

---

強磁性／反強磁性積層膜の微細組織・界面構造  
制御による巨大交換磁気異方性の導出

---

(課題番号：14350156)

平成 14 年度～平成 15 年度科学研究費補助金  
(基盤研究(B)(2)) 研究成果報告書

平成 16 年 3 月

研究代表者 角田 匡清  
(東北大学大学院工学研究科助教授)

## は し が き

強磁性層／反強磁性層積層膜の交換磁気異方性は、ハードディスク装置（HDD）の再生ヘッド用スピバルブ薄膜に現在応用されている他、磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM）など、新たなスピントロニクスデバイスの機能発現のために必要不可欠な物理事象であるが、そのメカニズムは完全に明らかとなっておらず、応用上最も重要な一方向異方性定数増大のための主導原理が、未だ確立されていない。

本研究においては、申請者らが開発した極清浄雰囲気スパッタリング法を用いることで、nm オーダーの膜厚の異種金属積層膜の微細構造制御を行い、所望の膜面内結晶粒径、原子レベルでの積層界面の平坦性制御を実現する。その上で、十分に組織制御された積層膜の磁気トルク計測を中心とした磁気物性解析によって、交換磁気異方性を産み出す反強磁性層中におけるスピン構造変化について検討する。さらに、同検討を通じ交換磁気異方性発現機構を解明し、そこから導かれる主導原理に従って、巨大な交換磁気異方性を、HDD 応用上重要な極薄反強磁性膜厚下において誘導することを目的とした。具体的数値目標として、強磁性層／反強磁性層積層膜で観測される交換磁気異方性に関し、実用化されている材料（PtMn 等）に比較して、大きさ（一方向異方性定数）3 倍増（ $1 \text{ erg/cm}^2$ ）、反強磁性層厚 1/4 減（ $50 \text{ \AA}$ ）を、耐熱性・温度特性を劣化させることなく実現することを掲げた。

交換磁気異方性のメカニズムに関して数多くの研究が成されているが、その多くは単結晶材料・完全均質組織・完全平坦界面等、理想状態を仮定した理論計算に基づくものであり、現実に用いられる積層膜への適用性に大きな問題がある。この点、本報告書研究者らによって提言された **Single spin ensemble model**（詳細本文参照）は、多結晶・微細組織分散・膜面内結晶無配向性等、現実の積層膜の状況を取り入れたものであり、実材料研究への適用性は極めて高い。また、本研究における主たる磁気物性解析手法である磁気トルク法は、磁気異方性エネルギーを直接的かつ絶対値として評価可能な方法であり、一般に用いられる磁化曲線だけに依る評価法に対して、その精度・確度に関して極めて優位な手法である。

さらに薄膜微細構造の精密制御技術の根幹を成す、超清浄スパッタ法は、報告者らの研究グループで開発されたものであり、意図的な不純物添加による組織制御（例えば、S.Miura, M.Tsunoda et al., *J. Appl. Phys.*, 89, 6308 (2001)) など、これまでに培われた独創的かつ先駆的な薄膜形成技術の蓄積は、本研究における“精密制御された薄膜微細構造”を実現するために不可欠なものであり、この点においても、他者の追従を許さない研究展開がなされた。本研究の成果は、直ちに、HDD 用スピバルブ薄膜の高性能化に応用され得る他、来るべきスピントロニクスデバイスの開発推進、

ならびに高 $(BH)_{\max}$ の薄膜磁石材料の開発に対して新たな材料設計指針を与える等、磁気記録関連以外の電子材料工学の分野へも大きく貢献するものである。

ところで、国内における強磁性層／反強磁性層積層膜の交換磁気異方性の研究は、HDD用スピナルバルブ膜の実用化研究が最も盛んであった1997~1999年を境に減少の傾向を示している。実際、日本応用磁気学会の学術講演会における発表論文件数は、20件(1997)、22件(1998)、17件(1999)、11件(2000)、7件(2001)と推移しており、交換磁気異方性の物性発現のメカニズムは不明のままであるにも係らず、製品としてのスピナルバルブ薄膜実用化の目処がついた段階で材料探査を中心としてきた国内の研究は収束しつつある。

一方、海外における研究動向を『磁性と磁性材料に関する国際会議(MMM)』における発表論文件数に求めると、その推移は、21件(1997)、40件(1998)、57件(1999)、56件(2000)であり、本研究開始当時、なお活発に研究が進められていることが窺える。これは、海外における研究者の多くが、交換磁気異方性の物性発現メカニズムが、未だ明らかとなっていないこと、ならびにその重要性を広く認識していることの現れである。本研究は、このような状況の中、事象の発現機構解明を主眼とした上で、高性能実用材料の開発を図ったものであり、スピントロニクスデバイス実現のための大きな基礎を成すと位置付けられる。

以上のような背景を基に、本研究は、超清浄雰囲気下での薄膜作製プロセスに関するこれまでの基礎的研究を継続・発展させ、強磁性／反強磁性積層膜の微細組織・界面構造制御を行うことで、巨大交換磁気異方性を導出することを目的とした。結果として、Mn-Ir/Co-Fe積層膜において、反強磁性層厚 $50\text{\AA}$ の下で、約 $0.9\text{erg/cm}^2$ の大きな一方向異方性定数の導出に成功した。さらに、本研究の範囲を超えるため、本報告書には記載していないが、本研究代表者を中心とする研究グループでは、新たな成膜プロセスの開発により、最近 $1.3\text{erg/cm}^2$ に達する巨大な一方向異方性定数の導出にも成功している。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助教授）

研究協力者：佐藤 岳（東北大学大学院工学研究科）

## 研究経費

平成 14 年度 8,000 千円

平成 15 年度 6,900 千円

---

計 14,900 千円

## 研究発表

### (1) 学会誌等

- ① M. Tsunoda, M. Konoto, and M. Takahashi,  
“Magnetic Anisotropy of Antiferromagnet in Exchange Coupled Ni-Fe/Mn-Ni Epitaxial Bilayers”,  
*phys. stat. sol.*, **189**, 449 (2002).
- ② M. Tsunoda and M. Takahashi,  
“Exchange anisotropy of ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers: intrinsic magnetic anisotropy of antiferromagnetic layer and single spin ensemble model”,  
*J. Magn. Magn. Mat.*, **239**, 149 (2002).
- ③ M. Tsunoda, K. Nishikawa, T. Damm, T. Hashimoto, and M. Takahashi,  
“Extra large unidirectional anisotropy constant of Co-Fe/Mn-Ir bilayers with ultra-thin antiferromagnetic layer”,  
*J. Magn. Magn. Mat.*, **239**, 182 (2002).
- ④ T. Sato, M. Tsunoda and M. Takahashi,  
“Correlation between the exchange bias and the degree of ordering of antiferromagnetic layer in PtMn/Co-Fe bilayers”,  
*J. Magn. Magn. Mat.*, **240**, 277 (2002).
- ⑤ M. Takahashi and M. Tsunoda,  
“Magnetic anisotropy of antiferromagnet and its role on the exchange bias in ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers”,  
*J. Phys. D*, **35**, 2365 (2002).
- ⑥ 角田匡清、高橋研,  
“強磁性／反強磁性積層膜の交換磁気異方性—反強磁性層の磁気異方性とその役割— (解説)”,  
日本応用磁気学会誌, **28**, 55 (2004).
- ⑦ T. Sato, M. Tsunoda and M. Takahashi,  
“Orientational dependence of exchange anisotropy of Mn-Ir/Co-Fe epitaxial bilayers”,  
*J. Appl. Phys.*, (2004) in press.

- ⑧ M. Tsunoda, T. Sato, and M. Takahashi,  
“Enormous exchange anisotropy of polycrystalline Mn-Ir/Co-Fe bilayers induced by long-time annealing”,  
submitted to *Appl. Phys. Lett.*, (2004).
- ⑨ T. Sato, M. Tsunoda and M. Takahashi,  
“Magnetization reversal of ferromagnetic layer in exchange coupled Mn-Ir/Co-Fe epitaxial bilayers”,  
submitted to *J. Magn. Magn. Mat.*, (2004).
- ⑩ K. Imakita, M. Tsunoda and M. Takahashi,  
“Improved thermal stability of exchange bias of Mn-Ir/Co-Fe bilayers by novel *in-situ* thermal annealing procedure”,  
submitted to *J. Magn. Magn. Mat.*, (2004).

## (2) 口頭発表

- ① 佐藤岳、角田匡清、秋池 健、高橋 研,,  
“Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜における反強磁性粒子の磁気異方性評価”,  
第 26 回日本応用磁気学会学術講演会、2002 年 9 月.
- ② M. Tsunoda and M. Takahashi  
“Exchange Anisotropy of Ferromagnetic/Antiferromagnetic Bilayers (INVITED)”,  
18<sup>th</sup> International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces, 2003 年 7 月.
- ③ 佐藤岳、角田匡清、高橋 研,,  
“Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜の長時間熱処理による交換磁気異方性の変化”,  
第 27 回日本応用磁気学会学術講演会、2003 年 9 月.
- ④ 佐藤岳、角田匡清、高橋 研,,  
“結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe エピタキシャル積層膜の交換磁気異方性”,  
第 27 回日本応用磁気学会学術講演会、2003 年 9 月.
- ⑤ M. Tsunoda, T. Sato, and M. Takahashi,  
“Extra large exchange anisotropy of polycrystalline Mn-Ir/Co-Fe bilayers induced by long-time annealing”,  
9<sup>th</sup> Joint MMM/Intermag Conference, 2004 年 1 月.
- ⑥ T. Sato, M. Tsunoda, and M. Takahashi,  
“Orientational dependence of exchange anisotropy of Mn-Ir/Co-Fe epitaxial bilayers”,  
9<sup>th</sup> Joint MMM/Intermag Conference, 2004 年 1 月.

## 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  
 $H^r$  ... 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 ( $1.3807 \times 10^{-23}$  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、電子情報機器は急速に発達しており、それに伴い一般ユーザーへの普及が進んでいる。なかでもパーソナルコンピュータに始まり、ノートパソコン、PDA、デジタルカメラ、そして携帯電話などのモバイル機器の普及は著しいものである。そのため、それらの情報記録装置である磁気ハードディスク装置(HDD: Hard Disk Drive)に、より一層の情報記録の大容量化および装置の小型化が求められている。現在、2.5インチハードディスクでは記録容量80GB、小型化を目的としたマイクロドライブでは数GBの記録容量で市販されるに至っている。このような磁気ハードディスク装置の性能向上は、磁気記録媒体の高保磁力<sup>1</sup>低ノイズ化<sup>2</sup>、磁気記録ヘッドの特性向上、磁気再生ヘッドの高感度化などによって実現されている。特に、磁気再生ヘッドの性能向上によって磁気記録密度は年率60～100%での増加を実現している。磁気再生ヘッドは磁気記録媒体からの漏洩磁界を感知することにより記録された情報を再生している。そのため、情報の高記録密度化の際には、トラック幅およびビット長が狭くなり磁気記録媒体からの漏洩磁界が小さくなるため、磁気再生ヘッドの更なる高感度化が必要不可欠である。

磁気再生ヘッドには、当初、電磁誘導を利用した誘導型薄膜ヘッド<sup>3</sup>が利用されていたが、その後、異方性磁気抵抗(AMR)効果<sup>4,5</sup>を用いたMRヘッド<sup>4</sup>が開発された。現在では更に記録密度を向上させるために、より高感度のスピントラップヘッド<sup>6,7,8</sup>が開発され実用化されている。このスピントラップヘッドは、巨大磁気抵抗(GMR)効果<sup>9</sup>を利用しており、MRヘッドの数倍の再生感度を実現して

いる。

スピバルブヘッドは Fig.1-1(a)に示すように、反強磁性層、非磁性層、およびそれを挟む 2 つの強磁性層で構成されている。反強磁性層とそれに隣接する強磁性層との界面では交換磁気異方性<sup>10</sup>が発現し、その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あるいはピン層と呼ぶ)。また、もう一方の強磁性層は磁気媒体からの漏洩磁界によってそのスピンの方向を自由に変化させる(一般にこの強磁性層を自由層あるいはフリー層と呼ぶ)。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時に、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伝導電子のスピン依存散乱<sup>11,12,13</sup>の大きさが変化し、素子の電気抵抗に変化が生じる。2 つの強磁性層のスピンの方向が平行状態の場合は低抵抗を示し、反平行状態の場合は高抵抗を示すことによって磁気記録信号を電気信号へと変換している。

現在ではスピバルブヘッドに、強磁性自由層に Cu などの高導電層を積層し伝導電子の平均自由行程を伸ばすことを目的としたスピフィルター層<sup>14,15,16</sup>、強磁性固定層を強磁性層/Ru/強磁性層の積層構造とし RKKY 的相互作用により 2 つの強磁性層を反強磁性的に結合することにより強固な強磁性層の形成を目的とした積層フェリ固定層<sup>17,18,19</sup>、強磁性固定層および強磁性自由層の界面における伝導電子の弾性散乱を目的としたスペキュラー反射(鏡面反射)層<sup>20,21,22</sup>などを導入し、再生感度の向上を実現している。しかしながら、最近では特性向上の伸び悩みから次世代再生ヘッドの開発に期待が寄せられ、従来の面内通電型の CIP(Current-In-Plane)・スピバルブヘッドに対し、垂直通電型の CPP(Current-Perpendicular-to-Plane)・スピバルブヘッド<sup>23,24,25</sup>や、トンネル磁気抵抗(TMR)効果<sup>26,27</sup>を用いたスピバルブ型ヘッドの検討もなされている。

このようなスピバルブ型磁気再生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、強磁界中で 77K まで冷却することによって発見された<sup>28,29</sup>。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 77 K 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(図中正磁界の方向)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もしくは一方向磁気異方性という。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 model<sup>30</sup>を提案している。Single spin model の詳細については後述する。

磁気ハードディスク装置の小型化および高記録密度化を実現する上で、スピバルブ型ヘッドに用いられている交換磁気異方性には以下の特性が求められる。

① 高記録密度化から要求される磁気再生ヘッドの狭ギャップ化を実現するため、スピバルブ素子において最も厚みを持つ反強磁性層厚( $d_{AF}$ )を極薄に

すること。500 Gbit/in<sup>2</sup>を目指した場合、リードギャップは 300Å 以下であることが報告されており<sup>31</sup>、 $d_{AF} \leq 100\text{\AA}$  である必要が考えられる。

- ② 突発的な静電気放電(ESD)による素子温度上昇<sup>32,33</sup>、強磁性自由層のバルクハウゼンノイズを除去するために用いられるハードバイアス膜や媒体などの外部磁界、ならびに素子の微細化により生じる大きな反磁界などの複合効果による強磁性固定層の磁化反転を防ぐため、より大きな交換磁気異方性を誘導すること。
- ③ 磁気再生ヘッド動作時における高温下（一般に約 150°C）において安定した特性を維持するため、ブロッキング温度( $T_B$ )が高いこと。
- ④ 磁気再生ヘッド作製時の強磁性固定層と強磁性自由層の磁化の直交化のために、交換磁気異方性を任意の方向に誘導可能であること。
- ⑤ 素子の微細化が進み単結晶素子(1素子1結晶粒化)が実現された場合に、最適な結晶配向面を選択すること。

### 磁気再生ヘッドに用いられる反強磁性材料

上記の特性を持つ交換磁気異方性を実現するためにスピバルブ型磁気再生ヘッドに用いる反強磁性材料として、現在までに様々な材料が検討されてきている。それらの材料は、Mn 不規則合金系、Mn 規則合金系、Cr 系、酸化物系、希土類系に大きく分けられる。Fig.1-3 に、種々の反強磁性材料の一方向異方性定数( $J_K$ )の反強磁性層厚( $d_{AF}$ )依存性を示す。(一方向異方性定数は、強磁性層と反強磁性層の結合力を示すエネルギーである。)

Mn 不規則合金系材料では、F.C.C.構造を持ち高温安定相である $\gamma$ -Mn を形成することにより反強磁性を示す。現在までに、 $\gamma$ -Mn の低温での安定した形成およびネール点上昇の観点から、様々な元素を添加した材料が検討されている<sup>34</sup>。このような材料として Fe-Mn<sup>35, 36, 37, 38, 39, 40</sup>、Mn-Ni<sup>41</sup>、Mn-Ir<sup>42,43,44,45,46,47,48</sup>、CrMnPt<sup>49</sup>、Mn-Ru<sup>50</sup>、Mn-Rh<sup>51</sup>、および Mn-Ru-Rh<sup>52</sup>などが挙げられる。Mn 不規則合金系材料の利点としては、 $J_K$ を発現する反強磁性層の臨界膜厚( $d_{AF}^{cr}$ )が他の反強磁性材料に対して薄い(< 100Å)点が挙げられる。

Mn 規則合金系材料としては、CuAu-I型で知られる NiMn<sup>53,54,55</sup>、PtMn<sup>56</sup>、および PdPtMn<sup>57,58</sup>などが挙げられる。これらの材料の利点としては、他の材料に対し大きな  $J_K$  を発現し、 $T_B$  が約 400°C と高い点が挙げられる。しかしながら、 $d_{AF}^{cr}$  が 100 ~ 200 Å と他の材料よりも厚く、また、成膜直後の状態(as depo.)から規則化させ反強磁性を発現するために 250°C 以上の熱処理が必要となる欠点が挙げられる。

Cr 系反強磁性材料としては B.C.C.構造を持つ Cr-Al<sup>59</sup>が挙げられる。Cr-Al

は不規則合金であり Mn 不規則合金系材料と同様に規則合金のような高温の熱処理を必要としないが、発現する  $J_K$  が小さく、また  $d_{AF}^{cr}$  が厚く、磁気再生ヘッド用の材料としては不適であると考えられる。

また、酸化物系反強磁性材料としては  $NiO^{60,61}$ 、 $CoO/NiO^{62}$ 、および  $\alpha-Fe_2O_3^{63}$ 、希土類系材料としては  $Tb_{25}Co_{75}^{64,65}$  などがよく知られているところである。酸化物系材料に関しては、耐食性に優れていることが利点として挙げられる、しかしながら、酸化物系材料および希土類系材料のいずれにおいても、 $d_{AF}^{cr}$  が厚く、また発現する  $J_K$  が小さいことから、磁気再生ヘッド用の材料としては不適であると考えられる。

