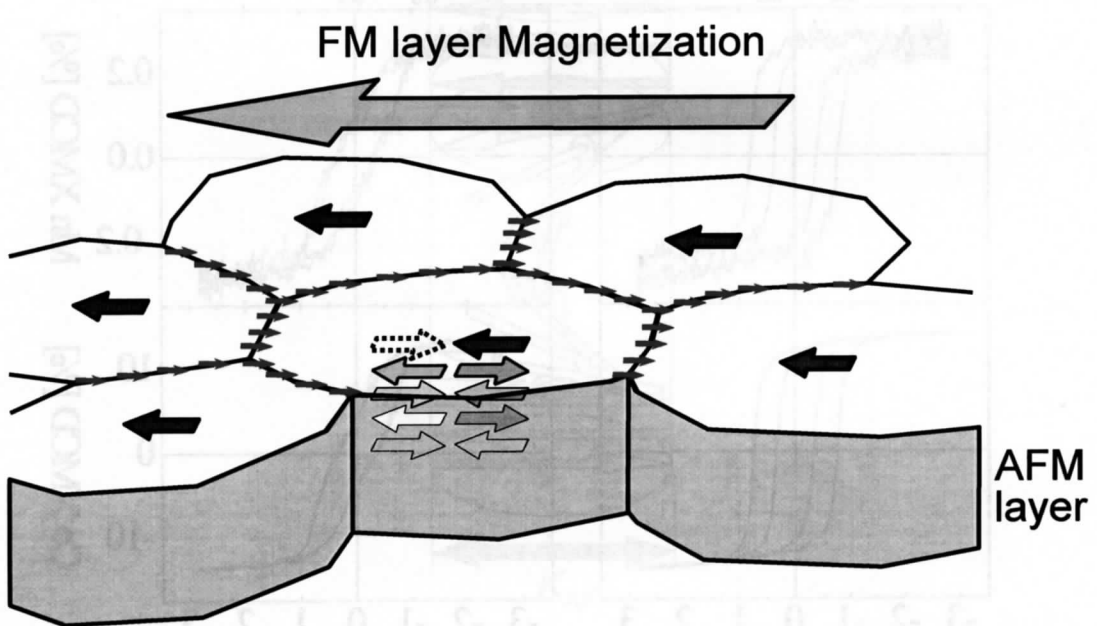


Fig. 1-13 拡張 Single spin model の模式図.

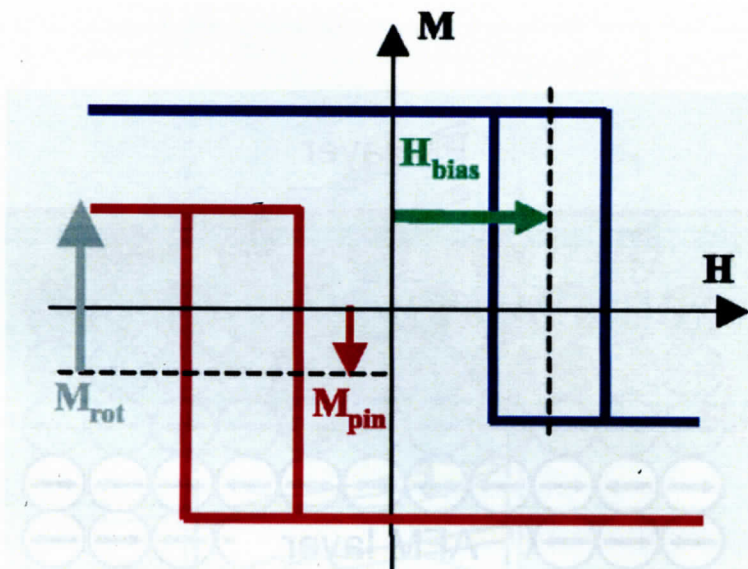


Fig. 1-14 交換結合膜において回転するスピンと固着されたスピ
ンが存在する場合の磁化曲線の模式図. 灰色の矢印は回転
するスピンの大きさ, 赤い矢印は固着されたスピンの大
きさ, 緑の矢印は交換結合磁界を示す.

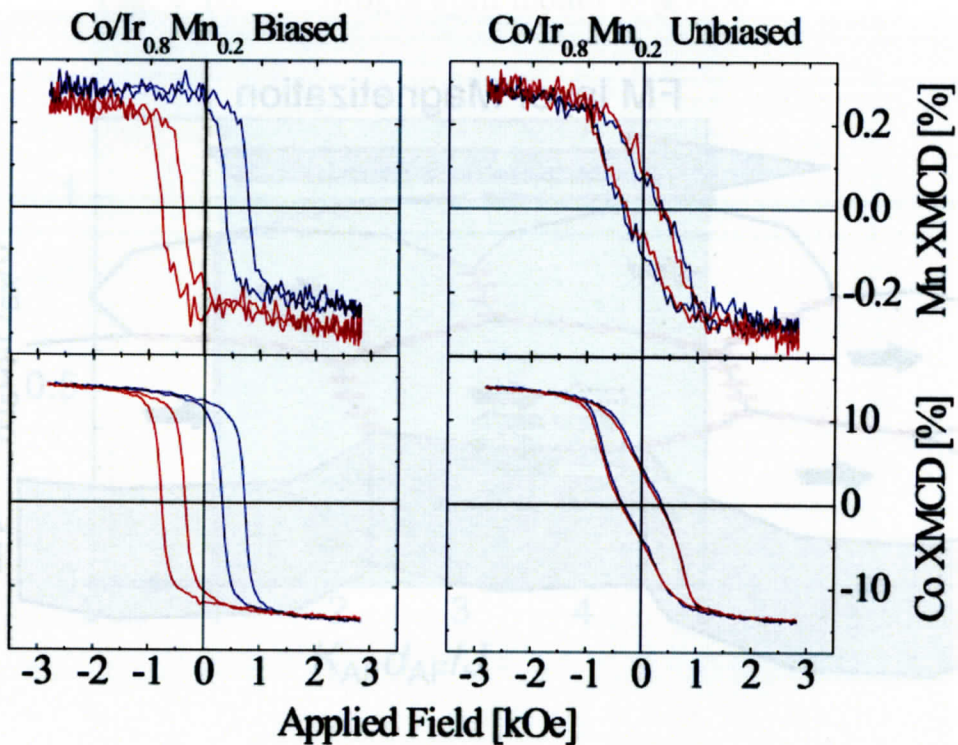


Fig. 1-15 $\text{Co/Ir}_{0.8}\text{Mn}_{0.2}$ 積層膜における Co と Mn の元素選択的磁化曲線²⁾

Table 1-1 Co/NiO, Co/IrMn, CoFe/PtMn 積層膜において反強磁性層の元素選択的磁化曲線より見積もられた固着スピン量, ならびに界面の交換エネルギー, およびそれらから算出される実効交換エネルギーの値.

Sample	ρ (ML)	σ_{eff} (mJ/m ²)	σ (mJ/m ²)
A 3 nm Co/NiO	0.04 ± 0.01	0.052 ± 0.005	1.3 ± 0.5
B 2 nm Co/IrMn	0.04 ± 0.01	0.168 ± 0.020	4.1 ± 1.4
C 1 nm CoFe/PtMn	0.03 ± 0.01	0.124 ± 0.014	3.9 ± 1.4
D 2 nm CoFe/PtMn	0.04 ± 0.01	0.188 ± 0.015	4.8 ± 1.7
E 3 nm CoFe/PtMn	0.04 ± 0.01	0.229 ± 0.027	5.7 ± 2.0

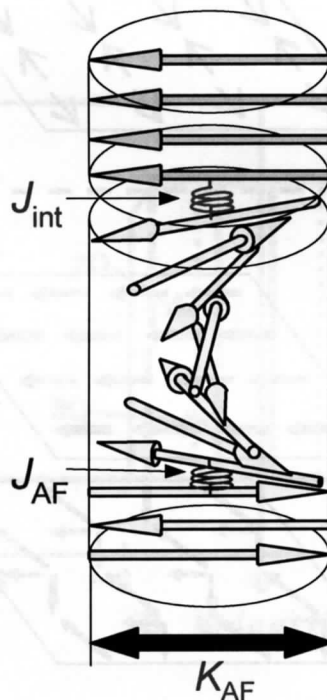


Fig. 1-16 Domain wall model の模式図.

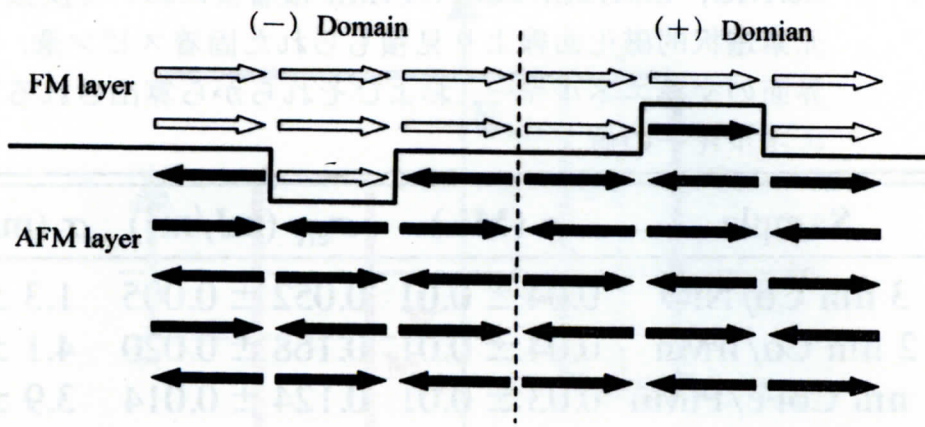


Fig. 1-17 Random-field Model の模式図.

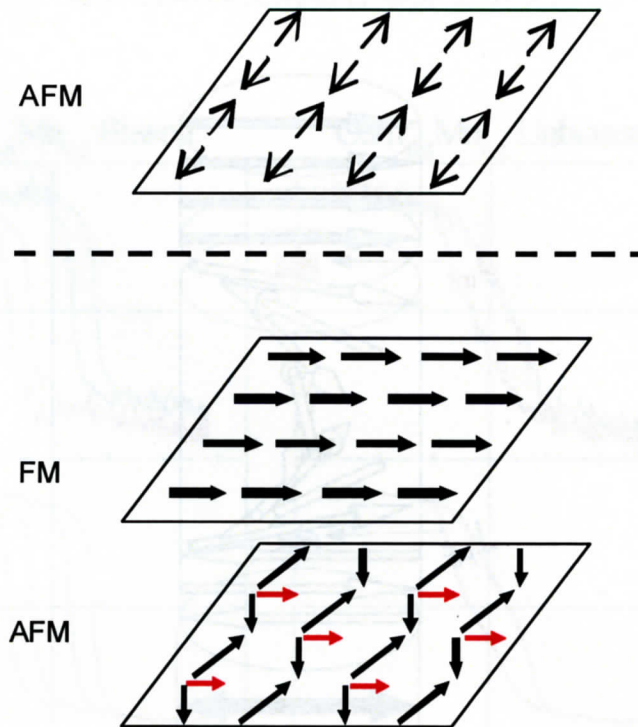


Fig. 1-18 Spin Flop Model の模式図.

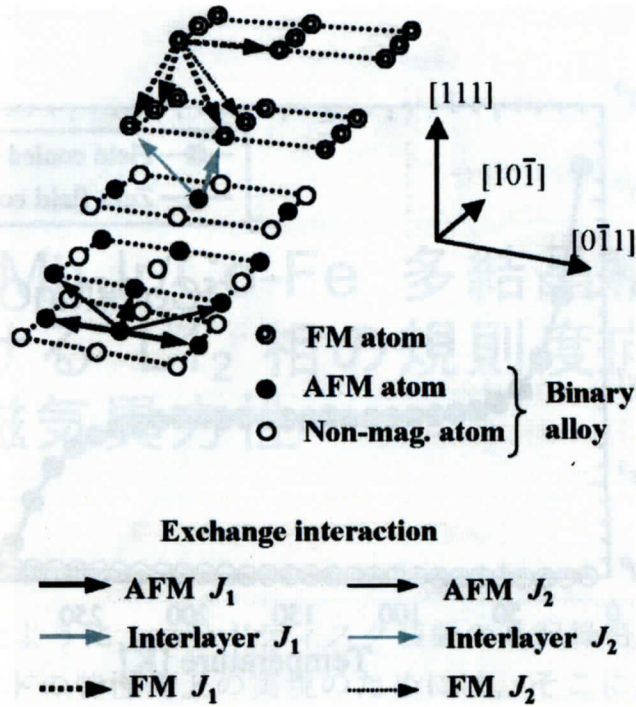


Fig. 1-19 Spin frustration modelにおいて用いる強磁性/反強磁性積層膜界面近傍の原子配列模型.

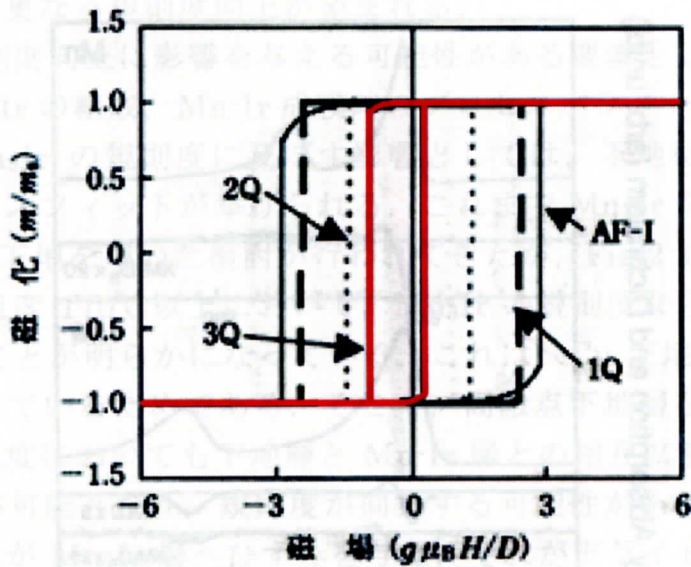


Fig. 1-20 反強磁性スピン構造による反強磁性/強磁性積層膜の磁化曲線の変化. 反強磁性層が 3Q 構造の場合のみ磁化曲線のバイアスによるシフトが見られる.

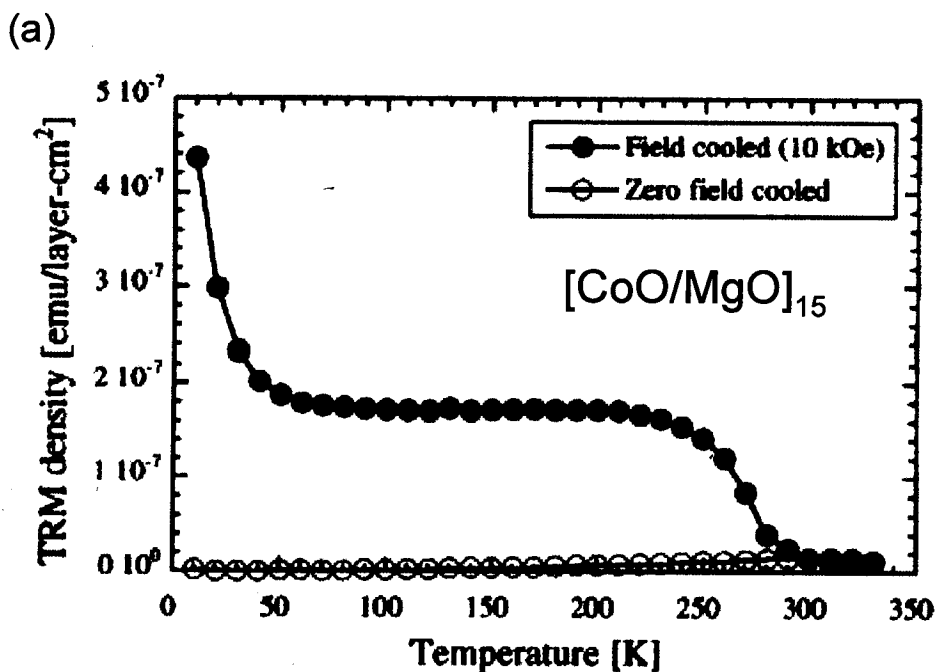


Fig. 1-21 CoO(103 Å)/MgO(30 Å)膜を用い, Field cooled 及び Zero field cooled において観測される熱残留磁化(Termoremanent Moment)

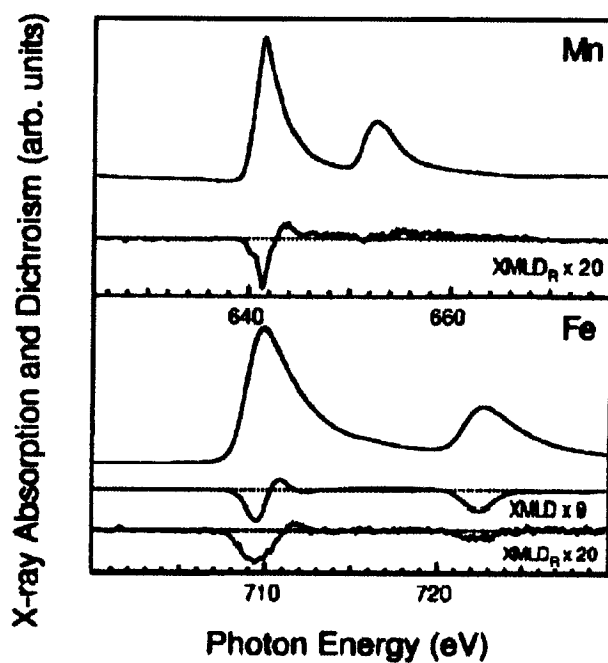


Fig. 1-22 FeMn/Co 膜における, XMLD において観測される Mn と Fe の吸収スペクトル

第2節 Mn₃Ir/Co-Fe 多結晶積層膜における L1₂ 相の規則度向上と交換磁気異方性

第1節で述べたように、ハードディスク装置の高記録密度化および小型化に伴う磁気再生ヘッドの特性向上の実現のためには、そこに用いられる交換磁気異方性の諸特性(d_{AF}^{cr} , J_K , T_B)の向上が必要不可欠である。L1₂相を有する Mn₃Ir は、これらを実現可能であると考えられる。L1₂相規則度向上により、これまで以上の交換磁気異方性の特性向上が期待されるが、Mn₃Ir において実現されている L1₂相の規則度は高々0.45程度と、規則度1は実現されていない。したがって、Mn₃Ir の更なる規則度向上が望まれる。

Mn₃Ir の規則度向上に影響を与える可能性がある要素としては、交換結合膜の下地層、Mn-Ir の組成、Mn-Ir 成膜時のプロセスパラメータが挙げられる。

下地層が Mn₃Ir の規則度に及ぼす影響としては、下地材料の融点ならびに Mn-Ir 層とのミスフィットが挙げられる。これまで Mn₃Ir を用いた交換結合膜については Cu 下地を用いた検討が行われてきたが、Fig.2-1 に示すように Mn-Ir 成膜時基板温度 170°C 以上において、Mn₃Ir の規則度ならびに交換結合膜の J_K が低下することが明らかになっている。これは、Cu 下地層と Mn-Ir 層が相互拡散を起こしているためである。そこで、高融点下地層を用いることによって、高い基板温度においても下地層と Mn-Ir 層との相互拡散を抑え、高エネルギーアシストが可能となり、規則度が向上する可能性がある。ミスフィットについては、これが Mn-Ir 層へひずみを与え、それがドライビングフォースとなり、規則化を促進させる可能性がある。

次に、バルクにおける Mn-Ir の平衡状態図 (Fig.2-2) を見てみると、Mn₃Ir は Ir 組成 15 at.% 付近から 35 at.% 付近の範囲で形成されることが明らかになっている。そこで、薄膜においても Mn₃Ir が形成される組成について検討を行う必要がある。

また、Mn-Ir 成膜時のプロセスパラメータも $L1_2$ 相形成に影響を与えると考えられる。これまで Mn_3Ir は到達真空度が 10^{-11} Torr 台の極高真空対応スパッタ装置においてプロセスガス圧 10mTorr でしか形成されておらず、到達真空度が 10^{-9} Torr 台の超高真空対応スパッタ装置では Mn-Ir 成膜時に熱エネルギーアシストをしても形成されないという問題があった(Fig.2-3)。そこで、 Mn_3Ir 形成のための鍵となるプロセスパラメータを明らかにすることにより、更なる規則度向上につながる可能性がある。また、超高真空対応スパッタ装置によっても Mn_3Ir を形成可能とすることは、工業利用の観点からも価値のあることである。

以上のことを踏まえ、本章では、交換結合膜における Mn_3Ir の規則度向上に関する検討を行う。

2-1 においては、下地材料が Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べた。

Fig.2-4 に示すように、下地材料の融点ならびにミスフィットが異なる、Cu, Ru, Pt, Ni, Au を下地層として用いて検討を行う。ここで、これらの材料は、Au, Cu, Ni, Pt, Ru の順に融点が高くなっており、Mn-Ir 層とのミスフィットは、Ru を中心に Cu, Ni はマイナス側に、Pt, Au はプラス側に大きくなっている。さらに、応用上の観点から Ru および Cu を下地材料として用い、下地層厚依存性についての検討も行う。

2-2 においては、交換結合膜における Mn-Ir 層の Ir 組成を 15 at.%付近から 35 at.%付近まで変化させて、Ir 組成が Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について検討を行った。

2-3 においては、Mn-Ir 成膜時の不純物分圧、ならびにプロセスガス圧を変化させ、これらが Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べ、 Mn_3Ir 形成の鍵となるプロセスパラメータについて検討を行った。

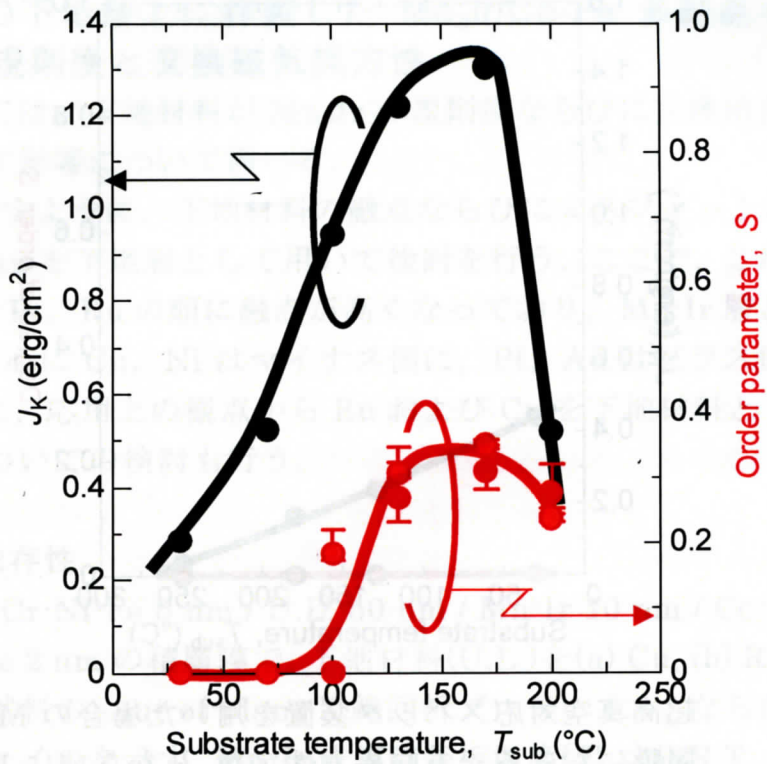


Fig. 2-1 Cr-Ni-Fe 5 nm / Cu 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm /cap.積層膜における一方向異方性定数 JK と L12 相規則度の Mn-Ir 成膜時基板温度 (Tsub)依存性.

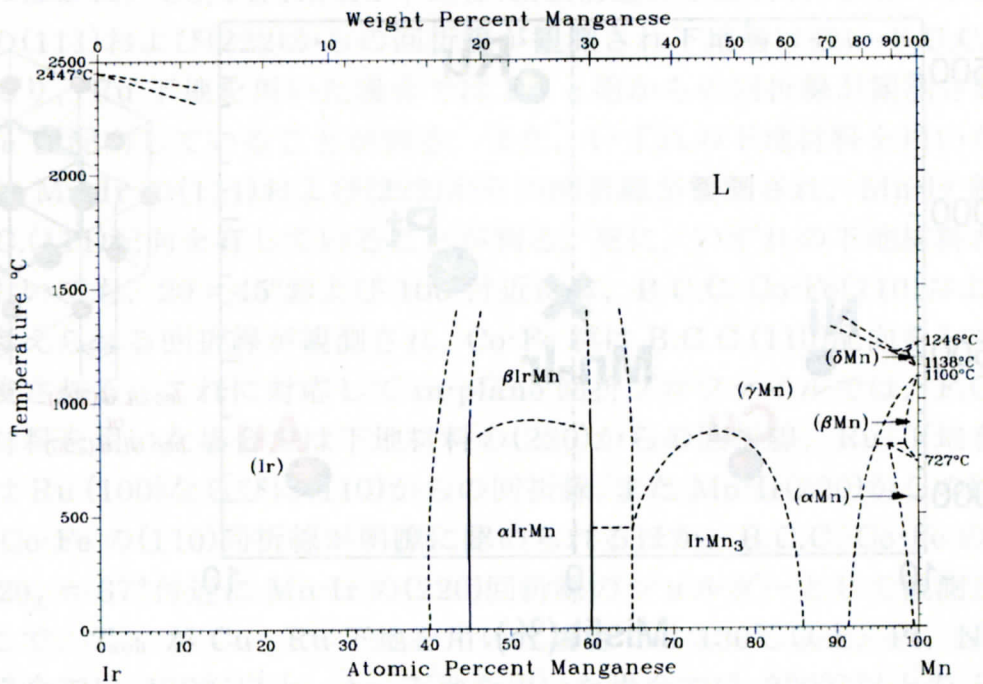


Fig. 2-2 バルクにおける Mn-Ir 合金の平衡状態図.

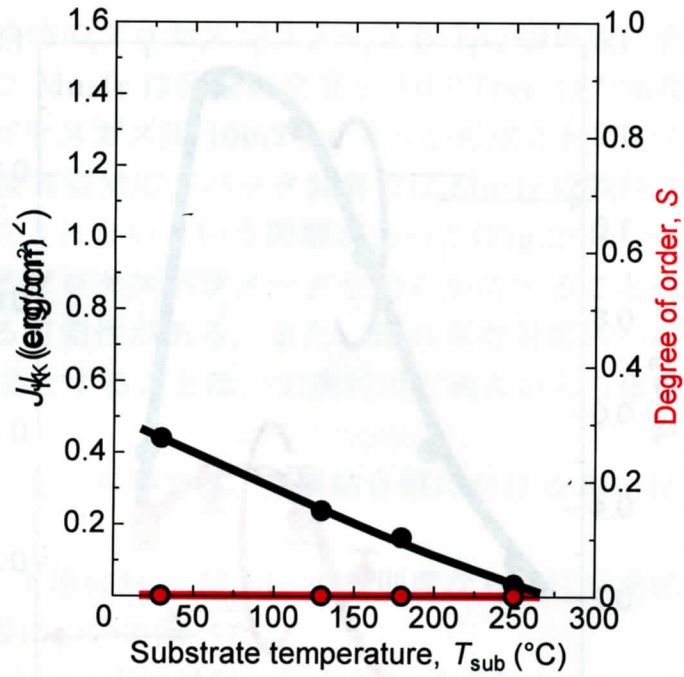


Fig. 2-3 超高真空対応スパッタ装置を用いた場合の Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における一方向異方性定数 J_K ならびに $L1_2$ 相規則度 S の Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}) 依存性.

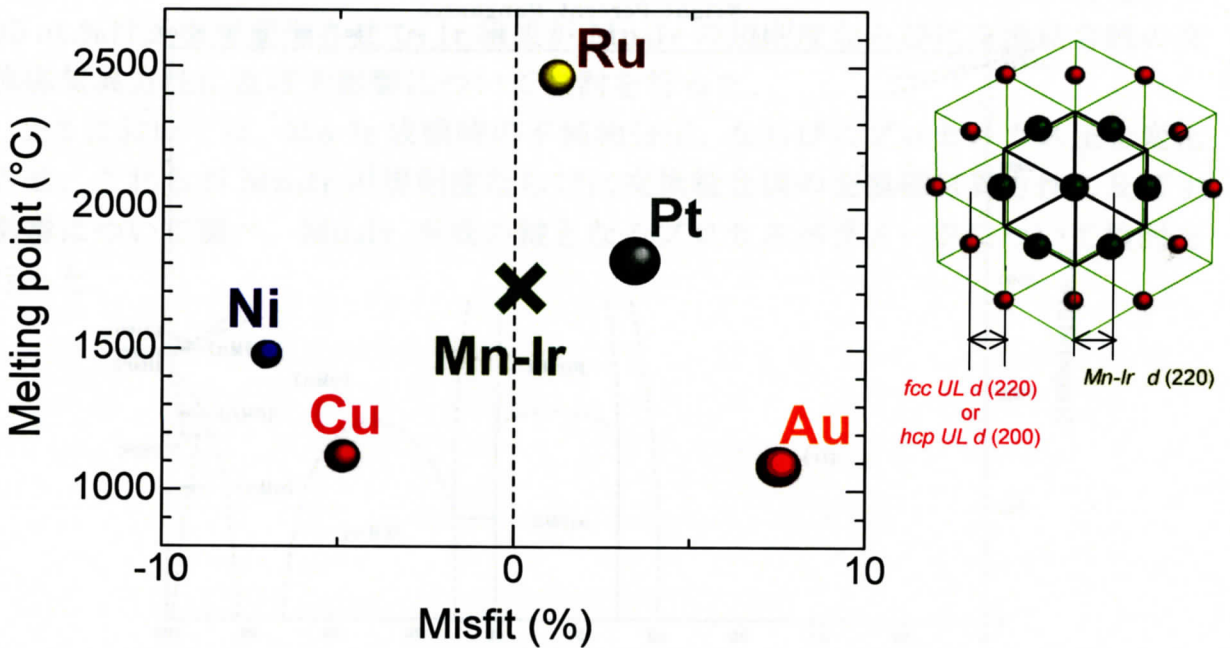


Fig. 2-4 Cu, Ru, Pt, Ni, Au の融点と F.C.C.Mn-Ir に対するミスフィット.

2-1. 種々の下地層上に作製した $Mn_3Ir/Co-Fe$ 多結晶積層膜の $L1_2$ 相の規則度と交換磁気異方性

本項においては、下地材料が Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べる。

Fig.2-4 に示すように、下地材料の融点ならびにミスフィットが異なる、Cu, Ru, Pt, Ni, Au を下地層として用いて検討を行う。ここで、これらの材料は、Au, Cu, Ni, Pt, Ru の順に融点が高くなっており、Mn-Ir 層とのミスフィットは、Ru を中心に Cu, Ni はマイナス側に、Pt, Au はプラス側に大きくなっている。さらに、応用上の観点から Ru および Cu を下地材料として用い、下地層厚依存性についての検討も行う。

(1) 下地材料依存性

Fig.2-5 に、Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で、下地材料(U.L.)を(a) Cu, (b) Ru, (c) Pt, (d) Ni, (d) Au とした試料の、out-of-plane X線回折プロファイル、ならびに in-plane X線回折プロファイルを示す。Mn-Ir 成膜時基板温度(T_{sub})を R.T., 70°C, 100°C, 130°C, 170°C, 200°C, 250°Cとした場合を合わせて示す。両プロファイルの上部には Mn_3Ir の粉末 XRD パターンの計算結果を示している。いずれの T_{sub} においても Out-of-plane 回折プロファイルでは、* 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに、Cu, Pt, Ni, Au 下地(F.C.C.構造の下地材料)を用いた場合には下地層の(111)および(222)からの回折線が観測され下地層は強い F.C.C.(111)配向しており、Ru 下地を用いた場合には Ru c 面からの回折線が観測され Ru 膜は強い c 面配向していることが判る。また、いずれの下地材料を用いた場合においても Mn-Ir の(111)および(222)からの回折線が観測され、Mn-Ir 膜が、強い F.C.C.(111)配向を有していることが判る。更に、いずれの下地材料を用いた場合においても、 $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には、B.C.C. Co-Fe(110)および(220)からと考えられる回折線が観測され、Co-Fe 膜は B.C.C.(110)配向をしていることが示唆される。これに対応して in-plane 回折プロファイルでは、F.C.C.構造の下地材料を用いた場合には下地材料の(220)からの回折線、Ru 下地を用いた場合には Ru (100)ならびに(110)からの回折線、また Mn-Ir(220)からの回折線、B.C.C. Co-Fe の(110)回折線が明瞭に認められるほか、B.C.C. Co-Fe の(200)回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Ir の(220)回折線のショルダーとして観測されている。ここで、 T_{sub} が Cu, Ru 下地を用いた場合には $130^\circ C$ 以上、Pt, Ni 下地を用いた場合には $170^\circ C$ 以上、Au 下地を用いた場合には $200^\circ C$ 以上の in-plane 回折プロファイルにおいて、 Mn_3Ir からの超格子(110)および(211)回折線がそれぞれ $2\theta_x = 33^\circ$ および 66° 付近に認められており、いずれの下地材料を用いた場

合においても, Mn_3Ir 相は形成可能であることがわかる.

Fig.2-6 には Fig.2-5 の各下地材料の in-plane 回折プロファイルで観測された Mn_3Ir (110) ならびに (220) 回折線の積分強度, $I_{(110)}$, $I_{(220)}$ を用いて, L1_2 相の規則度 S を求めた結果を T_{sub} に対してプロットした. いずれの下地材料を用いた場合においても, $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ で 0 である規則度 S は, T_{sub} の上昇に伴って徐々に増大し, いずれの下地材料を用いた場合においても最大 0.5 程度を示した. しかしながら, $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ に着目すると Cu, Ru 下地を用いた場合では規則度は 0.4 程度であるのに対し, Ni 下地を用いた場合は 0.2 程度, Pt, Au 下地を用いた場合では規則度が 0 であり, Cu, Ru 下地を用いた場合は Ni, Pt, Au 下地を用いた場合に比べ L1_2 相を形成しやすいと考えられる. ここで, Pt 下地, ならびに Au 下地を用いた場合に着目すると, Pt 下地では $T_{\text{sub}} = 250^\circ\text{C}$ で $S = 0.74$, Au 下地では $T_{\text{sub}} = 200^\circ\text{C}$ で $S = 0.68$ と高 T_{sub} において大きな規則度が算出された. しかしながら, この場合の X 線回折プロファイルを見てみると, Mn-Ir からの回折線は高角側へ, Pt, Au からの回折線は低角側へシフトしていることより, 過度の基板過熱により, 成膜中に下地層と Mn-Ir 層との相互拡散が生じたと推察される. よって, この場合の S は正しい Mn_3Ir 相の規則度を示していない. Fig.2-7 には Fig.2-5 に示す各下地材料を用いた場合の in-plane 回折プロファイルにおける Mn-Ir(220)および F.C.C.下地材料(220), Ru(110)面からの回折線ピークの FWHM から求めた面内結晶粒径(D_{220})ならびにピーク角度から求めた面間隔(d_{220})を T_{sub} に対してプロットした. ここで, D_{220} は Scherr の式

$$D = \frac{0.9\lambda}{FWHM \cdot \cos\theta} \quad \text{Eq.2-1}$$

を用いて算出した. ここで, D_{220} は高 T_{sub} で低下し, また d_{220} は高 T_{sub} で下地材料の d_{220} に近づいており, ここから, 高 T_{sub} (Cu, Pt: $T_{\text{sub}} \geq 170^\circ\text{C}$, Ni: $T_{\text{sub}} \geq 250^\circ\text{C}$, Au: $T_{\text{sub}} \geq 130^\circ\text{C}$)における下地層と Mn-Ir 層の相互拡散が推察できる.

Fig.2-8 には Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で, 下地材料(U.L.)を (a) Cu, (b) Ru, (c) Pt, (d) Ni, (d) Au とした試料の J_K の熱処理温度 (T_a) 依存性を示す. 図中には, T_{sub} が異なる場合の結果を合わせて示してある. いずれの T_{sub} においても, as-deposited においては一方向異方性が十分に誘導されず, $J_K < 0.1 \text{ erg/cm}^2$ であるのに対し, J_K の T_a による変化が T_{sub} によって大きく異なっている様子がいずれの下地材料においても見られた. Cu 下地について見てみると, $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ の場合, $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 300°C にかけて J_K はわずかに増大し, 300°C において最大 0.35 erg/cm^2 を示した後, T_a の増加に伴い J_K が減少していることがわかる. これは,

300°C 以上の熱処理においては、積層膜構成原子の拡散が生じ、磁気特性を劣化させたと考えられる。一方、 $T_{\text{sub}} = 170^\circ\text{C}$ の場合には、 $T_{\text{a}} = 250^\circ\text{C}$ から 320°C にかけて J_{K} が急激に増大しており、 320°C において最大 1.30 erg/cm^2 を示した。 $T_{\text{a}} = 320^\circ\text{C}$ から 360°C までの範囲において J_{K} はほぼ一定値を示した後、 380°C 以上において減少した。このことから、 $T_{\text{sub}} = 170^\circ\text{C}$ において作製した Mn-Ir 膜は、 $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ に比較して J_{K} が 3 倍以上に増大し、また J_{K} の高い耐熱性を有することが判った。Table 2-1 に各下地材料における、 J_{K} の最大値ならびに最大値を示す T_{sub} 、最適 T_{sub} における J_{K} の値が減少し始める T_{a} をまとめる。これを見ると、いずれの下地材料を用いた場合も、Cu 下地同様の T_{sub} による J_{K} の増大と、 J_{K} の耐熱性の向上がいずれの下地材料を用いた場合においても見られた。

Fig.2-9 には、Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で、下地材料(U.L.)を(a) Cu, (b) Ru, (c) Pt, (d) Ni, (d) Au とした試料において Fig.2-8 から決定した J_{K} の最大値を T_{sub} に対してプロットした。Ru 下地以外の下地材料を用いた場合に注目すると、高 T_{sub} では J_{K} が落ちる傾向があるが、これは前述したとおり、高 T_{sub} による下地層と Mn-Ir 層の相互拡散の影響によるものである。次に、下地層と Mn-Ir 層が相互拡散していない $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ に着目する。Cu, Ru 下地では J_{K} は 1.2 erg/cm^2 程度とほぼ等しいのに対し、Pt 下地($J_{\text{K}} = 0.8 \text{ erg/cm}^2$), Ni 下地, Au 下地($J_{\text{K}} = 0.6 \text{ erg/cm}^2$) は J_{K} が低いことがわかる。これは、ミスフィットの効果により規則度に違いが生じたためであると考えられる。

(2) 下地層厚依存性

Fig.2-10 に、Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で、下地材料(U.L.)を Cu もしくは Ru とし、下地層厚を変化させた場合のそれぞれの out-of-plane X 線回折プロファイル、ならびに in-plane X 線回折プロファイルを示す。両プロファイルの上部には Mn_3Ir の粉末 XRD パターンの計算結果を示している。Out-of-plane 回折プロファイルでは、* 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに、Cu 下地を用いた場合では Cu の (111) および (222) からの回折線が観測され Cu 膜は強い F.C.C.(111) 配向しており、Ru 下地を用いた下地厚 1 nm 以上の場合では Ru の c 面からの回折線が観測され Ru 膜は強い c 面配向していることが判る。更に、下地層厚が薄くなるに従い下地層からの回折線の強度が弱くなっていることがわかる。また、Ru 下地厚 1 nm 以上の場合において Mn-Ir の (111) および (222) からの回折線が観測され、積層膜試料が、強い F.C.C.(111) 配向を有していることが判る。一方、Ru 下地厚 0.5 nm の場合においては、Ru の c 面および

Mn-Ir(111), (222)からの回折線が観測されず、下地厚が薄すぎるために、Ruがc面配向せず、Mn-Irも(111)配向しなかったと考えられる。更に、いずれの下地厚の場合においても、 $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には、B.C.C. Co-Fe(110)および(220)からと考えられる回折線が観測され、Co-Fe膜はB.C.C.(110)配向をしていることが示唆される。これに対応してin-plane回折プロファイルでは、Cu下地を用いた場合ではCuの(220)からの回折線、Ru下地を用いた下地厚0.5 nm以外の場合ではRuの(100)ならびに(110)からの回折線、またMn-Ir(220)からの回折線、B.C.C. Co-Feの(110)回折線が明瞭に認められるほか、B.C.C. Co-Feの(200)回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近にMn-Irの(220)回折線のショルダーとして観測されている。in-plane回折プロファイルにおいて、 Mn_3Ir からの超格子(110)および(211)回折線がそれぞれ $2\theta_x = 33^\circ$ および 66° 付近に認められており、Ru下地厚0.5 nm以上ではいずれの下地厚においても、 Mn_3Ir 相は形成可能であることがわかる。

Fig.2-11にCr-Ni-Feを用いた場合の、各下地層厚における交換結合膜のin-plane回折プロファイルで観測された Mn_3Ir (110)ならびに(220)回折線の積分強度、 $I_{(110)}$ 、 $I_{(220)}$ を用いて、 L_{12} 相の規則度 S を求めた結果を示す。下地層厚が0.5 nm以下と極めて薄くなると規則度は0となるが、それ以上の下地層厚においては、いずれ場合も0.4程度を示した。

Fig.2-12には、各下地層厚の交換結合膜を 320°C 5時間の磁界中熱処理を施したときの J_K の値を下地層厚に対してプロットした。下地層厚が厚いほど J_K は高く、 $d_{UL} = 20$ nmまでは J_K は 1.3 erg/cm^2 とほぼ一定の値を保つが、それより薄くなると J_K は低下し始める。しかしながらCu下地においては、下地厚5 nmにおいても J_K はほぼ 1 erg/cm^2 と大きな値を示した。これは工業利用上も非常に有効なことである。しかしながら、下地層厚減少による J_K の低下の原因は明らかになっていない。CuやRu下地層厚の低下により、Cr-Ni-Fe層のCr原子がMn-Ir層へ拡散し、磁気特性を低下させている可能性も考えられる。しかしながら、Fig.2-12中に示すように、Cr-Ni-Fe層の代わりにTa層を用いた場合も下地層厚減少による J_K の低下が見られる。したがって、今後、下地層厚減少による J_K の低下の原因を明らかとし、薄い下地層厚における大きな J_K を実現することが課題である。

(3) 下地層が L_{12} 相の規則度と交換磁気異方性に及ぼす影響

(1)(2)では下地材料および下地層厚が L_{12} 層の規則度と交換磁気異方性に及ぼす影響について検討を行った。(2)において下地層厚を変化させたところ、下地厚1 nm以上で L_{12} 相は安定に形成され、下地厚5 nm以上では 1 erg/cm^2 以上の巨大交換磁気異方性が安定に誘導されることが明らかとなった。一方、(1)において下地材料を変化させたところ、下地材料の融点ならびにMn-Ir層とのミスフ

ィットが $L1_2$ 相の規則度ならびに交換磁気異方性に影響を及ぼすことが明らかとなった. Fig.2-13 にこれらの結果をまとめた図を示す. 赤線は下地層と Mn-Ir 層との相互拡散が起こり始める T_{sub} を示しており, これを見ると, 高融点下地材料を用いるほど熱耐性が向上することがわかる. 黒い数字はそれぞれの下地材料を用いた場合に得られる J_K の最大値を示しており, Mn-Ir 層とのミスフィットの違いに対する J_K の大小関係を青のグラデーションで示す. これを見ると, Mn-Ir 層とのミスフィットがわずかにマイナス側の下地材料を用いることにより最大の J_K が得られると考えられる. したがって, 高融点を有し, Mn-Ir 層とのミスフィットがわずかにマイナスの材料が, 下地材料として最適であると考えられる. そこで, 最適下地材料について考えてみると, Cu, Ru, Pt, Ni, Au の中では Ru が最も良いと考えられ, 最適下地材料を探索する上では Ru に添加元素を加えることにより Mn-Ir 層とのミスフィットをわずかにマイナス側とした合金が期待できる. Table 2-2 には Ru への添加元素として考えられる元素を示す. これを見ると Mn-Ir 層とのミスフィットをわずかにマイナス側とする添加元素としては, Co, Ni, Cr, Fe が考えられる. したがって, Ru に Co, Ni, Cr, Fe を添加した合金が最適下地材料として期待できる.

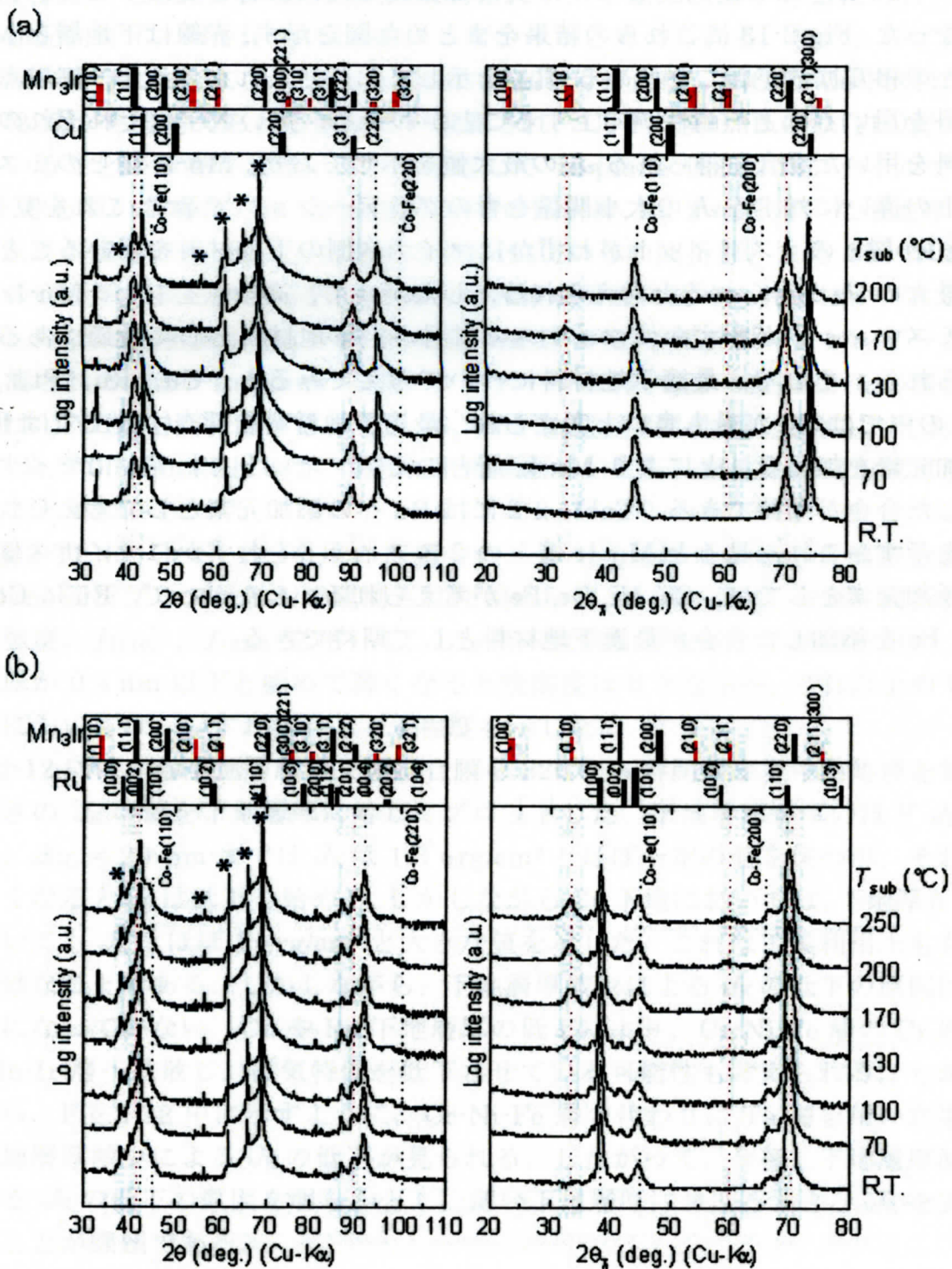


Fig. 2-5

sub./ Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm /
 U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Ir 成膜時基板温度
 (T_{sub})を変化させた場合の In-plane X 線回折プロファイルおよ
 び out-of-plane X 線回折プロファイル
 (a) U.L.: Cu (b) U.L.: Ru

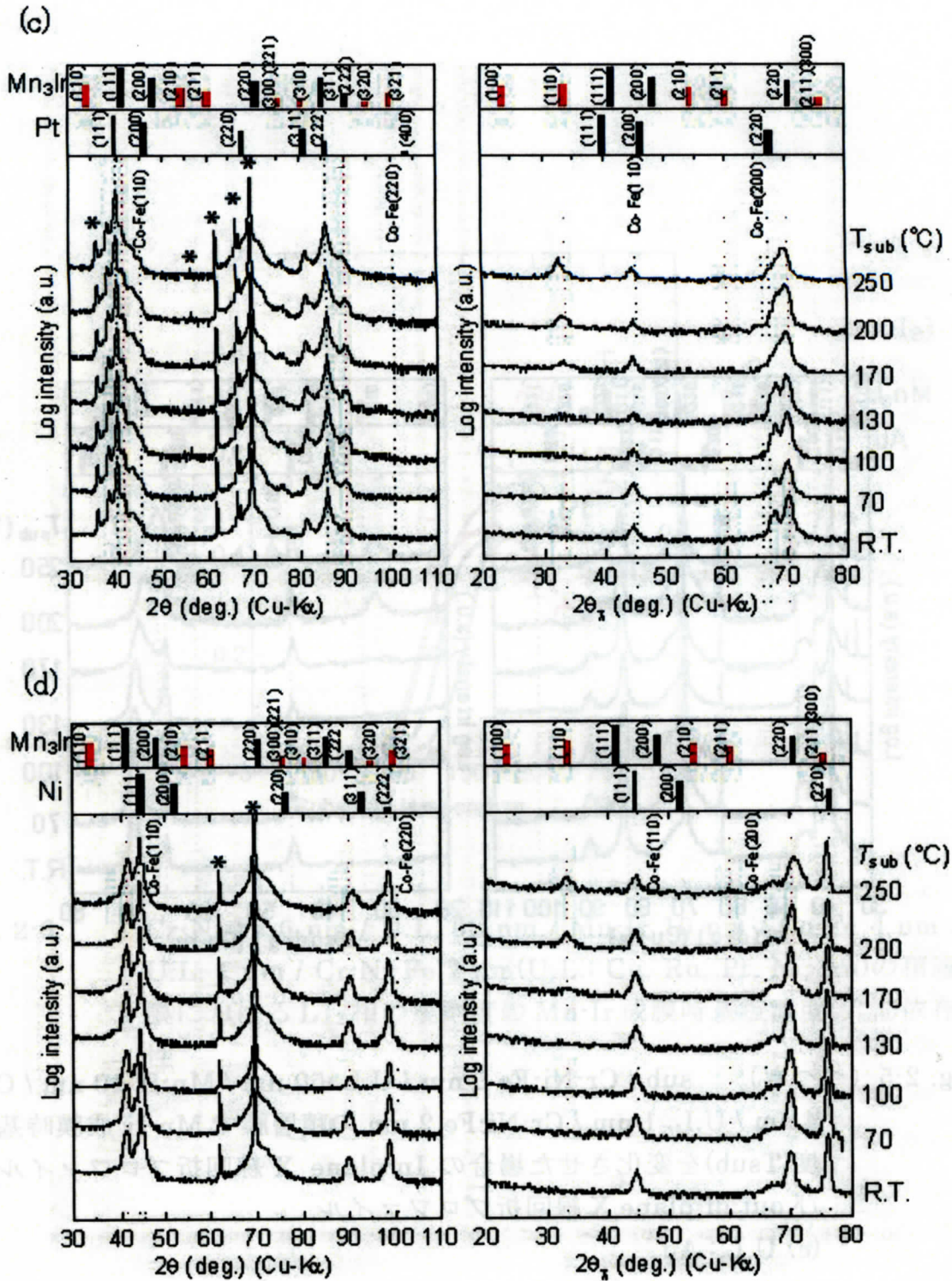


Fig. 2-5 (つづき) sub./ Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}) を変化させた場合の In-plane X 線回折プロファイルおよび out-of-plane X 線回折プロファイル
 (c) U.L.: Pt (d) U.L.: Ni

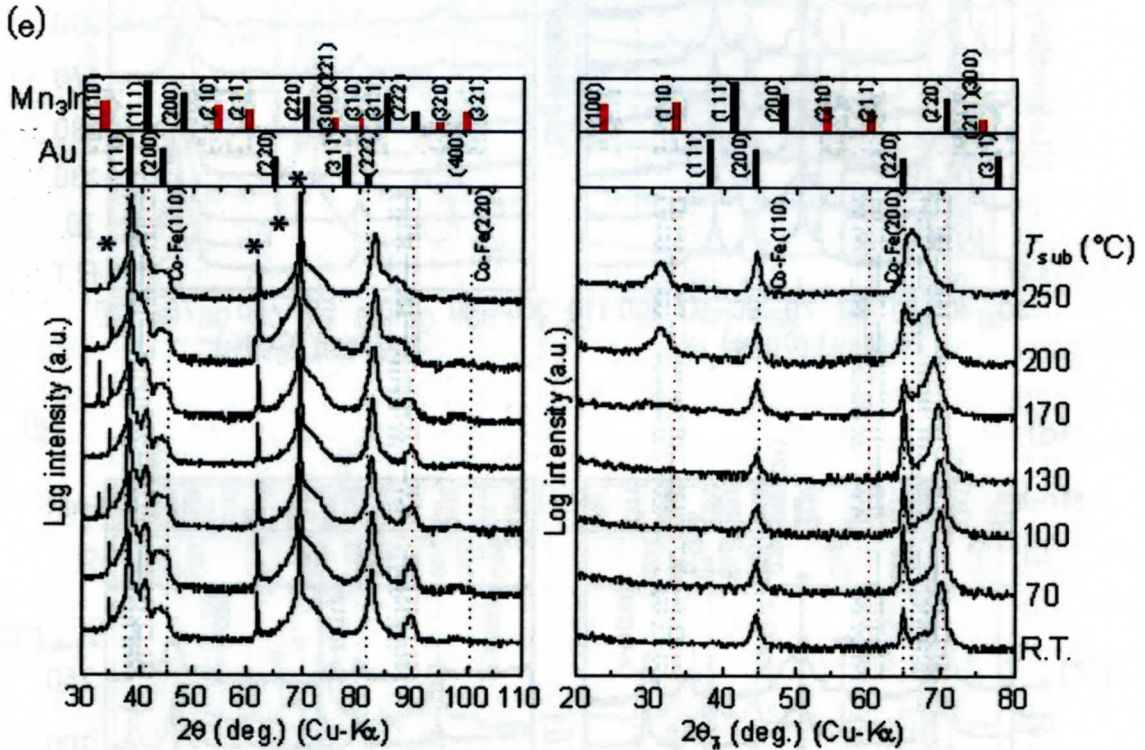


Fig. 2-5 (つづき) sub./ Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Ir 成膜時基板温度(T_{sub})を変化させた場合の In-plane X 線回折プロファイルおよび out-of-plane X 線回折プロファイル
(e) U.L.: Au

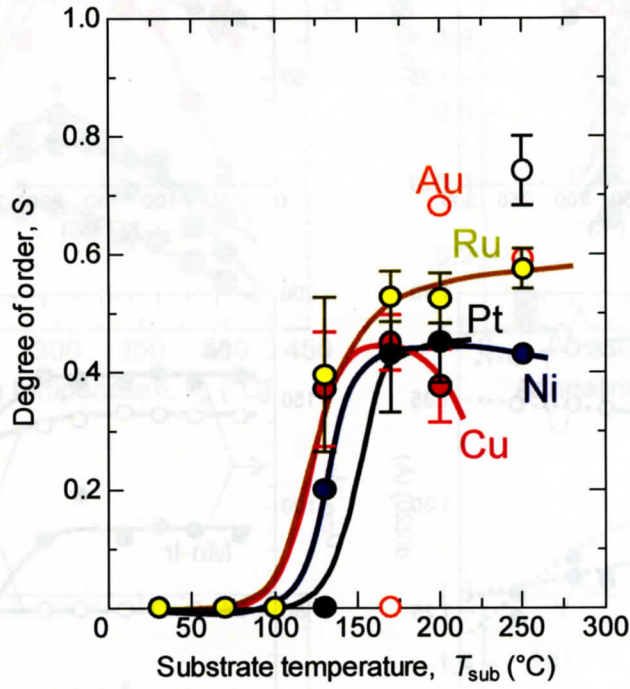


Fig. 2-6 Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm(U.L.: Cu, Ru, Pt, Ni, Au)の積層膜における L_{12} 相の規則度の Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}) 依存性

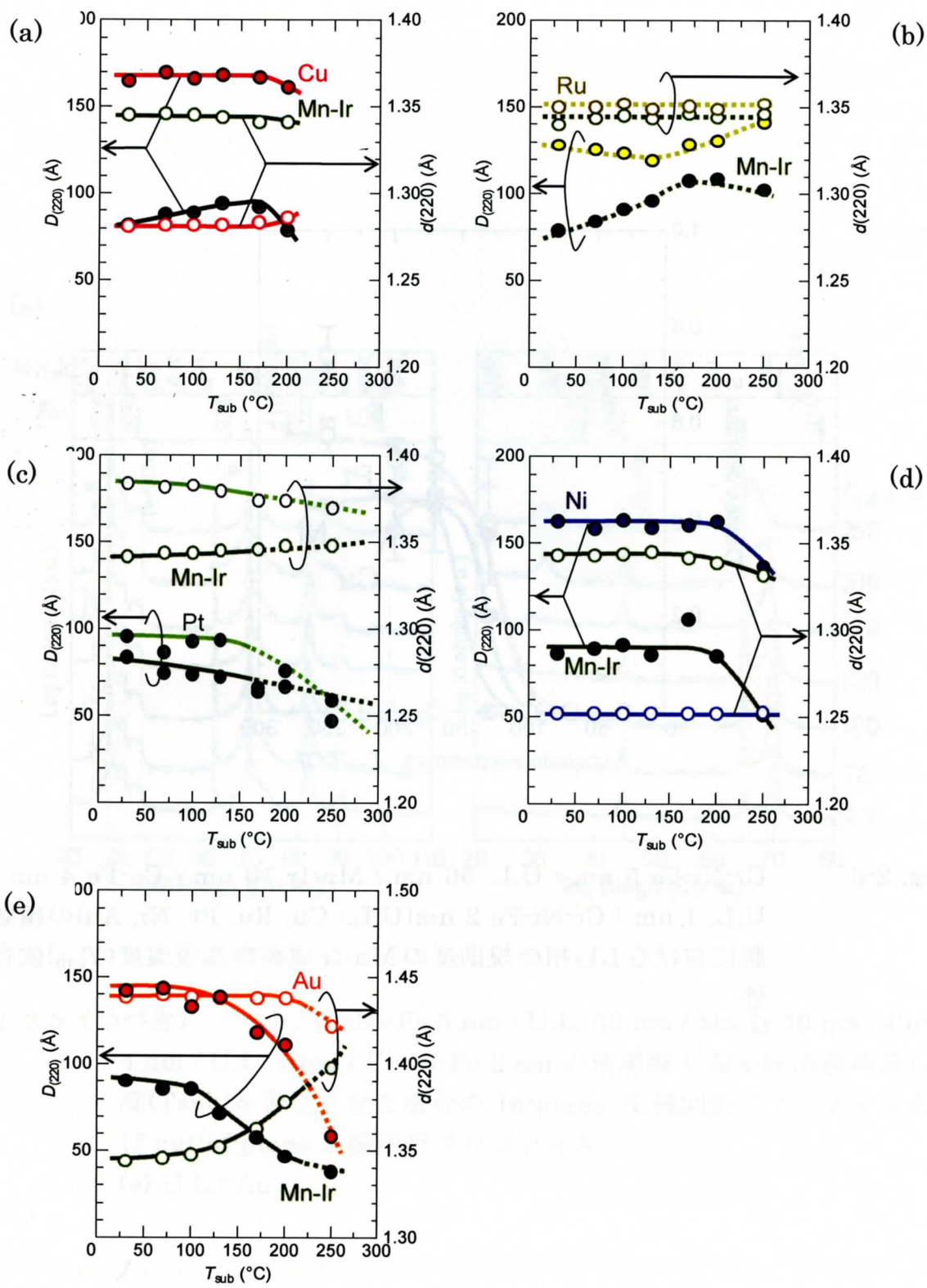


Fig. 2-7

Fig.2-5 の F.C.C.(220)からの回折線から求めた U.L.((a) Cu, (b) Ru, (c) Pt, (d) Ni, (e) Au)および Mn-Ir の粒径 D_{220} ならびに(220)

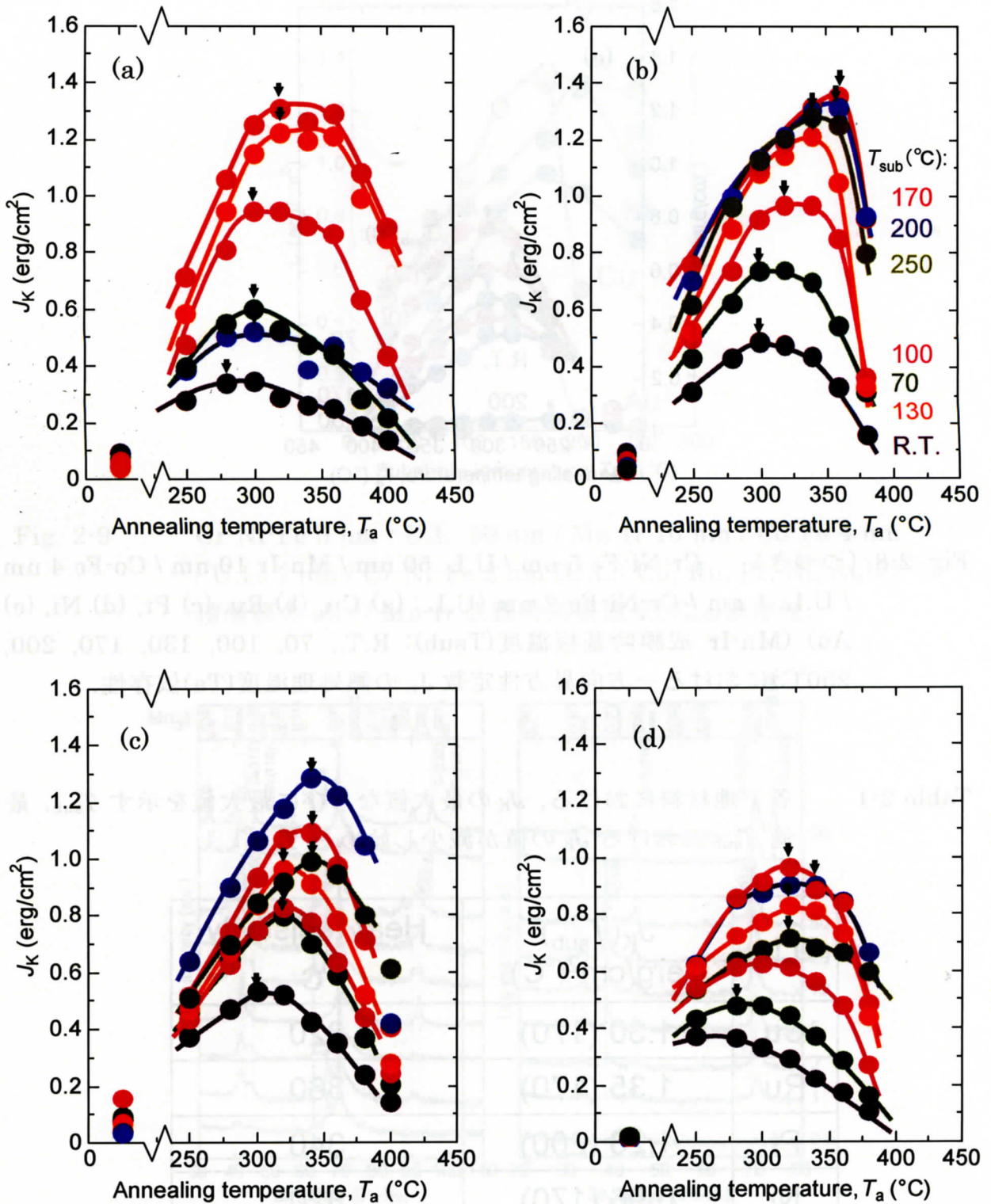


Fig. 2-8

Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (U.L.: (a) Cu, (b) Ru, (c) Pt, (d) Ni, (e) Au) (Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}): R.T., 70, 100, 130, 170, 200, 250°C)における一方向異方性定数 J_K の熱処理温度 (T_a) 依存性.