このような様々な反強磁性材料の中で、現在、スピバルブ型磁気再生ヘッドには PtMn が実用されている。先に述べたように、PtMn は  $T_B$  が高く ( $T_B > 400^\circ C$ )、比較的大きな  $J_K (= 0.3 \sim 0.4 \text{ erg/cm}^2)$  が誘導されるという利点が挙げられる。しかしながら、 $d_{AF}^{cr}$  は  $100 \sim 200 \text{ \AA}$  と厚く、また規則化のために高温の熱処理を必要とする問題点があり、決して最良の反強磁性材料ではない。ここで、不規則合金である Mn-Ir に注目してみる。Mn-Ir は現在までに検討されている材料の中で、最も薄い  $d_{AF} (\sim 30 \text{ \AA})$  で  $J_K$  を発現する材料であり、磁気再生ヘッドの狭ギャップ化を実現し得ることがわかる。また、 $J_K$  に関しても、本材料が検討され始めた当初は  $0.1 \text{ erg/cm}^2$  だった<sup>44</sup>が、その後、成膜雰囲気向上<sup>45</sup>やその他様々な検討によって増大が図られている。そのため、今後の検討により、将来、Mn-Ir が PtMn に変わる磁気再生ヘッド用反強磁性材料として期待される。

### Co-Fe/Mn-Ir 多結晶積層膜の交換磁気異方性

極薄の  $d_{AF}$  で大きな  $J_K$  を誘導することを目的に、Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜について多くの研究がなされている。これらの報告例をいくつか示す。H. Li らは、 $Mn_{76}Ir_{24} \text{ } 60 \text{ \AA} / Co_{82}Fe_{18} \text{ } 25 \text{ \AA}$  積層膜を IBD (Ion Beam Deposition) にて作製し、真空中熱処理を施すことにより  $J_K = 0.4 \text{ erg/cm}^2$  を実現している<sup>48</sup>。また、Yagami らは下地層材料の最適化や真空中赤外線照射による Mn-Ir 膜表面の改質によって、 $Mn_{74}Ir_{26} \text{ } 68 \text{ \AA} / Co_{90}Fe_{10} \text{ } 20 \text{ \AA}$  の積層膜で  $J_K = 0.4 \text{ erg/cm}^2$ 、 $T_B = 325^\circ C$  を実現している<sup>47</sup>。また、更に  $J_K$  を増大させた検討としては、強磁性層である Co-Fe の組成依存性<sup>66</sup>や熱処理温度依存性<sup>67</sup>などが挙げられる。Fig.1-4 には、 $Si / SiO_2 / Ta \text{ } 50 \text{ \AA} / Ni-Fe \text{ } 20 \text{ \AA} / Cu \text{ } 50 \text{ \AA} / Mn-Ir \text{ } d_{AF} / Co_{100-x}Fe_x \text{ } 40 \text{ \AA} / Cu \text{ } 10 \text{ \AA} / Ta \text{ } 20 \text{ \AA}$  の膜構造を持つ積層膜の  $J_K$  の Co-Fe 組成依存性を示した。 $J_K$  は Co-Fe 組成に対しピークを持つように変化し、 $Co_{70}Fe_{30}$  で最大値  $0.5 \text{ erg/cm}^2$  を示していることがわかる。また、Fig1-5 に  $Si / SiO_2 / Ta \text{ } 50 \text{ \AA} / Ni-Fe \text{ } 20 \text{ \AA} / Cu \text{ } 50 \text{ \AA} / Mn-Ir \text{ } d_{AF} (= 20 \sim 200 \text{ \AA}) / Co_{70}Fe_{30} \text{ } 40 \text{ \AA} / Cu \text{ } 10 \text{ \AA} / Ta \text{ } 20 \text{ \AA}$  の膜構成を持つ積層膜

の  $J_K$  の熱処理温度依存性を示す。 $J_K$  は as depo. において  $0.1 \text{ erg/cm}^2$  だったものが熱処理温度の上昇とともに増大し、最大  $0.6 \text{ erg/cm}^2$  ( $d_{AF} = 100 \text{ \AA}$ ) を示すことが報告されている。しかしながら、高温 ( $>300^\circ\text{C}$ ) での熱処理は積層界面の相互拡散を起こし  $d_{AF} < 100 \text{ \AA}$  の積層膜において  $J_K$  が顕著に減少するため、極薄  $d_{AF}$  での大きな  $J_K$  の誘導が困難になっている。

## 交換磁気異方性のモデル

強磁性材料と反強磁性材料の界面に生じる一方向磁気異方性として知られる交換磁気異方性については、その発見者である Meiklejohn らをはじめ多くの研究者によってこれまでにいくつかのモデルが提案されている。

交換磁気異方性の代表的なモデルとしては、Meiklejohn のモデル以外には反強磁性層内のスピンのねじれを用いて説明した Domain wall model、強磁性層/反強磁性層界面に原子レベルでの面荒れを用いて説明した Random field model<sup>68</sup>、強磁性スピンと反強磁性スピンの  $90^\circ$  で交差することによって説明している Spin flop model<sup>69</sup> などが挙げられる。

Mauri らによって提案された Domain wall model<sup>70</sup> 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層/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、Fig.1-6(b) に示したように反強磁性層内のスピンのねじれのエネルギーをその起源と考えたものである。そのため、反強磁性層が磁壁幅よりも十分に厚い場合を仮定している。

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  $\delta$  は

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

と与えられる。ここで、第1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2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、 $A$  は反強磁性体層の交換ステイフネスであり  $A_{12}$  は強磁性スピンと反強磁性スピンの交換ステイフネスである。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  $500 \text{ \AA}$  となり、Ni-Fe/FeMn 積層膜の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。

## Single spin model

交換磁気異方性の発見者である Meiklejohn は交換磁気異方性の現象論的モデルとして Single spin model を提案している。Single spin model は、Fig.1-6(a) に示したように強磁性層と反強磁性層を単磁区そして磁気異方性が存在すると

仮定し、また、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良く説明する反面、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当たりの自由エネルギーは

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

と表される。ここで、 $H$ は磁界、 $\theta$ は磁界方向の容易軸方向から角度、 $\alpha$ 、 $\beta$ 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当たりの飽和磁化、 $d_F$ 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 Fig1-7 に示す。(a)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。一般に、この反強磁性層厚を臨界膜厚( $d_{AF}^{cr}$ )と呼び、Single spin model では  $d_{AF}^{cr} = J/K_{AF}$  で表される。このような交換磁気異方性の変化は、本モデルでは反強磁性層の磁気異方性エネルギー( $K_{AF} d_{AF}$ )と界面の結合エネルギー( $J$ )の大小関係によって説明される。

反強磁性層が薄い場合( $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$ )では  $K_{AF} d_{AF} < J$  となり、Fig.1-7(a)で示すように外部磁界によって強磁性層のスピンが回転すると、反強磁性層のスピンがそれに追従して回転を起こし、保磁力を発現する。この場合の磁気トルク曲線は、反強磁性層の磁気異方性を反映した対称性を示す。

反強磁性層が厚い場合( $d_{AF} > d_{AF}^{cr}$ )では  $K_{AF} d_{AF} > J$  となり、Fig.1-7(b)で示すように外部磁界によって強磁性スピンの回転を起こしても、反強磁性層のスピンは磁気異方性によって固着され回転を起こさず、強磁性スピンと反強磁性スピン間に相対角度が生じ、界面の結合エネルギーを反映した一方向の磁気異方性が発生する。この場合の磁気トルク曲線は、この一方向異方性を反映した 1 回対称の曲線が得られる。

このように、Single spin model において、 $K_{AF}$  および  $J$  が交換磁気異方性において重要な要素となっていることがわかる。

### Single spin ensemble model

Tsunoda らは、一般に検討されている多結晶膜における交換磁気異方性を説明するために Single spin ensemble model<sup>71,72</sup>を提案している。このモデルでは、Fig. 1-8 に示すように、反強磁性層に多結晶状態を仮定し、個々の反強磁性結晶粒子と強磁性層との関係は Single spin model と同様としている。また、反強磁

性層が多結晶状態であることから、 $K_{AF}$ の容易軸も膜面内にランダムに分布するとしている。このモデルによって、Single spin modelでは説明できない強磁性/反強磁性多結晶積層膜の磁気トルク曲線の挙動や磁界中冷却による交換磁気異方性の誘導方向などを説明している。

### Single spin model による反強磁性膜の磁気異方性の解析

甲野藤らは、Single spin model を用いた数値計算によって、反強磁性薄膜の磁気異方性エネルギーを決定している<sup>73,74</sup>。本解析方法では、膜面内で2、4、6回の対称性を有する反強磁性層の磁気異方性  $K_{AF}^{2\theta}$ 、 $K_{AF}^{4\theta}$ 、 $K_{AF}^{6\theta}$  を仮定した Single spin model を用いている。この場合では強磁性/反強磁性積層膜の単位面積当たりの自由エネルギーは、eq.1-2 をもとにそれぞれ

$$tE = -M_s d_F H \cos(\theta - \beta) - K_{AF}^{2\theta} d_{AF} \cos 2\alpha - J \cos(\beta - \alpha) \quad \text{eq.1-3}$$

$$tE = -M_s d_F H \cos(\theta - \beta) - K_{AF}^{4\theta} d_{AF} \cos 4\alpha - J \cos(\beta - \alpha) \quad \text{eq.1-4}$$

$$tE = -M_s d_F H \cos(\theta - \beta) - K_{AF}^{6\theta} d_{AF} \cos 6\alpha - J \cos(\beta - \alpha) \quad \text{eq.1-5}$$

で与えている。簡単のために、強磁性層の磁気異方性は無いものとしている。

Fig.1-9、Fig.1-10、Fig.1-11 に、これらのエネルギー式を用いて計算された  $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$  の積層膜の場合の磁気トルク曲線の印加磁界依存性および磁気トルク曲線の振幅の印加磁界依存性を示す。低印加磁界下では印加磁界によって生ずるゼーマンエネルギー ( $-M_s d_F H$ ) が反強磁性層の磁気異方性エネルギー ( $-K_{AF}^{n\theta} d_{AF}$  :  $n = 2, 4, 6$ ) よりも小さいために、強磁性層のスピンの回転および反強磁性層のスピンの回転は印加磁界の回転に対し反強磁性層の磁化容易軸を中心に振れ、反強磁性層の磁気異方性にいずれの対称性を仮定した場合においても、磁気トルク曲線に1回対称成分が見られている。高印加磁界下では、強磁性層のスピンの回転は印加磁界とともに回転し、更に、前述したように反強磁性層の磁気異方性エネルギーが界面の結合エネルギー ( $J$ ) よりも小さいため、反強磁性層のスピンの回転は強磁性層のスピンの回転に追従して回転する。そのため、高印加磁界下における磁気トルク曲線には反強磁性層の磁気異方性を反映した対称性が現れている。

甲野藤は、これらの磁気トルク曲線の振幅の飽和値 ( $(tL/J)^{sat}$ ) と反強磁性層厚 ( $K_{AF}^{n\theta} d_{AF}/J$  :  $n = 2, 4, 6$ ) の関係に注目し、反強磁性層に面内で2回対称の磁気異方性  $K_{AF}^{2\theta}$  を仮定した  $d_{AF} \leq d_{AF}^{cr}$  の積層膜の場合には Fig.1-9 (b) に示すように、

$$K_{AF}^{2\theta} = (tL)^{sat} / 2d_{AF}$$

の関係が常に成り立ち、測定された磁気トルク曲線の振幅の飽和値から反強磁

性層の磁気異方性エネルギー $K_{AF}^{20}$ が求められることを見出している。また、反強磁性層に面内で4回対称の磁気異方性 $K_{AF}^{40}$ を仮定した場合、6回対称の磁気異方性 $K_{AF}^{60}$ を仮定した場合においても同様に、それぞれ

$$K_{AF}^{40} = (tL)^{saturate}/4d_{AF}$$

$$K_{AF}^{60} = (tL)^{saturate}/6d_{AF}$$

の関係から $K_{AF}^{20}$ および $K_{AF}^{40}$ を決定できることを明らかにしている。

## 結晶配向面による交換磁気異方性の変化

磁気再生ヘッドは、より一層の高記録密度化を実現するために素子の微細化が確実に進行している。現在、素子サイズはサブマイクロサイズに達しており、前述したように将来更なる微細化によって1素子が1結晶粒で構成される単結晶素子を実現された場合に、その結晶配向面によって磁気特性が大きく変化することが考えられる。このような1素子1結晶粒を考慮した場合に交換磁気異方性に求められる主要な特性としては前述したように、反強磁性層の臨界膜厚( $d_{AF}^{cr}$ )、一方向異方性定数( $J_K$ )、ブロッキング温度( $T_B$ )、交換磁気異方性の誘導方向などが挙げられるが、いずれも **Single spin model** や **Domain wall model** によって  $K_{AF}$  に強く依存することが示されている。甲野藤は、上で述べた解析手法を用い  $d_{AF}^{cr}$  以下の Ni-Fe/Mn-Ni 擬単結晶積層膜を用い、結晶配向面を(110)、(001)、(111)と変化させた場合の Mn-Ni 膜の  $K_{AF}$  を評価し、結晶配向面によって  $K_{AF}$  の値が大きく変化すること、および  $K_{AF}$  が結晶構造の対称性をよく反映することを示している(Fig.1-12)<sup>73</sup>。他の反強磁性材料においても Mn-Ni の場合と同様に結晶配向面によって  $K_{AF}$  が変化した場合、結晶配向面の違いが交換磁気異方性に影響を及ぼすことが予想される。そのため、単結晶素子実現時において最適な結晶配向面を選択するために、交換磁気異方性の結晶配向面依存性の把握が必要不可欠であると考えられる。

## 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( $d_{AF}^{cr}$ 、 $J_K$ 、 $T_B$ 、誘導可能方向など)の把握・向上、および最適な結晶配向面の選択が必要不可欠である。また、これらの応用上の特性向上のためには、交換磁気異方性の微視的な発現機構を明らかにする必要がある。**Single spin model** や **Domain wall model** などの代表的なモデルにおいて、交換磁気異方性を発現するための主要素の1つとして反強磁性層の磁気異方性が示されている。そのため、反強磁性層の磁気異方性をもとに交換磁気異方性の諸特性を議論することが有効であると考えられる。そこで本研究では、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜を用いて応用上の観点および物理的な観点から交換磁気異

方性を検討し交換磁気異方性の結晶配向面依存性を明らかにすること、極薄反強磁性層厚での巨大交換磁気異方性の発現を実現すること、および、交換磁気異方性の発現機構を明らかにすることを目的とした。

これらの検討に先立ち、第2節では Mn-Ir 膜の磁気異方性について検討を行った。Mn-Ir 膜の作製において下地層材料を最適化することによりその結晶配向面を(110)、(001)、(111)と変化させた擬単結晶膜を実現し、その結晶構造を評価した。そして、作製した Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶膜を Single spin model を基にした磁気トルク解析することにより、それぞれの結晶配向面における Mn-Ir 膜の磁気異方性を評価した。

第3節では、単結晶スピンバルブ素子作製時において結晶配向面が交換磁気異方性に及ぼす影響について Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜を用いて検討した。Mn-Ir 層の結晶配向面を(110)、(001)、(111)と変化させ、それぞれの場合における  $d_{AF}^{cr}$ 、 $J_K$ 、 $T_B$ 、交換磁気異方性の誘導方向などに及ぼす影響を調べた。

第4節では、極薄反強磁性層厚でより大きな交換磁気異方性の発現を実現するため、一般的に交換磁気異方性の誘導のために行われる磁界中熱処理の条件を変化させることによる  $J_K$  の増大を検討した。

第5節では、第4節までの検討から得られた実験結果といくつかの交換磁気異方性のモデルと比較し、それらのモデルが交換磁気異方性を説明しうる限界について検討した。また、その検討をもとに Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における交換磁気異方性の発現機構について考察を行った。

第6節に本研究の結論を述べた。

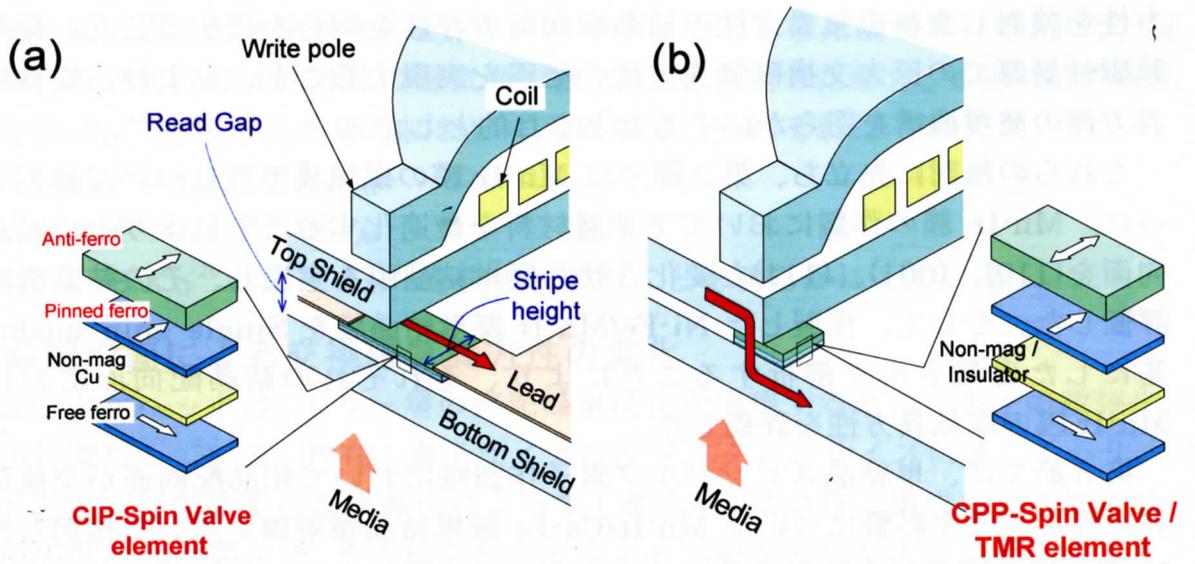


Fig.1-1 ハードディスク用磁気再生ヘッドの概略図.