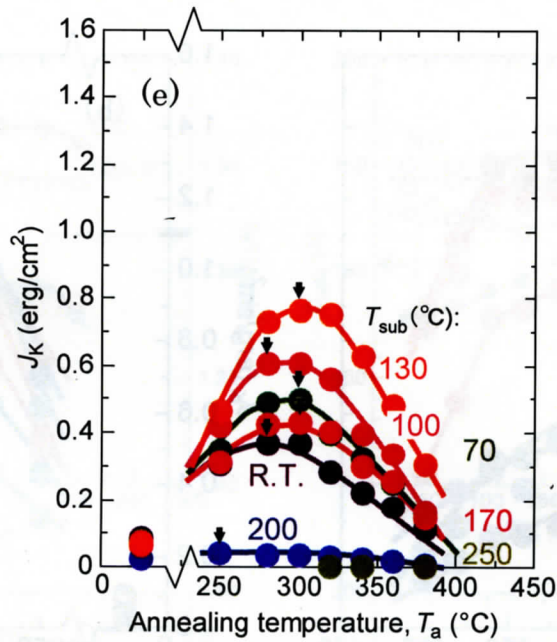


Fig. 2-8 (つづき) Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (U.L.: (a) Cu, (b) Ru, (c) Pt, (d) Ni, (e) Au) (Mn-Ir 成膜時基板温度(T_{sub}): R.T., 70, 100, 130, 170, 200, 250°C)における一方向異方性定数 J_K の熱処理温度(T_a)依存性.

Table 2-1 各下地材料における, J_K の最大値ならびに最大値を示す T_{sub} , 最適 T_{sub} における J_K の値が減少し始める T_a

U.L.	$J_K(T_{\text{sub}})$ erg/cm ² (°C)	Heat resistivity °C
Cu	1.30 (170)	320
Ru	1.35 (170)	360
Pt	1.28 (200)	340
Ni	0.96 (170)	320
Au	0.76 (130)	340

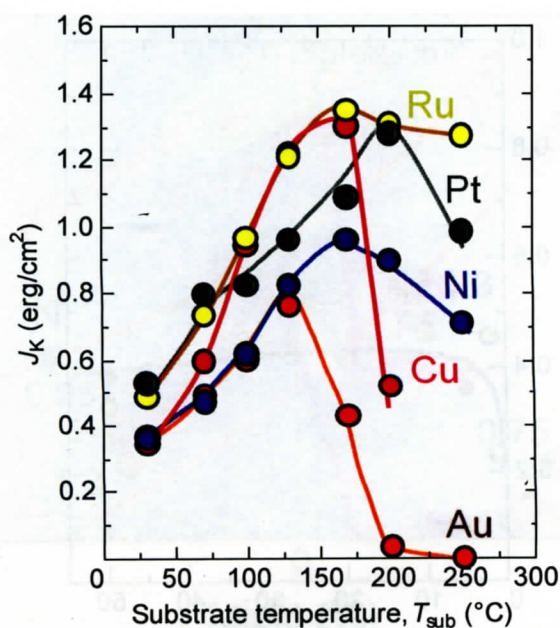


Fig. 2-9 Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (U.L.: Cu, Ru, Pt, Ni, Au)の積層膜の J_K の Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}) 依存性.

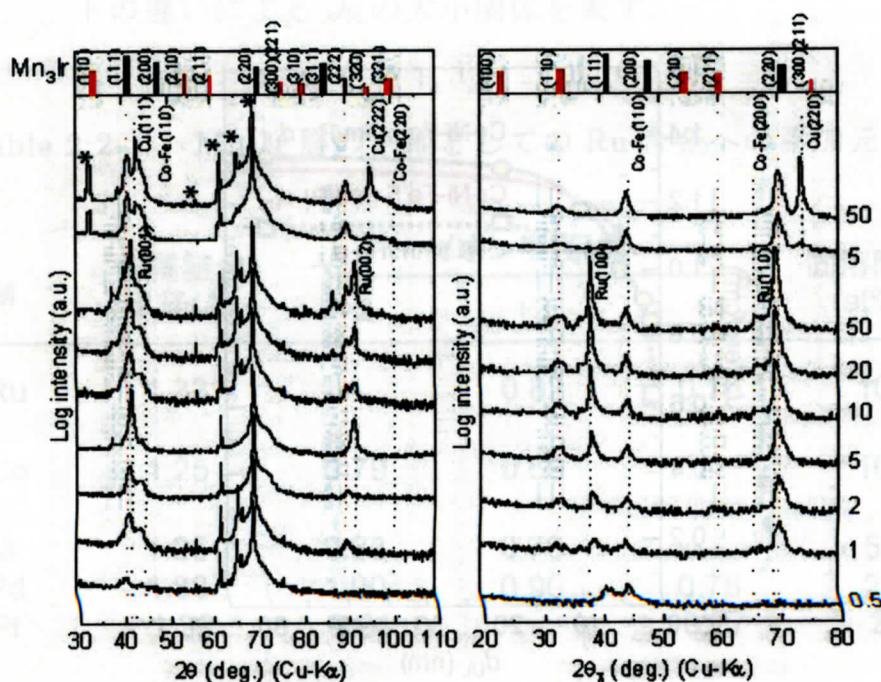


Fig. 2-10 Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. d_{UL} / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (U.L.: Cu, Ru) ($T_{sub} = 250^\circ\text{C}$)の積層膜において各下地層厚 (d_{UL}) における in-plane 回折プロファイルならびに out-of-plane 回折プロファイル.

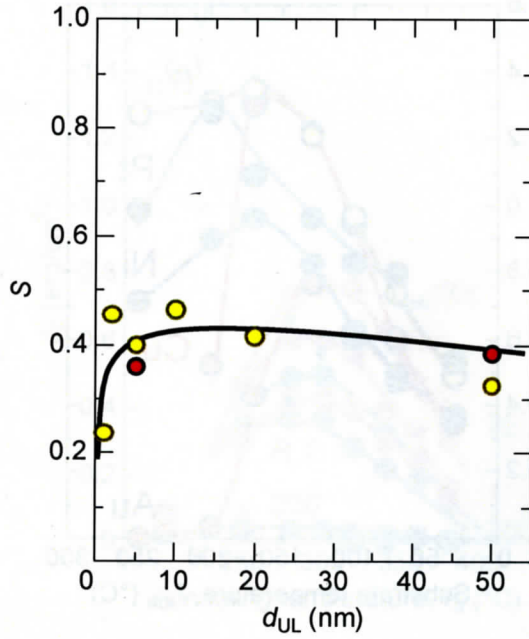


Fig. 2-11 Cr-Ni-Fe 5 nm / U.L. d_{UL} / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / U.L. 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (U.L.: Cu, Ru) ($T_{sub} = 250^\circ\text{C}$)の積層膜における $L1_2$ 相規則度 S の下地層厚(d_{UL})依存性. 赤は Cu 下地, 黄は Ru 下地を用いた場合である.

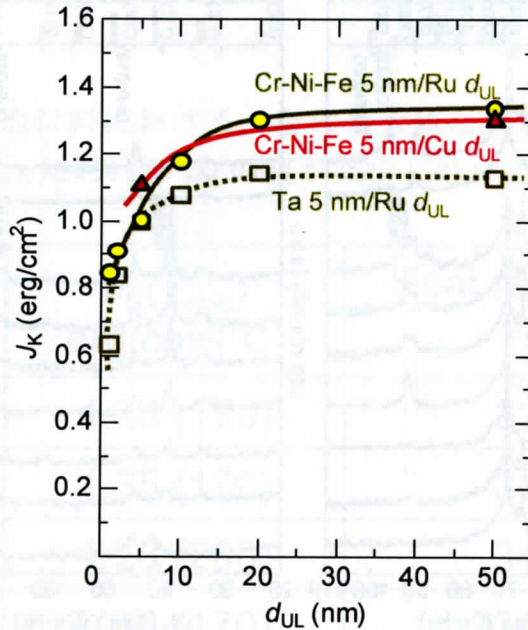


Fig. 2-12 U.L. / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / cao. (U.L.: Cr-Ni-Fe / Cu, Ru, Ta / Ru) ($T_{sub} = 250^\circ\text{C}$)の積層膜における一方向異方性定数 J_K の下地層厚(d_{UL})依存性. 赤は Cu 下地, 黄は Ru 下地を用いた

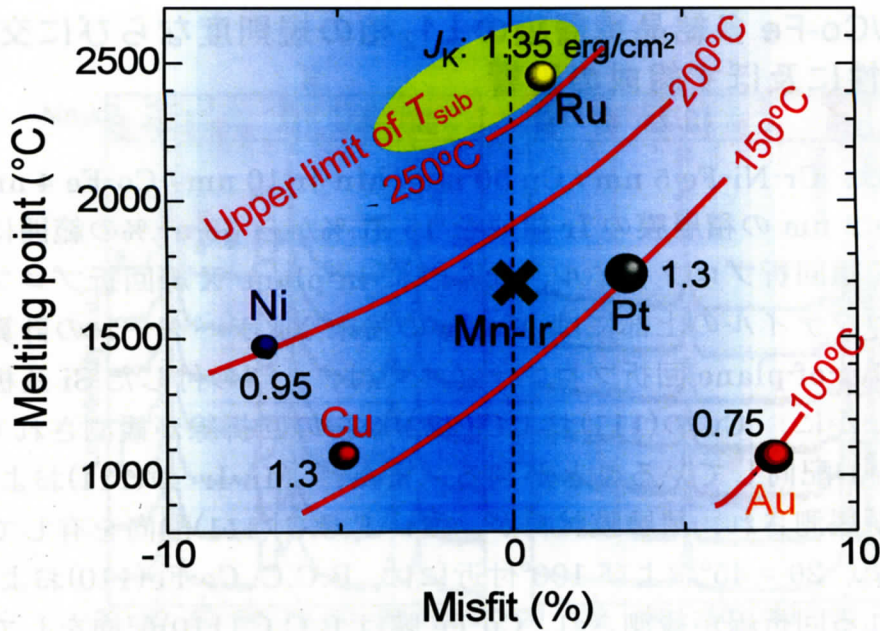


Fig. 2-13 下地材料の融点，ミスフィットと交換磁気異方性ならびに熱耐性の関係．赤線は下地層と Mn-Ir 層の相互拡散が始まる Mn-Ir 成膜時基板温度(T_{sub})を示す．黒数字は各下地材料における J_K の最大値を示す．青のグラデーションはミスフィットの違いによる J_K の大小関係を表す．

Table 2-2 Mn-Ir 層の下地としての Ru 合金への添加元素

M	金属結合 半径(Å)	イオン半径(Å)			固溶限界 (at%)
		+2	+3	+4	
Ru	1.33	—	0.82	0.76	100
Co	1.25	0.79	0.69	—	100
Ni	1.25	0.83	0.70	—	50
Pd	1.38	1.00	0.90	0.76	20
Pt	1.39	0.94	—	0.77	20
Cr	1.25	0.87	0.76	0.69	48
Fe	1.24	0.75	0.69	—	70
Mo	1.36	—	0.83	0.79	50
V	1.31	0.93	0.78	0.72	30
W	1.37	—	—	0.80	48

2-2. Mn₃Ir/Co-Fe 多結晶積層膜の L₁₂ 相の規則度ならびに交換磁気異方性に及ぼす組成の影響

Fig.2-14 には、Cr-Ni-Fe 5 nm / Cu 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Cu 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Ir 組成を 15 at.% から 33 at.% の範囲における out-of-plane X 線回折プロファイル，ならびに in-plane X 線回折プロファイルを示す。両プロファイルの上部には Mn₃Ir の粉末 XRD パターンの計算結果を示している。Out-of-plane 回折プロファイルでは、* 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに、Cu の(111)および(222)からの回折線が観測され Cu 膜は強い F.C.C.(111)配向していることが判る。また、Mn-Ir の(111)および(222)からの回折線が観測され、積層膜試料が、強い F.C.C.(111)配向を有していることが判る。更に、 $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には、B.C.C. Co-Fe(110)および(220)からと考えられる回折線が観測され、Co-Fe 膜は B.C.C.(110)配向をしていることが示唆される。これに対応して in-plane 回折プロファイルでは、Cu の(220)からの回折線、また Mn-Ir(220)からの回折線、B.C.C. Co-Fe の(110)回折線が明瞭に認められるほか、B.C.C. Co-Fe の(200)回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Ir の(220)回折線のショルダーとして観測されている。Ir 組成 22 at.% から 31 at.% の範囲では in-plane 回折プロファイルにおいて、Mn₃Ir からの超格子(110)および(211)回折線がそれぞれ $2\theta_x = 33^\circ$ および 66° 付近に認められており、22 at.% から 31 at.% の Ir 組成範囲において Mn₃Ir 相は形成可能であることがわかる。

Fig.2-15 には Fig.2-14 から算出した L₁₂ 相の規則度の Ir 組成依存性を示す。これをみると、Ir 組成 22 at.% から 31 at.% の範囲において L₁₂ 相の規則度は 0.45 程度で一定であった。したがって、Mn₃Ir は Ir 組成 22 at.% から 31 at.% の範囲において形成可能であり、10 at.% の広い組成範囲で安定に L₁₂ 相を形成可能であることが判る。L₁₂ 相を形成可能な組成範囲が広いということは応用上も有効なことである。さらに、Fig.2-2 に示すバルクにおける Mn-Ir の平衡状態図と比較すると、薄膜において L₁₂ 相を形成可能な Ir 組成範囲はバルクとほぼ一致することが判る。

Fig.2-16 には、Cr-Ni-Fe 5 nm / Cu 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Cu 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Ir 組成を 15 at.% から 33 at.% の範囲において、熱処理を施し得られた J_K の値をプロットした。これを見ると、Ir 組成 22 at.% から 31 at.% の範囲において J_K は 1.2 erg/cm^2 程度で一定であった。この組成範囲は L₁₂ 相を安定に形成する組成範囲と一致しており、L₁₂ 相が安定に形成されれば、巨大交換磁気異方性も安定に発現することを示唆している。

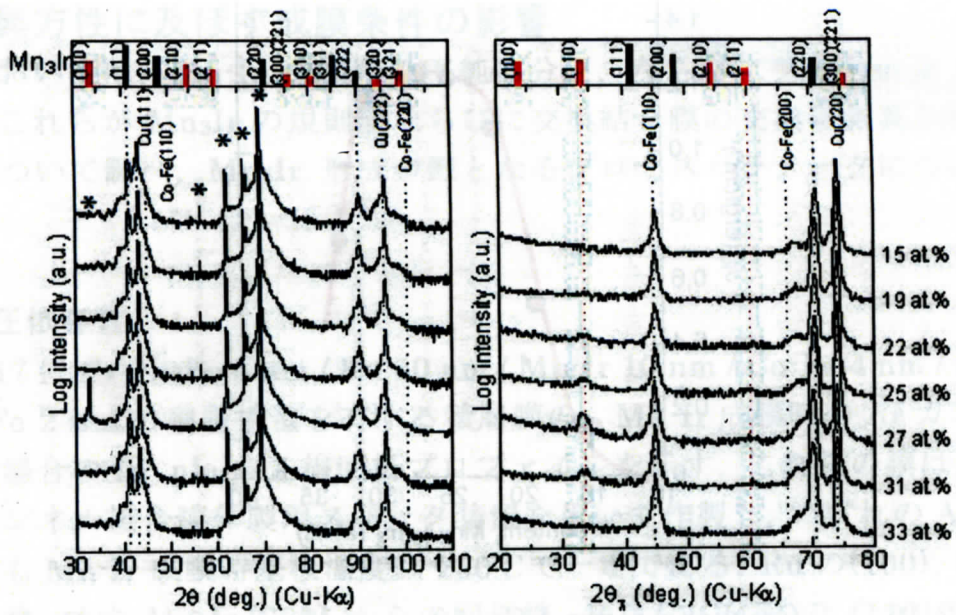


Fig. 2-14 Cr-Ni-Fe 5 nm / Cu 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Cu 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Ir 組成を 15 at.% から 33 at.% の範囲における out-of-plane X 線回折プロファイル, in-plane X 線回折プロファイル.

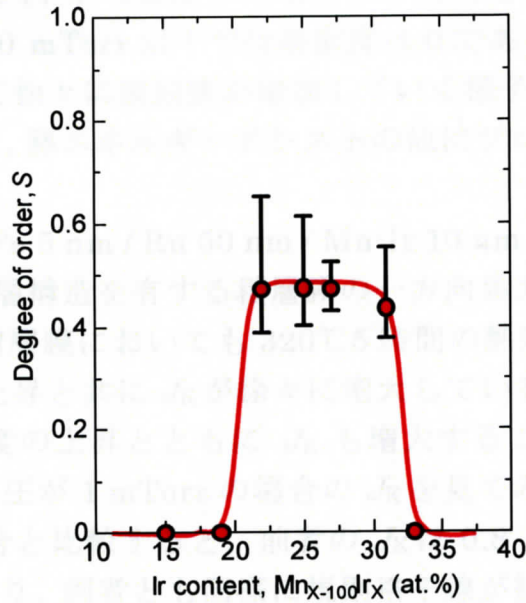


Fig. 2-15 Cr-Ni-Fe 5 nm / Cu 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Cu 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Ir 組成を 15 at.% から 33 at.% の範囲における L_{12} 相の規則度の Ir 組成依存性.

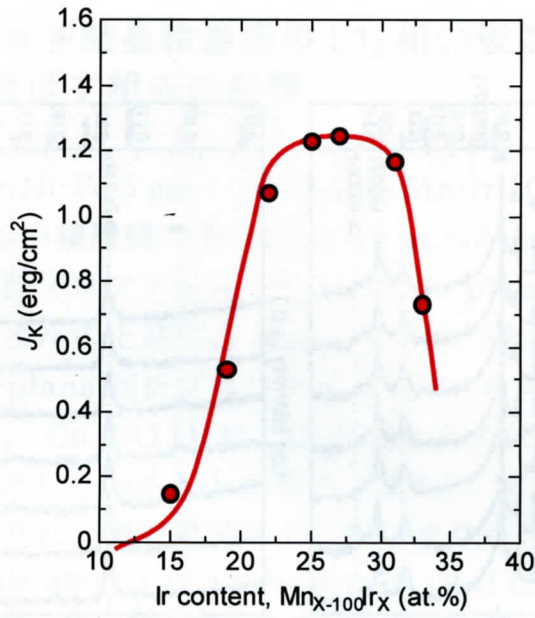


Fig. 2-16 Cr-Ni-Fe 5 nm / Cu 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Cu 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Ir 組成を 15 at.% から 33 at.% の範囲における最適熱処理条件での一方向異方性定数 J_K の Ir 組成依存性.

2-3. Mn₃Ir/Co-Fe 多結晶積層膜の L₁₂ 相の規則度ならびに交換磁気異方性に及ぼす成膜条件の影響

本項においては、Mn-Ir 成膜時の不純物分圧，ならびにプロセスガス圧を変化させ、これらが Mn₃Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べ、Mn₃Ir 形成の鍵となるプロセスパラメータについて検討を行う。

(1) ガス圧依存性

Fig.2-17 に Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜の、Mn-Ir 成膜時の Ar ガス圧を変化させた場合の In-plane X 線回折プロファイルを示す。これらの膜は、超高真空対応トンネル接合膜作製用スパッタ装置を用いて作製し、いずれの Ar ガス圧においても Mn-Ir 成膜時基板温度は 250°C で一定である。Ru の(100), (110) からの回折線、また Mn-Ir (220) からの回折線、B.C.C. Co-Fe の (110) 回折線が明瞭に認められるほか、B.C.C. Co-Fe の (200) 回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Ir の (220) 回折線のショルダーとして観測されている。Ar ガス圧 10 mTorr 以上では、Mn₃Ir からの超格子(110)および(211)回折線がそれぞれ $2\theta_x = 33^\circ$ および 66° 付近に認められており、Ar ガス圧 10 mTorr 以上において Mn₃Ir 相は形成可能であることがわかる。

Fig.2-18 には Fig.2-17 から算出した L₁₂ 相の規則度の Ar ガス圧依存性を示す。これをみると、10 mTorr 以下では規則度は 0 であり、10 mTorr 以上ではガス圧の上昇に伴って徐々に規則度が増加していく様子がわかる。したがって、L₁₂ 相形成のためには、熱エネルギーアシストの他にプロセスガス圧が重要であることがわかる。

Fig.2-19 に Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜の一方向異方性 J_K の Ar ガス圧依存性を示す。いずれの積層膜においても 320°C 5 時間の熱処理を施している。これを見ると、ガス圧の上昇と共に J_K が徐々に増大していることが判る。したがって、ここからも規則度の上昇とともに J_K も増大することがわかる。ここで、Mn-Ir 成膜時 Ar ガス圧が 1 mTorr の場合の J_K を見てみると、前述での成膜時基板温度が室温の場合と比較すると、前者の J_K は 0.8 erg/cm² なのに対し、後者は 0.5 erg/cm² であり、両者とも同様に規則格子線が観測されていないにも関わらず、前者のほうが 1.5 倍近く大きい値を示している。ここから、規則格子線は観測されていないものの、熱エネルギーアシストによりわずかに規則化している可能性も考えられる。

ここで、ガス依存性の検討における試料の作製は超高真空対応のスパッタ装

置にて行われた。これは、これまで巨大交換磁気異方性は極高真空対応のスパッタ装置で作製された試料でしか見られなかったという問題点を解決したことになり、工業応用上、重要なことである。

(2) 不純物分圧依存性

Fig.2-20 に Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜の、Mn-Ir 成膜時の不純物分圧を変化させた場合の In-plane X 線回折プロファイルを示す。これらの膜は、極高真空対応マルチスパッタ装置を用いて作製し、いずれの不純物分圧においても Mn-Ir 成膜時基板温度は 200°C で一定である。Ru の (100); (110) からの回折線、また Mn-Ir (220) からの回折線、B.C.C. Co-Fe の (110) 回折線が明瞭に認められるほか、B.C.C. Co-Fe の (200) 回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Ir の (220) 回折線のショルダーとして観測されている。更に、いずれの不純物分圧においても、 Mn_3Ir からの超格子 (110) および (211) 回折線がそれぞれ $2\theta_x = 33^\circ$ および 66° 付近に認められており、不純物分圧によらず Mn_3Ir 相は形成可能であることがわかる。

Fig.2-21 には Fig.2-20 から算出した $L1_2$ 相の規則度の不純物分圧依存性を示す。これをみると、 $L1_2$ 相規則度は不純物分圧によらず一定であることがわかる。

Fig.2-22 に Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜の一方向異方性 J_K の不純物分圧依存性を示す。いずれの積層膜においても 320°C 5 時間の熱処理を施している。これを見ると、 J_K は不純物分圧に依存しないことがわかる。

したがって、 $L1_2$ 相の形成ならびに J_K の値にスパッタ装置の到達真空度は影響しないことがわかる。

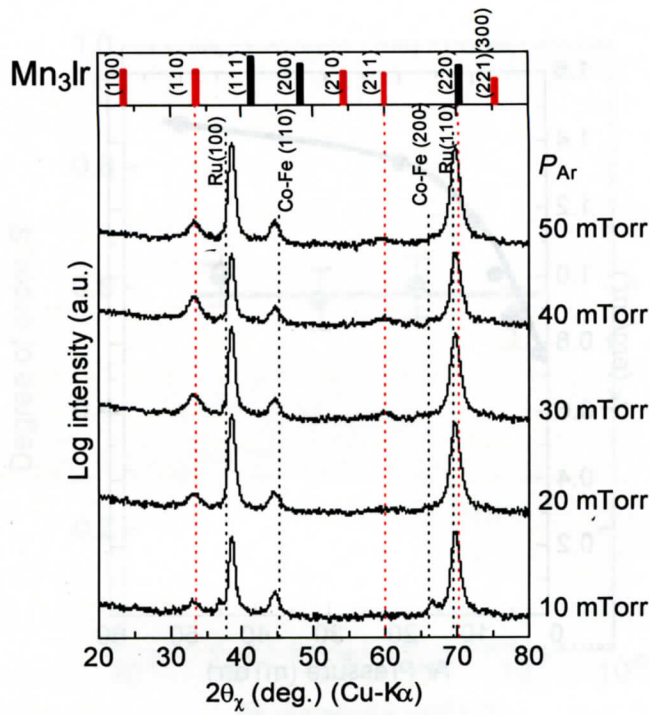


Fig. 2-17 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜の、Mn-Ir 成膜時の Ar ガス圧を変化させた場合の In-plane X線回折プロファイル。

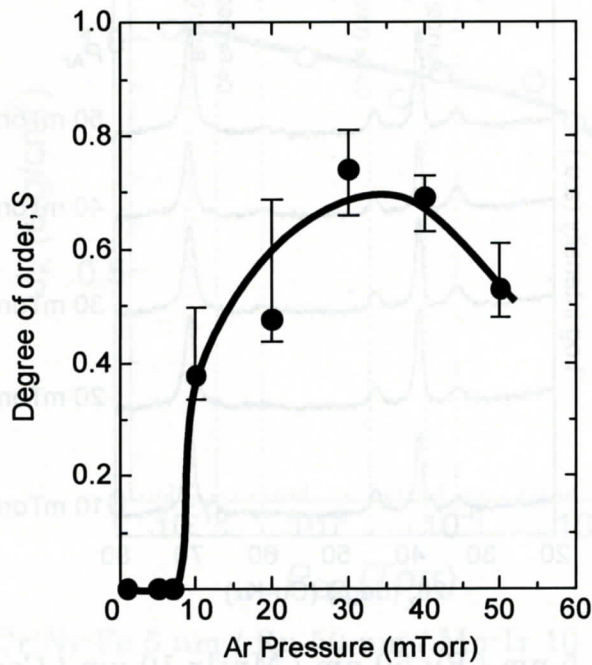


Fig. 2-18 L₁₂相の規則度の Ar ガス圧依存性。

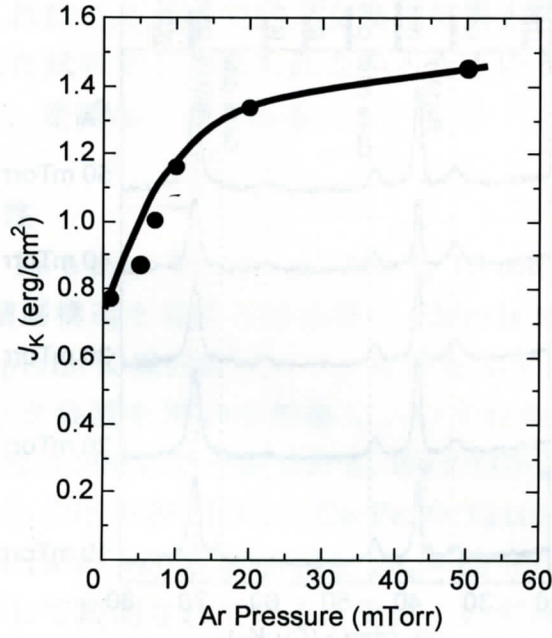


Fig. 2-19 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜における 320°C 5 時間の熱処理後の一方向異方性 J_k の Ar ガス圧依存性.

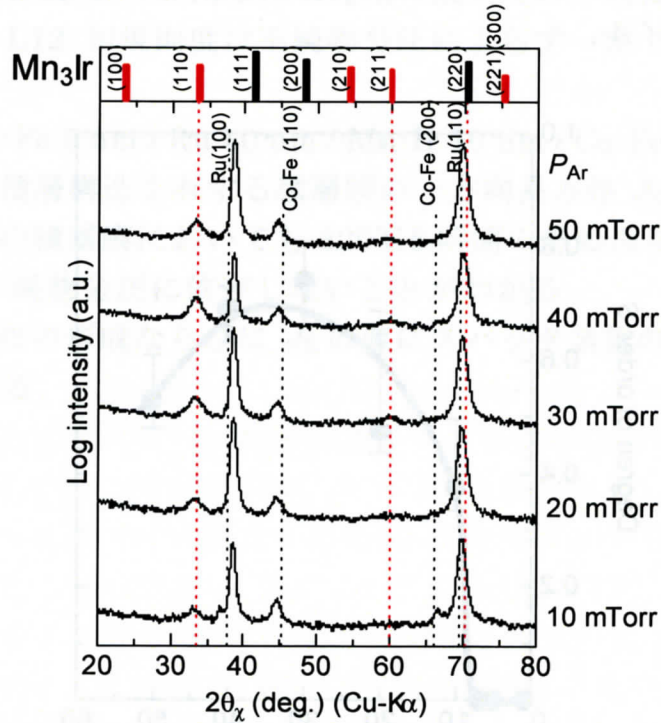


Fig. 2-20 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜の、Mn-Ir 成膜時の不純物分圧を変化させた場合の In-plane X 線回折プロファイル.

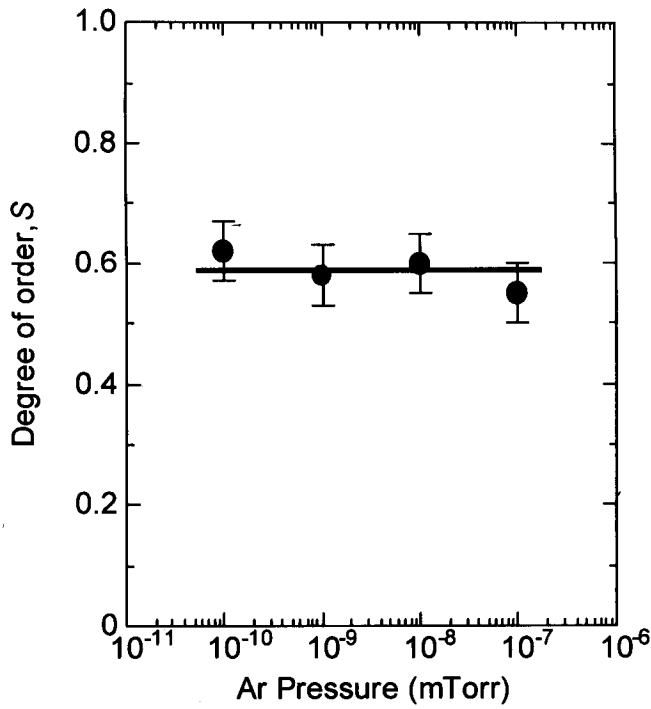


Fig. 2-21 $L1_2$ 相の規則度の不純物分圧依存性.

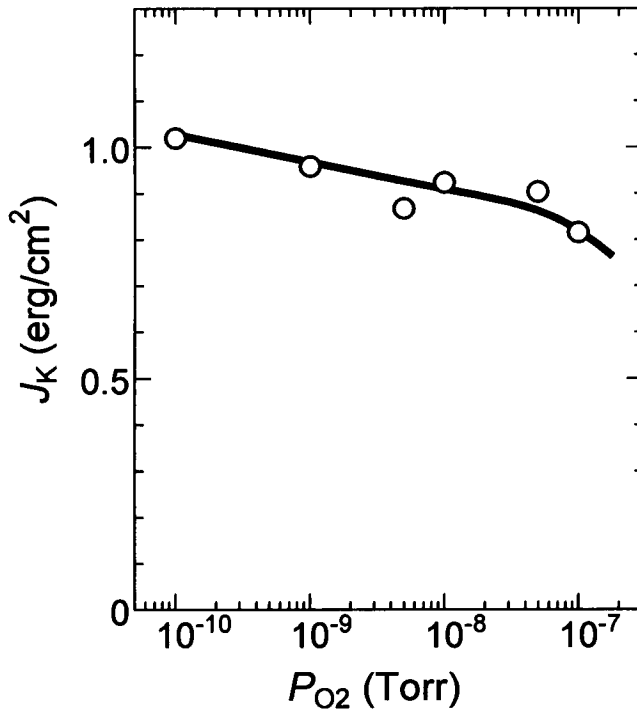


Fig. 2-22 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ir 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層構造を有する積層膜における 320°C 5 時間の熱処理後の一方向異方性 J_K の不純物分圧依存性.