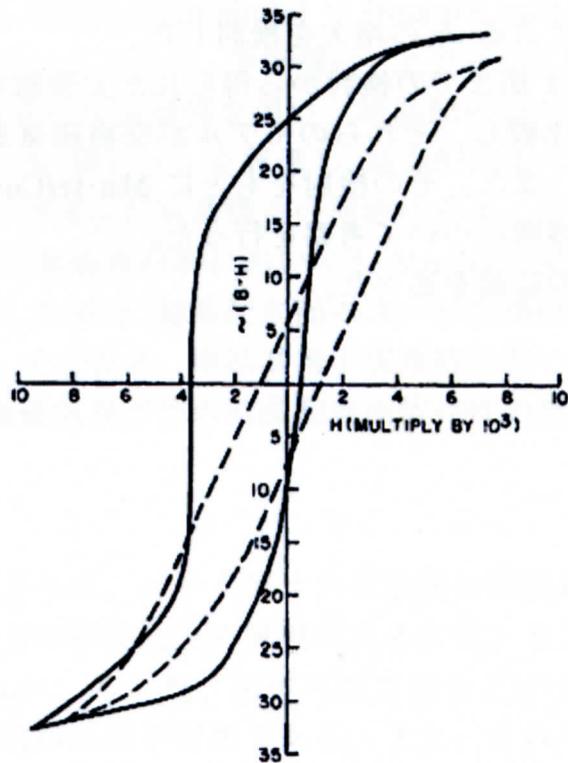


Fig.1-2 表面を酸化された Co 微粒子の 77K における磁化曲線<sup>28</sup>. 実線は磁界中で冷却した場合を示し, 破線は無磁界中で冷却した場合を示したものである.

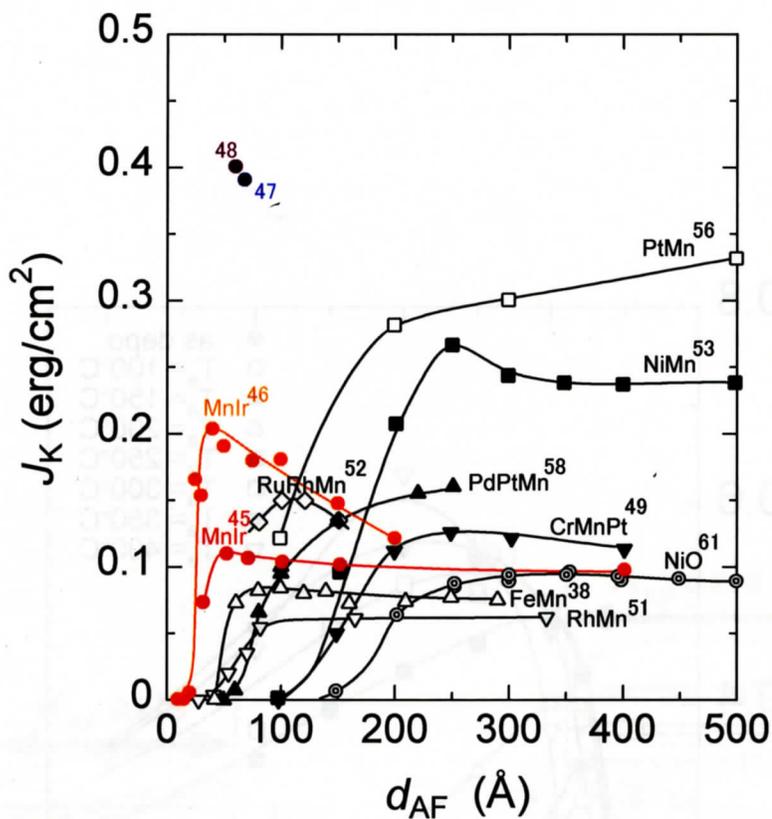


Fig.1-3 種々の反強磁性材料を用いた交換結合膜の一方方向異方性定数  $J_K$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性.

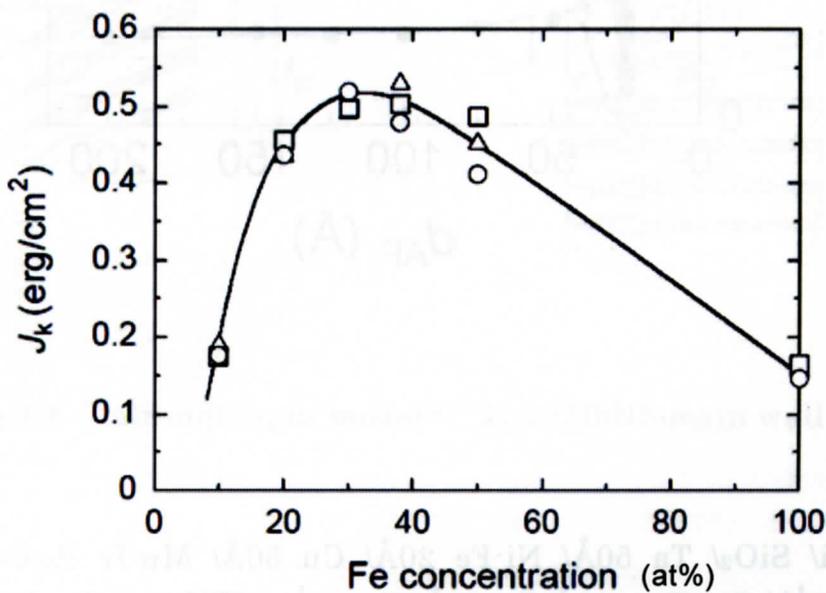


Fig.1-4 Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co<sub>100-x</sub>Fe<sub>x</sub> 40Å/ Cu 10Å/Ta 20Å の膜構造を持つ交換結合膜の一方方向異方性定数  $J_K$  の Co-Fe 組成依存性<sup>66</sup>.

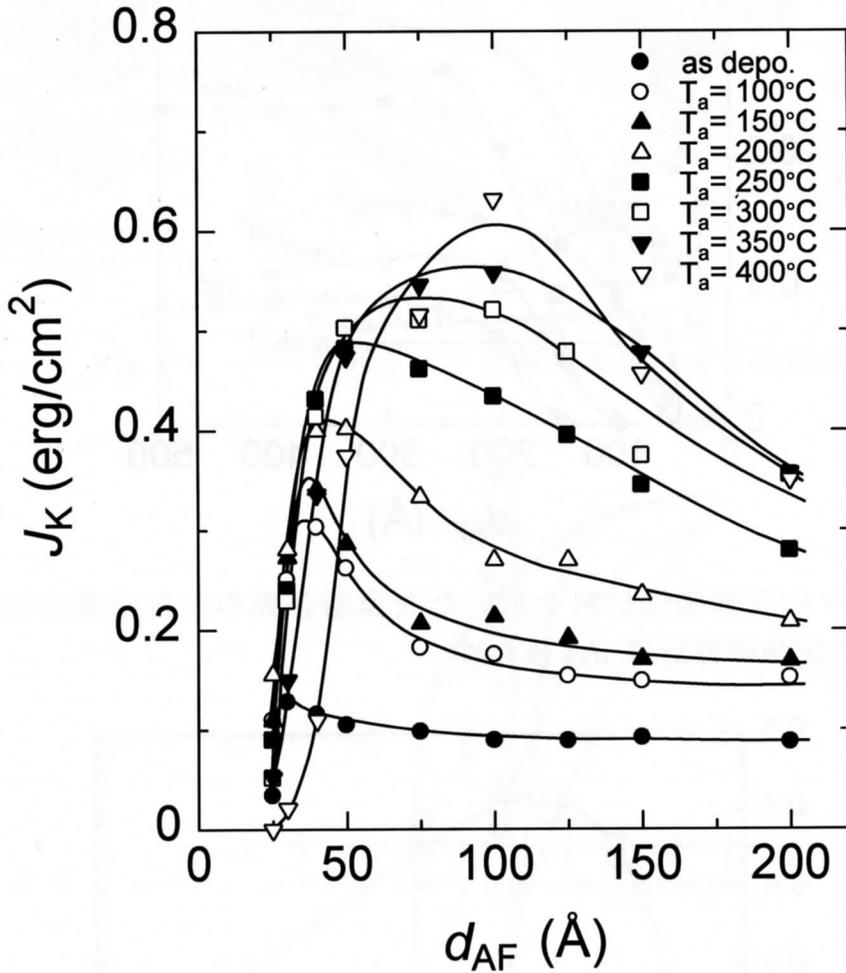


Fig.1-5 Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の一方向異方性定数  $J_K$  の熱処理温度  $T_a$  依存性<sup>67</sup>.

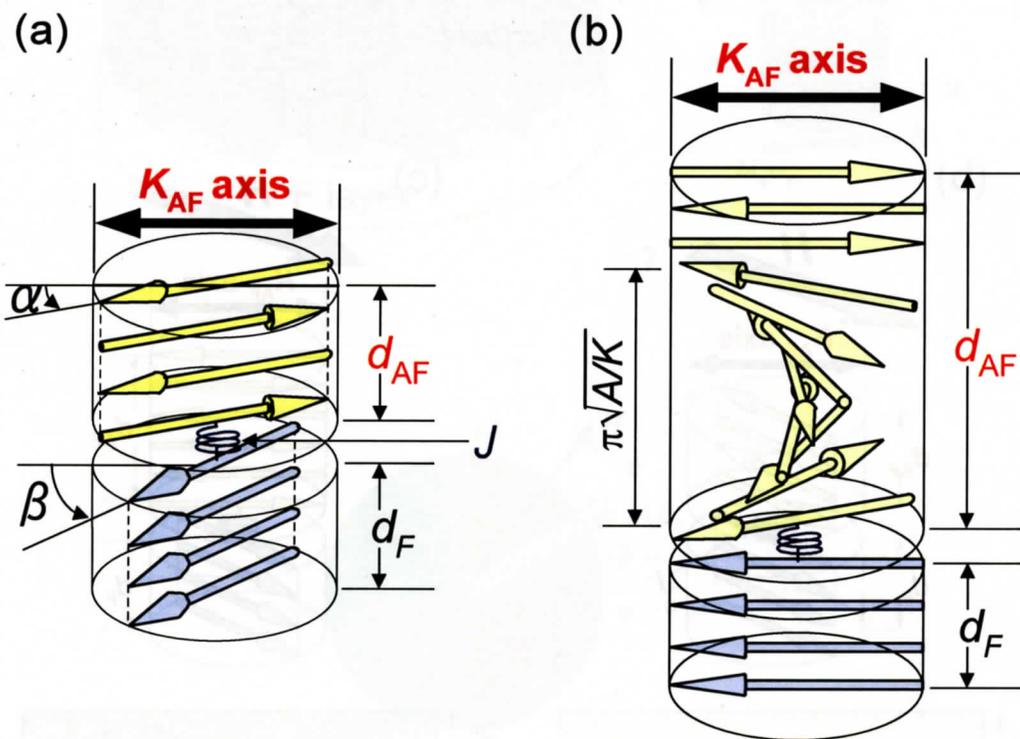


Fig.1-6 (a)Single spin model<sup>30</sup>, および(b)Domain wall model<sup>67</sup>.

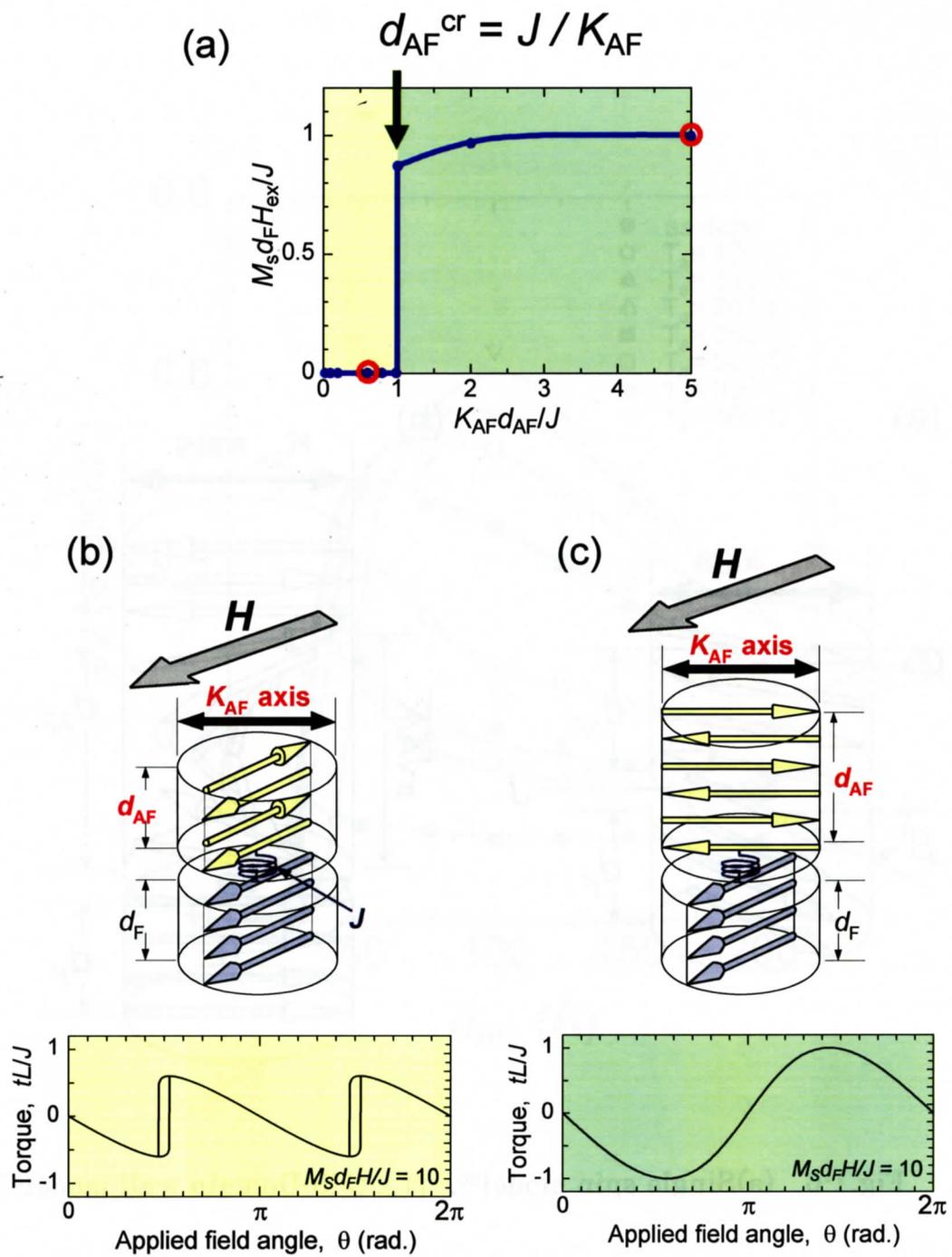


Fig.1-7 Single spin model による計算結果。(a)交換結合磁界  $H_{ex}$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性。(b) $d_{AF}^{cr}$  以下、および(c) $d_{AF}^{cr}$  以上の場合の磁気トルク曲線および概略図である。

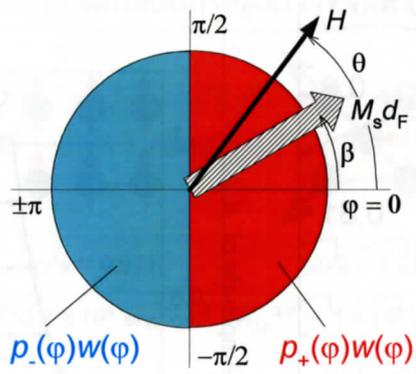
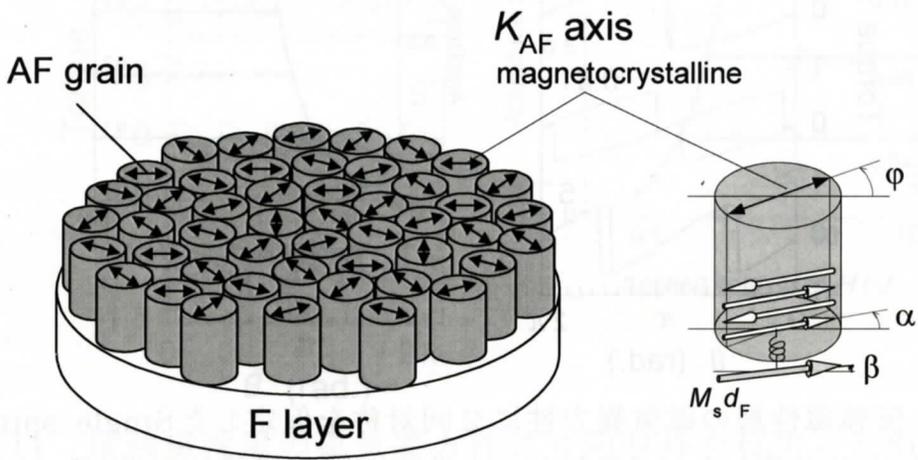


Fig.1-8 Single spin ensemble model<sup>70,71</sup>.

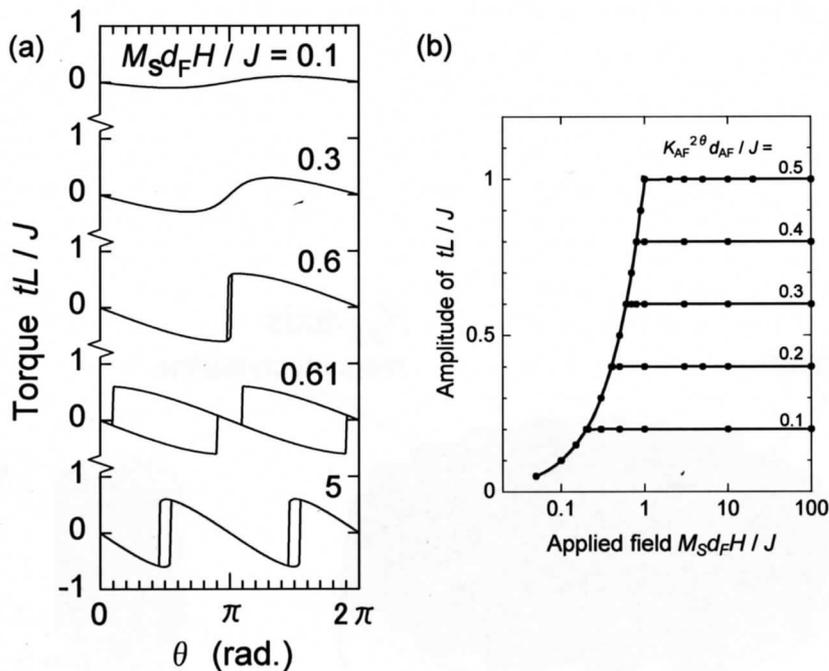


Fig.1-9 反強磁性層の磁気異方性に2回対称を仮定したSingle spin modelにより計算した (a)磁気トルク曲線の印加磁界依存性( $K_{AF}^{2\theta} d_{AF} / J = 0.3$ ), (b)磁気トルク曲線の振幅の印加磁界依存性.