第 3 節 $Mn_3X(X=Ru, Rh)/Co-Fe$ 多結晶積層膜の作製とその交換磁気異方性

第 2 節より、 $Mn\cdot Ir$ において L_{12} 相の規則度は巨大交換磁気異方性へ何らかの影響を及ぼしていることが明らかとなった。そのことを考慮すると、他の L_{12} 型 Mn 基合金においても巨大交換磁気異方性を誘導できる可能性が考えられる。第 1 節で述べたように、交換結合膜における、 $Mn\cdot Ir$ の規則化によるブロッキング温度の上昇は、ネール温度の向上によるものであると考えられる。したがって、バルクにおける L_{12} 相形成が確認されており、更に比較的高いネール温度が得られている $Mn\cdot Rh$ 、ならびにバルクにおける L_{12} 相形成は未確認であるが不規則相において $Mn\cdot Ir$ 以上のネール温度が得られている $Mn\cdot Ru$ について L_{12} 相形成による交換磁気異方性の特性向上について検討することは価値がある。

以上を踏まえ、本節では、 Mn 基合金の添加元素を、 Ru, Rh へと拡張し、反強磁性層成膜時に熱エネルギーアシストを行うことにより、 L_{12} 相を有する Mn_3Ru, Mn_3Rh の薄膜における形成を目指す。 Mn_3Ru, Mn_3Rh を反強磁性材料として用いた交換結合膜において、 Mn_3Ir を用いた場合を超える巨大交換磁気異方性の誘導を目指し、 L_{12} 相が交換磁気異方性に及ぼす影響について調べた。

3-1 では、まず、 $Mn\cdot X(Rh, Ru)$ 成膜時に熱エネルギーアシストを行い、 L_{12} 相形成を目指した。作製した試料の、交換磁気異方性、ならびに構造を調べ、 L_{12} 相形成の有無を検討する。次に、添加元素組成 25 at.% が L_{12} 相形成のために最適であるか検討するため、 $Mn\cdot X$ の添加元素組成を変化させ、交換磁気異方性の変化を調べ、最適組成を決定した。

3-2 では、前項で決定したそれぞれの材料の最適熱処理温度における交換磁気異方性の反強磁性膜厚(d_{AF})依存性を調べ、各反強磁性材料の諸特性を調べた。

3-3 では、 Mn_3Ir , Mn_3Rh , Mn_3Ru のそれぞれの物性値と前項で得られた結果を比較・検討を行った。

3-1. $Mn_3X/Co-Fe$ 多結晶積層膜の作製と $L1_2$ 相の規則度及び安定性

本節では、まず、 $Mn-X(Rh, Ru)$ 成膜時に熱エネルギーアシストを行い、 $L1_2$ 相形成を目指す。作製した試料の、交換磁気異方性、ならびに構造を調べ、 $L1_2$ 相形成の有無を検討する。次に、添加元素組成 25 at.%が $L1_2$ 相形成のために最適であるか検討するため、 $Mn-X$ の添加元素組成を変化させ、交換磁気異方性の変化を調べ、最適組成を決定する。

(1) $Mn_3Ru/Co-Fe$

Fig.3-1 (a) に、 $Cr-Ni-Fe$ 5 nm / Ru 50 nm / $Mn-Ru$ 10 nm / $Co-Fe$ 4 nm / Ru 1 nm / $Cr-Ni-Fe$ 2 nm の積層膜で $Mn-Ru$ の Ru 組成を 26.6 at.%とした場合の out-of-plane X 線回折プロファイル、ならびに in-plane X 線回折プロファイルを示す。 $Mn-Ru$ 成膜時基板温度(T_{sub})を R.T., 70°C, 100°C, 130°C, 170°C, 200°C, 250°Cとした場合を合わせて示す。両プロファイルの上部には Mn_3Ru の粉末 XRD パターンの計算結果を示している。いずれの T_{sub} においても Out-of-plane 回折プロファイルでは、* 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに、 Ru c 面からの回折線が観測され Ru 膜は強い c 面配向していることが判る。また、いずれの T_{sub} においても $Mn-Ru$ の(111)および(222)からの回折線が観測され、 $Mn-Ru$ 膜が、強い F.C.C.(111)配向を有し、 $\gamma-Mn-Ru$ を形成していることが判る。更に、 $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には、B.C.C. $Co-Fe$ (110)および(220)からと考えられる回折線が観測され、 $Co-Fe$ 膜は B.C.C.(110)配向をしていることが示唆される。これに対応して in-plane 回折プロファイルでは、 Ru (100)ならびに(110)からの回折線、また $Mn-Ru$ (220)からの回折線、B.C.C. $Co-Fe$ の(110)回折線が明瞭に認められるほか、B.C.C. $Co-Fe$ の(200)回折線も $2\theta_\chi = 67^\circ$ 付近に $Mn-Ru$ の(220)回折線のシオルダーとして観測されている。ここで、いずれの T_{sub} においても Mn_3Ru からの超格子回折線が認められなかった。ここで、 Mn_3Ir の規則度が 0.5 の場合、(110)面からの回折線の積分強度は(220)面からのそれに対して 20%となるのに対し、 Mn_3Ru の規則度が 0.5 の場合はわずか 5%であることが判る。したがって、規則格子線がバックグラウンドに埋もれてしまっている可能性もあり、 Mn_3Ru が形成されている可能性は十分にあると考えられる。そこで、Spring8 BL46において 20keV の放射光による大強度の X 線により、in-plane 回折線プロファイルの測定を行った。Fig.3-1(b) に $Cr-Ni-Fe$ 5 nm / Ru 50 nm / $Mn-Ru$ 10 nm / $Co-Fe$ 4 nm / Ru 1 nm / $Cr-Ni-Fe$ 2 nm の積層膜で $Mn-Ru$ 成膜時基板温度(T_{sub})を 130°Cとした場合の構造解析の結果を示

す。赤線と黒線は同一の試料からの in-plane 回折プロファイルであり、試料面とのアライメントが異なる。赤線のプロファイルを見ると、わずかながらに $\text{Mn}_3\text{Ru}(110)$ 面ならびに (211) 面からの回折線が観測されているように見える。しかしながら、黒線のプロファイルを見ると、 Mn_3Ru からの規則格子線が観測されなかった。したがって、 Mn_3Ru 形成の有無については今後の更なる検討の余地が残された。

Fig.3-2 に、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜における J_K の熱処理温度 (T_a) 依存性を示す。図中には、 T_{sub} が異なる場合の結果を合わせて示してある。いずれの T_{sub} においても、as-deposited においては一方向異方性が十分に誘導されず、 $J_K < 0.1 \text{ erg/cm}^2$ であるのに対し、 J_K の T_a による変化が T_{sub} によって大きく異なっている様子が見られた。 $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ の場合、 $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 300°C にかけて J_K はわずかに増大し、 300°C において極大の 0.20 erg/cm^2 を示した後、 T_a の増加に伴い J_K が減少していることがわかる。これは、 300°C 以上の熱処理においては、積層膜構成原子の拡散が生じ、磁気特性を劣化させたと考えられる。一方、 $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ の場合には、 $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 320°C にかけて J_K が急激に増大しており、 320°C において極大の 0.56 erg/cm^2 を示した。その後 J_K は $T_a = 340^\circ\text{C}$ において減少した。このことから、 $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ において作製した Mn-Ru 膜は、 $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ に比較して J_K が 2 倍以上に増大し、また J_K の高い耐熱性を有することが判った。これは、反強磁性材料に Mn-Ir を用いた場合と同様の現象である。

Fig.3-3 には、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜のそれぞれの T_{sub} の試料において得られる最大の J_K の値を Fig. 3- から求め、 T_{sub} に対してプロットした。これを見ると、 J_K の最大値は T_{sub} の上昇に伴い急激に増大し、 $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ で極大を取る。その後、 J_K は T_{sub} の上昇に伴い低下する。第 2 節における、Ru 下地を用いた場合の Mn-Ir の検討と比較すると、Mn-Ir を用いた場合は T_{sub} が 250°C まで上昇しても、 J_K の最大値に対する下降率はわずか 5 % 程度であるのに対し、Mn-Ru を用いた場合は 70 % であった。これは、薄膜において Mn_3Ru が形成されていたとしても、 Mn_3Ir よりも熱安定性が悪いため L_{12} 相が破壊される可能性が考えられる。これは、それぞれのバルクにおける平衡状態図から予想され、Mn-Ir (Fig. 2-) はバルクにおける L_{12} 相の存在が確認されているのに対し、Mn-Ru (Fig.) はバルクにおいて L_{12} 相は確認されていない。

Fig.3-4 には、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Ru 成膜時基板温度 (T_{sub}) を R.T. と 130°C と

して作製した試料の測定温度に対する J_K の変化を示す. 各試料の熱処理条件は, Fig. 3-を参考に $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ の場合は $T_a = 280^\circ\text{C}$ 1 時間, $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ の場合は $T_a = 320^\circ\text{C}$ 5 時間とした. こちらを見ると, どちらの場合も, 測定温度の上昇に伴い J_K の値が低下する傾向が見られ, $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ の場合は測定温度が 240°C で, $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ の場合は 320°C でそれぞれ J_K が 0 となった. これより, T_{sub} の上昇による T_B の向上が見られ, この現象は Mn-Ir の場合と同様であった.

以上より, 磁気特性の観点では, T_{sub} の上昇により J_K ならびに T_B が向上しており, $L1_2$ 相形成の可能性が大いに考えられる.

Fig.3-5 に, Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Ru の Ru 組成を 26.6–32.4 at.% と変化させ, Mn-Ru 成膜時基板温度を 250°C として作製した試料の, out-of-plane X 線回折プロファイル, ならびに in-plane X 線回折プロファイルを示す. 両プロファイルの上部には Mn_3Ru の粉末 XRD パターンの計算結果を示している. いずれの Mn-Ru 組成においても Out-of-plane 回折プロファイルでは, * 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに, Ru の c 面からの回折線が観測され Ru 膜は強い c 面配向しており, また Mn-Ru の (111) および (222) からの回折線が観測され, Mn-Ir 膜が強い F.C.C.(111) 配向を有していることが判る. 更に, いずれ Ru 組成においても, $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には, B.C.C. Co-Fe(110) および (220) からと考えられる回折線が観測され, Co-Fe 膜は B.C.C.(110) 配向をしていることが示唆される. これに対応して in-plane 回折プロファイルでは, Ru の (100) ならびに (110) からの回折線, また Mn-Ru(220) からの回折線, B.C.C. Co-Fe の (110) 回折線が明瞭に認められるほか, B.C.C. Co-Fe の (200) 回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Ru の (220) 回折線のショルダーとして観測されている. ここで, いずれの Ru 組成においても Mn_3Ru の超格子回折線は認められなかった.

Fig.3-6 に Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜における J_K の Mn-Ru 組成依存性を示す. それぞれの組成の J_K の値は, それぞれの試料を $T_a = 250, 280, 300, 320, 340, 360^\circ\text{C}$ の順に磁界中熱処理を施し, 得られる J_K の最大値を Mn-Ru 組成に対してプロットした. これを見ると, J_K は Ru 組成 28 at.% 付近で極大の 0.25 erg/cm^2 程度となっていることが判る. Fig.1-7 に示したバルクにおける Mn-Ru の平衡状態図を見ると, $\gamma\text{-Mn-Ru}$ は Ru 組成 30 at.% 以上で安定に形成されるが, 30 at.% 以下では低温側において $\alpha\text{-Mn}$ との混相になることが判る. しかしながら, 今回作製した交換結合膜においては, Ru 組成 28 at.% で J_K がピークを取っており, 薄膜においては, $\gamma\text{-Mn-Ru}$ は Ru 組成 30 at.% においても安定に形成されることが考えられる. 以上の検討により, Mn-Ru の最適 Ru 組成は 28 at.% であることが

判った。しかしながら、いずれの組成においても $L1_2$ 相形成の有無については更なる検討の余地が残された。

(2) $Mn_3Rh/Co-Fe$

Fig.3-7 には Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Rh の Rh 組成を (a) 30.3 at.%, (b) 20.7 at.% とした場合の, out-of-plane X 線回折プロファイル, ならびに in-plane X 線回折プロファイルを示す。図中には, T_{sub} が異なる場合の結果を合わせて示してある。各プロファイルの上部には Mn_3Rh の粉末 XRD パターンの計算結果を示している。いずれの組成, いずれの T_{sub} においても Out-of-plane 回折プロファイルでは, * 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに, Ru c 面からの回折線が観測され Ru 膜は強い c 面配向していることが判る。また, いずれの組成, いずれの T_{sub} においても Mn-Rh の (111) および (222) からの回折線が観測され, Mn-Rh 膜が, 強い F.C.C. (111) 配向を有し, γ -Mn-Rh を形成していることが判る。更に, $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には, B.C.C. Co-Fe (110) および (220) からと考えられる回折線が観測され, Co-Fe 膜は B.C.C. (110) 配向をしていることが示唆される。これに対応して in-plane 回折プロファイルでは, Ru (100) ならびに (110) からの回折線, また Mn-Rh (220) からの回折線, B.C.C. Co-Fe の (110) 回折線が明瞭に認められるほか, B.C.C. Co-Fe の (200) 回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Rh の (220) 回折線のショルダーとして観測されている。ここで, (a) Rh 組成 30.3 at.% においては $T_{sub} = 130^\circ C$ 以上, (b) Rh 組成 20.7 at.% においては $T_{sub} = 200^\circ C$ 以上において, $2\theta_x = 33^\circ$ 付近に Mn_3Ru からの超格子 (110) からの回折線が認められた。これより, エネルギーアシストによる $L1_2$ 相の形成が確認された。さらに, (a) Rh 組成 30.3 at.% においては $T_{sub} = 250^\circ C$ の試料において, 29° 付近, 42° 付近, 52° 付近, 61° 付近および 77° 付近に Mn_3Rh , Ru, Co-Fe 以外の回折線ピークが認められる。ここで, Mn-Rh のバルクにおける平衡状態図 (Fig.1-7) に着目すると, Rh 組成 32 at.% 付近 ~ 35 at.% 付近の領域では Mn_3Rh と β -Mn-Rh の混相となることがわかる。文献より, Rh 組成 35 at.% 付近の β -Mn-Rh の結晶構造は Fig.3-8 に示すような CsCl 型で格子定数は 3.035 \AA であり, これを基にパウダーパターンを計算した結果と比較すると, これらのピークは β -Mn-Rh とよく一致する。したがって, Rh 組成 30 at.% 付近で Mn-Rh 薄膜は熱エネルギーアシストにより Mn_3Rh と β -Mn-Rh の混相となると考えられる。

Fig.3-9 に, Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Rh の Rh 組成 (a) 30.3 at.%, (b) 20.7 at.%

とした場合における J_K の熱処理温度 (T_a) 依存性を示す. 図中には, T_{sub} が異なる場合の結果を合わせて示してある. いずれの組成, いずれの T_{sub} においても, as-deposited においては一方向異方性が十分に誘導されず, $J_K < 0.1 \text{ erg/cm}^2$ であるのに対し, J_K の T_a による変化が T_{sub} によって大きく異なっている様子が見られた. $T_{sub} = \text{R.T.}$ の場合, (a) Rh 組成 30.3 at.% では $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 320°C までの範囲で J_K は 0.1 erg/cm^2 程度とほとんど変化は見られず, 340°C 以上では T_a の増加に伴い J_K が減少していることがわかる. (b) Rh 組成 20.7 at.% では $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 280°C にかけて J_K はわずかに上昇し, $T_a = 280^\circ\text{C}$ で J_K は極大の 0.3 erg/cm^2 を示し, その後 T_a の増加に伴い J_K が減少していることがわかる. これは, (a) Rh 組成 30.3 at.% では 340°C 以上, (b) Rh 組成 20.7 at.% では 300°C 以上の熱処理において, 積層膜構成原子の拡散が生じ, 磁気特性を劣化させたと考えられる. これに対し, (a) Rh 組成 30.3 at.% では $T_{sub} = 170^\circ\text{C}$ の場合に, $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 340°C にかけて J_K が急激に増大しており, 340°C において最大 0.68 erg/cm^2 を示した. その後 J_K は $T_a = 360^\circ\text{C}$ において減少した. このことから, $T_{sub} = 170^\circ\text{C}$ において作製した Mn-Rh 膜は, $T_{sub} = \text{R.T.}$ に比較して J_K が 7 倍近く増大し, また J_K の高い耐熱性を有することが判った. (b) Rh 組成 20.7 at.% では $T_{sub} = 200^\circ\text{C}$ の場合に, $T_a = 250^\circ\text{C}$ から 300°C にかけて J_K が急激に増大し, $T_a = 300^\circ\text{C}$ から 360°C の範囲で J_K はほぼ一定値を示し, $T_a = 360^\circ\text{C}$ において極大の 0.79 erg/cm^2 を示した. その後 J_K は T_a の上昇に伴い減少した. このことから, $T_{sub} = 200^\circ\text{C}$ において作製した Mn-Rh 膜は, $T_{sub} = \text{R.T.}$ に比較して J_K が 2 倍以上増大し, また J_K の高い耐熱性を有することが判った. これは, いずれの組成においても, 反強磁性材料に Mn-Ir を用いた場合と同様の現象である.

Fig.3-10 には, Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Mn-Rh の Rh 組成(a) 30.3 at.%, (b) 20.7 at.% でのそれぞれの T_{sub} の試料において得られる最大の J_K の値を Fig.3-9 から求め, T_{sub} に対してプロットした. これを見ると, (a) Rh 組成 30.3 at.% で J_K の最大値は T_{sub} の上昇に伴い急激に増大し, $T_{sub} = 170^\circ\text{C}$ で極大を取る. その後, J_K は T_{sub} の上昇に伴い低下する. 第 2 節における, Ru 下地を用いた場合の Mn-Ir の検討と比較すると, Mn-Ir を用いた場合は T_{sub} が 250°C まで上昇しても, J_K の最大値に対する下降率はわずか 5 %程度であるのに対し, Mn-Rh を用いた場合は 65 %であった. これは, 高い T_{sub} において Mn-Rh が $\beta\text{-Mn-Rh}$ と Mn_3Rh の混相になったためであると考えられる. 一方, (b) Rh 組成 20.7 at.% においては, J_K の最大値は T_{sub} の上昇に伴い急激に増大し, $T_{sub} = 200^\circ\text{C}$ で極大を取る. その後, J_K は T_{sub} の上昇に伴いわずかに低下する. 前述した, Rh 組成 30.3 at.% の場合と比較すると, T_{sub} が 250°C まで上昇すると, J_K の最大値に対する

下降率は 65%程度であるのに対し, Rh 組成 20.7 at.%の場合はわずか 8%であった. これは, Mn_3Rh の熱安定性が良いためだと考えられる.

Fig.3-11 には, Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Rh 組成 20.7 at.%において, $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ と 200°C で作製した Mn-Rh 交換結合膜の測定温度に対する J_K の変化を示す. 各試料の熱処理条件は, Fig.3-9 (b) を参考に $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ の場合は $T_a = 280^\circ\text{C}$ 1 時間, $T_{\text{sub}} = 200^\circ\text{C}$ の場合は $T_a = 320^\circ\text{C}$ 5 時間とした. こちらを見ると, どちらの場合も, 測定温度の上昇に伴い J_K の値が低下する傾向が見られ, $T_{\text{sub}} = \text{R.T.}$ の場合は測定温度が 260°C で, $T_{\text{sub}} = 200^\circ\text{C}$ の場合は 360°C でそれぞれ J_K が 0 となった. これより, T_{sub} の上昇による T_B の向上が見られ, この現象は Mn-Ir の場合と同様であった.

以上より, 磁気特性の観点では, T_{sub} の上昇により J_K ならびに T_B が向上しており, これは L1_2 相形成によるものだと考えられる.

Fig.3-12 に, Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で Rh 組成 17.7 at.% - 33.6 at.% の Mn-Rh を用いて Mn-Ru 成膜時基板温度を 250°C として作製した試料の, out-of-plane X 線回折プロファイル, ならびに in-plane X 線回折プロファイルを示す. 両プロファイルの上部には Mn_3Rh ならびに $\beta\text{-Mn-Rh}$ の粉末 XRD パターンの計算結果を示している. いずれの Mn-Rh 組成においても Out-of-plane 回折プロファイルでは, * 印の付した Si 基板からの強い回折線のほかに, Ru の c 面からの回折線が観測され Ru 膜は強い c 面配向しており, また $\gamma\text{-Mn-Rh}$ の (111) および (222) からの回折線が観測され, Mn-Rh 膜が $\gamma\text{-Mn-Rh}$ を形成し, F.C.C.(111) 配向を有していることが判る. 更に, いずれ Ru 組成においても, $2\theta = 45^\circ$ および 100° 付近には, B.C.C. Co-Fe(110) および (220) からと考えられる回折線が観測され, Co-Fe 膜は B.C.C.(110) 配向をしていることが示唆される. これに対応して in-plane 回折プロファイルでは, Ru の (100) ならびに (110) からの回折線, また Mn-Rh(220) からの回折線, B.C.C. Co-Fe の (110) 回折線が明瞭に認められるほか, B.C.C. Co-Fe の (200) 回折線も $2\theta_x = 67^\circ$ 付近に Mn-Rh の (220) 回折線のシヨルダールとして観測されている. 更に, いずれの Rh 組成においても $2\theta_x = 33^\circ$ 付近に Mn_3Rh の超格子(110)から回折線は認められた. ここで, Rh 組成 25.8 at.% から 33.6 at.% の試料において, Fig.3-9 (a) の $T_{\text{sub}} = 250^\circ\text{C}$ の In-plane 回折線と同様, 29° 付近, 42° 付近, 52° 付近, 61° 付近および 77° 付近に回折線ピークが認められる. これは, $\beta\text{-Mn-Rh}$ からの回折線と考えられる. したがって, 薄膜では Rh 組成 25 at.% 付近以上で高い基板温度において Mn_3Rh と

β -Mn-Rh の混相を形成すると考えられる。

Fig.3-13 に Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の Mn-Ru 成膜時基板温度を 250°C として作製した試料の J_K の Mn-Rh 組成依存性を示す。それぞれの組成の J_K の値は、それぞれの試料を $T_a = 250, 280, 300, 320, 340, 360^\circ\text{C}$ の順に磁界中熱処理を施し、得られる J_K の最大値を Mn-Rh 組成に対してプロットした。これを見ると、 J_K は Ru 組成 20 at.% 付近で極大の 0.74 erg/cm² 程度となっていることが判る。Fig.3-13 には Fig.3-10 (a), (b) それぞれの、 J_K の最大値も、それぞれの組成に対してプロットする。ここからも、20 at.% 付近で J_K は最大となると考えられる。以上の検討より、Mn-Rh の最適 Rh 組成は 20 at.% であることが判った。

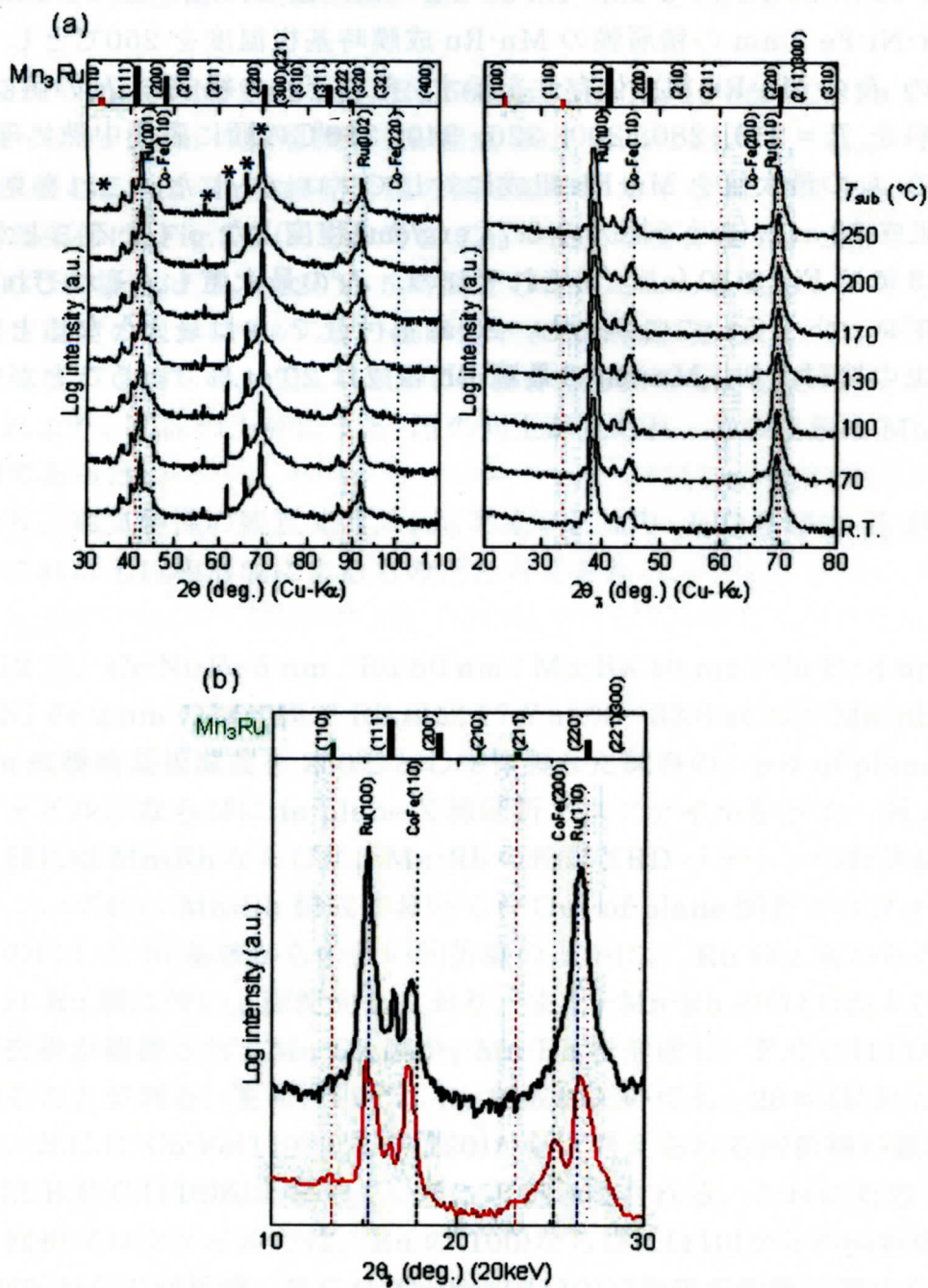


Fig. 3-1 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の out-of-plane X 線回折プロファイル、
 ならびに in-plane X 線回折プロファイル。

(a) T_{sub} : R.T., 70, 100, 130, 170, 200, 250°C の試料の X 線回折プロファイル。

(b) T_{sub} : 130°C の試料の放射光による大強度の X 線回折プロファイル。

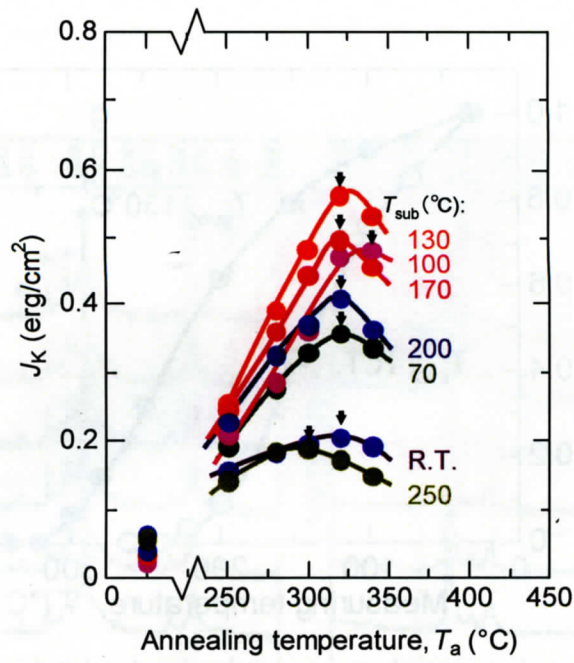


Fig. 3-2 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}): R.T., 70, 100, 130, 170, 200, 250 °C) における一方向異方性定数 J_K の熱処理温度 (T_a) 依存性.

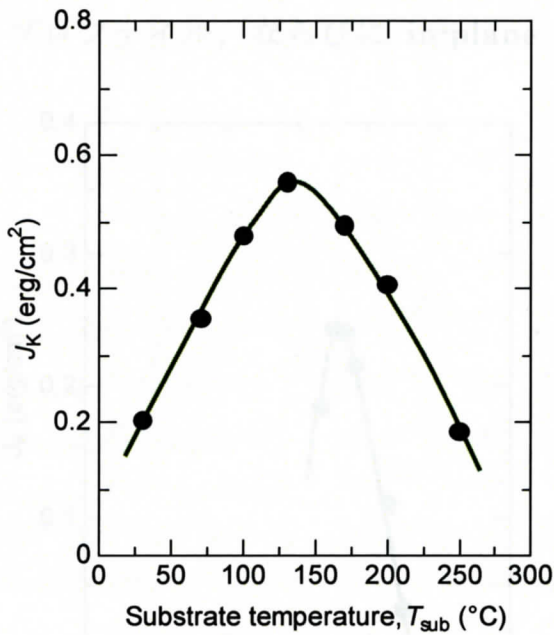


Fig. 3-3 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の J_K の Mn-Ir 成膜時基板温度 (T_{sub}) 依存性.

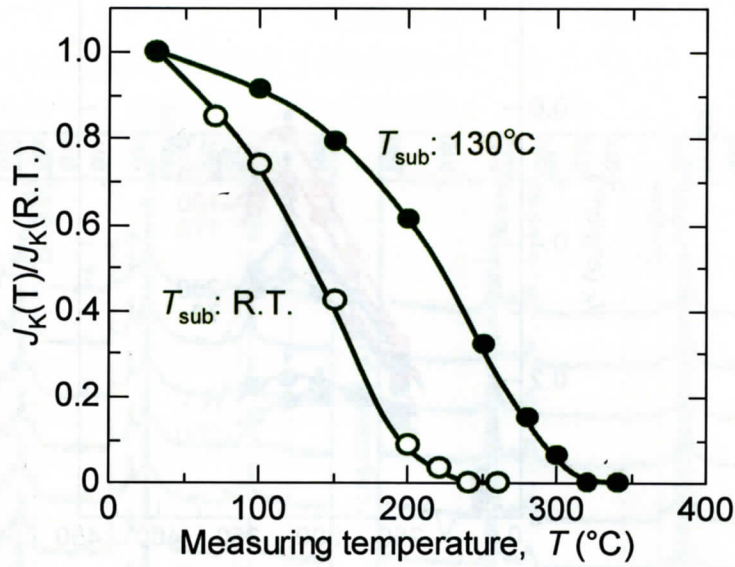


Fig. 3-4 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の J_K の測定温度(T)依存性. 中塗りは $T_{sub}: 130^\circ\text{C}$ で 320°C 5 時間の熱処理を施したもので, 白抜きは $T_{sub}: R.T.$ で 280°C 1 時間の熱処理を施した試料における測定結果を示す.

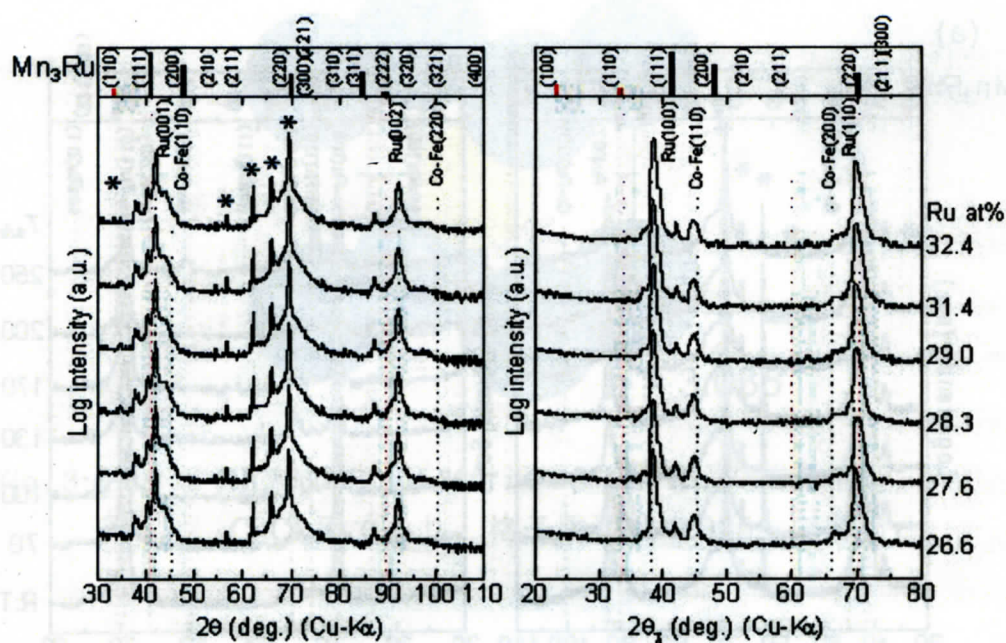


Fig. 3-5 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm で Mn-Ru の Ru 組成を 26.6 - 32.4 at.% と変化させた試料の, out-of-plane X 線回折プロファイル, ならびに in-plane X 線回折プロファイル

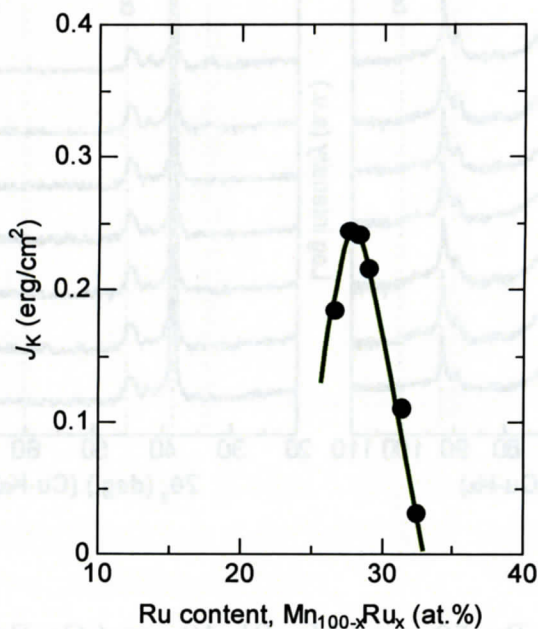


Fig. 3-6 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の最適熱処理温度における J_K の Mn-Ru の Ru 組成依存性.