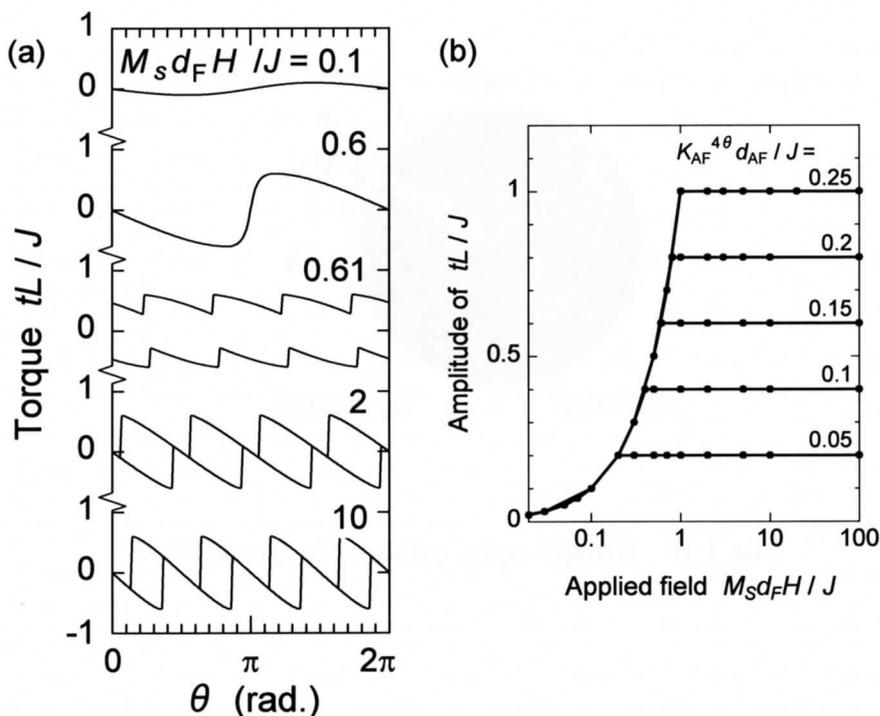


Fig.1-10 反強磁性層の磁気異方性に4回対称を仮定したSingle spin modelにより計算した (a)磁気トルク曲線の印加磁界依存性( $K_{AF}^{4\theta} d_{AF} / J = 0.15$ ), (b)磁気トルク曲線の振幅の印加磁界依存性.

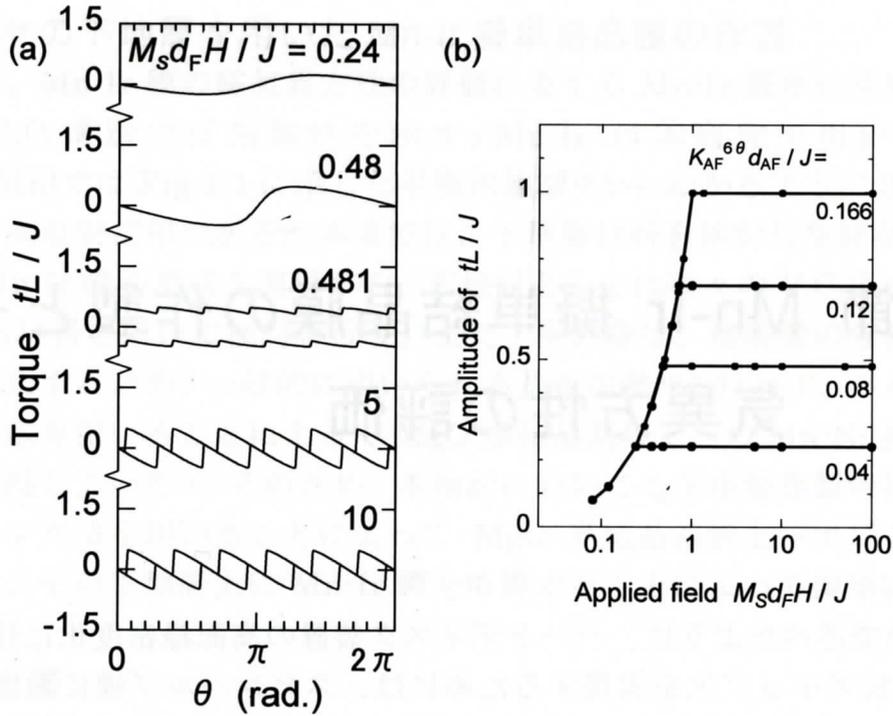


Fig.1-11 反強磁性層の磁気異方性に6回対称を仮定したSingle spin modelにより計算した (a)磁気トルク曲線の印加磁界依存性 ( $K_{AF}^{6\theta} d_{AF} / J = 0.08$ ), (b)磁気トルク曲線の振幅の印加磁界依存性.

	(110) orientation	(001) orientation	(111) orientation
18at%Ni-Mn	 $K_{AF}^{20}$ $c/a = 0.977$	 $K_{AF}^{40}$ $c/a = 1.01$	 $K_{AF}^{60}$ $c/a \sim 1.01$
	$K_{AF}^{2\theta} = 3.2 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$	$K_{AF}^{4\theta} = 1.4 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$	$K_{AF}^{6\theta} = 7.4 \times 10^3 \text{ erg/cm}^3$
23at%Ni-Mn	 $K_{AF}^{20}$ $c/a = 0.985$	 $K_{AF}^{40}$ $c/a \sim 1$	
	$K_{AF}^{2\theta} = 2.0 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$	$K_{AF}^{4\theta} = 9.5 \times 10^3 \text{ erg/cm}^3$	

Fig.1-12 結晶配向面による Mn-Ni 膜の磁気異方性の変化<sup>73</sup>

## 第2節 Mn-Ir 擬単結晶膜の作製とその磁気異方性の評価

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に伴う磁気再生ヘッドの狭ギャップ化を実現するためには、スピナルブ膜において最も厚みを持つ反強磁性層の膜厚( $d_{AF}$ )を低減することが有効である。そのため、交換磁気異方性を発現する反強磁性層の臨界膜厚( $d_{AF}^{cr}$ )が最も薄い材料である Mn-Ir<sup>75</sup>は、スピナルブ膜に用いる反強磁性材料として有効であると考えられる。 $d_{AF}^{cr}$  は、Single spin model<sup>76</sup>では  $d_{AF}^{cr} = J/K_{AF}$ 、Domain wall model<sup>77</sup>では  $d_{AF}^{cr} \propto \sqrt{A/K_{AF}}$  のように示され、反強磁性材料の磁気異方性( $K_{AF}$ )と密接な関係があると考えられる。甲野藤は Mn-Ni 膜の磁気異方性を評価し、Fig.1-12 に示すようにその大きさ及び対称性が結晶配向面に依存することを明らかにしている<sup>78</sup>。Mn-Ir 膜についても Mn-Ni 膜と同様にその磁気異方性が結晶配向面の違いによって変化することが考えられる。そうした場合、Mn-Ir 膜の極薄  $d_{AF}^{cr}$  を実現するためには、それぞれの結晶配向面における  $K_{AF}$  把握することが重要である。そこで本節では、種々の結晶配向面を持つ Mn-Ir 擬単結晶膜を作製し、その磁気異方性を評価する。

2-1 では、Mn-Ir 膜の磁気異方性の評価に要する種々の結晶配向面の Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜を、MgO 単結晶基板を用いて作製する。その際、より良好な擬単結晶積層膜を実現すべく、下地層材料として種々の F.C.C.系材料および B.C.C.系材料を用いて検討を行う。

2-2 では、種々の結晶配向面の MgO 単結晶基板上に、前項において選択した最適な下地層を用いて Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜を作製し、その結晶構造の評価を行う。

2-3 では、前項で作製した Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜を Single spin model を基に磁気トルク法によって解析し、種々の結晶配向面における Mn-Ir 膜の磁気異方性を評価する。

## 2-1. 種々の下地層を用いた Mn-Ir 擬単結晶膜の作製

本項では、Mn-Ir 膜の磁気異方性の評価に要する Mn-Ir 擬単結晶膜の作製を行う。F.C.C. 構造で反強磁性を示す  $\gamma$ -Mn-Ir は本研究で用いた組成域 (25at.%Ir-Mn) では Fig.3-1 に示した平衡状態図<sup>79</sup>からわかるように 900°C 以上で存在する高温安定相である。本項では、下地層材料を検討し良好な F.C.C. 構造を持つ Mn-Ir 膜の形成を実現する。下地層としては種々の F.C.C. 系材料および B.C.C. 系材料を用いて検討を行う。また、甲野藤は、積層膜の各界面間での熱拡散を防止するため、一般的に用いられる基板加熱<sup>80</sup>を行わず、バイアススパッタリング法を用いることによって MgO 単結晶基板上への Mn-Ni 擬単結晶膜の作製を実現している<sup>4</sup>。そのため、本検討においても下地層作製時にバイアススパッタリング法を用いることによって MgO 単結晶基板上へエピタキシャル成長をさせ、その下地層上に Mn-Ir 膜を成膜することによって擬単結晶膜を実現する。

### F.C.C. 下地層

F.C.C. 材料を用いた下地層には、MgO 単結晶基板 ( $a = 4.21 \text{ \AA}$ ) および Mn-Ir ( $a = 3.78 \text{ \AA}$ ) に対して、ミスフィットを小さくする材料である Pt ( $a = 3.92 \text{ \AA}$ ) および Au ( $a = 4.08 \text{ \AA}$ )、格子定数の小さい材料である Cu ( $a = 3.61 \text{ \AA}$ )、Cu<sub>85</sub>Pt<sub>15</sub> や Cu<sub>76</sub>Au<sub>24</sub> の合金膜、更に Cu/Pt、Cu/Au、Ni-Fe/Cu などの積層膜を用いて検討を行った。

Fig.3-2 に、F.C.C. 下地層を用いて作製した MgO{001}/ U.L. 200Å or (U.L.1 200Å /U.L.2 50Å)/ Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/ Cu 20Å 積層膜の XRD プロファイルを示す。下地層に Au および Pt を用いた積層膜の場合には、MgO 単結晶基板からの回折線以外にはそれぞれ  $2\theta = 38.3^\circ$  および  $39.8^\circ$  付近に Au(111) 面および Pt(111) 面からの回折線のみ観測され、Mn-Ir 層からの回折線は観測されなかった。また、Cu/Pt や Cu/Au を有する下地層を用いた場合においても、Mn-Ir 層からの回折線は観測されなかった。Ni-Fe/Cu を用いた場合には、 $2\theta = 70.2^\circ$  および  $74.0^\circ$  付近にそれぞれ Mn-Ir(220) 面および Cu(220) 面からの回折線が観測されたが、それらの強度は小さく良好な結晶構造が形成されていないことがわかる。これらに対し、下地層に Cu や Cu 系合金である Cu-Pt および Cu-Au を用いた場合においては、下地層の(002)面からの回折線および Mn-Ir(002)面からの回折線が明確に観測され、MgO 単結晶基板に対し下地層および Mn-Ir 層がエピタキシャル成長していることがわかる。また、それぞれの場合の Mn-Ir(002) 面からの回折線を比較するとその強度および半値幅が同程度であり、いずれの下地層の場合においても良好な結晶構造を形成していることがわかる。

結果として、MgO 単結晶基板と Mn-Ir 層とのミスフィットが大きい Cu を下地層に用いた場合にエピタキシャル成長が促進されることが明らかとなった。

## B.C.C.下地層

下地層に用いる材料として、上記の F.C.C.材料以外に B.C.C.材料についても検討を行った。本検討では $\gamma$ -Mn-Ir 相の結晶成長を考慮して、第1層目の下地層(U.L.1)として Cr または Fe を MgO 単結晶基板上に作製し、第2層目の下地層(U.L.2)には F.C.C.構造の Au または Cu を積層した。

Fig.3-3 に、B.C.C.下地層を用いて作製した MgO{001}/ U.L.1 50Å/ U.L.2 200Å/ Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/ Cu 20Å 積層膜の XRD プロファイルを示す。いずれのプロファイルにおいても  $2\theta = 65 \sim 67^\circ$  に Cr および Fe の(002)面に起因する回折線が観測された。U.L.2 に Au を用いた場合には、 $2\theta = 38.3^\circ$  付近に Au(111)面からの回折線のみ観測され、Mn-Ir 層からの回折線が観測されなかった。これは Au 層が B.C.C.下地層にかかわらず(111)面配向し、2-1 での検討結果と同様に Au 層上に Mn-Ir 層が結晶成長をしていないことがわかる。しかしながら、Cu を用いた場合には、Mn-Ir(220)面および Cu(220)面からの回折線が  $2\theta = 70.3^\circ$  および  $74.3^\circ$  付近に観測された。これらの積層膜の極点測定を行い、MgO[110] // B.C.C.[100] // Mn-Ir[1 $\bar{1}$ 0] or Mn-Ir[001]、MgO(001) // B.C.C.(001) // Mn-Ir(220)の方位関係でエピタキシャル成長し、Mn-Ir 膜は双晶となっていることを確認している。本研究では、Mn-Ir 膜の磁気異方性を擬単結晶膜の磁気トルク解析によって評価することを目的としているので、Mn-Ir 層において双晶を形成している積層膜は不適である。

以上のように、より良好な Mn-Ir 擬単結晶積層膜の作製を目的に、下地層として F.C.C.材料および B.C.C.材料を用いて検討を行った結果、Cu 系材料が最も有効であることが分かった。しかしながら、下地層作製時の利便性を考慮すると Cu-Pt や Cu-Au などの合金膜よりも Cu が有用であると考えられる。そこで、以降の検討においては下地層を Cu とした積層膜を用いる。

### 2-2. Cu 下地層を用いた Mn-Ir 擬単結晶膜の結晶構造

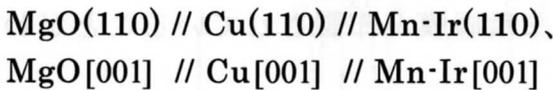
前項では、種々の下地層を用いてより良好な Mn-Ir 擬単結晶膜の作製を検討した。その結果、下地層に Cu を用いた場合に良好な Mn-Ir 擬単結晶膜が形成されることが分かった。本項ではそれらの結果をもとに Cu 下地層を用いた Ni-Fe/ Mn-Ir 擬単結晶積層膜を種々の結晶配向面について作製し、その結晶構造の評価を行う。

Mn-Ir 擬単結晶積層膜の結晶配向面は、MgO 単結晶基板の異なる結晶配向面({110}、{001}、{111})上に最適化したバイアススパッタリングによって Cu 下地層をエピタキシャル成長させることによって変化させている。バイアススパッタリング時における最適化された基板バイアス電圧は、MgO{001}単結晶基板使用時では約-10V、MgO{110}、{111}単結晶基板使用時では約-30V であった。

## 結晶構造

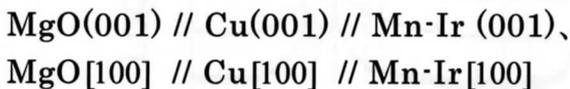
Fig.3-4 に、MgO {110}, {001}, {111}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイルを示す。MgO{110}単結晶基板上に作製した場合には、基板からの回折線以外に  $2\theta = 70.3^\circ$  および  $74.3^\circ$  付近に Mn-Ir(220)面および Cu(220)面からの回折線のみが観測され、積層膜が(220)面に優先配向していることが分かる。MgO{001}単結晶基板および MgO{111}単結晶基板上に作製した積層膜の場合も同様に、基板からの回折線以外には Cu 層および Mn-Ir 層に起因する回折線のみ観測された。MgO{001}単結晶基板上に作製した積層膜では、 $2\theta = 48.2^\circ$  および  $50.5^\circ$  付近に Mn-Ir(002)面および Cu(002)面からの回折線が観測され、また、MgO{111}単結晶基板上に作製した積層膜では、 $2\theta = 41.5^\circ$  および  $43.4^\circ$  付近に Mn-Ir(111)面および Cu(111)面からの回折線が観測された。これらの結果から、積層膜がそれぞれ(002)面および(111)面に優先配向していることが分かった。

Fig.3-5 に、MgO {110}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の (a)MgO{111}、(b)Cu{111}および(c)Mn-Ir{111}に関する極点図を示す。(b)および(c)の  $\alpha = 45^\circ$  付近に見られる 2 回対称の回折スポットは、MgO{001}によるものである。(a)、(b)、(c)のいずれの極点図に関しても、{111}による回折スポットが 2 回対称として得られ、それらの方位が一致していることが分かる。これらの結果から、Cu 層および Mn-Ir 層は、



の方位関係を持って MgO{110}単結晶基板に対しエピタキシャル成長していることがわかった。

Fig.3-6 に、MgO {001}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の (a)MgO{111}、(b)Cu{111}および(c)Mn-Ir{111}に関する極点図を示す。(a)、(b)、(c)のいずれの場合に関しても 4 回対称の極点図が得られていることから、Cu 層および Mn-Ir 層が MgO{001}基板上に



の方位関係でエピタキシャル成長していることがわかった。

Fig.3-7 に、MgO {111}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の (a)MgO{111}、(b)Cu{111}および(c)Mn-Ir{111}に関する極点図を示す。(b)および(c)の  $\alpha = 35^\circ$  付近に見られる 3 回対称の回折スポットは MgO{001}によるものである。(a)の場合では 3 回対称、(b)および(c)の場合では 6 回対称として{111}による回折スポットが得られ、それらの方位が一致していることが分かる。(b)および(c)で見られた 6 回対称の{111}の回折スポットは、Cu 層および Mn-Ir 層が

双晶を形成していることを示している。これらの結果から、Cu層およびMn-Ir層は、

$\text{MgO}(111) // \text{Cu}(111) // \text{Mn-Ir}(111)$ 、

$\text{MgO}[1\bar{1}0] // \text{Cu}[1\bar{1}0] // \text{Mn-Ir}[1\bar{1}0]$ 、

および  $\text{MgO}[1\bar{1}0] // \text{Cu}[\bar{1}10] // \text{Mn-Ir}[\bar{1}10]$

の方位関係を持ってMgO {110}単結晶基板に対しエピタキシャル成長していることがわかった。

以上のX線回折測定による構造解析の結果から得られたMgO/Cu 200Å/Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/Cu 40Å積層膜のエピタキシャル関係の概略図およびMn-Ir層の軸比(c/a)をFig.3-8に示す。Mn-Ir層の結晶構造は、(110)面配向の積層膜ではF.C.T.構造(c/a = 0.99)、(001)面配向の積層膜ではF.C.T.構造(c/a = 1.02)、(111)面配向の積層膜ではF.C.C.構造であった。

### 表面形態

Fig. 3-9に、MgO {110}, {001}, {111}/Cu 200Å/Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/Cu 40Å積層膜の最表面のAFM像を示す。3-1で示したようにいずれの結晶配向面の場合においてもMn-Ir膜は面内高配向のエピタキシャル膜であるが多結晶状態である。本研究ではこのような膜を擬単結晶膜と呼んでいる。(111)面配向の積層膜においては、MgO単結晶基板表面の研磨傷を反映して $R_a$ が少し大きくなっている。しかしながら、いずれの結晶配向面の場合においても $R_a = 0.8 \sim 6.2\text{\AA}$ 、 $D_{\text{in-plane}} = 200 \sim 400\text{\AA}$ の良好な積層膜が作製されていることがわかった。

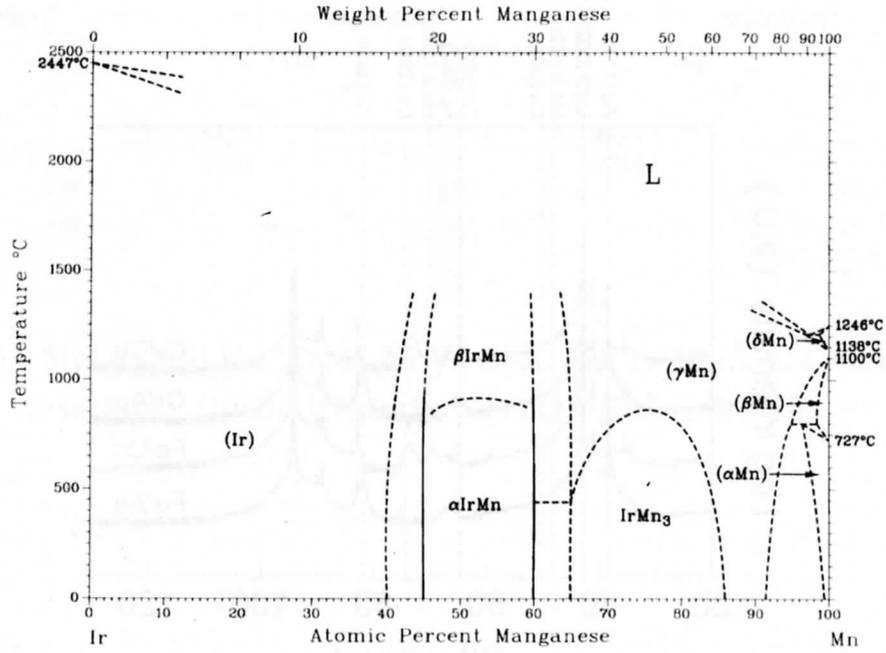


Fig.3-1 Mn-Ir 合金の平衡状態図 6.

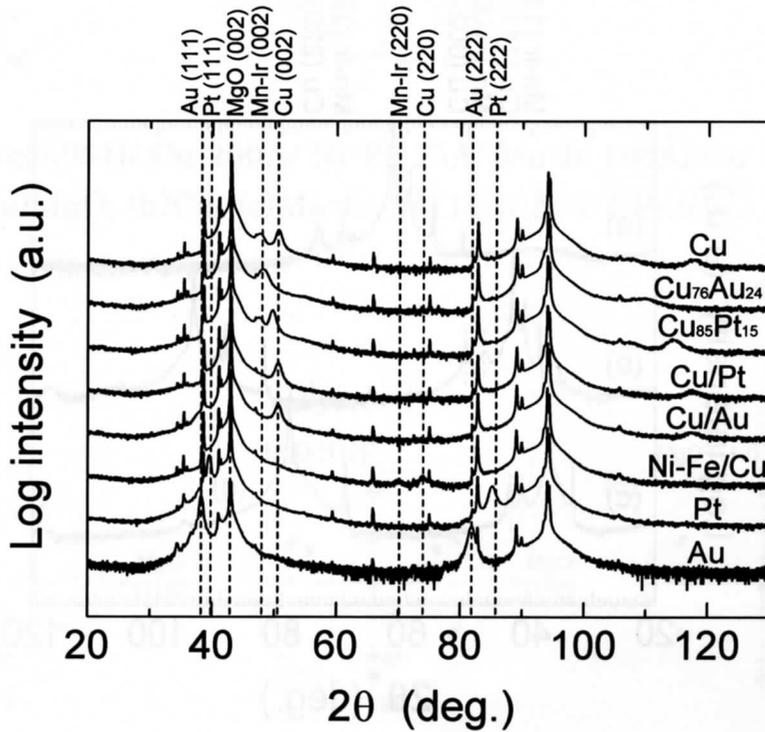


Fig.3-2 F.C.C.下地層を用いた MgO{001}/ U.L. 200Å or (U.L.1 200Å/U.L.2 50Å) / Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/ Cu 20Å 積層膜の XRD プロファイル.

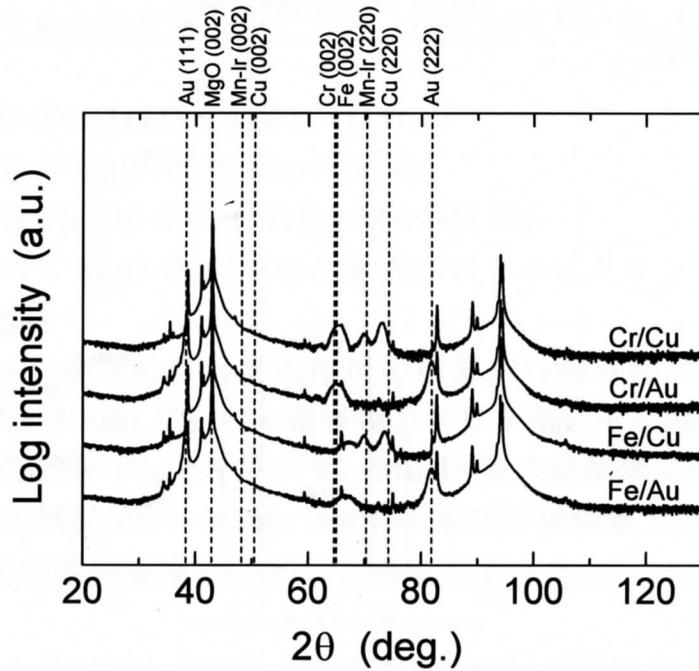


Fig.3-3 B.C.C.下地層を用いた MgO{001}/ U.L.1 50Å/ U.L.2 200Å/ Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/ Cu 20Å 積層膜の XRD プロファイル.

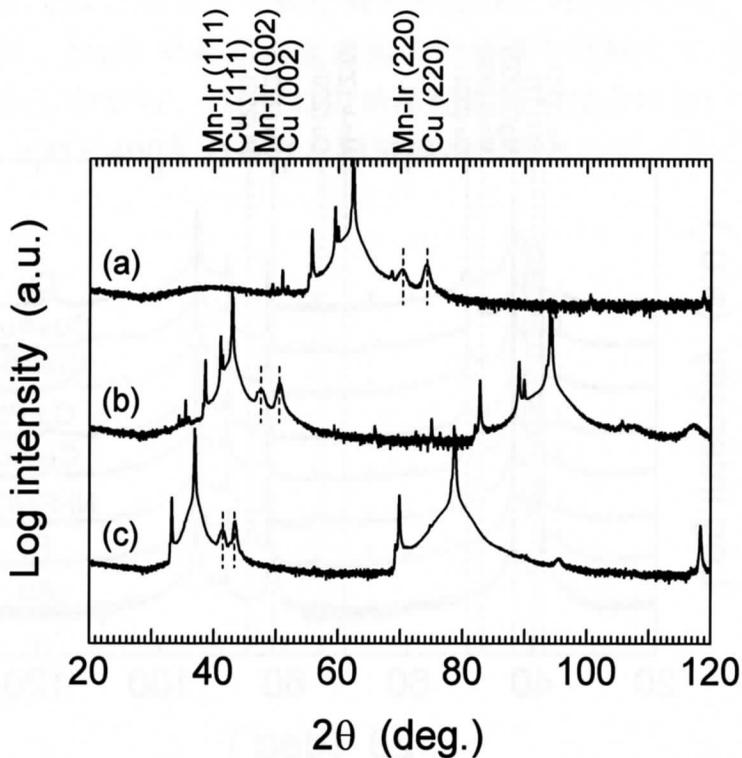


Fig.3-4 MgO/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイル. MgO 単結晶基板の結晶配向面はそれぞれ (a){110}, (b){001}, (c){111}である.

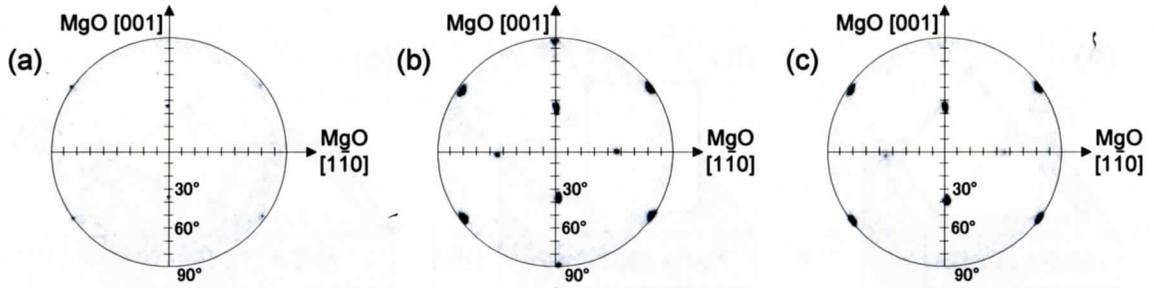


Fig.3-5 MgO{110}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/ Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の(a)MgO, (b)Cu, (c)Mn-Ir の{111}に関する極点図.

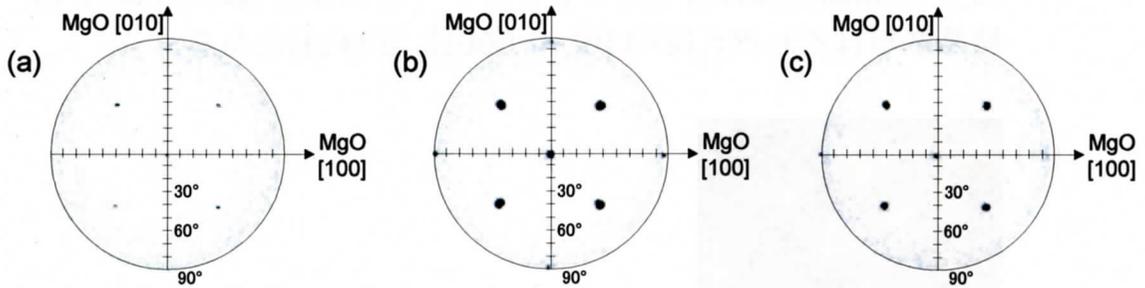


Fig.3-6 MgO{001}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/ Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の(a)MgO, (b)Cu, (c)Mn-Ir の{111}に関する極点図.

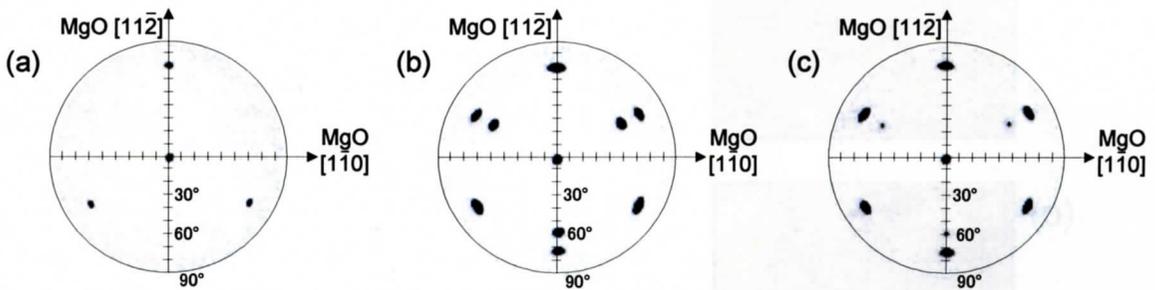


Fig.3-7 MgO{111}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/ Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜の(a)MgO, (b)Cu, (c)Mn-Ir の{111}に関する極点図.

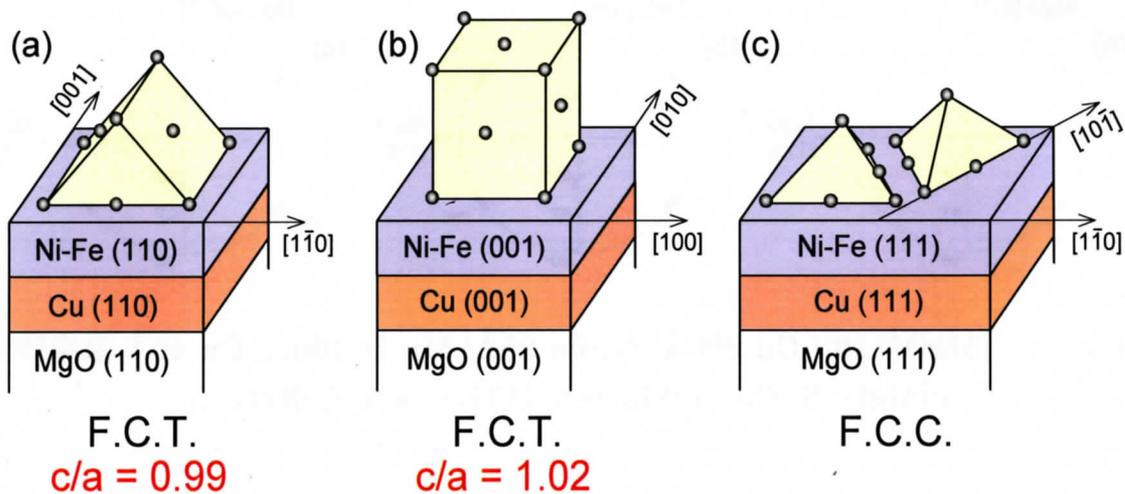


Fig.3-8 構造解析によって決定した MgO/ Cu 200Å/ Ni-Fe 25Å/ Mn-Ir 100Å/ Cu 40Å 積層膜における Mn-Ir 層の軸比( $c/a$ ), および MgO 単結晶基板に対するエピタキシャル関係の概略図. MgO 単結晶基板はそれぞれ(a){110}, (b){001}, (c){111}である.

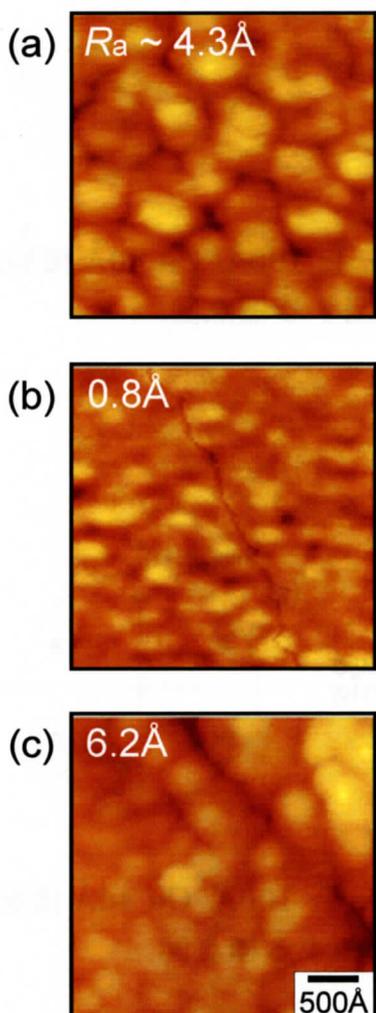


Fig.3-9 MgO / Cu 200Å / Ni-Fe 25Å / Mn-Ir 100Å / Cu 40Å 積層膜最表面の AFM 像. MgO 単結晶基板はそれぞれ(a){110}, (b){001}, (c){111}である.

## 2-3. Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の磁気トルク解析により評価した Mn-Ir 膜の磁気異方性

強磁性/反強磁性積層膜の交換磁気異方性の微視的な発現機構を検討する上で、Single spin model や Domain wall model などその主要素の1つとして示されている反強磁性層の磁気異方性を把握することは必要不可欠である。そこで本項では、前項で作製した種々の結晶配向面の Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜を用い、Mn-Ir 膜の磁気異方性を評価する。第1節で述べたように、Single spin model に基づけば、 $d_{AF}^{cr}$  以下の反強磁性層厚を持つ強磁性/反強磁性単結晶膜の十分に大きな磁界を印加し飽和した磁気トルク曲線を評価することにより、反強磁性層の磁気異方性を決定することが可能である<sup>4,8)</sup>。そこで、本項では  $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$  の場合の Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜を用い、その Mn-Ir 膜の磁気異方性を決定する。

Fig.3-10 には、MgO{110}/ Cu 200 Å/ Mn-Ir 20 Å/ Ni-Fe 200 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線の印可磁界依存性を示す。磁気トルク曲線は成膜時の印加磁界方向 MgO[1 $\bar{1}$ 0]を $\theta = 0$ としている。原因は明らかでないが(110)面配向の Ni-Fe 擬単結晶膜で大きな磁気異方性が得られたため、(110)面配向の積層膜に限り Ni-Fe 層の成膜時のプロセスガスを Ar90%+N<sub>2</sub>10%の混合ガスにし、Ni-Fe 層へ N<sub>2</sub>を添加することにより軟磁性化を図った。低印加磁界 ( $H = 40$  Oe)において1回対称の曲線が見られたが、印加磁界  $H \geq 120$  Oe において $\theta = 0, \pi$  rad.に磁化容易軸を持つ2回対称の曲線になった。これは結晶構造の対称性をよく反映していることがわかる。このような磁気トルク曲線の変化は、Fig.1-9 (a)で示した反強磁性層の磁気異方性に2回対称を仮定した Single spin model の計算結果とよく一致している。

これらの磁気トルク曲線に及ぼす Ni-Fe 層の磁気異方性の影響を確認した。Fig.3-11 に MgO{110}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 200 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線の印加磁界依存性について示す。Fig.3-10 に示した積層膜と同様に Ni-Fe 層の成膜時に N<sub>2</sub>を添加している。Mn-Ir/Ni-Fe 擬単結晶積層膜の磁気トルク曲線の振幅に対し、いずれの印加磁界においても Ni-Fe 擬単結晶積層膜の磁気トルク曲線の振幅は十分に小さいことがわかる。よって、Ni-Fe 層の磁気異方性が Mn-Ir/Ni-Fe 擬単結晶積層膜の磁気トルク曲線に及ぼす影響は無視しても問題ないと考えられる。