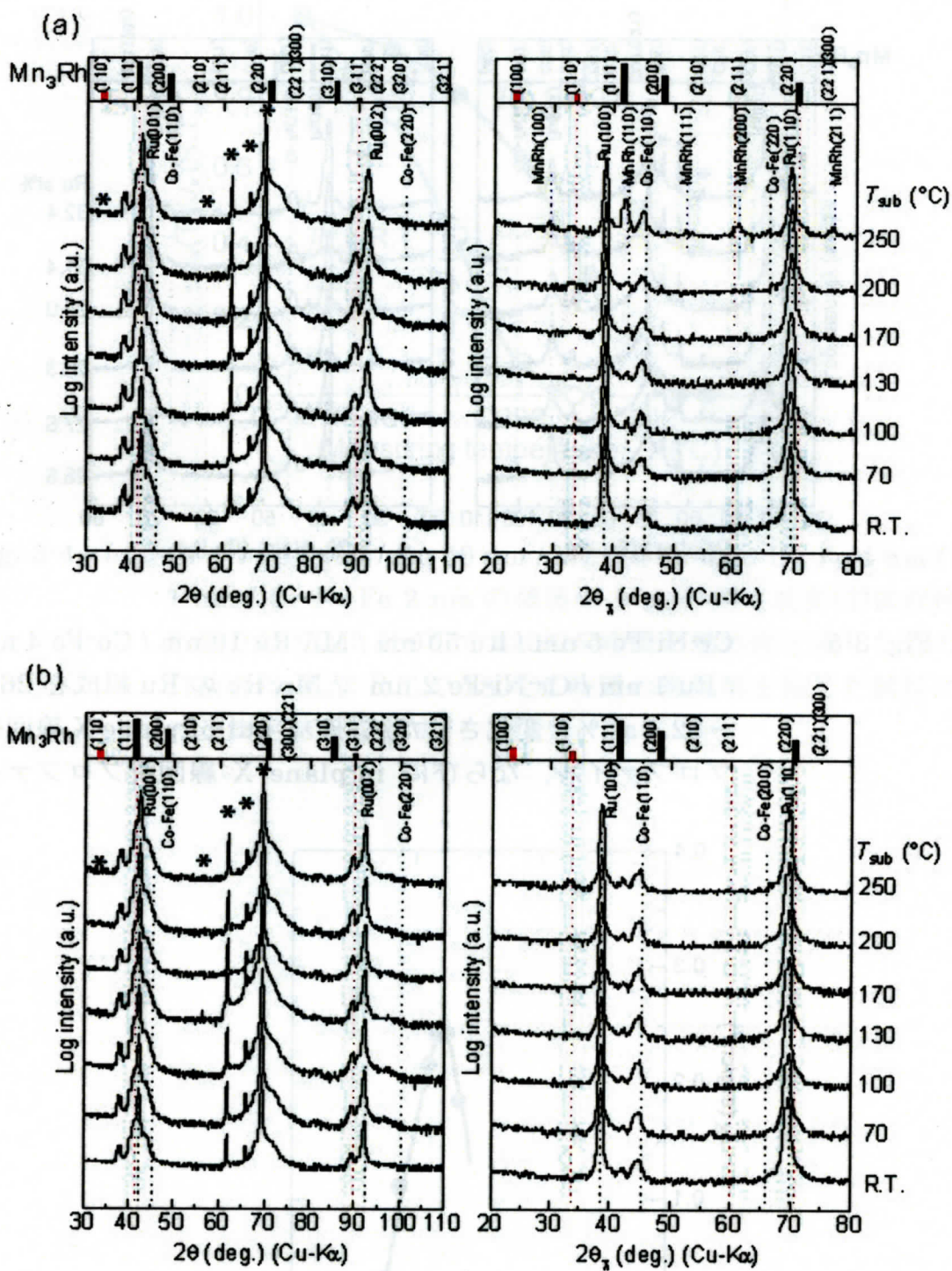


Fig. 3-7 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の out-of-plane X 線回折プロファイル，ならびに in-plane X 線回折プロファイル。

(a) Mn-Rh の Rh 組成 30.3 at.%

(b) Mn-Rh の Rh 組成 20.7 at.%

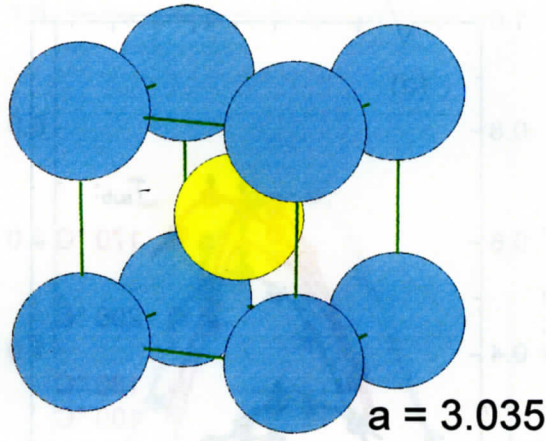
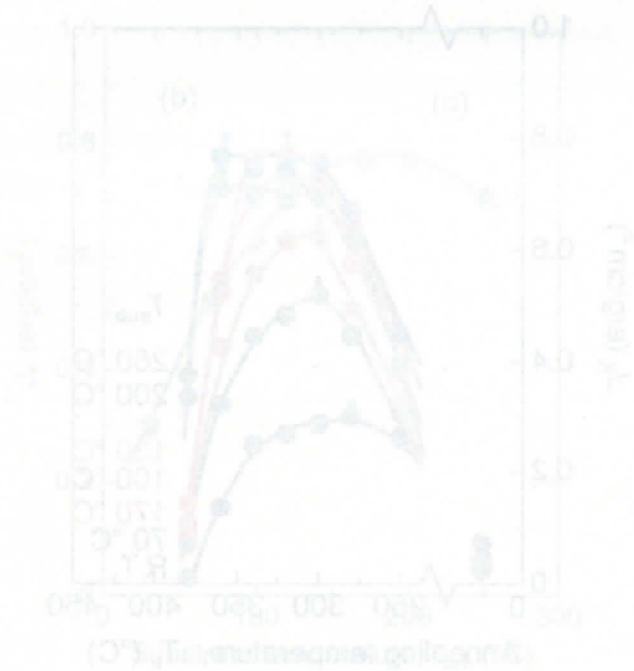


Fig. 3-8

Rh 組成 30 at.% 付近の β -Mn-Rh の結晶構造.
CsCl 型であり, 格子乗数は 3.035\AA である.



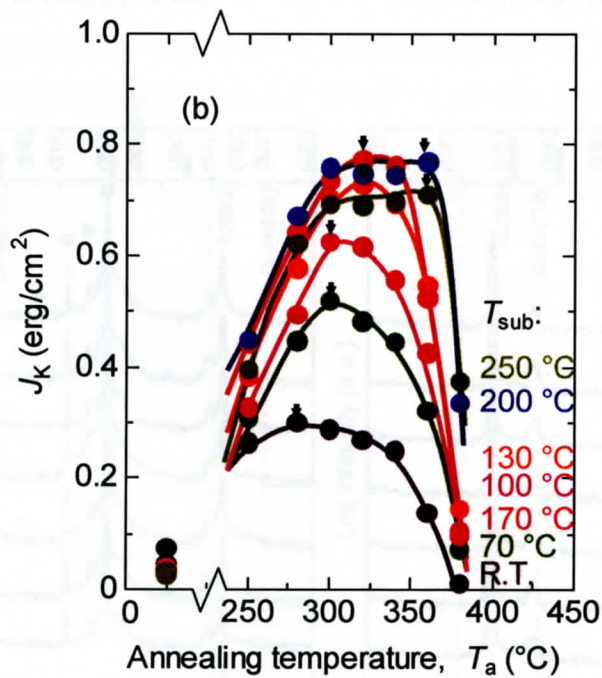
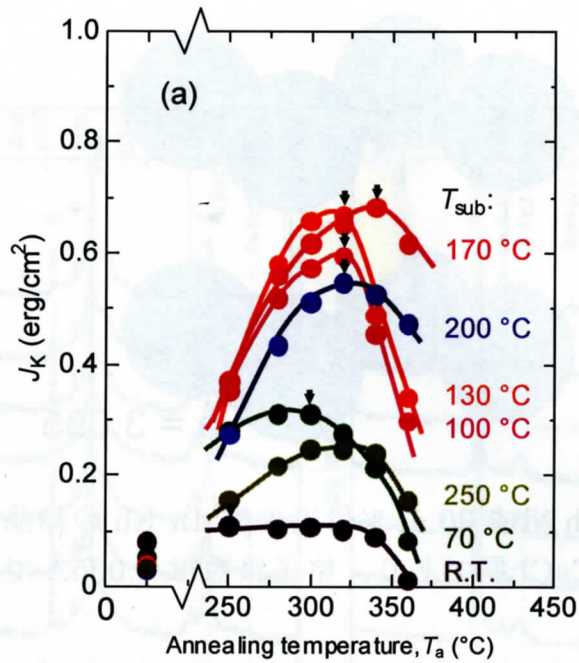


Fig. 3-9 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の一方向異方性定数(J_K)の熱処理温度(T_a)依存性.

(a) Mn-Rh の Rh 組成 30.3 at.%

(b) Mn-Rh の Rh 組成 20.7 at.%

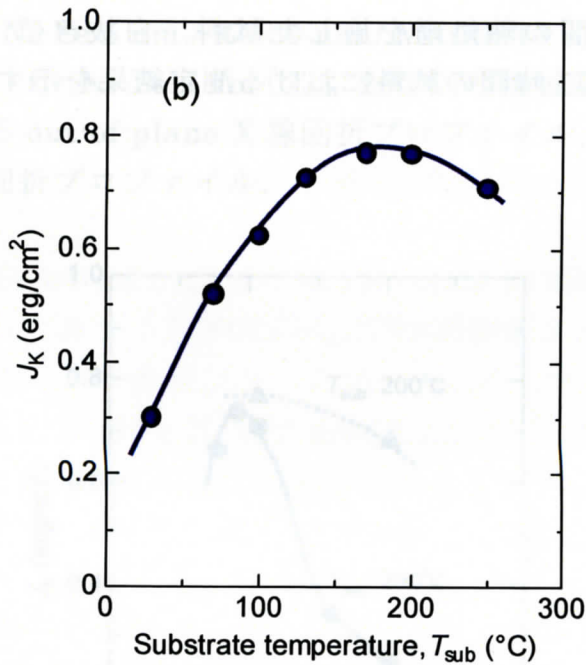
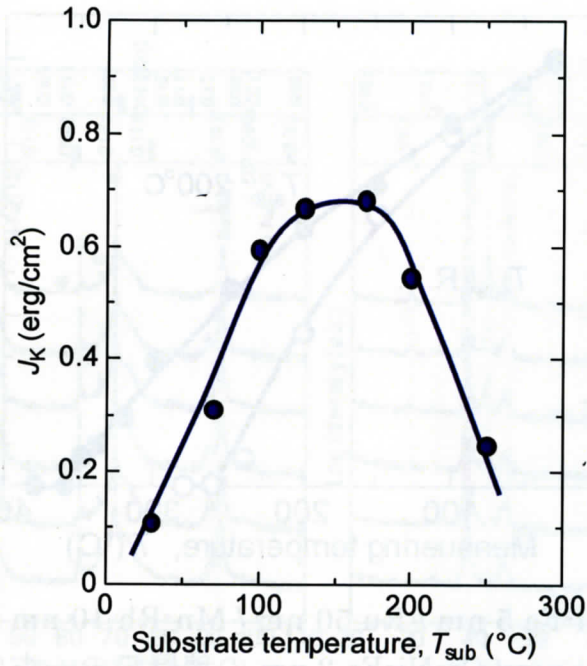


Fig. 3-10 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の一方異方性定数(J_K)の Mn-Rh 成膜時基板温度(T_{sub})依存性.

(c) Mn-Rh の Rh 組成 30.3 at.%

(b) Mn-Rh の Rh 組成 20.7 at.%

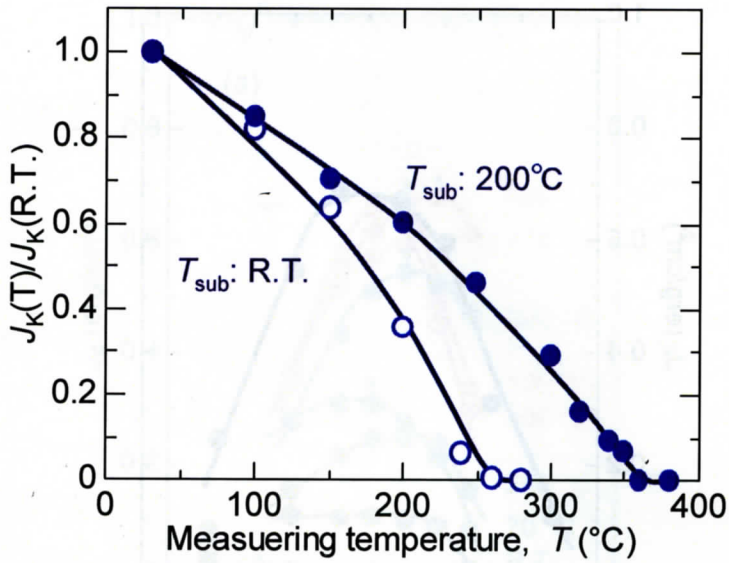


Fig. 3-11

Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜の一方方向異方性定数 (J_K) の測定温度 (T) 依存性. 中塗りは $T_{sub}: 200^\circ\text{C}$ で 320°C 5 時間の熱処理を施した試料, 白抜きは $T_{sub}: R.T.$ で 280°C 1 時間の試料における測定結果を示す.

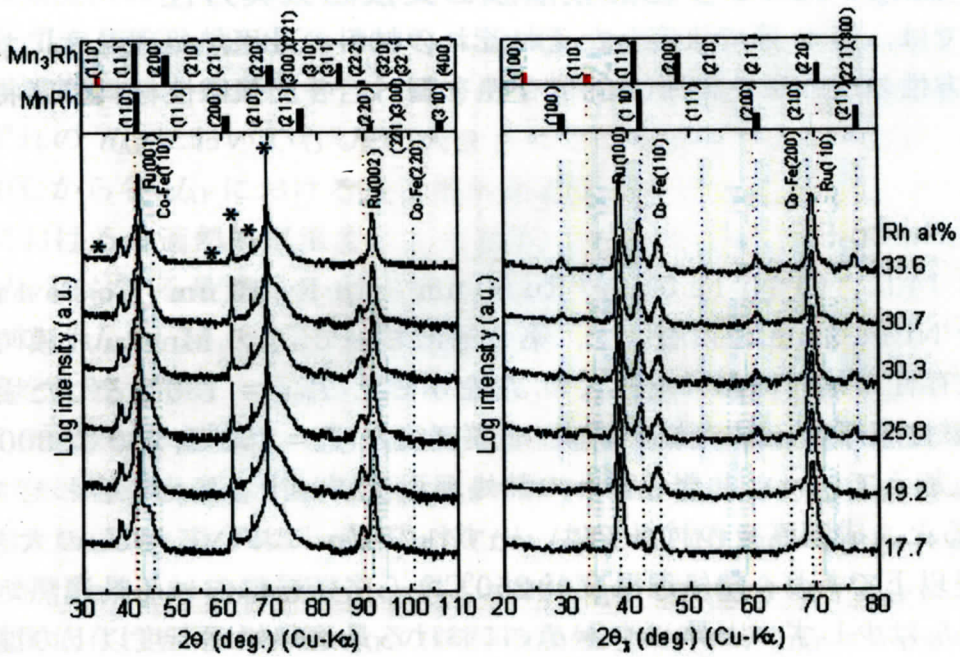


Fig. 3-12 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (T_{sub} : 250°C)の積層膜の各 Mn-Rh 組成における out-of-plane X 線回折プロファイル, ならびに in-plane X 線回折プロファイル.

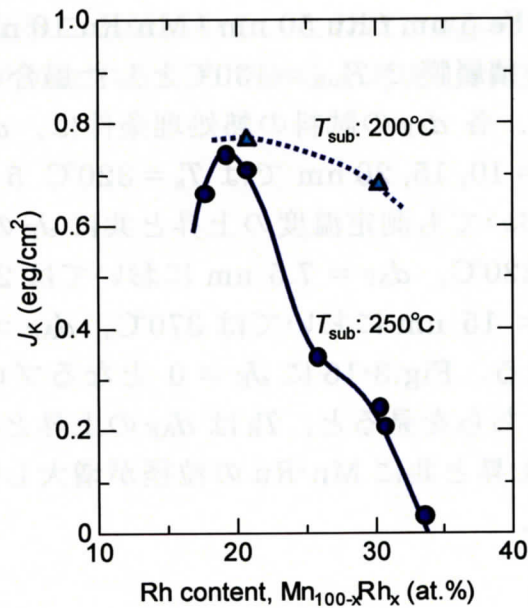


Fig. 3-13 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (T_{sub} : 250°C)の積層膜の最適熱処理温度における一方向異方性定数(J_K)の Rh 組成依存性.

3-2. $Mn_3X/Co-Fe$ 多結晶積層膜の交換磁気異方性

本節では、第2節で決定したそれぞれの材料の最適熱処理温度における交換磁気異方性の反強磁性膜厚(d_{AF})依存性を調べ、各反強磁性材料の諸特性を調べる。

(1) $Mn_3Ru/Co-Fe$

Fig.3-14に、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で、第2節において J_K の Mn-Ru 成膜時基板温度 (T_{sub})依存性の検討において最大の J_K を示した $T_{sub} = 130^\circ C$ とした場合の、 J_K の反強磁性膜厚(d_{AF})依存性を示す。成膜直後と $T_a = 250^\circ C, 280^\circ C, 300^\circ C, 320^\circ C, 340^\circ C$ と加えていったときの種々の熱処理温度に対する変化を合わせて示す。これを見ると、成膜直後の試料では、いずれの d_{AF} においても J_K の大きさは 0.1 erg/cm^2 以下であり、熱処理温度が $250^\circ C$ から各 d_{AF} における最適熱処理温度にかけて J_K は少しずつ上昇し、各 d_{AF} における最適熱処理温度以上の温度になると、 J_K は下降することがわかる。各 d_{AF} における最適熱処理温度は、 $d_{AF} = 5, 7.5 \text{ nm}$ では $300^\circ C$ 、 $d_{AF} = 10, 15, 20 \text{ nm}$ では $320^\circ C$ である。また、各膜厚における J_K の最大値を比較すると、 d_{AF} の上昇と共に J_K は急激に増大し、 $d_{AF} = 10 \text{ nm}$ で極大の 0.6 erg/cm^2 を示し、その後 J_K の値は緩やかに下降する。これより、 $T_{sub} = 130^\circ C$ における Mn-Ru の臨界膜厚(d_{AF}^{cr})は 10 nm 程度であることがわかった。

Fig.3-15に、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で $T_{sub} = 130^\circ C$ とした場合の各 d_{AF} における J_K の測定温度依存性を示す。各 d_{AF} の試料の熱処理条件は、 $d_{AF} = 5, 7.5 \text{ nm}$ では $T_a = 300^\circ C$ 1時間、 $d_{AF} = 10, 15, 20 \text{ nm}$ では $T_a = 320^\circ C$ 5時間である。これを見ると、いずれの d_{AF} においても測定温度の上昇と共に J_K の値は徐々に減少し、 $d_{AF} = 5 \text{ nm}$ においては $220^\circ C$ 、 $d_{AF} = 7.5 \text{ nm}$ においては $280^\circ C$ 、 $d_{AF} = 10 \text{ nm}$ においては $320^\circ C$ 、 $d_{AF} = 15 \text{ nm}$ においては $370^\circ C$ 、 $d_{AF} = 20 \text{ nm}$ においては $420^\circ C$ で J_K の値は0となる。Fig.3-16に $J_K = 0$ となるブロッキング温度 (T_B) の d_{AF} 依存性を示す。こちらを見ると、 T_B は d_{AF} の上昇と共に高くなることがわかる。これは、 d_{AF} の上昇と共に Mn-Ru の粒径が増大し熱安定性が向上するためであると考えられる。

(2) $Mn_3Rh/Co-Fe$

Fig.3-17に、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で、前項において J_K の Mn-Rh 成膜時基板温度 (T_{sub})依存性の検討において最大の J_K を示した $T_{sub} = 200^\circ C$ とした場合の、種々

の熱処理温度における、 J_K の反強磁性膜厚(d_{AF})依存性を示す。成膜直後と熱処理温度を $T_a = 250^\circ\text{C}$, 280°C , 300°C , 320°C , 340°C と加えていったときの種々の熱処理温度に対する変化を合わせて示す。これを見ると、成膜直後の試料では、いずれの d_{AF} においても J_K の大きさは 0.1 erg/cm^2 以下であり、熱処理温度が 250°C から各 d_{AF} における最適熱処理温度にかけて J_K は少しずつ上昇し、各 d_{AF} における最適熱処理温度以上の温度になると、 J_K は下降することがわかる。各 d_{AF} における最適熱処理温度は、 $d_{AF} = 5 \text{ nm}$ では 280°C , $d_{AF} = 7.5 \text{ nm}$ では 300°C , $d_{AF} = 10, 15, 20 \text{ nm}$ では 320°C である。また、各膜厚における J_K の最大値を比較すると、 d_{AF} の上昇と共に J_K は急激に増大し、 $d_{AF} = 7.5 \text{ nm}$ で極大の 7.9 erg/cm^2 を示し、その後 J_K の値は緩やかに下降する。これより、 $T_{\text{sub}} = 130^\circ\text{C}$ における MnRu の臨界膜厚(d_{AF}^{cr})は 7.5 nm 程度であることがわかった。

Fig.3-18 に、Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm の積層膜で、 $T_{\text{sub}} = 200^\circ\text{C}$ とした場合の各 d_{AF} における J_K の測定温度依存性を示す。各 d_{AF} の試料の熱処理条件は、 $d_{AF} = 5 \text{ nm}$ では $T_a = 280^\circ\text{C}$ 1 時間、 $d_{AF} = 7.5 \text{ nm}$ では $T_a = 300^\circ\text{C}$ 1 時間、 $d_{AF} = 10, 15, 20 \text{ nm}$ では $T_a = 320^\circ\text{C}$ 5 時間である。これを見ると、いずれの d_{AF} においても測定温度の上昇と共に J_K の値は徐々に減少し、 $d_{AF} = 5 \text{ nm}$ においては 280°C , $d_{AF} = 7.5 \text{ nm}$ においては 340°C , $d_{AF} = 10 \text{ nm}$ においては 360°C , $d_{AF} = 15 \text{ nm}$ においては 430°C , $d_{AF} = 20 \text{ nm}$ においては 460°C で J_K の値は 0 となる。Fig.3-19 に $J_K = 0$ となるブロッキング温度 (T_B) の d_{AF} 依存性を示す。こちらを見ると T_B は d_{AF} の上昇と共に高くなることがわかる。これは、 d_{AF} の上昇と共に Mn-Rh の粒径が増大し熱安定性が向上するためであると考えられる。

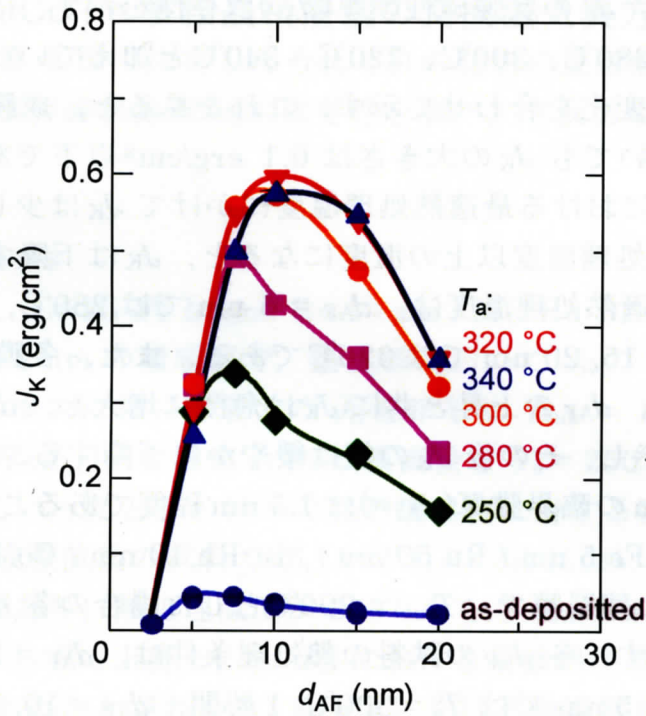


Fig. 3-14 Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (T_{sub} : 130°C)の積層膜で、種々の熱処理温度における、 J_K の反強磁性層厚(d_{AF})依存

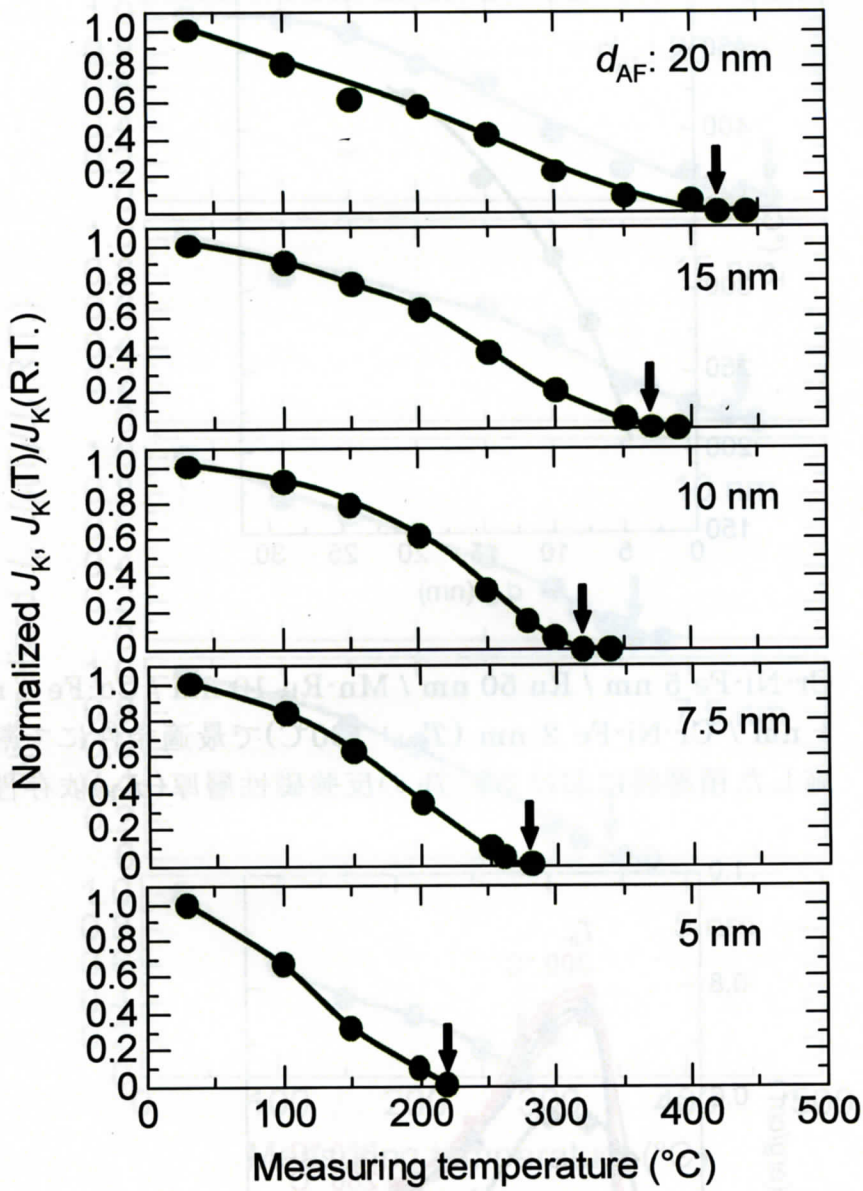


Fig. 3-15

Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm (T_{sub} : 130°C)で最適条件にて熱処理を施した積層膜における, J_K の測定温

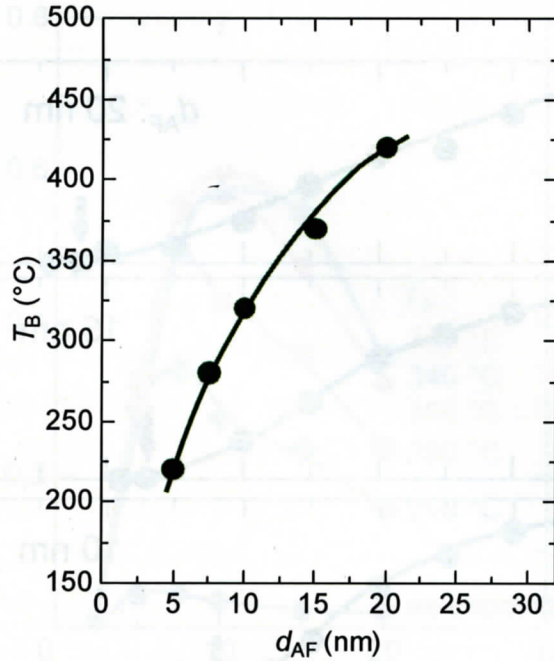


Fig. 3-16

Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Ru 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm ($T_{sub}: 130^{\circ}C$)で最適条件にて熱処理を施した積層膜における, T_B の反強磁性層厚(d_{AF})依存性.