Fig.3-12 に、Fig.3-10 で示した MgO{110}/ Cu 200 Å/ Mn-Ir 20 Å/ Ni-Fe 200 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線から得られた $\theta$ 成分(1回対称成分)、2 $\theta$ 成分(2回対称成分)、および 4 $\theta$ 成分(4回対称成分)の印加磁界依存性を示す。印加磁界  $H \leq 90$  Oe においては $\theta$ 成分のみが存在し、印加磁界  $H > 90$  Oe においては 2 $\theta$ 成分が支配的になっていることがわかる。一般にこのような

磁気トルク曲線の特徴が変化する磁界を臨界磁界( $H^r$ )と呼ぶ。 $H^r$ 以下においては、印加磁界によって生じる静磁エネルギーが小さく、交換磁気異方性によって Mn-Ir 層に固着されている Ni-Fe 層のスピンの印加磁界に追従せず揺らぎを受け度であるために、磁気トルク曲線に  $\theta$  成分のみが現れている。一方、 $H^r$  以上においては、印加磁界によって Ni-Fe 層のスピンの回転し Mn-Ir 層のスピンのそれに追従するために、磁気トルク曲線には Mn-Ir 層の磁気異方性の対称性が反映される。 $H^r$  以上の磁気トルク曲線では  $2\theta$  成分が支配的であることから、(110)面配向の Mn-Ir 膜の磁気異方性が  $\langle 110 \rangle$  を磁化容易軸に持つ膜面に 2 回対称であることがわかる。これらの磁気トルク曲線の振幅の印加磁界依存性を Fig.3-13 に示す。Single spin model によって計算した結果(Fig.1-9 (b))と同様に、高印加磁界において磁気トルク曲線の振幅は飽和し、その値は  $0.34 \text{ dyn}\cdot\text{cm}/\text{cm}^2$  であることがわかる。

Fig.3-14 には、MgO{001}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 40 Å/ Mn-Ir 15 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線の印加磁界依存性を示す。磁化トルク曲線は成膜時の印加磁界方向 MgO[100]を  $\theta = 0$  としている。低印加磁界( $H = 40 \text{ Oe}$ )において 1 回対称の曲線が見られたが、高印加磁界  $H \geq 500 \text{ Oe}$  において  $\theta = \pi/4, 3\pi/4, 5\pi/4, 7\pi/4 \text{ rad.}$  に磁化容易軸を持つ 4 回対称の曲線になり、結晶構造の対称性をよく反映していることがわかる。これらの磁気トルク曲線の変化は、Fig.1-10 (a)で示した反強磁性層の磁気異方性に 4 回対称を仮定した Single spin model の計算結果とよく一致していることがわかる。

これらの磁気トルク曲線において Ni-Fe 層の磁気異方性の影響を確認するために、MgO{001}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 40 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線の印加磁界依存性を検討した。その結果を、Fig.3-15 に示す。いずれの印加磁界において 4 回対称の磁気トルク曲線が見られる。しかしながら、それらの振幅は Fig.3-14 に示したいずれの印加磁界の磁気トルク曲線の振幅に対しても十分に小さく、Ni-Fe 層の磁気異方性が Mn-Ir/Ni-Fe 擬単結晶積層膜の磁気トルク曲線に及ぼす影響は無視しても問題ないと考えられる。

Fig.3-16 に、Fig.3-14 で示した MgO{001}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 40 Å/ Mn-Ir 15 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線から得られた  $\theta$  成分、 $2\theta$  成分、および  $4\theta$  成分の印加磁界依存性を示す。 $H^r (= 40 \text{ Oe})$  以下において  $\theta$  成分のみが存在するが、 $H^r$  以上において  $4\theta$  成分が発現し、高印加磁界下において  $4\theta$  成分が支配的になっていることがわかる。よって、(001)面配向の Mn-Ir 膜の磁気異方性が 4 回対称を示すことがわかる。これらの磁気トルク曲線の振幅の印加磁界依存性を Fig.3-17 に示す。磁気トルク曲線の振幅は印加磁界の増加とともに増大し、高印加磁界下において飽和していることがわかる。その振幅の飽和値は  $0.029 \text{ dyn}\cdot\text{cm}/\text{cm}^2$  である。

Fig.3-18 に、MgO{111}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 40 Å/ Mn-Ir 15 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線の印加磁界依存性を示す。比較のために MgO{111}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 40 Å / Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線の印加磁界依存性を Fig.3-19 に示す。磁化トルク曲線は成膜時の印加磁界方向 MgO [110] を  $\theta = 0$  としている。(111)面配向の場合においては、Ni-Fe/Mn-Ir 積層膜の交換磁気異方性によるトルクの振幅が小さく、Ni-Fe 層の磁気異方性が磁気トルク曲線に影響を及ぼしていることがわかる。しかしながら、 $H = 400$  Oe において振幅は小さいが6回対称の成分が現れていることがわかる。

Fig.3-20 に、MgO{111}/ Cu 200 Å/ Ni-Fe 40 Å/ Mn-Ir 15 Å/ Cu 40 Å の膜構成を持つ積層膜の磁気トルク曲線から得られた $\theta$ 成分、 $2\theta$ 成分、 $4\theta$ 成分および $6\theta$ 成分(6 回対称成分)の印加磁界依存性を示す。低印加磁界下においては $\theta$ 成分が見られたが、高印加磁界下においては  $2\theta$ 成分、 $4\theta$ 成分および  $6\theta$ 成分も見られることがわかる。他の結晶配向面の場合を考慮すると、(111)面配向の Mn-Ir の磁気異方性の場合にも結晶構造の対称性を反映し6回対称を示すと考えられる。そこで本研究では磁気トルク曲線から得られた  $6\theta$ 成分の高印加磁界での値を用い Mn-Ir の  $K_{AF}^{6\theta}$  を決定する。

Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の磁気トルク曲線から得られた、それぞれの結晶配向面におけるトルク振幅の飽和値((111)面配向の場合は  $6\theta$ 成分の高印加磁界での飽和値)を用い  $K_{AF}$  を決定した。 $K_{AF}$  の算出は、第 1 節で示した以下の式を用いて行った。

$$K_{AF}^{2\theta} = (tL)^{sat} / 2d_{AF} \quad : (110) \text{面配向の場合} \quad \text{eq.3-1}$$

$$K_{AF}^{4\theta} = (tL)^{sat} / 4d_{AF} \quad : (001) \text{面配向の場合} \quad \text{eq.3-2}$$

$$K_{AF}^{6\theta} = (tL)^{sat} / 6d_{AF} \quad : (111) \text{面配向の場合} \quad \text{eq.3-3}$$

Fig.3-21 に、それぞれの結晶配向面における Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の磁気トルク曲線から決定した Mn-Ir の  $K_{AF}$ 、および Mn-Ir 膜の磁化容易方向を示す。Mn-Ir 膜の場合も Mn-Ni 膜<sup>4,7</sup>と同様に、磁化容易方向は結晶構造の対称性をよく反映し、 $K_{AF}$  は結晶配向面によって大きく異なることがわかる。(110)面配向では  $K_{AF}^{2\theta} = 8.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 、(001)面配向では  $K_{AF}^{4\theta} = 5.0 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 、および(111)面配向では  $K_{AF}^{6\theta} = 10^3 \sim 10^4 \text{ erg/cm}^3$ であった。緒言で述べたように、強磁性/反強磁性積層膜において極薄  $d_{AF}^{cr}$  の実現のためには、Single spin model および Domain wall model では  $K_{AF}$  がより大きくある必要がある。よって Mn-Ir 膜を用いた場合では、(110)面配向の場合に極薄  $d_{AF}^{cr}$  が実現されると

期待される。

本検討では得られた磁気トルク曲線を eq.3-1 ~ 3-3 で示したエネルギー式を用い Mn-Ir 膜の磁気異方性の評価を行った。しかしながら、Mn-Ir 膜の磁気異方性はいずれの結晶配向面においてもそれぞれの結晶構造の対称性を強く反映しており、これらの磁気異方性は結晶磁気異方性と考えられる。そこで、Mn-Ir 膜が F.C.C.構造や F.C.T.構造を形成していることを考慮し、立方磁気異方性を用いて本検討で得られた磁気トルク曲線の考察を行った。

Single spin model で与えられるエネルギー式は既に述べたように

$$tE = E_{AF} d_{AF} - J_K \cos(\beta - \alpha) - M_s d_F H \cos(\theta - \beta)$$

と示される。ここで、 $E_{AF}$  は単位体積あたりの反強磁性層の磁気異方性エネルギーである。印加磁界が十分に大きく強磁性層のスピンの磁界に完全に追従した場合、本式の第 3 項は定数項となる。そうした場合、磁気異方性を考慮したエネルギー式

$$E = E_A - M_s H \cos(\theta - \alpha)$$

と良く対応していることがわかる。そもそも  $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$  の場合においては、強磁性層のスピンの反強磁性層のスピンの界面の結合エネルギーによって遅れを生じながら追従しており、これは立方磁気異方性を考えた場合の強磁性層のスピンの印加磁界に遅れながら追従する中間磁界の状態と同等であると考えられる。そこで中間磁界での立方磁気異方性と Single spin model で示される磁気異方性を比較検討した。

Fig.3-22 ~ 3-24 にそれぞれの結晶配向面を仮定した場合の (a) Single spin model により計算した磁気トルク曲線 ( $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$ )、および (b) 立方磁気異方性を仮定した磁気トルク曲線 ( $K_1 = K_2 = 1$ ) を示す。いずれの結晶配向面においても強磁性層のスピンの印加磁界に遅れながら追従している磁界は  $M_s H = 1$  の場合であることがわかる。この中間磁界における (001) 面および (111) 面の磁気トルク曲線はそれぞれ 4 回対称および 6 回対称となっており、Single spin model の計算結果と良く一致していることがわかる。それに対し (110) 面の磁気トルク曲線では、4 回対称が強く現れ Single spin model の計算結果とは異なる形状であることがわかる。この立方磁気異方性の検討では  $K_1 = K_2 = 1$  以外の場合についても検討を行い、いずれの結晶配向面においても中間磁界において同様の対称性を持つ磁気トルク曲線が現れることを確認している。これらの比較結果をふまえると、(001) 面および (111) 面配向の磁気トルク曲線では立方磁気異方性での説明が可能であると考えられるが、(110) 面配向の場合では立方磁気異方性での説明が困難であることがわかる。Fig.3-8 で示したように (110) 面配向の積層膜では Mn-Ir 層は  $c/a = 0.99$  の F.C.T. 構造であるため、それを反映した一軸異方性が生じている可能性が考えられる。

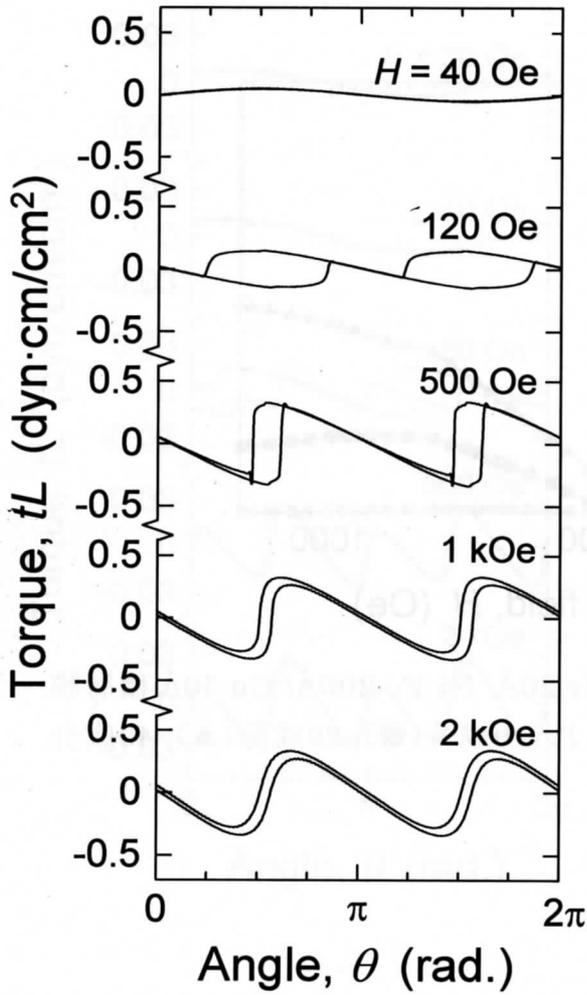


Fig.3-10  
 MgO{110} / Cu 200Å / Mn-Ir 20Å  
 / Ni-Fe 200Å / Cu 40Å 積層膜の  
 磁気トルク曲線の印可磁界依存性.

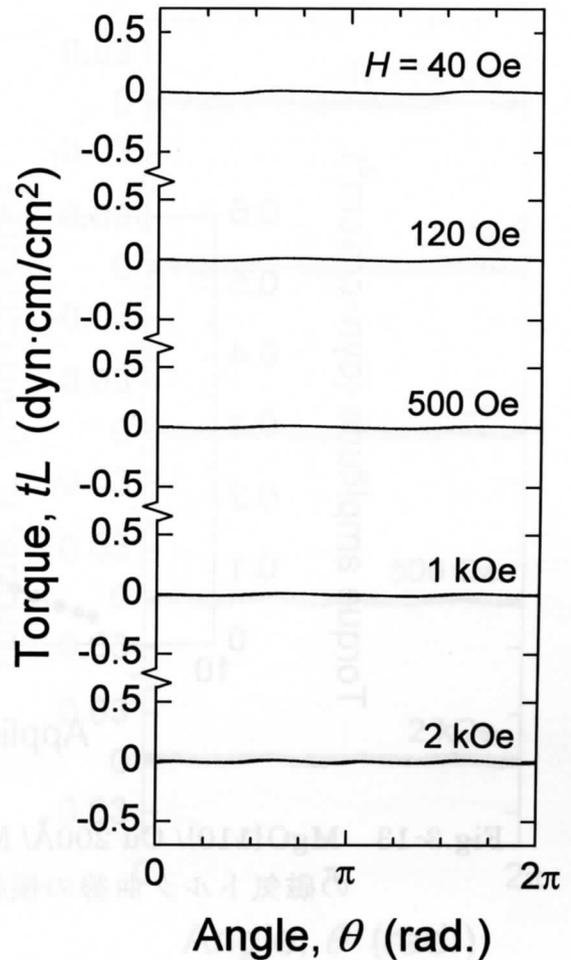


Fig.3-11  
 MgO{110} / Cu 200Å / Ni-Fe  
 200Å / Cu 40Å 積層膜の磁気トルク  
 曲線の印可磁界依存性.

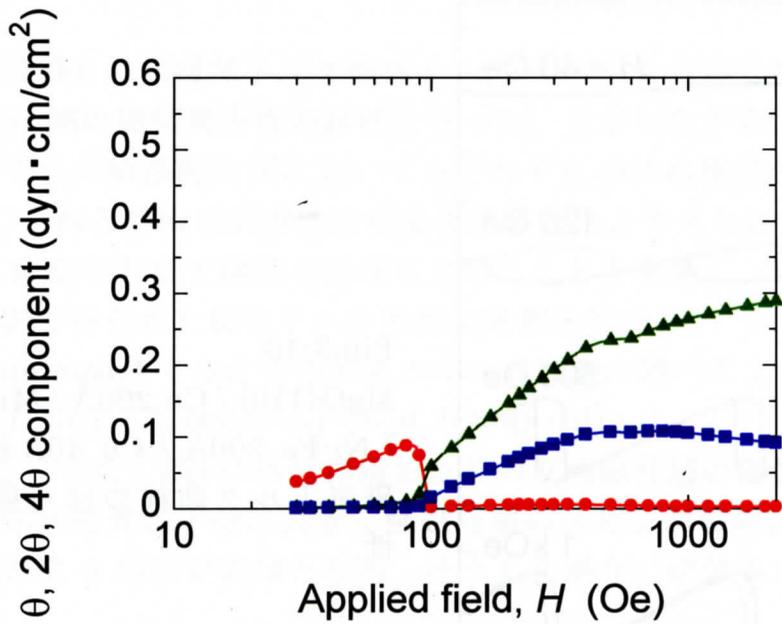


Fig.3-12 MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir 20Å/ Ni-Fe 200Å/ Cu 40Å 積層膜の磁気トルク曲線から得られるθ成分(●), 2θ成分(▲), 4θ成分(■)の印可磁界依存性.

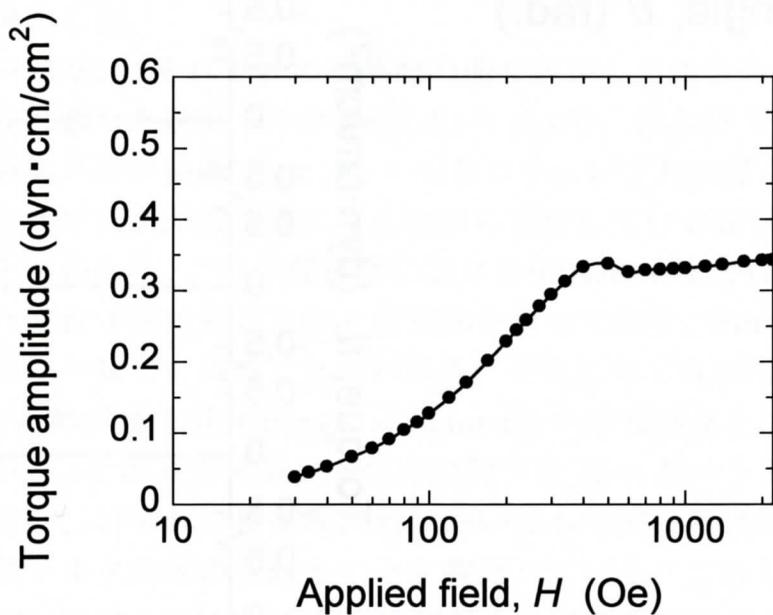


Fig.3-13 MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir 20Å/ Ni-Fe 200Å/ Cu 40Å 積層膜の磁気トルク曲線の振幅の印可磁界依存性.

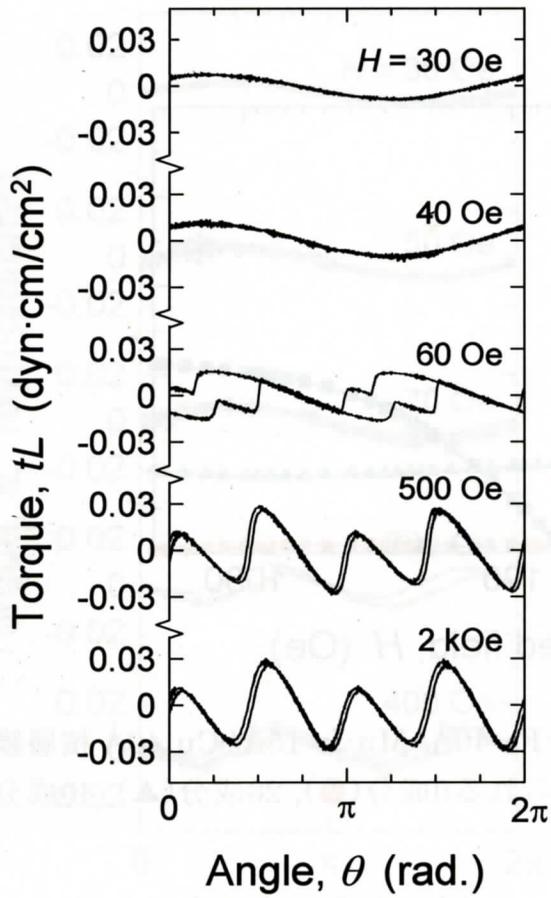


Fig.3-14  
 $\text{MgO}\{001\} / \text{Cu } 200\text{\AA} / \text{Ni-Fe } 40\text{\AA} / \text{Mn-Ir } 15\text{\AA} / \text{Cu } 40\text{\AA}$  積層膜の磁気トルク曲線の印可磁界依存性.

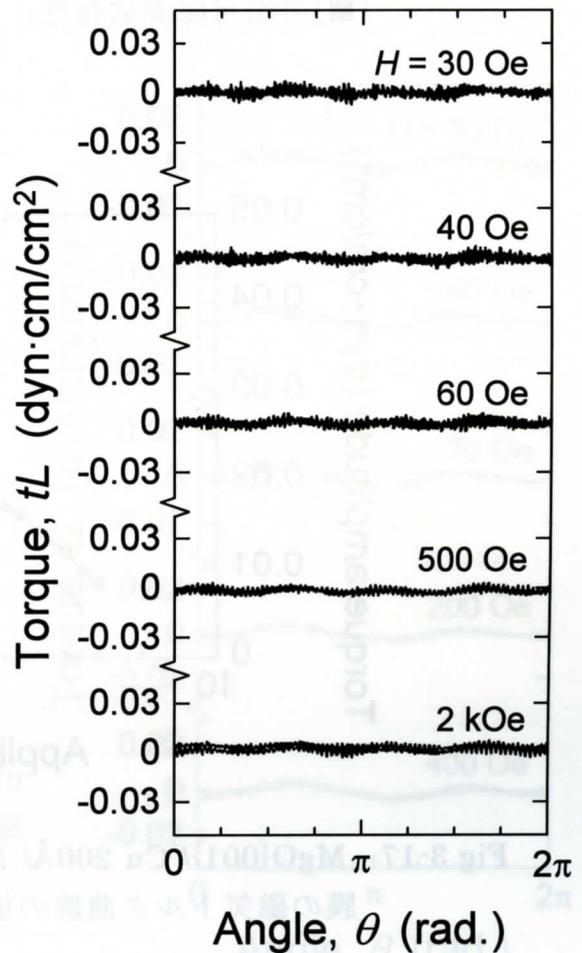


Fig.3-15  
 $\text{MgO}\{001\} / \text{Cu } 200\text{\AA} / \text{Ni-Fe } 40\text{\AA} / \text{Cu } 40\text{\AA}$  積層膜の磁気トルク曲線の印可磁界依存性.

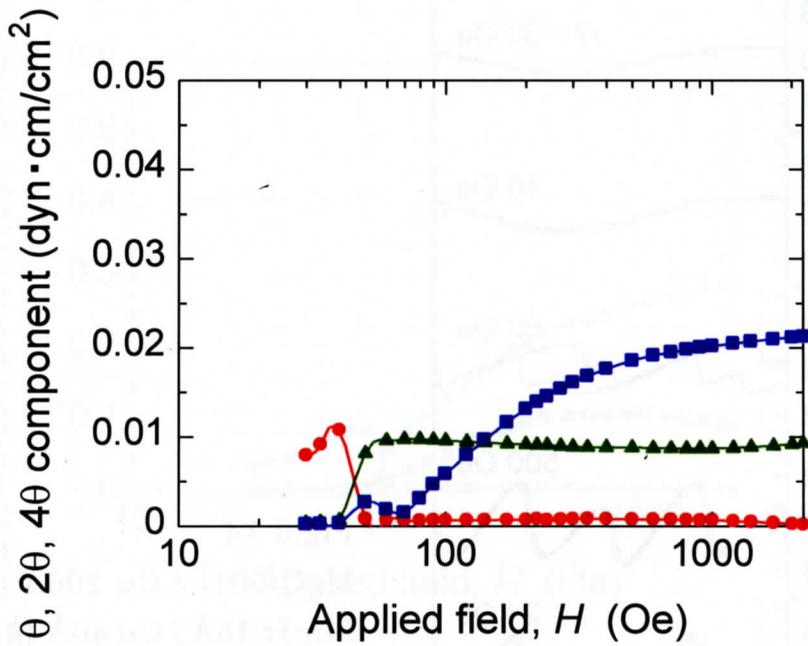


Fig.3-16 MgO{001}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 40Å/ Mn-Ir 15Å/ Cu 40Å 積層膜の磁気トルク曲線から得られる $\theta$ 成分(●), 20成分(▲), 40成分(■)の印可磁界依存性.

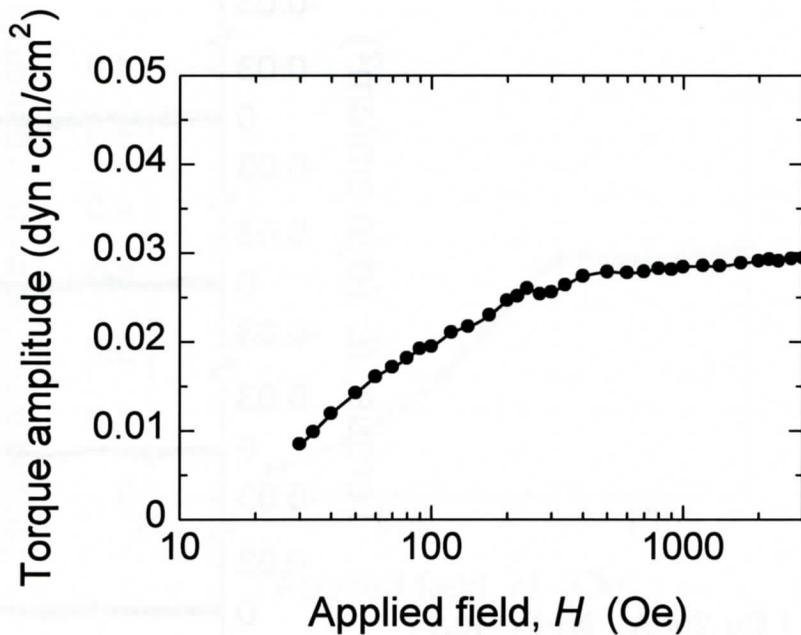


Fig.3-17 MgO{001}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 40Å/ Mn-Ir 15Å/ Cu 40Å 積層膜の磁気トルク曲線の振幅の印可磁界依存性.

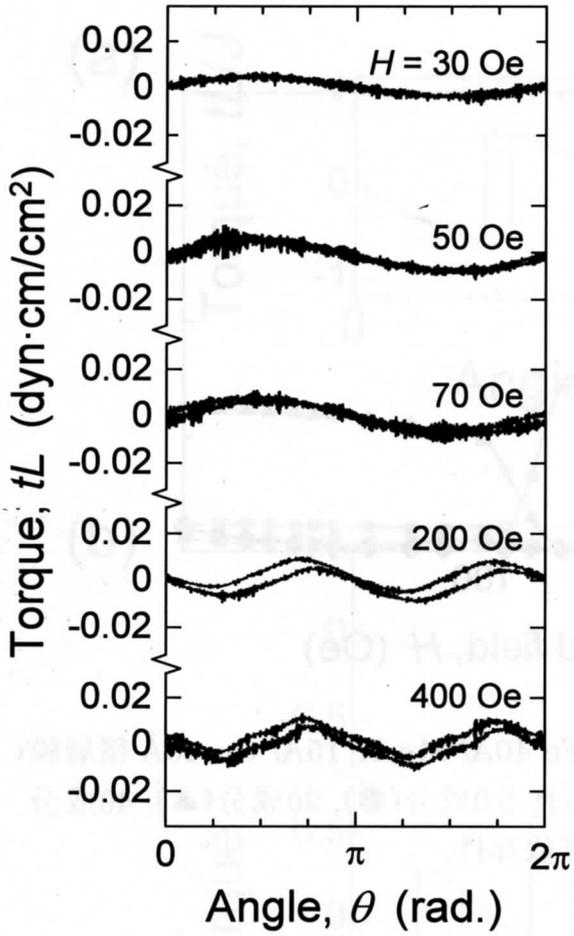
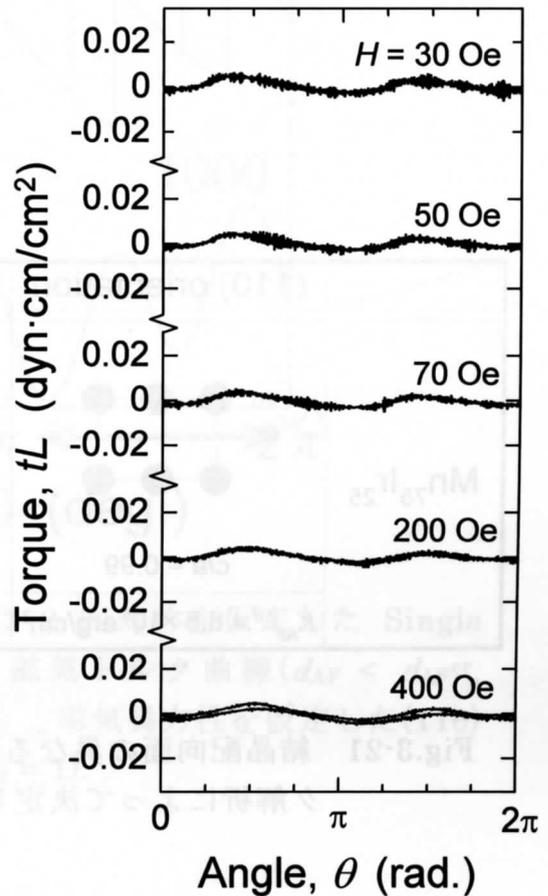


Fig.3-18  
 $\text{MgO}\{111\} / \text{Cu } 200\text{\AA} / \text{Ni-Fe } 40\text{\AA} / \text{Mn-Ir } 15\text{\AA} / \text{Cu } 40\text{\AA}$  積層膜の磁気トルク曲線の印可磁界依存性.

Fig.3-19  
 $\text{MgO}\{111\} / \text{Cu } 200\text{\AA} / \text{Ni-Fe } 40\text{\AA} / \text{Cu } 40\text{\AA}$  積層膜の磁気トルク曲線の印可磁界依存性.



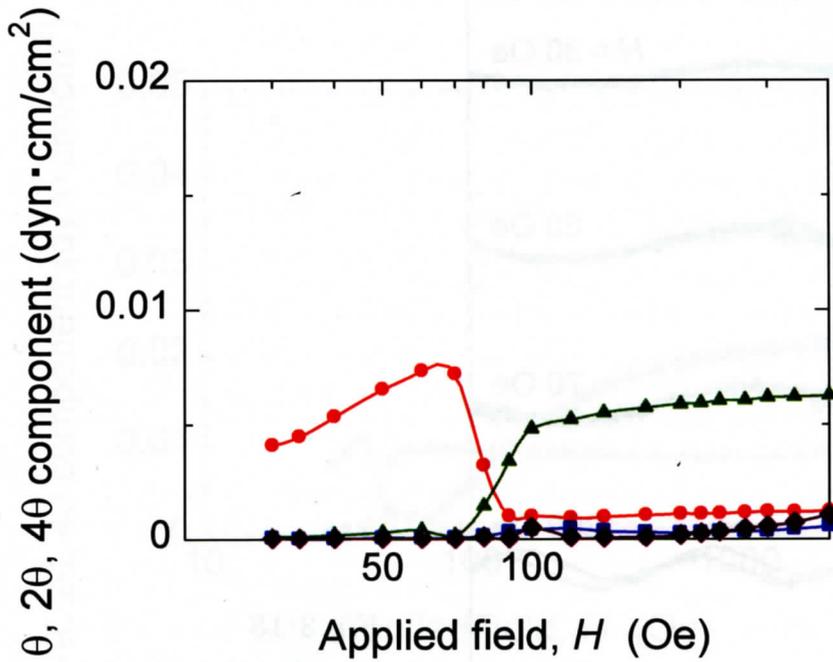


Fig.3-20 MgO{111}/ Cu 200Å/ Ni-Fe 40Å/ Mn-Ir 15Å/ Cu 40Å 積層膜の磁気トルク曲線から得られる $\theta$ 成分(●),  $2\theta$ 成分(▲),  $4\theta$ 成分(■),  $6\theta$ 成分(◆)の印可磁界依存性.

	(110) orientation	(001) orientation	(111) orientation
$Mn_{75}Ir_{25}$	 $c/a = 0.99$	 $c/a = 1.02$	 f.c.c
	$K_{AF}^{2\theta} = 8.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$	$K_{AF}^{4\theta} = 5.0 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$	$K_{AF}^{6\theta} = 10^3 \sim 10^4 \text{ erg/cm}^3$

Fig.3-21 結晶配向面の異なる Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の磁気トルク解析によって決定した  $Mn_{75}Ir_{25}$  の磁気異方性.

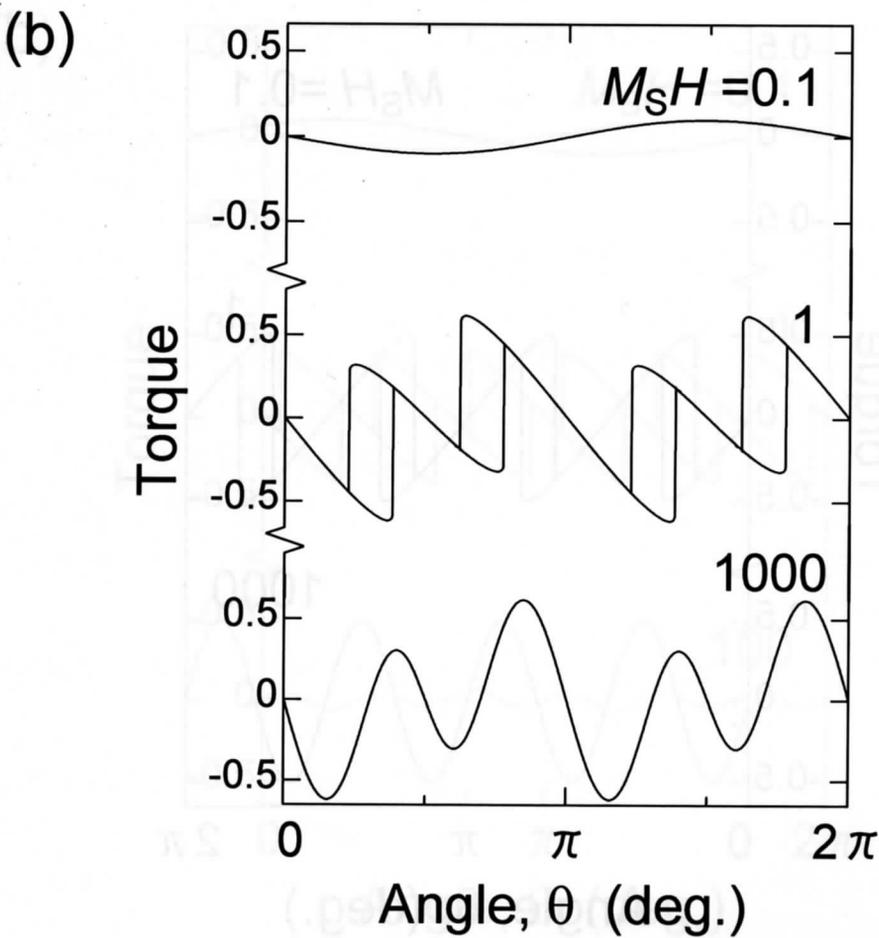
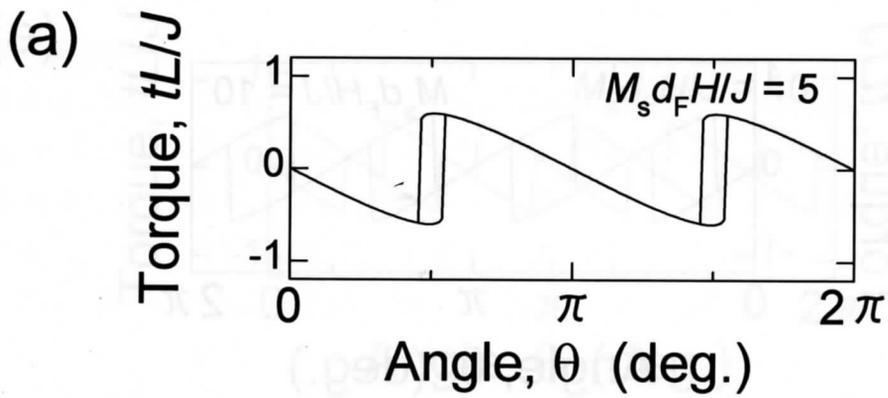


Fig.3-22 (a)反強磁性層の磁気異方性に 2 回対称を仮定した Single spin model により計算した磁気トルク曲線( $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$ ,  $K_{AF}^{2\theta} d_{AF}/J = 0.3$ ), および(b)立方磁気異方性を仮定した(110)面での磁気トルク曲線( $K_1 = K_2 = 1$ ).