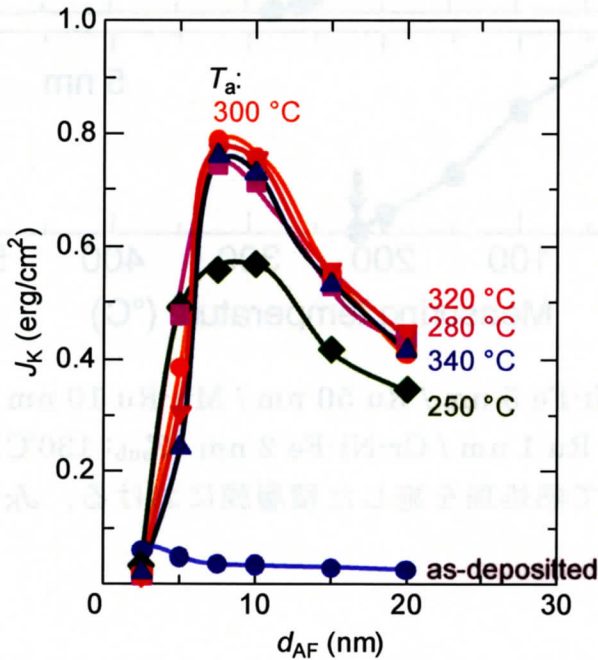


Fig. 3-17

Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm ($T_{sub}: 200^{\circ}C$)の積層膜で, 種々の熱処理温度における, J_K の反強磁性層厚(d_{AF})依存性

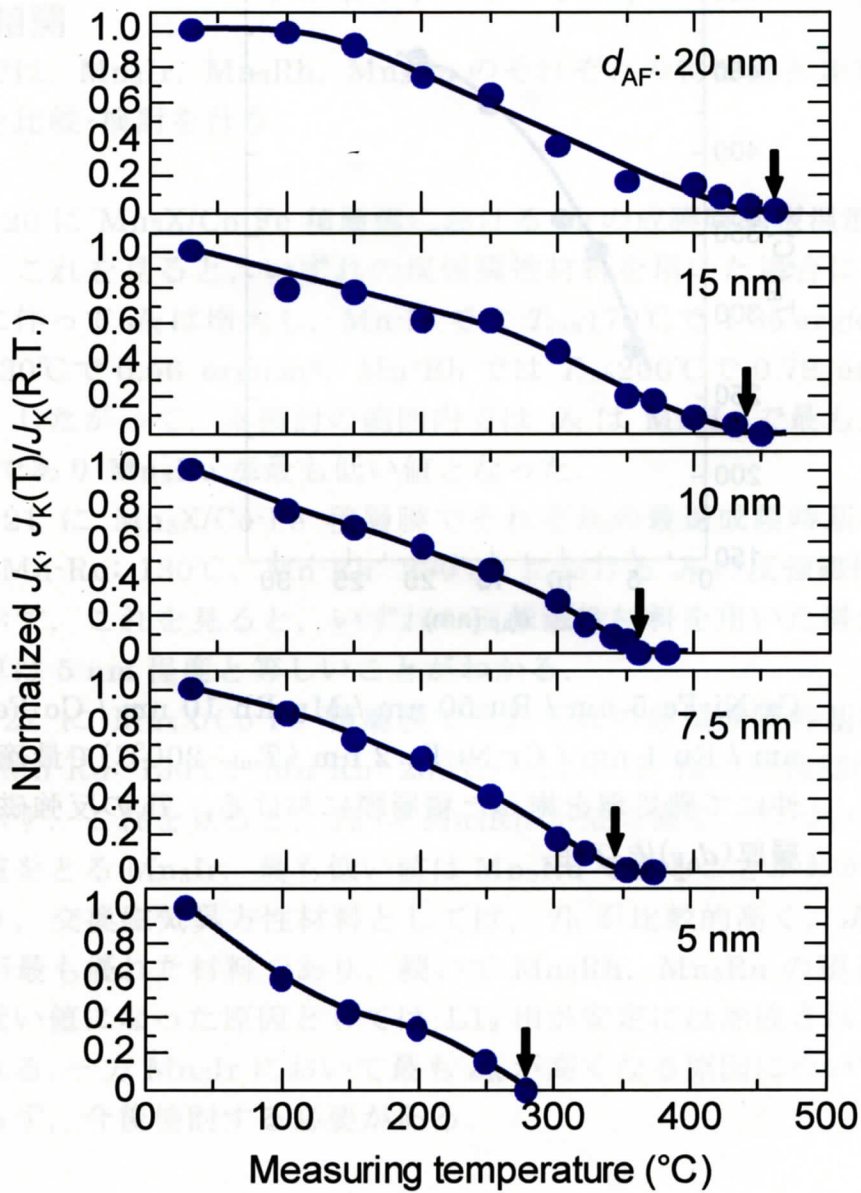


Fig. 3-18

Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm ($T_{sub}: 200^\circ\text{C}$)で最適条件にて熱処理を施した積層膜における, J_K の測定温度 (T)依存性.

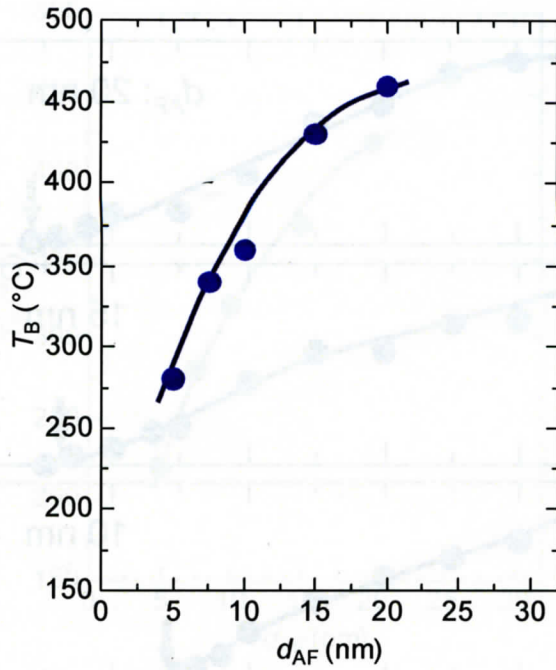


Fig. 3-19

Cr-Ni-Fe 5 nm / Ru 50 nm / Mn-Rh 10 nm / Co-Fe 4 nm / Ru 1 nm / Cr-Ni-Fe 2 nm ($T_{sub}: 200^\circ\text{C}$)で最適条件にて熱処理を施した積層膜における, T_B の反強磁性層厚(d_{AF})依存性.

3-3. Mn_3X ($X=Ir, Ru, Rh$)相の物性値と積層膜の交換磁気異方性との 相関

本項では、 Mn_3Ir , Mn_3Rh , Mn_3Ru のそれぞれの物性値と 3-1, 3-2 で得られた結果を比較・検討を行う。

Fig.3-20 に $Mn_3X/Co-Fe$ 積層膜における J_K の成膜時基板温度 (T_{sub}) 依存性を示す。これを見ると、いずれの反強磁性材料を用いた場合においても、 T_{sub} の上昇に伴って J_K は増大し、 $Mn-Ir$ では $T_{sub}170^\circ C$ で 1.35 erg/cm^2 , $Mn-Ru$ では $T_{sub}130^\circ C$ で 0.56 erg/cm^2 , $Mn-Rh$ では $T_{sub}200^\circ C$ で 0.79 erg/cm^2 で極大を取った。したがって、本検討の範囲内では J_K は Mn_3Ir で最も大きく、続いて Mn_3Rh であり Mn_3Ru が最も低い値となった。

Fig.3-21 に $Mn_3X/Co-Fe$ 積層膜でそれぞれの最適成膜時基板温度 ($Mn-Ir$: $170^\circ C$, $Mn-Ru$: $130^\circ C$, $Mn-Rh$: $200^\circ C$) における J_K の反強磁性膜厚 (d_{AF}) 依存性を示す。これを見ると、いずれの反強磁性材料を用いた場合においても、臨界膜厚は 5 nm 程度と等しいことがわかる。

Fig.3-22 に $Mn_3X/Co-Fe$ 積層膜でそれぞれの最適成膜時基板温度 ($Mn-Ir$: $170^\circ C$, $Mn-Ru$: $130^\circ C$, $Mn-Rh$: $200^\circ C$) における T_B の反強磁性膜厚 (d_{AF}) 依存性を示す。これを見ると、 T_B は Mn_3Rh が最も高く、つづいてわずかながらに低い値をとる Mn_3Ir , 最も低い値は Mn_3Ru であることがわかる。

以上より、交換磁気異方性材料としては、 T_B が比較的高く、 J_K が最も大きい Mn_3Ir が最も優れた材料であり、続いて Mn_3Rh , Mn_3Ru の順となる。 Mn_3Ru で最も低い値になった原因としては $L1_2$ 相が安定には形成されていないことが考えられる。一方 Mn_3Ir において最も J_K が高くなる原因については明らかになっておらず、今後検討する必要がある。

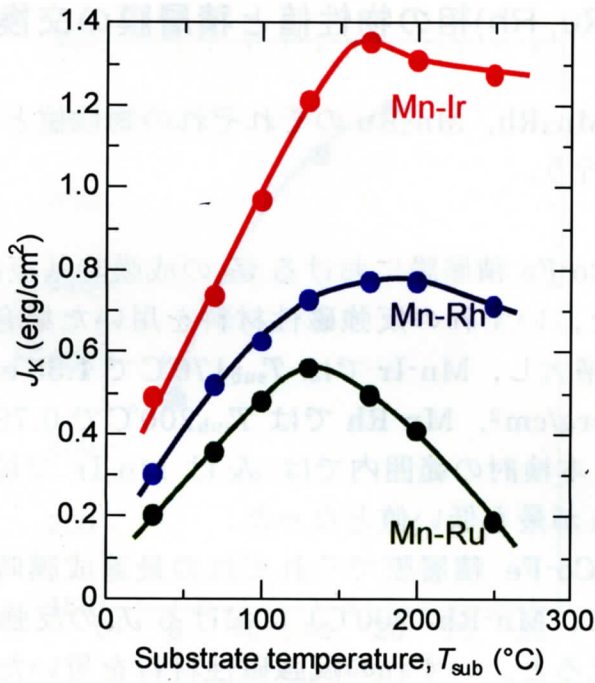


Fig. 3-20 $\text{Mn}_3\text{X}/\text{Co-Fe}$ 積層膜における J_K の T_{sub} 依存性.

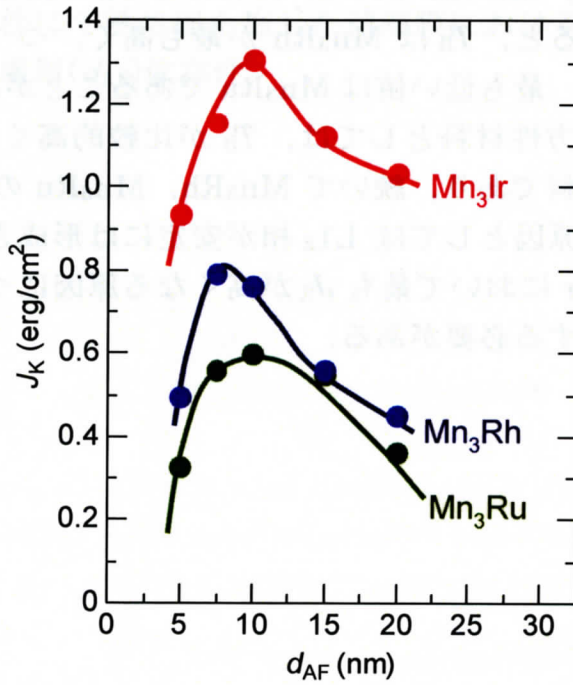


Fig. 3-21 $\text{Mn}_3\text{X}/\text{Co-Fe}$ 積層膜における J_K の d_{AF} 依存性.

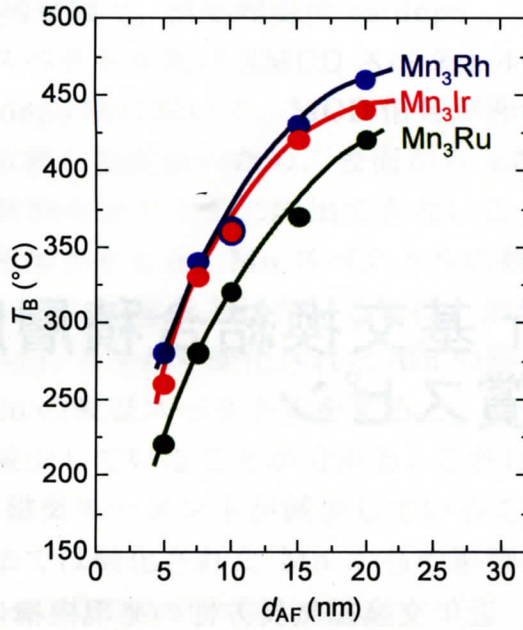


Fig. 3-22 $Mn_3X/Co-Fe$ 積層膜における T_B の d_{AF} 依存性.

第 4 節 MnIr 基交換結合積層膜中の Mn 非補償スピン

第 1 節で述べたように、近年交換磁気異方性の発現機構に関する模型が提案されてきた。しかし交換磁気異方性の発現機構について、未だ実験的に明確な回答が得られているとは言えない。そこで本章では、反強磁性体の非補償スピンの交換磁気異方性の磁場反転に対する非対称性を生み出す起源と考え、非補償スピンの起源に関する検討を行う。

4-1 においては、非補償スピン成分の同定を行う。本研究では XMCD を用い、非補償スピン成分の検出を検討した。まずは、非補償スピン成分の同定を行うために XMCD の二つの測定法、TEY 法及び TRM 法を比べ、どちらが非補償スピン成分を同定するに当り、正当性が高いかを検討した。そして、この XMCD により得られる MCD 信号には非補償スピン成分以外の情報も含まれる可能性があるため、MnIr/CoFe 積層膜の熱処理温度依存性により非補償スピン成分と他の影響の分離を目指す。

4-2 においては、交換結合膜の MnIr 膜厚や強磁性材料を変化させ、Mn 非補償スピンの起源に関する検討を行った。

4-1. Mn 非補償スピン成分の同定

本項では、XMCD より得られる XMCD 信号から Mn 非補償スピン成分の同定に取り組む。XMCD の測定において、二つの測定法、TEY 法ならびに TRM 法のどちらが、Mn 非補償スピン成分の測定に当たり、正当性が高いかを検討し、交換結合膜の熱処理温度依存性を用いて、MCD 信号から、Mn 非補償スピン成分以外の成分を取り除くことを検討した。

(1) TEY 法による MCD の熱処理温度依存性

Fig.4-1 に、全電子収量法により測定した、Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 /

Ru 1 / Ta 1 (nm)の積層膜で、熱処理温度 as-depo , 200°C , 250°C , 380°C とした試料の吸収スペクトル及び XMCD スペクトルを示す. Mn の吸収スペクトルを見ると、as-depo 時において、MCD 信号が非常に小さかった. これは全電子収量法が表面敏感な測定法のため、表面から 4.5nm 埋もれた MnIr 中で励起された光電子が試料外まで十分に脱出できないことによると考えられる. また、熱処理温度を増加させると、Mn スペクトルの強度が著しく増大し、380°C においてマルチプレットが観測された. これは、熱処理により表面に拡散し、イオン化している Mn、すなわち酸化された Mn の影響が支配的であることを示している. 一方、Co の吸収スペクトルを見ると、熱処理温度の上昇に伴い、ピーク強度は単調に減少していることが分かる. これは、CoFe 中に Mn が拡散したために、CoFe の磁気モーメントが減少していることが考えられる. 以上の事から、全電子収量法では酸化された Mn からの影響が支配的であり、検討したい Mn 非補償スピンの同定はできなかった.

(2) TRM 法による MCD の熱処理温度依存性

Fig.4-2 に、透過法により測定した、Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm)の積層膜で、熱処理温度 as-depo , 200°C , 250°C , 380°C とした試料の吸収スペクトル及び XMCD スペクトルを示す. Mn の吸収スペクトルを見ると、熱処理温度を増加させても、マルチプレットや著しく急激な Mn スペクトル強度の増加は観測されず、表面で酸化された Mn の影響がほとんど無視できることが分かった.

従って、埋もれた界面における Mn 非補償スピンの測定には、TRM 法が必須であると考えられる.

(3) Mn 非補償スピン成分の同定

以上の検討より、測定法には TRM 法が適していることが明らかとなった. 本項では、TRM 法により測定された Mn-MCD から Mn 非補償スピン成分の同定を行う.

Fig.4-3 に、(a) Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / Ru 3.5 / Ta 1 (nm) , (b) Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm)の積層膜で、XMCD スペクトルのピーク強度を吸収スペクトルのピーク強度で規格化したものを、それぞれの熱処理温度に対して示す. まず、強磁性なしの Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / Ru 3.5 / Ta 1 (nm) の積層膜を用いて、バックグラウンドについて検討を行った. as-depo から小さいながら、Mn の MCD 信号が見られた. そして、熱処理温度の上昇に伴い、わずかながら MCD は増大している. これは、(1)で述べたように、表面に拡散して酸化された Mn による MCD 成分であると考えられる. 従って、Mn 非補償ス

ピン成分の同定には、この MCD の大きさを、それぞれの熱処理温度に対して差し引く必要がある。次に、Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm) の積層膜を用いて、Mn 非補償スピン成分の同定を行う。熱処理温度に対する、Mn 及び Co の MCD 信号の変化を見ると、熱処理温度の上昇に伴い、Mn の MCD は増加し、Co の MCD は減少している。これは、強磁性層中へ拡散した Mn からの MCD 信号が重畳していることが考えられる。

以上のことから、Fig.4-4 に示すように Mn 非補償スピンは酸化及び拡散の起きていない as-depo 時の Mn-MCD が強磁性層との積層で誘起される Mn 非補償スピンであると同定出来る。ただし、熱処理温度 250°C 程度では、拡散の影響は小さいと考えられる。

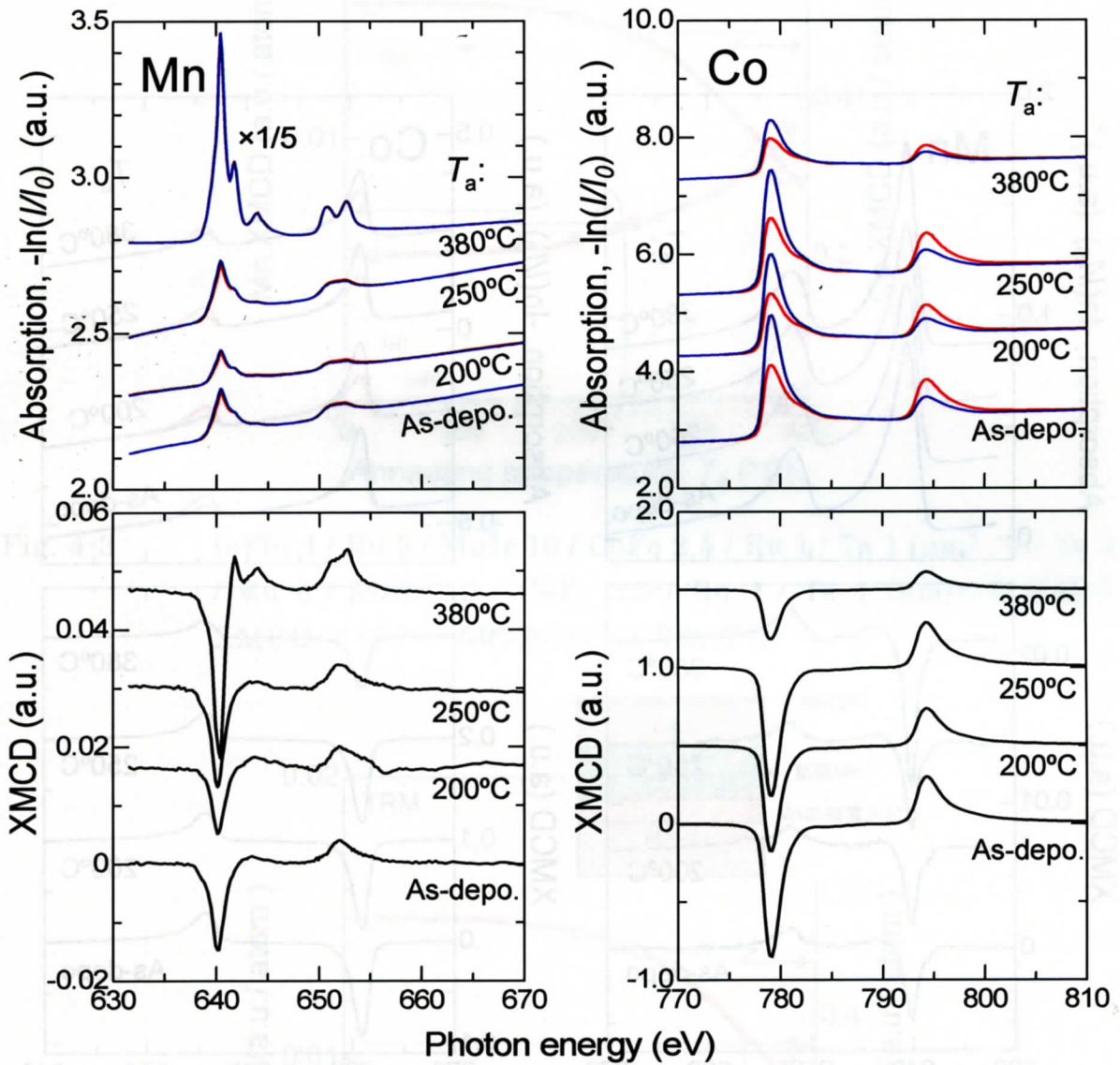


Fig. 4-1 TEY 法により測定した, Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm) の積層膜の熱処理温度 as-depo, 200°C, 250°C, 380°C における Mn-L_{2,3} と Co-L_{2,3} 吸収端付近の X 線吸収スペクトル及び XMCD スペクトル

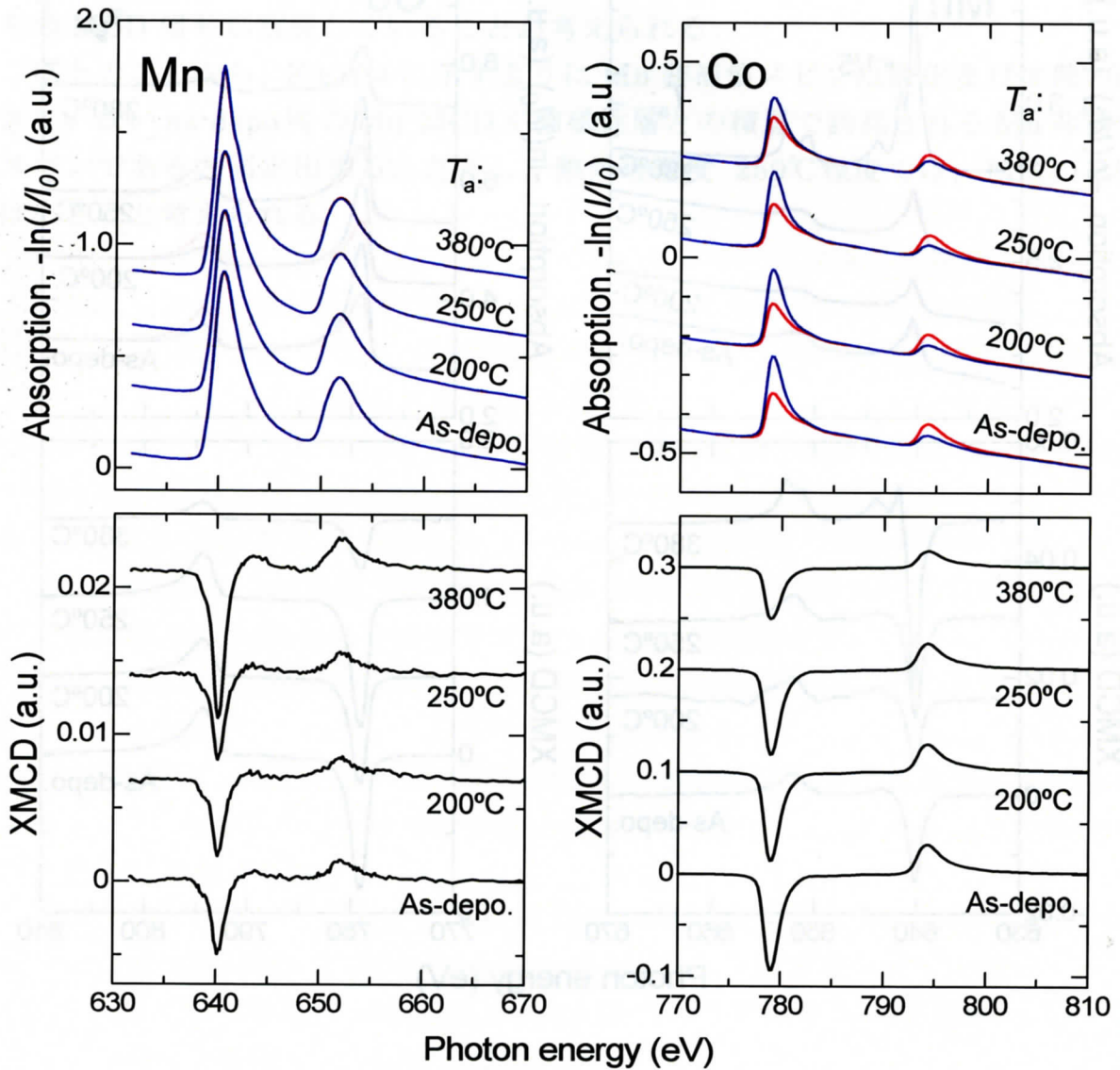


Fig. 4-2 TRM 法により測定した, Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm)の積層膜の熱処理温度 as-depo , 200°C , 250°C , 380°Cにおける Mn-L_{2,3}と Co-L_{2,3} 吸収端付近の X 線吸収スペクトル及び XMCD スペクトル

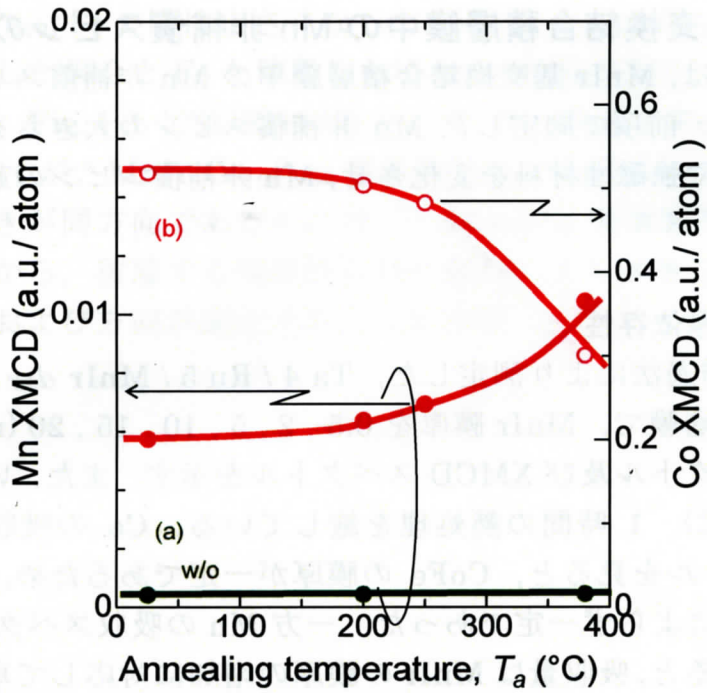


Fig. 4-3 (a) Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm) , (b) Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm) の積層膜の XMCD スペクトルの熱処理温度依存性

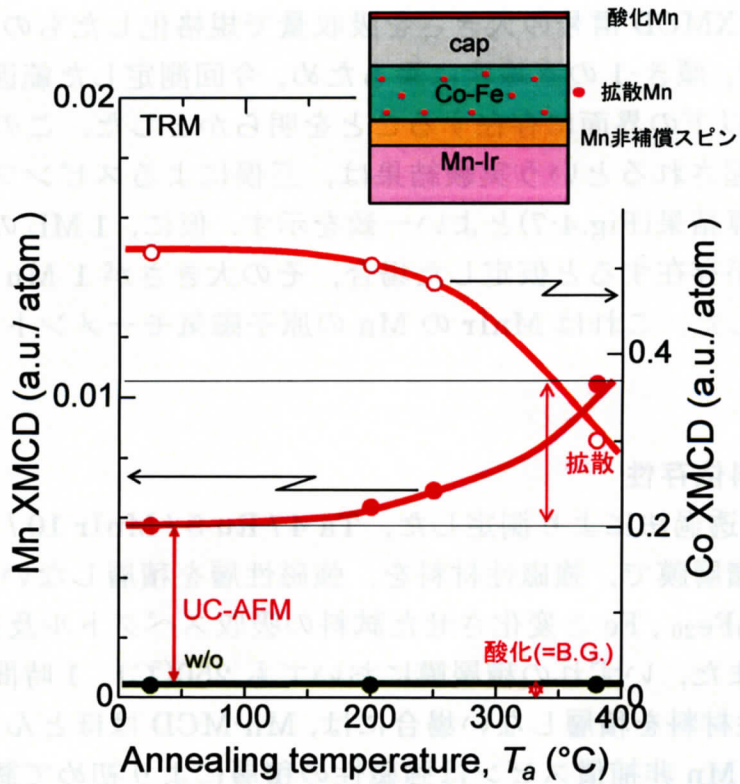


Fig. 4-4 Mn 非補償スピン成分の同定

4-2. MnIr 基交換結合積層膜中の Mn 非補償スピンの起源

本項においては、MnIr 基交換結合積層膜中の Mn 非補償スピンの起源に関する検討を行った。前項で同定した Mn 非補償スピンの大きさをを用い、交換結合膜の MnIr 膜厚や強磁性材料を変化させ、Mn 非補償スピンの起源に関する検討を行った。

(1) 反強磁性層厚依存性

Fig.4-5 に、透過法により測定した、Ta 4 / Ru 5 / MnIr d_{AF} / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm) の積層膜で、MnIr 膜厚を 0.5, 2, 5, 10, 15, 20 (nm) と変化させた試料の吸収スペクトル及び XMCD スペクトルを示す。また、いずれの積層膜においても 250(°C) 1 時間の熱処理を施している。Co の吸収スペクトル及び XMCD スペクトルを見ると、CoFe の膜厚が一定であるため、それぞれの大きさは MnIr 膜厚によらず一定であった。一方 Mn の吸収スペクトル及び XMCD スペクトルを見ると、吸収量は MnIr の膜厚の増加に対応して単調に増加した。しかし、XMCD の信号は MnIr 膜厚によらずほぼ一定値を示した。仮に MnIr 層全体に Mn 非補償スピが存在するのであれば、吸収量も XMCD 信号も MnIr 膜厚の増加に伴い単調に増加することが予想されるので、Mn 非補償スピンは MnIr/CoFe 界面にのみ存在することが明らかとなった。また Fig.4-6 に、MnIr 膜厚に対して、XMCD 信号の大きさを吸収量で規格化したものを示すが、MnIr 膜厚 2ML まで、傾き・1 の直線状に乗るため、今回測定した範囲においては少なくとも 2 ML 以下の界面に存在することを明らかとした。この Mn 非補償スピが界面に誘起されるという実験結果は、三俣によるスピンプラストラーションモデルの計算結果(Fig.4-7)とよい一致を示す。仮に、1 ML の界面にすべての非補償スピが存在すると仮定した場合、その大きさが 1 Mn あたり 0.9 μ_B であることを示した。これは MnIr の Mn の原子磁気モーメント 2.5 μ_B の 30%弱となる。

(2) 強磁性材料依存性

Fig.4-8 に、透過法により測定した、Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / FM 2.5 / 4 / Ru 1 / Ta 1 (nm) の積層膜で、強磁性材料を、強磁性層を積層しないもの、Co₇₀Fe₃₀, Co₉₀Fe₁₀, Ni₈₀Fe₂₀, Fe と変化させた試料の吸収スペクトル及び XMCD スペクトルを示す。また、いずれの積層膜においても 250(°C) 1 時間の熱処理を施している。強磁性材料を積層しない場合には、Mn-MCD はほとんど観測されない。このことより、Mn 非補償スピは強磁性の積層により初めて誘導されることが判明した。続いて強磁性材料を Co₇₀Fe₃₀, Co₉₀Fe₁₀, Ni₈₀Fe₂₀, Fe, と変化させた試料の Mn-MCD 信号を見ると、Mn 非補償スピンの大きさは、Co₇₀Fe₃₀,

$\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$, Fe の順に小さくなっている. さらには $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ を積層した場合と Fe を積層した場合の MCD 信号の向きが反転していることが分かる. Fig.4-9 に強磁性材料として $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$, Fe を用いた場合の ESMH 曲線を示すが, $\text{MnIr}/\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ 積層膜では, 強磁性体のスピンの向きと Mn 非補償スピンの向きが同方向であるのに対し, MnIr/Fe 積層膜では, 逆方向である. 以上のことから, 積層する強磁性材料の種類により誘導される Mn 非補償スピンの大きさおよび方向が変化することが判明した.

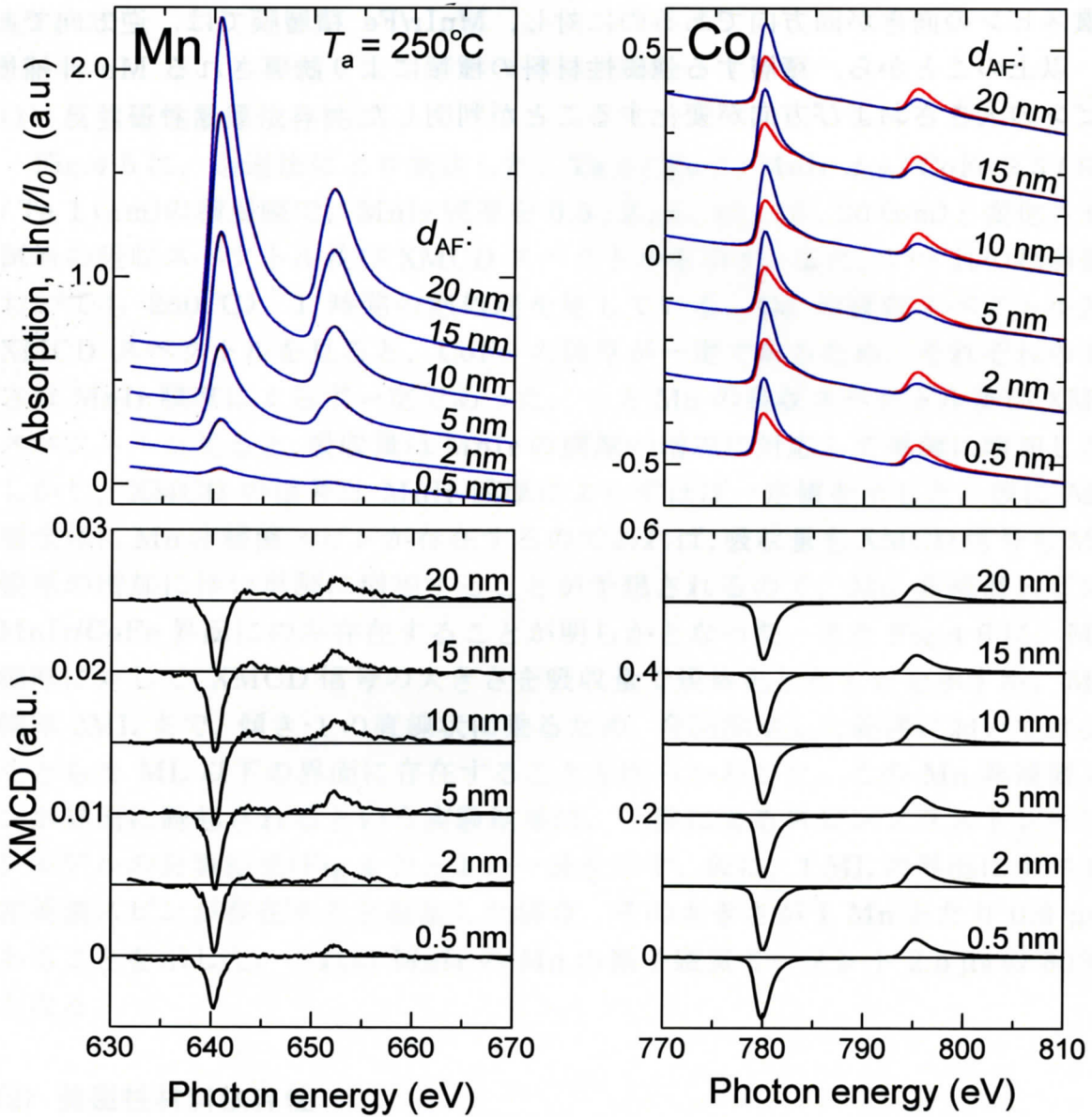


Fig. 4-5 Ta 4 / Ru 5 / MnIr d_{AF} / CoFe 2.5 / Ru 1 / Ta 1 (nm)の積層膜の MnIr 膜厚を 0.5 から 20 (nm)と変化させた試料の Mn-L_{2,3}と Co-L_{2,3}吸収端付近の X線吸収スペクトル及び XMCD スペクトル

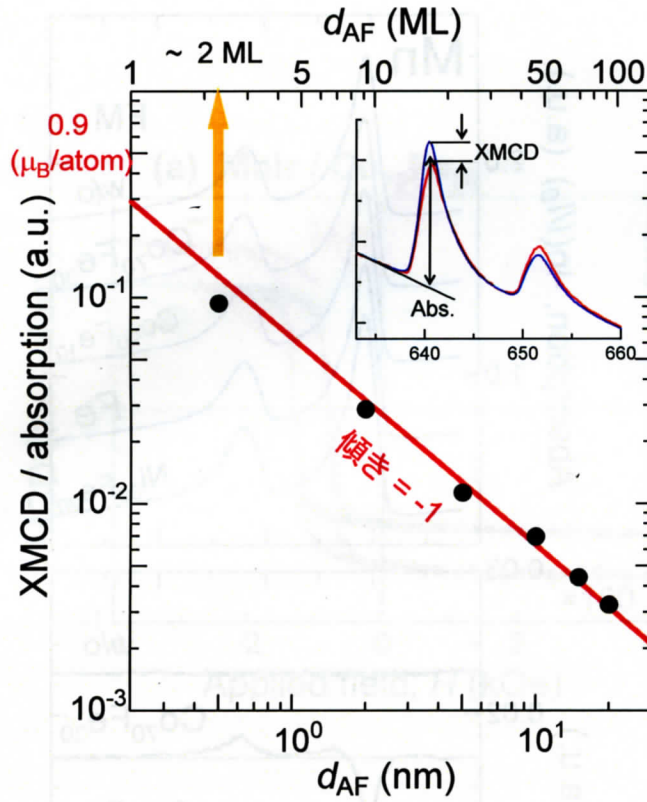


Fig. 4-6 MnIr 膜厚に対する Mn 非補償スピン

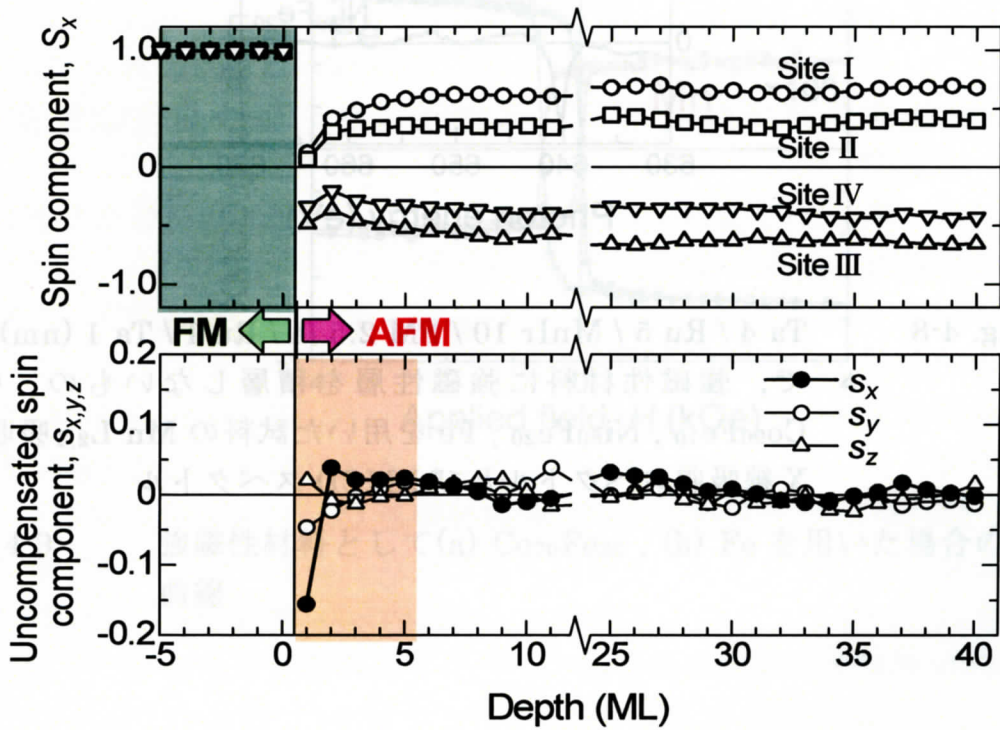


Fig. 4-7 強磁性/反強磁性積層膜の膜深さ方向での各原子層におけるスピン分布の計算結果

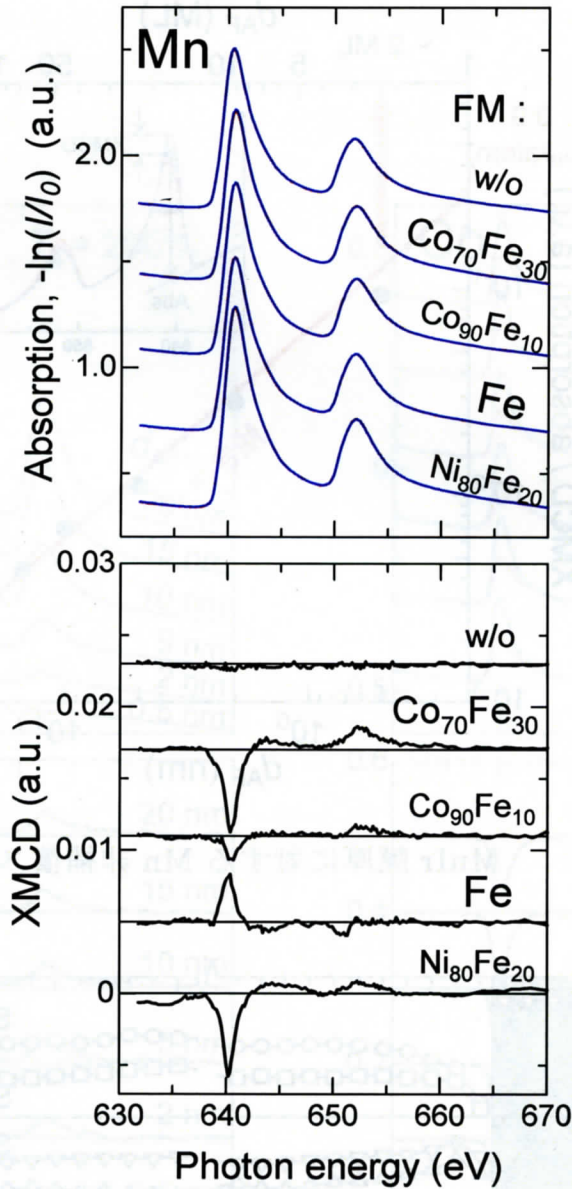


Fig. 4-8 Ta 4 / Ru 5 / MnIr 10 / FM 2.5 / 4 / Ru 1 / Ta 1 (nm) の積層膜で、強磁性材料に強磁性層を積層しないもの、 $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、Fe を用いた試料の Mn-L_{2,3} 吸収端付近の X 線吸収スペクトル及び XMCD スペクトル

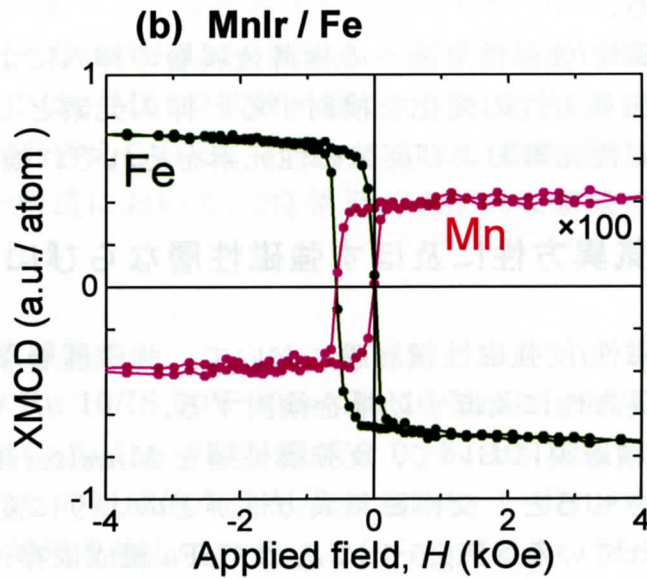
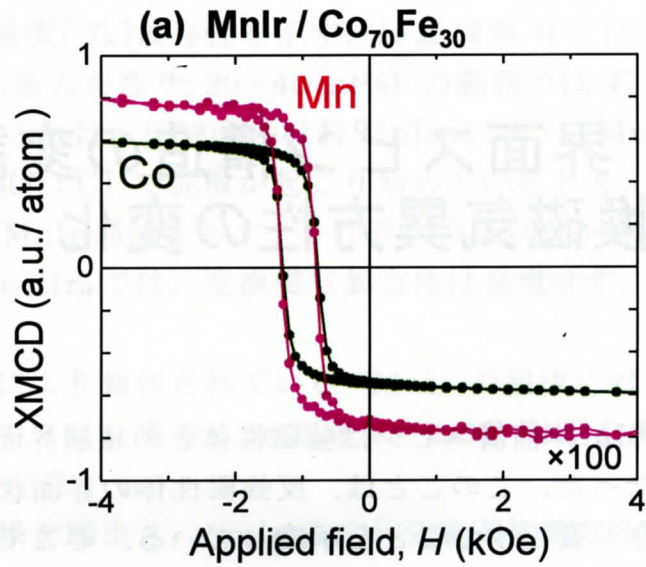


Fig. 4-9 強磁性材料として(a) $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$, (b) Fe を用いた場合の ESMH 曲線

第 5 節 界面スピン構造の変調による交換磁気異方性の変化

前節において Mn 非補償スピンは強磁性体との積層界面において誘起されることが明らかになった。このことは、反強磁性体の界面状況が変化すれば交換磁気異方性が大きく変化することを示唆している。そこで本章では、界面を積極的に界面を変化させ、そのときの交換磁気異方性の系統的な検討を行う。

5-1 では、MnIr/CoFe 積層膜における MnIr の組成が交換磁気異方性に及ぼす効果を検討する。

5-2 では反強磁性/強磁性界面への極薄金属層の挿入により界面変調を行いそのときの交換磁気異方性の変化を検討する。挿入元素として、非磁性元素、4f 希土類元素、強磁性元素および反強磁性元素をそれぞれ検討した。

5-1. 交換磁気異方性に及ぼす強磁性層ならびに反強磁性層の組成の影響

本項では、強磁性/反強磁性積層膜において、強磁性層ならびに反強磁性層の組成が交換磁気異方性に及ぼす効果を検討する。

MnIr/CoFe 基積層膜において、反強磁性層を $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ 組成に固定し、強磁性層の組成を変化させると、交換磁気異方性がどのように変化するかは、西川により報告がなされている。Fig.5-1 に J_k の CoFe 組成依存性を示すが、 $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ の場合が最も J_k が高くなり、得られた最大の J_k は 0.52 erg/cm^2 程度であった。

一方、MnIr/CoFe 積層膜において強磁性層を $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ 組成に固定し、反強磁性層の組成を変化させると、交換磁気異方性がどのように変化するかは未だ検討がなされていない。そこで本項では、MnIr/CoFe 積層膜の MnIr 組成を変化させ、MnIr 組成が交換磁気異方性にどのように影響するかについて検討を行う。さらに、単体で反強磁性体として振舞う Cr を MnIr に添加する (Mn-Cr)-Ir 組成依存性についても検討を行う。

(1) MnIr 組成依存性

Fig.5-2 に、Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜で、MnIr の Ir 組成を 0, 7, 14, 20, 25, 33, 40(at%)と変化させた試料における J_k の熱処理温度 (T_a)依存性を示す。Ir 組成が 0 ~ 14 (at%) の範囲では $T_a = 300(^{\circ}\text{C})$ で J_k は最大を取り、20 ~ 40 (at%) の範囲では $T_a = 360(^{\circ}\text{C})$ で J_k は最大を取っている。これは、反強磁性材料 MnIr において Mn-rich 側では Neel 温度が低いため、300 ($^{\circ}\text{C}$) で拡散が起こり始めていると考えられる。

Fig.5-3 に、 J_k の MnIr 組成を示す。それぞれのプロット点は最適熱処理温度時の J_k である。Mn₁₀₀Ir₀ では、交換磁気異方性は発現せず、Mn₈₀Ir₂₀ で J_k は最大を示している。

Fig.5-4 に佐久間により報告されている ²MnIr の組成に対するスピン構造の変化を示す。MnIr のスピン構造は Ir 組成 15 (at%) 付近を境に 3Q → 2Q へと変化していることが分かる。

Fig.5-3, 5-4 の結果を踏まえ、MnIr 組成が交換磁気異方性に及ぼす効果について考察を行う。Ir 比が 40 → 20 (at%) における J_k の増大は、Mn 元素単体が反強磁性材料に対し、Ir 元素は非磁性元素であることから、MnIr 合金における反強磁性の組成比が増すことに起因すると考えられる。

一方、Ir 比が 14 → 0 (at%) における J_k の減少は、一つには、本来 J_k が最大となる熱処理温度では、Mn の拡散が起こってしまうため、見かけ上小さい J_k が得られてしまうと考えられる。もう一つには、佐久間による計算結果を踏まえ、MnIr のスピン構造において、2Q 構造が支配的な領域では、大きな J_k が得られないと考えられる。

(2) (Mn-Cr)-Ir 組成依存性

Fig.5-5 に、Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnCrIr 10/CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜で、(Mn_{100-x}Cr_x)₇₅Ir₂₅ の Cr 組成を 0, 5, 10, 15, 20, 30(at%)と変化させた試料における J_k の組成依存性を示す。また、いずれの積層膜においても 280($^{\circ}\text{C}$) 1 時間の熱処理を施している。こちらを見ると、MnIr に添加する Cr 量の増加に伴い J_k は単調に減少している。

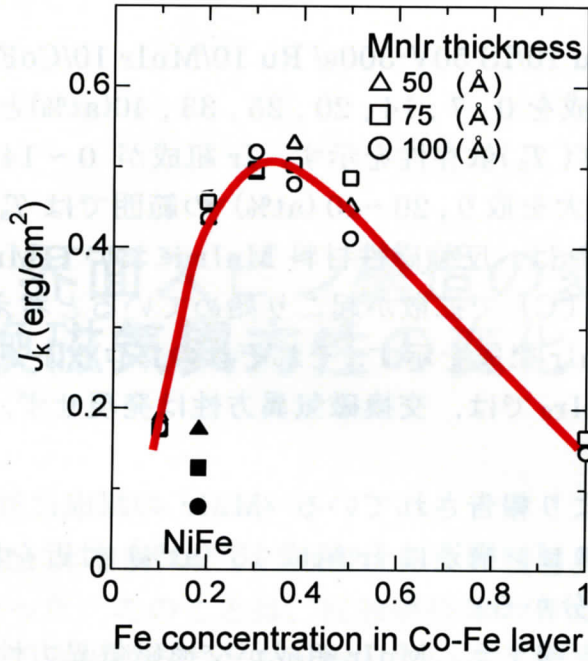


Fig. 5-1 Ta 5 / Ni-Fe 2 / Cu 50 / MnIr d_{AF} / Co_{100-x}Fe_x 4 / Cu 1 / Ta 2 (nm)の積層膜における J_k の Co-Fe 組成依存性. MnIr 膜厚 (d_{AF})は 50 Å(△)75 Å(□)100 Å(○)の 3 種類である.

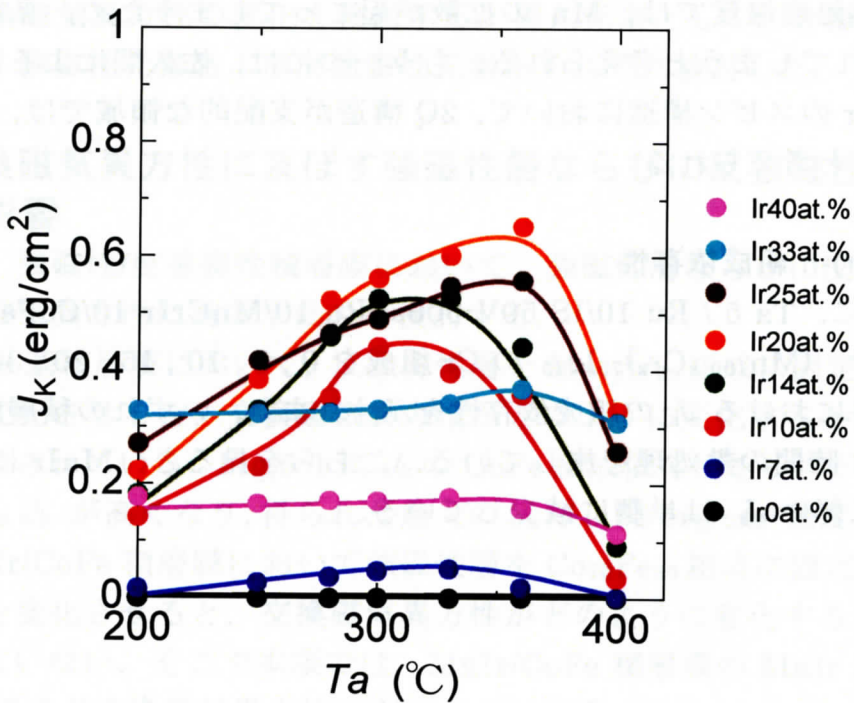


Fig. 5-2 Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜で, MnIr の Ir 組成を 0 ~ 40(at%)と変化させた試料における J_k の熱処理温度 (T_a)依存性

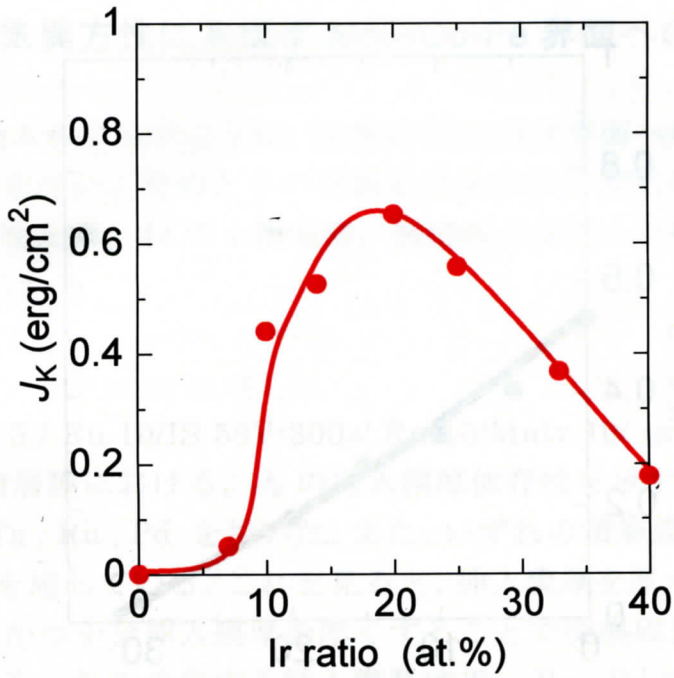


Fig. 5-3 Ta 5 / Ru 10 / IS 50V-300s / Ru 10 / MnIr 10 / CoFe 4 / Ru 4 (nm) の積層膜で、 J_K の MnIr の Ir 組成依存性

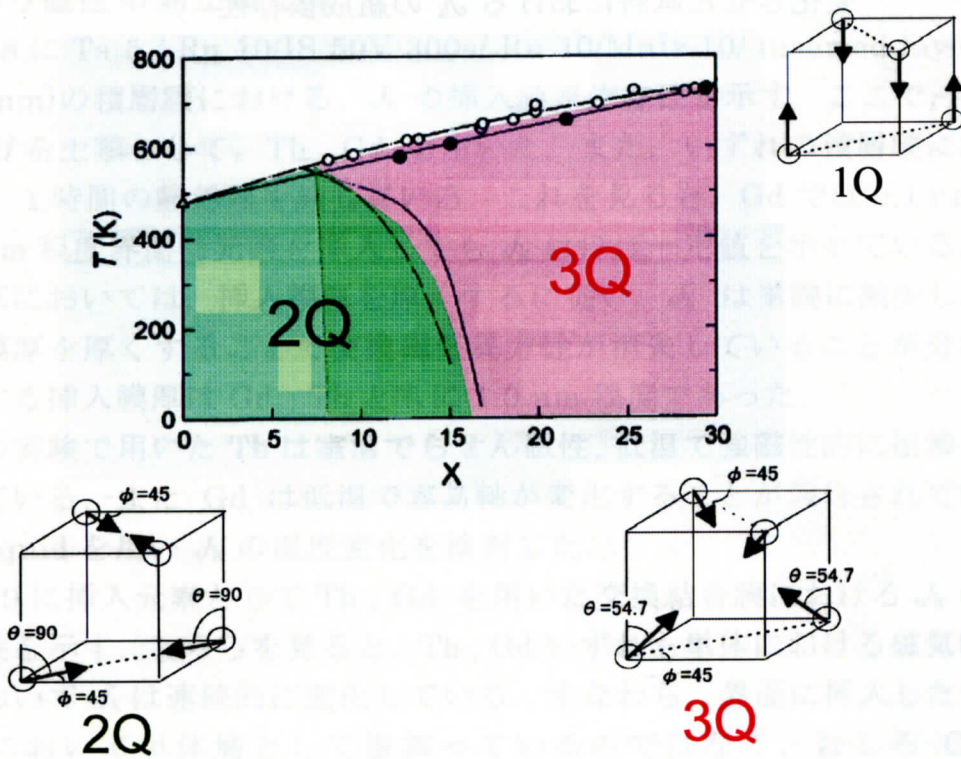


Fig. 5-4 disorder-MnIr の Ir 比に対する磁気相図

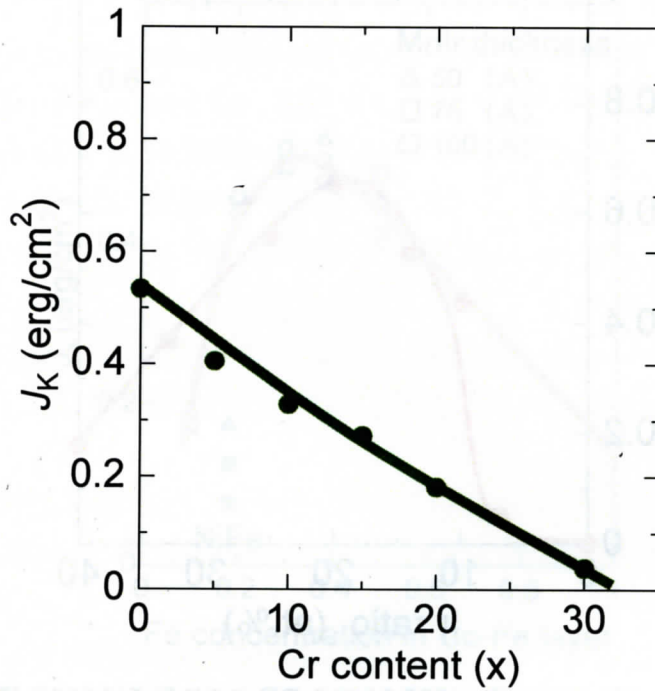


Fig. 5-5 Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnCrIr 10/CoFe 4/Ru 4 (nm) の積層膜で, $(\text{Mn}_{100-x}\text{Cr}_x)_{75}\text{Ir}_{25}$ の Cr 組成を 0 ~ 30(at%) と変化させた試料における J_k の組成依存性

5-2. 交換磁気異方性に及ぼす MnIr/Co-Fe 界面への極薄層挿入の効果

本項では、Fig.5-6 に示すように、反強磁性/強磁性界面への極薄金属層の挿入により界面変調を行い、そのときの交換磁気異方性の変化を検討する。挿入元素として、非磁性元素、4f 希土類元素、強磁性元素および反強磁性元素をそれぞれ検討した。

(1) 非磁性元素

Fig.5-7 に Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における、 J_k の挿入膜厚依存性を示す。ここで、挿入非磁性元素として、Ta, Ru, Pd を用いた。また、いずれの積層膜においても 280(°C) 1 時間の熱処理を施している。これを見ると、挿入膜厚を厚くするに従い、 J_k は単調に減少し、かつ十分挿入膜厚を厚くすることで交換磁気異方性が消失していることが分かる。 J_k の消失する挿入膜厚は Ta, Ru, Pd でそれぞれ 0.5 nm, 0.8 nm, 1.0 nm 程度であった。これは、非磁性元素を挟むことで、強磁性/反強磁性を積層することで生じる界面のスピンの状態が失われていくと考えられる。

(2) スペリ磁性 4f 希土類元素

Fig.5-8 に Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における、 J_k の挿入膜厚依存性を示す。ここで、挿入スペリ磁性 4f 希土類として、Tb, Gd を用いた。また、いずれの積層膜においても 280(°C) 1 時間の熱処理を施している。これを見ると、Gd では 0.1 nm, Tb では 0.3 nm 程度界面に元素を挿入しても J_k はほぼ一定値を示している。それ以上の膜厚においては、挿入膜厚を厚くするに従い、 J_k は単調に減少し、かつ十分挿入膜厚を厚くすることで交換磁気異方性が消失していることが分かる。 J_k の消失する挿入膜厚は Gd, Tb とともに 1.0 nm 程度であった。

今回の実験で用いた Tb は室温でらせん磁性、低温で強磁性的に振舞うことが知られている。また Gd は低温で容易軸が変化することが報告されている。そこで、Squid を用い J_k の温度変化を検討した。

Fig.5-9 に挿入元素として Tb, Gd を用いた交換結合膜における J_k の測定温度依存性を示す。こちらを見ると、Tb, Gd いずれも単体における磁気転移温度付近において J_k は連続的に変化している。すなわち、界面に挿入した Tb, Gd は界面において単体層として振舞っているのではなく、むしろ CoFeTb, CoFeGd 等の合金として機能しているのではないかと推察される。

(3) 強磁性 3d 遷移金属元素

Fig.5-10 に Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における、 J_k の挿入膜厚依存性を示す。ここで、挿入強磁性 3d 遷移金属元素として、Co, Fe を用いた。また、いずれの積層膜においても 280(°C) 1 時間の熱処理を施している。こちらを見ると、Co では 0.1 nm, Fe では 0.5 nm 程度界面に元素を挿入しても J_k はほぼ一定値を示している。それ以上の膜厚においては、 J_k は緩やかに減少している。しかし、これまでの材料と違い強磁性材料を挿入した場合には、挿入膜厚 2nm でも交換磁気異方性は消失していない。

この現象は、Fig.5-1 の CoFe 組成依存性で説明が可能である。Fig.4-1 が示すように、 J_k が最大値を示す Co₇₀Fe₃₀ を基準に、Fe-rich 側である Co₆₀Fe₄₀ の J_k と Co-rich 側である Co₈₀Fe₂₀ の J_k では大きさに差があり、Co₆₀Fe₄₀ の方が減少率が低い。この現象が、 J_k が一定となる Co, Fe の挿入膜厚範囲に相当すると考えられる。また十分挿入膜厚を厚くしても J_k が消失しない現象は、Co および、Fe 単体となっても交換磁気異方性が発現していることより説明可能である。

(4) 反強磁性 3d 遷移金属元素

Fig.5-11 に Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における、 J_k の挿入膜厚依存性を示す。ここで、挿入反強磁性 3d 遷移金属元素として、Cr 及び Mn を用いた。また試料には 280(°C) 1 時間の熱処理を施している。まず、Cr 層挿入について見てみると、 J_k は挿入膜厚に対し単調に減少している。

この現象は、Fig.5-5 に類似しており、Cr 層挿入は界面で Mn-Cr-Ir 合金となっていると推察できる。一方 Mn 層挿入について見てみると、 J_k は 0.5 nm までの Mn の挿入膜厚に対して増加し、1.0 nm 挿入時においても挿入無しの場合より高い J_k が得られた。特に 0.5 nm, およそ 2 ML 挿入時には最大の 0.81 erg/cm² と極めて高い J_k が導出されている。この現象は、Fig.5-4 に示した組成依存性では説明が困難である。Mn を挿入し、界面の組成が Mn₇₅Ir₂₅ から Mn リッチにシフトしたとしても、この J_k の大きさには到達し得ない。

この現象の考察として私は、 J_k のエンハンス効果の原因はスピン構造にあるのではないかと推察している。Fig.5-4 に示したように、MnIr のスピン構造は Mn₈₀Ir₂₀ 付近を境界とし、3Q → 2Q へと変化すると報告されている。そして MnIr 組成依存性の結果を踏まえ、私は MnIr が 2Q 構造では高い J_k は得られないと推察した。

しかし、Mn 層を挿入した場合には、界面挿入層が下地の MnIr の 3Q 構造に

ならって3Qを維持することによりMnリッチ側で高いJkが発現したのではないかと考察している(Fig.5-12)

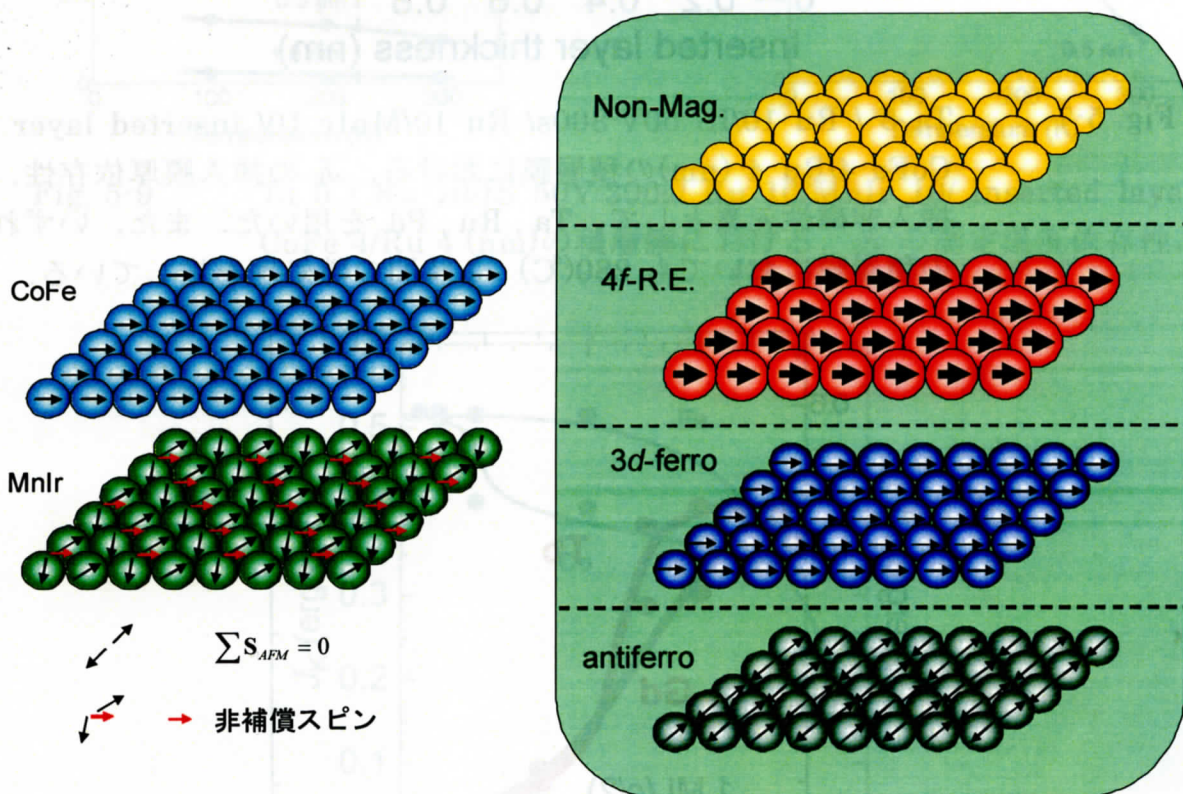


Fig. 5-6 反強磁性/強磁性界面への極薄金属層の挿入

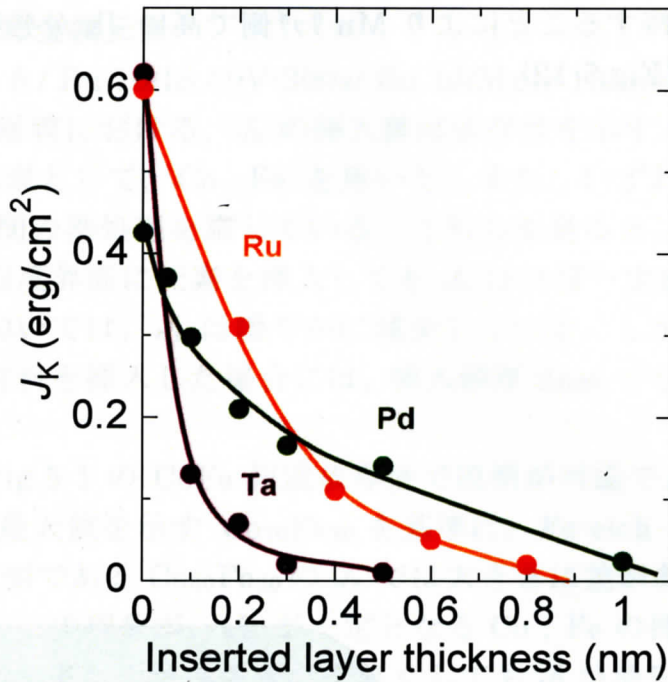


Fig. 5-7

Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における, J_k の挿入膜厚依存性. 挿入非磁性元素として, Ta, Ru, Pd を用いた. また, いずれの積層膜においても 280(°C) 1時間の熱処理を施している.

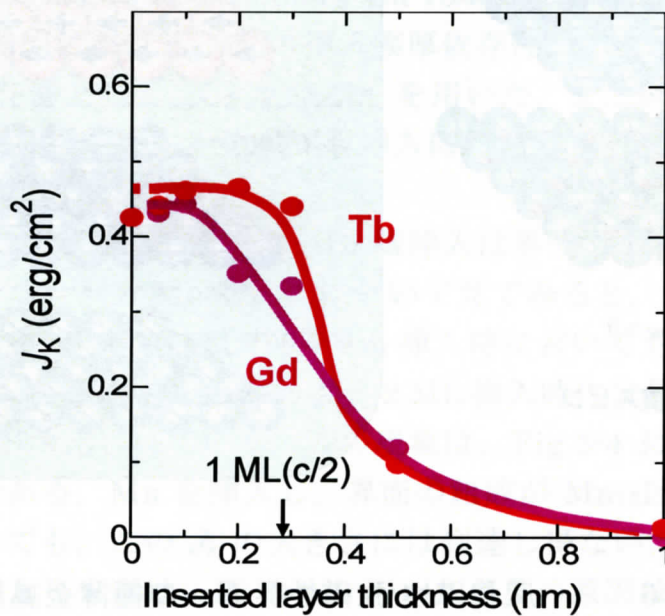


Fig. 5-8

Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における, J_k の挿入膜厚依存性. 挿入スぺリ磁性 4f 希土類元素として, Tb, Gd を用いた. また, いずれの積層膜においても 280(°C) 1時間の熱処理を施している.

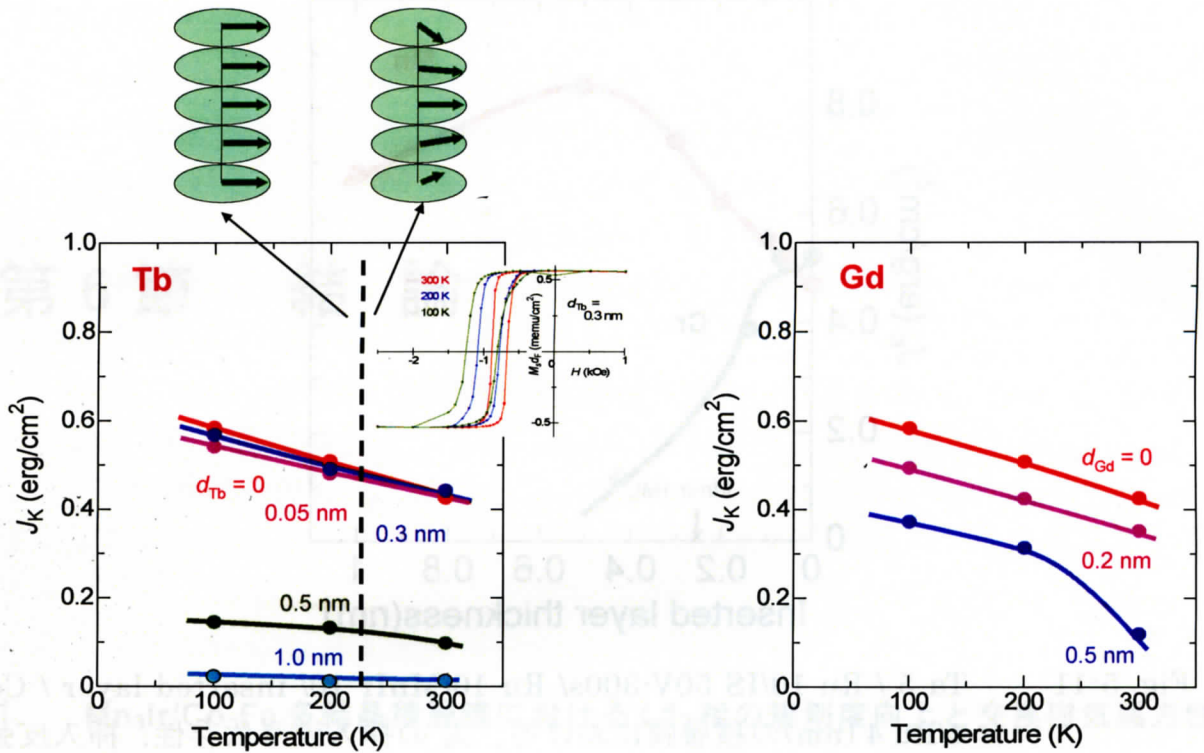


Fig. 5-9 Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における, J_k の測定温度依存性.

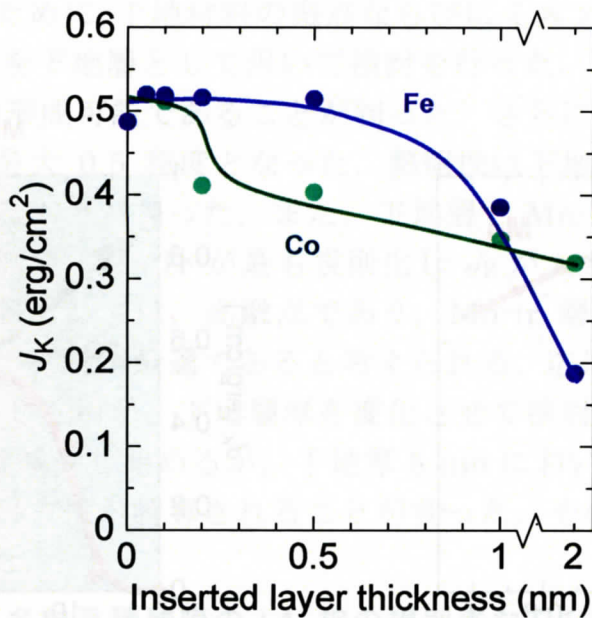


Fig. 5-10 Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における, J_k の挿入膜厚依存性. 挿入強磁性 3d 遷移金属元素として, Co, Fe を用いた. また, いずれの積層膜においても 280(°C) 1時間の熱処理を施している.

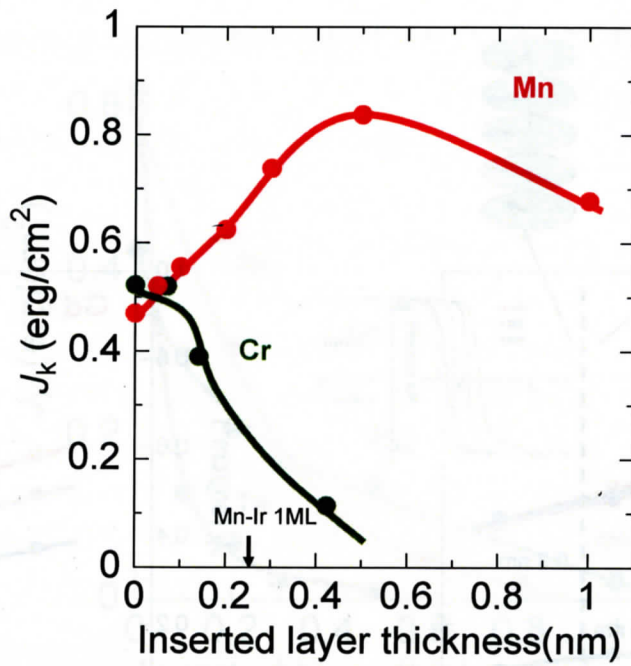


Fig. 5-11 Ta 5 / Ru 10/IS 50V-300s/ Ru 10/MnIr 10/ inserted layer / CoFe 4/Ru 4 (nm)の積層膜における, J_k の挿入膜厚依存性. 挿入反強磁性 3d 遷移金属元素として, Cr 及び Mn を用いた. また, いずれの積層膜においても 280(°C) 1 時間の熱処理を施している.

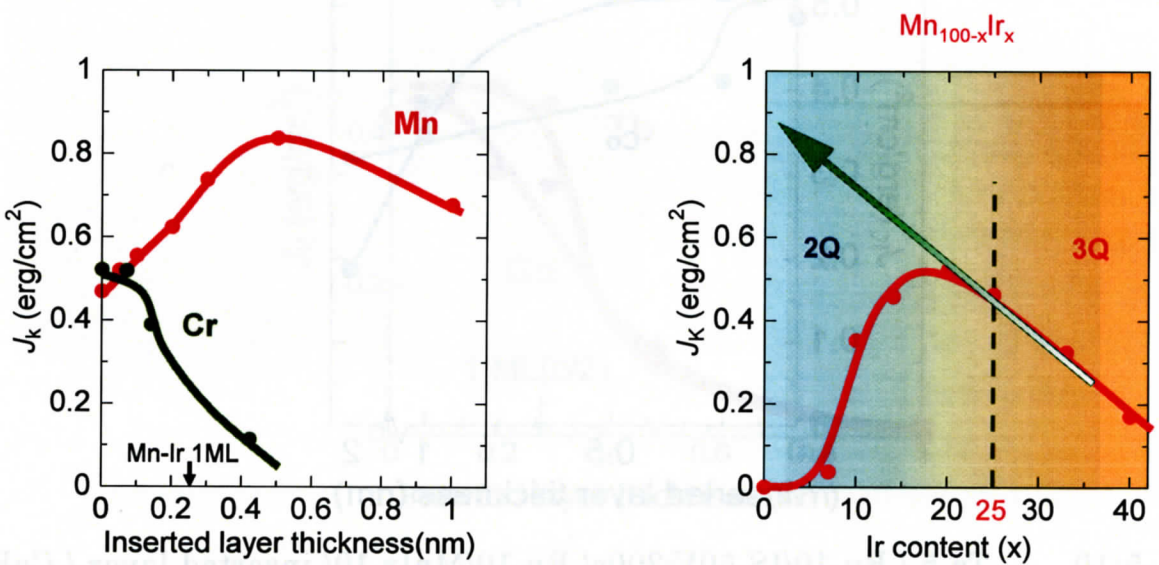


Fig. 5-12 Mn 層挿入による J_k のエンハンス効果の考察

第 6 節 結 論

1. $\text{Mn}_3\text{Ir}/\text{Co-Fe}$ 多結晶積層膜における L_{12} 相の規則度向上と交換磁気異方性

1-1 種々の下地層上に作製した $\text{Mn}_3\text{Ir}/\text{Co-Fe}$ 多結晶積層膜の L_{12} 相の規則度と交換磁気異方性

下地材料が Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べるために、下地材料の融点ならびにミスフィットが異なる、Cu, Ru, Pt, Ni, Au を下地層として用いて検討を行った。Cu, Ru, Pt, Ni, Au 下地上に Mn_3Ir の形成可能であることが判った。さらに、いずれの下地材料においても規則度は最大 0.5 程度となった。熱耐性は下地材料の融点が高くなるほど高くなっていることが判った。また、下地層と Mn-Ir 層のミスフィットがわずかにマイナス側で、Mn-Ir が最も規則化し J_K が大きくなると考えられる。以上より、下地材料としては、高融点であり、Mn-Ir 層とのミスフィットがわずかにマイナス側の材料が最適であると考えられる。応用の観点から、Ru および Cu を下地層として用い、下地層厚を変化させて検討を行った結果、下地厚 20 nm 以下で J_K は減少し始めるが、下地厚 5 nm においても J_K は約 $1\text{erg}/\text{cm}^2$ と大きな交換磁気異方性が誘導されることが判った。そのときの Mn_3Ir の規則度は約 0.4 であった。

1-2 $\text{Mn}_3\text{Ir}/\text{Co-Fe}$ 多結晶積層膜の L_{12} 相の規則度ならびに交換磁気異方性に及ぼす組成の影響

交換結合膜における Mn-Ir 層の Ir 組成を 15 at.% 付近から 35 at.% 付近まで変化させて、Ir 組成が Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について検討を行った。Ir 組成 20~30 at.% の広い組成範囲で安定

に Mn_3Ir を形成し、そのときの規則度は 0.5 程度でほぼ一定であり、 J_K は約 1 erg/cm^2 以上であることが判った。

1-3 $Mn_3Ir/Co-Fe$ 多結晶積層膜の $L1_2$ 相の規則度ならびに交換磁気異方性に及ぼす成膜条件の影響

$Mn-Ir$ 成膜時の不純物分圧，ならびにプロセスガス圧を変化させ，これらが Mn_3Ir の規則度ならびに交換結合膜の交換磁気異方性に及ぼす影響について調べ， Mn_3Ir 形成の鍵となるプロセスパラメータについて検討を行った． $Mn-Ir$ 成膜時の不純物分圧を変化させて検討を行った結果，極高真空から酸素分圧 10^{-7} Torr の範囲で Mn_3Ir は安定に形成され，そのときの規則度は 0.5 程度で一定であり， J_K は約 1 erg/cm^2 で一定となった．一方で， $Mn-Ir$ 成膜時プロセスガス圧を変化させて検討を行った結果，低ガス圧では Mn_3Ir の形成が確認されず， 10 mTorr 以上の高ガス圧で Mn_3Ir の形成が確認された．更に， $Mn-Ir$ 成膜時プロセスガス圧が高くなるに従い， Mn_3Ir の規則度ならびに J_K がわずかながらに上昇することが判った．以上より， Mn_3Ir 形成のために熱エネルギーアシストに次いで重要な因子は， $Mn-Ir$ 成膜時のプロセスガス圧であることが判った。

2. $Mn_3Ir(X=Ru, Rh)/Co-Fe$ 多結晶積層膜の作製とその交換磁気異方性

2-1 $Mn_3X/Co-Fe$ 多結晶積層膜の作製と $L1_2$ 相の規則度

$Mn-X(Rh, Ru)$ 成膜時に熱エネルギーアシストを行い， $L1_2$ 相形成を目指す．作製した試料の，交換磁気異方性，ならびに構造を調べ， $L1_2$ 相形成の有無を検討した．次に，添加元素組成 25 at.% が $L1_2$ 相形成のために最適であるか検討するため， $Mn-X$ の添加元素組成を変化させ，交換磁気異方性の変化を調べ，最適組成を決定した．それぞれの反強磁性材料を用いた交換結合膜において， 200°C から 400°C の範囲で熱処理を施し，最適熱処理温度における J_K ならびに T_B を調べた結果， $Mn-Rh$ ， $Mn-Ru$ ともに以下に示すように， $L1_2$ 相形成により J_K ならびに T_B が向上した．

	J_K (erg/cm ²)	T_B (°C)
Mn-Rh	0.30 → 0.77	260 → 360
Mn-Ru	0.20 → 0.56	240 → 320

(disorder→order)

最適組成は， $Mn-Rh$ では Rh 組成 20 at.% 付近， $Mn-Ru$ では Ru 組成 28 at.% 付近であることが判った．それぞれの反強磁性材料において成膜時に熱エネルギーアシストを行い，構造解析を行った結果， $Mn-Rh$ では基板温度 200°C 以上で Mn_3Rh の規則格子線が観測された．一方 $Mn-Ru$ については更なる検討の余

地が残った。

2-2 $Mn_3X/Co-Fe$ 多結晶積層膜の交換磁気異方性

2-1 で決定したそれぞれの材料の最適熱処理温度における交換磁気異方性の反強磁性膜厚(d_{AF})依存性を調べ、各反強磁性材料の諸特性を調べた。

$Mn-Rh$, $Mn-Ru$ とともに、反強磁性膜厚の増加に伴い J_K は増大し、10 nm 付近で極大値を示した後、 J_K は緩やかに下降した。また、 T_B に関しては、反強磁性層厚の増加に伴い単調に増加した。

2-3 $Mn_3X(X=Ir, Rh, Ru)$ 相の物性値と積層膜の交換磁気異方性との相関

Mn_3Ir , Mn_3Rh , Mn_3Ru のそれぞれの物性値と第 2 節、第 3 節で得られた結果を比較・検討を行い、高性能反強磁性材料の設計指針を示した。 $Mn-Ir$, $Mn-Rh$, $Mn-Ru$ を比較すると、いずれの反強磁性材料を用いた場合でも交換結合膜の臨界膜厚は 5 nm 程度と等しく、本研究の範囲では、反強磁性材料としては J_K の最も大きい $Mn-Ir$ が最も優れた材料であると言える。

3. $MnIr$ 基交換結合積層膜中の Mn 非補償スピン

3-1 Mn 非補償スピン成分の同定

全電子収量法により熱処理温度を変化させた交換結合膜の Mn 非補償スピンの同定を検討した。まず as-depo の試料においては、MCD 信号が非常に小さかった。これは、 $MnIr$ 中で励起された光電子が試料外まで十分に脱出できないことによると考えられる。熱処理温度を増加させると Mn スペクトルの強度が著しく増大し、高温においてマルチプレットが観測された。これは、 Mn が熱処理により表面まで到達し酸化されてしまっていることを意味する。全電子収量法では酸化された Mn からの影響が支配的であり、検討したい Mn 比補償スピンの同定はできなかった。

透過法により熱処理温度を変化させた交換結合膜の Mn 非補償スピンの同定を検討した。まず as-depo においても熱処理温度を増加させた試料においてもマルチプレットや著しく急激な Mn スペクトル強度の増加は観測されず、表面で酸化された Mn の影響がほとんど無視できることがわかった。

以上のことから、透過法を用いて非補償スピンの同定を行った。強磁性層なしの試料において $Mn-MCD$ の熱処理温度依存性の結果から、極わずかな酸化成分を除去した。

$Mn-MCD$ 信号は熱処理温度の増加に伴い増加した。 $Co-MCD$ 信号がそれに対応して減少していることから、増加した $Mn-MCD$ の成分は強磁性体 $CoFe$ 中に拡散し強磁性的に振舞っている Mn に起因する成分であると同定された。

以上のことから、酸化および拡散の生じていない as-depo.時に観測される Mn-MCD 信号が Mn 非補償スピンであると同定した。

3-2 MnIr/Co-Fe 基積層膜中の Mn 非補償スピンの起源

Co の吸収および XMCD の大きさは MnIr 膜厚によらず一定であった。Mn では、吸収量は MnIr の膜厚の増加に対応して単調に増加した。一方、XMCD の信号は MnIr 膜厚によらずほぼ一定値を示した。このことから、Mn 比補償スピンの MnIr/CoFe 界面にのみ存在することが明らかとなった。今回測定した範囲においては少なくとも 2 ML 以下の界面に存在することを明らかとした。この Mn 非補償スピンの界面に誘起されるという実験結果は、三俣によるスピンフラストレーションモデルの計算結果とよい一致を示す。

また、1 ML の界面にすべての非補償スピンの存在すると仮定した場合、その大きさが 1 Mn あたり $0.9 \mu_B$ であることを示した。これは MnIr の Mn の原子磁気モーメント $2.5 \mu_B$ の 30%弱となる。

強磁性材料を積層しない場合には、Mn-MCD はほとんど観測されなかった。このことは、非補償スピンは強磁性の積層により初めて誘導されることが明らかになった。続いて強磁性材料を $Co_{70}Fe_{30}$ 、 $Co_{90}Fe_{10}$ 、Fe、NiFe と変化させて Mn 非補償スピンを調査した。その結果、Mn 非補償スピンの大きさは、 $Co_{70}Fe_{30}$ 、NiFe、 $Co_{90}Fe_{10}$ 、Fe の順に小さくなることがわかった。さらには $Co_{70}Fe_{30}$ 、NiFe、 $Co_{90}Fe_{10}$ を積層した場合には、強磁性体のスピンの向きが同方向であるのに対し、Fe を積層した場合には、逆方向であることが明らかとなった。以上のことから、積層する強磁性材料の種類により誘導される Mn 非補償スピンの大きさおよび方向が変化することが明らかになった。

3-3 交換磁気異方性に及ぼす強磁性層ならびに反強磁性層の組成の影響

MnIr/強磁性積層膜において反強磁性層を $Mn_{75}Ir_{25}$ 組成に固定して Ni-Fe および Co-Fe の組成を変化させ、交換磁気異方性を調査した。その結果、強磁性材料が $Co_{70}Fe_{30}$ の場合が最も J_k が高くなることがわかった。得られた最大の J_k は 0.52 erg/cm^2 程度であった。

強磁性材料を最も J_k の高くなる $Co_{70}Fe_{30}$ に固定して Mn-Ir の組成を変化させた。その結果、 $Mn_{80}Ir_{20}$ 組成が最も J_k の高くなる Mn-Ir 組成であることが明らかになった。得られた最大の J_k は 0.55 erg/cm^2 程度であった。

4. 交換磁気異方性に及ぼす MnIr/Co-Fe 界面への極薄層挿入の効果

4-1 非磁性元素

非磁性元素として Ru、Ta、Pd を選択し、交換磁気異方性の変化を検討した。

いずれの材料においても非磁性元素の挿入膜厚の増加にともない単調に J_k は減少し、最終的に消失した。 J_k の消失する挿入膜厚は Ta, Ru, Pd でそれぞれ 0.5 nm, 0.8 nm, 1.0 nm 程度であった。

4-2 4f 希土類元素

4f 希土類元素として Gd および Tb を選択し、交換磁気異方性の変化を検討した。 Gd では 0.1 nm, Tb では 0.3 nm 程度界面に元素を挿入しても J_k はほぼ一定値を示すことが明らかになった。 それ以上の膜厚においては J_k は単調に減少し、最終的に消失した。 J_k の消失する挿入膜厚は Gd, Tb とともに 1.0 nm 程度であった。

Tb を挿入した試料において J_k の温度変化を検討した。 J_k は、測定温度の低下にともない単調に増加した。 Tb 単体における磁気転移温度付近において J_k は連続的に変化していることから、Tb は単体よりはむしろ CoFeTb 等の合金として機能しているのではないかと推察される。

4-3 強磁性元素

強磁性元素として Fe および Co の挿入を検討した。 いずれにおいても、組成依存性で最大を示した Fe₇₀Co₃₀ の値から緩やかに減少した。 強磁性材料を挿入した場合には、 J_k は 2 nm 以下の範囲で消失しなかった。 これは組成依存性で説明されると考えられる。

4-4 反強磁性元素

反強磁性材料として Cr および Mn の挿入を検討した。 Cr を挿入した場合には、 J_k は挿入膜厚の増加にともない単調に減少した。 Mn-Ir-Cr 三元組成における Cr 量依存性を検討した結果、 J_k は Cr 量の増加にともない単調に減少していた。 このことから、 Cr 層挿入効果は Mn-Ir-Cr の組成依存性による効果であると考えられる。

Mn を挿入した場合には、 J_k は 0.5 nm までの Mn の挿入膜厚に対して増加し、 1.0 nm 挿入時においても挿入無しの場合より高い J_k が得られた。 特に 0.5 nm, およそ 2 ML 挿入時には最大の 0.81 erg/cm² と極めて高い J_k が導出された。

参 考 文 献

- ¹ Ed Grochowski, "IBM Leadership in Disk Storage Technology"
- ² 久保川昇, 日経エレクトロニクス, 2001. 8. 13.
- ³ R. P. Hunt: *IEEE Trans. Magn.*, **7**, 150 (1971).
- ⁴ T. R. MacGuire and R. I. Potter: *IEEE Trans. Magn.*, **11**, 1018 (1975).
- ⁵ M. N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas: *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472 (1988).
- ⁶ G. Binasch, P. Grunberg, F. Saurenbach and W. Zinn: *Phys. Rev. B*, **39**, 4828 (1989).
- ⁷ M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau and F. Petroff: *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472 (1988).
- ⁸ B. Diney, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit and D. Mauri: *Phys. Rev. B*, **43**, 1297 (1991).
- ⁹ B. Diney, V. S. Speriosu, B. A. Gurney, S. S. P. Parkin, D. R. Wilhoit, K. P. Roche, S. metin, D.T. Peterson and S. Nadimi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **93**, 101 (1991).
- ¹⁰ B. Diney, V. S. Speriosu, S. Metin, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart and D. R. Wilhoit: *J. Appl. Phys.*, **69**, 4774 (1991).
- ¹¹ W. H. Meiklejohn and C. P. Bean: *Phys. Rev.*, **105**, 904 (1957).
- ¹² J. Inoue, A. Oguri and S. Maekawa: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60**, 376 (1991).
- ¹³ J. Inoue, A. Oguri and S. Maekawa: *J. Magn. Magn. Mater.*, **104-107**, 1883 (1992).
- ¹⁴ H. Itoh, J. Inoue and S. Maekawa: *Phys. Rev. B*, **47**, 5809 (1993).
- ¹⁵ W. H. Meiklejohn and C. P. Bean: *Phys. Rev.*, **102**, 1413 (1956).
- ¹⁶ W. H. Meiklejohn and C. P. Bean: *J. Appl. Phys.*, **33**(Suppl.), 1328 (1962).
- ¹⁷ M. Tsunoda and M. Takahashi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **28**, 55 (2004).
- ¹⁸ K. Hoshino, R. Nakatani, H. Hoshiya, Y. Sugita, and S. Tsunashima : *Jpn. J. Appl. Phys.*(Part 1), **35**, 607 (1996).
- ¹⁹ H. N. Fuke, K. Saito, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, and M. Sahashi: *J. Appl. Phys.*, **81**, 4004 (1997).
- ²⁰ T. Lin, C. Tsang, R. E. Fontana, and J. K. Howard: *IEEE Trans. Magn.*, **31**, 2585

- (1995)
- 21 M. Saito, Y. Kakihara, T. Watanabe, and N. Hasegawa: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **21**, 505 (1997).
 - 22 M. Pakala, Y. Huai, G. Anderson, and L. Miloslavsky: *J. Appl. Phys.*, **87**, 6653 (2000).
 - 23 R. Nakatani, K. Hoshino, S. Noguchi, and Y. Sugita: *Jpn. J. Appl. Phys. (Part 1)*, **33**, 133 (1994).
 - 24 K. Yagami, M. Tsunoda, and M. Takahashi: *J. Appl. Phys.*, **89**, 6609 (2001).
 - 25 A. J. Devasahayam, P. J. Sides, and M. H. Kryder: *J. Appl. Phys.*, **83**, 7219 (1998).
 - 26 K. Yagami, M. Tsunoda, S. Sugano, and M. Takahashi: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 3919 (1999); Erratum: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 612 (2000).
 - 27 M. Tsunoda, K. Nishikawa, T. Damm, T. Hashimoto, and M. Takahashi: *J. Magn. Magn. Mat.*, **239**, 182 (2002).
 - 28 M. Tsunoda, T. Sato, T. Hashimoto, and M. Takahashi: *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 5222 (2004).
 - 29 T. Sato: unpublished data.
 - 30 K. Imakita, M. Tsunoda, and M. Takahashi: *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 3812 (2004).
 - 31 K. Imakita, M. Tsunoda, and M. Takahashi: *J. Appl. Phys.*, **97**, 10K106 (2005).
 - 32 M. Tsunoda, K. Imakita, and M. Takahashi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, 722 (2005).
 - 33 R. Y. Umetsu *et al.*: *Trans. Magn. Soc. Jpn.*, **3**, 59 (2003).
 - 34 E. Raub and W. Mahler, *Z. Metallkd.*, **46**, 282-290 (1955).
 - 35 A. Hellawell, *J. Less-Common Met.*, **1**, 343-347 (1959).
 - 36 S. Araki *et al.*: *IEEE Tras. Magn.*, **34**, 387 (1998).
 - 37 T. Nakabayashi *et al.*: *21st Annual Meeting MSJ*, 2pC-1 (1997).
 - 38 T. Takiguchi *et al.*: *20th Annual Meeting of MSJ*, 21aC-6 (1996).
 - 39 H. Ohldag, A. Scholl, F. Nolting, E. Arenholz, S. Maat, A. T. Young, M. Carey, and J. Stöhr: *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 17203 (2003).
 - 40 D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay: *J. Appl. Pjys.*, **62**, 3047 (1987).
 - 41 A.P.Malozemoff: *Phys.Rev.B .*, **35**,3679(1987).

⁴² N.C.Koon: *Phys.Rev.Lett.* , 78,4865(1997)

⁴³ C. Mitsumata et al., *Phys. Rev. B*, 68, 14437 (2003); *28th Annual Meeting of MSJ*, 23pB-5 (2004).

⁴⁴ K.Takano, *Phys. Rev. Let.*, 6,1130 (1997).

⁴⁵ W.J.Antel., *Phys.Rev. Let.*, 7,1439 (1999).

本報告書収録の学術雑誌等発表論文は本ファイルに登録していません。なお、このうち東北大学在籍の研究者の論文で、かつ、出版社等から著作権の許諾が得られた論文は、個別に **TOUR** に登録しております。