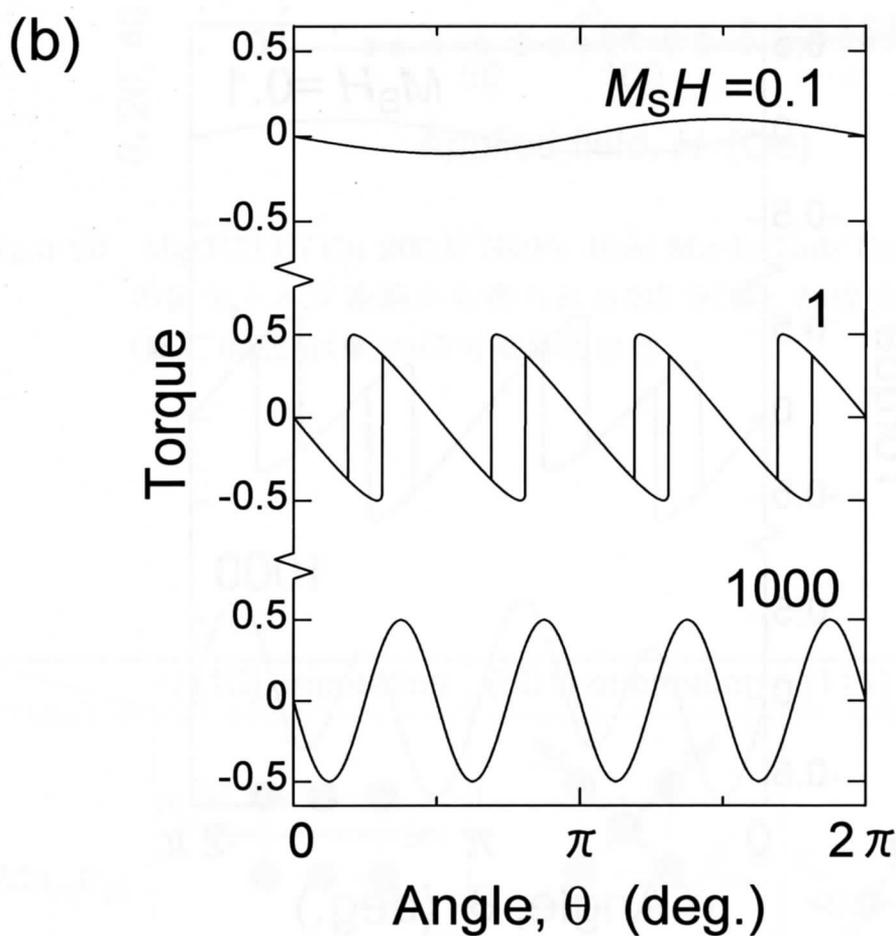
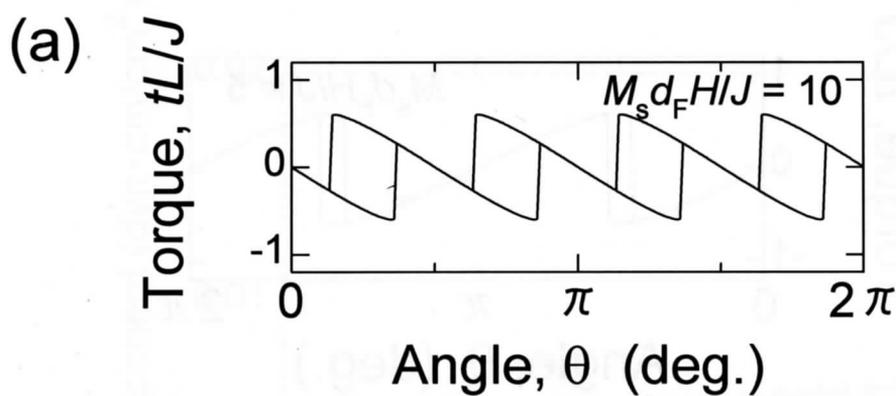


Fig.3-23 (a)反強磁性層の磁気異方性に 4 回対称を仮定した Single spin model により計算した磁気トルク曲線( $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$ ,  $K_{AF}^4 d_{AF}/J = 0.15$ ), および(b)立方磁気異方性を仮定した (100)面での磁気トルク曲線( $K_1 = K_2 = 1$ ).

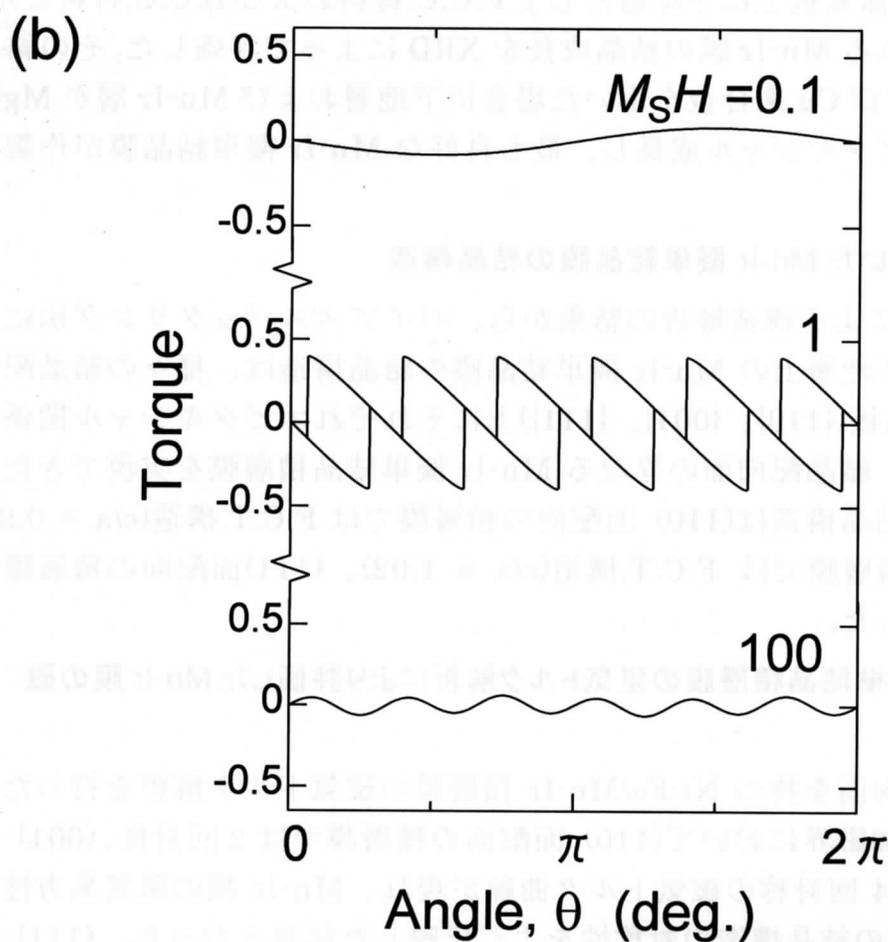
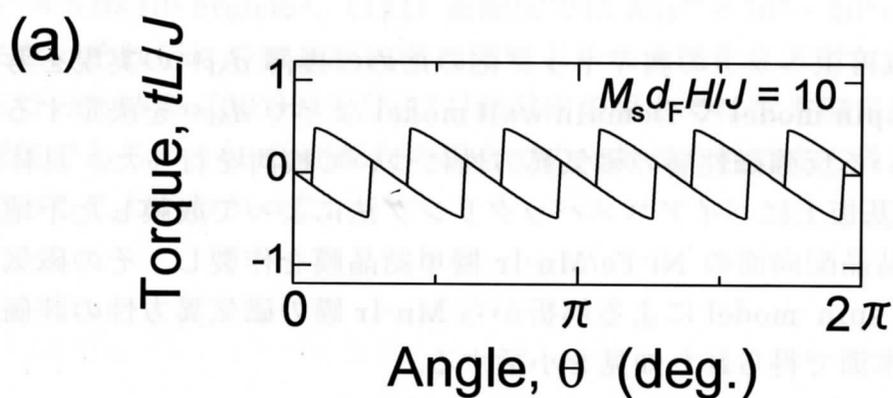


Fig.3-24 (a)反強磁性層の磁気異方性に6回対称を仮定した Single spin model により計算した磁気トルク曲線 ( $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$ ,  $K_{AF}^{6\theta} d_{AF}/J = 0.08$ ), および(b)立方磁気異方性を仮定した (111)面での磁気トルク曲線 ( $K_1 = K_2 = 1$ ).

## 2-4. 結言

本節では、磁気再生ヘッドの狭ギャップ化のための極薄  $d_{AF}^{cr}$  の実現を考えた場合に、Single spin model や Domain wall model など  $d_{AF}^{cr}$  を決定する要素として示されている反強磁性層の磁気異方性について検討を行った。具体的には、MgO 単結晶基板上にバイアスパッタリング法によって成膜した下地層を用いて、種々の結晶配向面の Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶膜を作製し、その磁気トルク曲線の Single spin model による解析から Mn-Ir 膜の磁気異方性の評価を行った。以下に、本節で得られた知見を小括する。

### 1 種々の下地層を用いた Mn-Ir 擬単結晶膜の作製

MgO{001}単結晶基板上に下地層として F.C.C.材料および B.C.C.材料を用い、その上に積層される Mn-Ir 膜の結晶成長を XRD によって評価した。その結果、下地層に Cu および Cu 系合金を用いた場合に下地層および Mn-Ir 層が MgO 単結晶基板上にエピタキシャル成長し、最も良好な Mn-Ir 擬単結晶膜が作製された。

### 2 Cu 下地層を用いた Mn-Ir 擬単結晶膜の結晶構造

X 線回折測定による構造解析の結果から、バイアスパッタリング法によって作製した Cu 下地層上の Mn-Ir 擬単結晶膜の結晶構造は、種々の結晶配向面の MgO 単結晶基板({110}、{001}、{111})上にそれぞれエピタキシャル関係を持って結晶成長し、結晶配向面の異なる Mn-Ir 擬単結晶積層膜を実現できた。また、Mn-Ir 層の結晶構造は(110)面配向の積層膜では F.C.T.構造( $c/a = 0.99$ )、(001)面配向の積層膜では F.C.T.構造( $c/a = 1.02$ )、(111)面配向の積層膜では F.C.C.構造であった。

### 3 Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の磁気トルク解析により評価した Mn-Ir 膜の磁気異方性

種々の結晶配向面を持つ Ni-Fe/Mn-Ir 積層膜の磁気トルク解析を行った結果、十分に大きな印加磁界において(110)面配向の積層膜では 2 回対称、(001)面配向の積層膜では 4 回対称の磁気トルク曲線が現れ、Mn-Ir 膜の磁気異方性はいずれも Mn-Ir 層の結晶構造の対称性をよく反映した結果となった。(111)面配向の積層膜では Mn-Ir 層の磁気異方性が小さく、強磁性層の磁気異方性が磁気トルク曲線に大きく影響を及ぼした。しかしながら、高印加磁界下において振幅は小さいが 6 回対称の成分が見られ、他の結晶配向面の場合と同様に Mn-Ir 膜の磁気異方性が Mn-Ir 層の結晶構造の対称性を反映した結果となった。また、磁気トルク曲線の飽和振幅から算出した Mn-Ir 膜の  $K_{AF}$  は結晶配向面によって大きく異なり、(110)面配向では  $K_{AF}^{20} = 8.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 、(001)面配向では

$K_{AF}^{40} = 5.0 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 、(111) 面配向では  $K_{AF}^{60} = 10^3 \sim 10^4 \text{ erg/cm}^3$  となった。

また、それぞれの結晶配向面の磁気トルク曲線を立方磁気異方性を考慮し検討を行った結果、(001)および(111)面配向の場合では立方磁気異方性によって説明可能であるが、(110)面配向の場合での一軸異方性は立方異方性での説明は困難であることがわかった。

### 第3節 Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の結晶配向面依存性

第2節において、種々の結晶配向面の Mn-Ir 膜の磁気異方性について検討した。その結果、Mn-Ni 膜の場合<sup>82</sup>と同様に結晶配向面の違いによって Mn-Ir 膜の  $K_{AF}$  は大きく変化し、その対称性は結晶構造の対称性を反映していることがわかった。本節では将来磁気再生ヘッド 1 素子が 1 結晶粒で構成される単結晶スピンバルブ素子が実現された場合に、結晶配向面がその交換磁気異方性に及ぼす影響について検討する。

強磁性/反強磁性積層膜の交換磁気異方性の諸特性は、いくつかのモデルによって反強磁性層の磁気異方性と関係を持っていることが示されている。反強磁性層の臨界膜厚( $d_{AF}^{cr}$ )は、Single spin model<sup>83</sup>では  $d_{AF}^{cr} = J/K_{AF}$ 、Domain wall model<sup>84</sup>では  $d_{AF}^{cr} \propto \sqrt{A/K_{AF}}$  と表すことができる。  $J_K$  に関しては、Single spin model では  $J_K \sim J = K_{AF} d_{AF}^{cr}$ 、Domain wall model では  $J_K = 2\sqrt{AK_{AF}}$  と表せられる。ブロッキング温度( $T_B$ )に関しては Nishioka らのモデル<sup>85</sup>によって反強磁性粒子の大きさが同じ場合、  $K_{AF}$  が大きくなると  $T_B$  が高くなる( $kT_B \approx K_{AF} v_{AF}$ )ことがわかる。また、交換磁気異方性の誘導可能な方向は Single spin model および Domain wall model よれば反強磁性層の磁化容易軸、つまり  $K_{AF}$  の対称性を反映することがわかる。以上のように、いずれの特性においても反強磁性層の磁気異方性が密接に関係していると考えられ、第2節で得られた結果をふまえると単結晶素子実現時において結晶配向面の違いが交換磁気異方性の諸特性に及ぼす影響が考えられる。そのため、本節では Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜を用いて交換磁気異方性の結晶配向面依存性について検討する。

3-1 においては、種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜を作製し、その微細構造の解析を行う。

3-2 においては、積層膜の交換磁気異方性の熱処理温度依存性について検討し、それぞれの結晶配向面の場合で最適な熱処理温度を決定する。

3-3 においては、それぞれの結晶配向面において  $d_{AF}$  を変化させた積層膜を用い結晶配向面の違いによる  $J_K$  および  $d_{AF}^{cr}$  の変化を検討する。

3-4 においては、積層膜の交換磁気異方性の温度特性から  $T_B$  の  $d_{AF}$  および結晶配向面の違いによる変化を検討する。

3-5 においては、それぞれの結晶配向面の積層膜における磁界中冷却による交換磁気異方性の誘導可能な方向について検討を行う。

3-6 においては、積層膜の強磁性層の磁化反転過程を磁区の変化を通して検討し、交換磁気異方性を誘導可能な方向との相関を考察する。

3-7 においては、前項までの実験結果から Mn-Ir 膜の磁気異方性と交換磁気異方性との相関について考察を行う。

### 3-1. 積層膜の微細構造

本項では、第 2 節と同様に結晶配向面を(110)、(001)、(111)と変化させて Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜を作製し、その結晶構造および表面形態について評価を行う。

#### 結晶構造

Fig.4-1 に、作製した MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å)/ Co-Fe 40Å/ Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイルを示す。MgO 単結晶基板からの回折線以外には、 $2\theta = 70.0^\circ$  および  $74.3^\circ$  付近に Mn-Ir(220)面および Cu(220)面からの回折線が観測された。 $d_{AF}$  の増大とともに Mn-Ir(220)面からの回折線強度が増大しており、Mn-Ir 層が(220)面に優先配向していることがわかる。

Fig.4-2 に、作製した MgO{001}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å)/ Co-Fe 40Å/ Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイルを示す。MgO 単結晶基板からの回折線以外には、 $2\theta = 47.6^\circ$  および  $50.5^\circ$  付近に Mn-Ir(002)面および Cu(002)面からの回折線が観測され、Mn-Ir 層が(002)面に優先配向をしていることがわかる。

Fig.4-3 に、作製した MgO{111}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å)/ Co-Fe 40Å/ Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイルを示す。MgO 単結晶基板からの回折線以外には、少し干渉が見られるが  $2\theta = 41.2^\circ$  および  $43.4^\circ$  付近に Mn-Ir(111)面および Cu(111)面からの回折線が観測され、Mn-Ir 層が(111)面に優先配向をしていることがわかる。

以上のように、Cu 下地層および Mn-Ir 層はそれぞれの結晶配向面の MgO 単結晶基板に対しエピタキシャル成長をしていることがわかる。これらの積層膜の結晶方位関係については極点測定の結果からも検討し、MgO 単結晶基板、Cu 下地層、Mn-Ir 層が第 2 節で示した Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜と同様のエピタキシャル関係を持つことを確認している。また、Mn-Ir 層の結晶構造は、(110)面配向の積層膜では F.C.T.構造( $c/a = 0.99$ )、(001)面配向の積層膜では F.C.T.構造( $c/a = 1.01$ )、(111)面配向の積層膜では F.C.C.構造であり、第 2 節で磁気トルク解析を行った Mn-Ir 擬単結晶膜と同様の結晶構造であった。

#### 表面形態

Fig.4-4 には、結晶配向面を変化させた MgO/ Cu 200Å/ Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/ Cu 40Å 積層膜の最表面の AFM 像を示す。(111)面配向の積層膜では MgO 単結晶基板表面の研磨傷のために  $R_a$  が他の結晶配向面の積層膜に対して大きくなっている。これを考慮すると、結晶配向面によって多少の差があるが  $R_a = 1.3 \sim 5.7 \text{ \AA}$ 、 $D_{in-plane} = 200 \sim 400 \text{ \AA}$  の良好な積層膜が作製されていることがわかる。また、同じ結晶配向面を有する積層膜では、 $d_{AF}$  による  $D_{in-plane}$  の変化は見られるものの、 $R_a$  に大きな変化がないことを確認している。

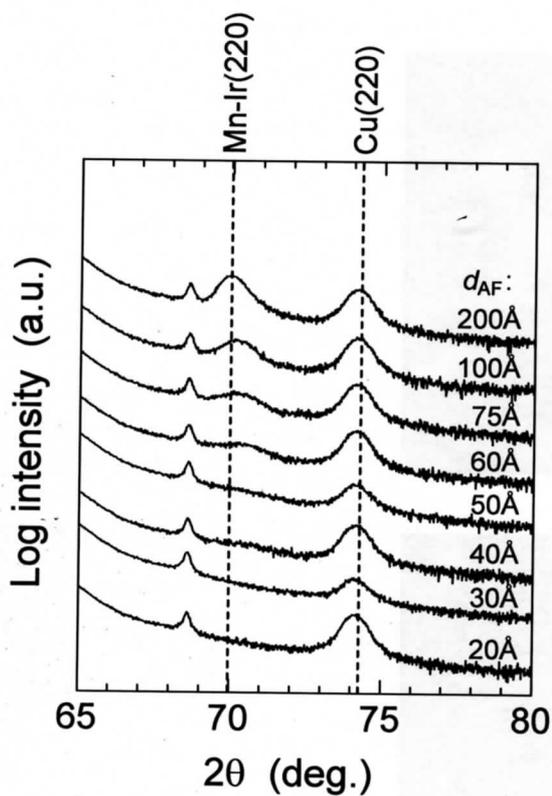


Fig.4-1  
MgO{110} / Cu 200Å / Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å) / Co-Fe 40Å / Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイル.

Fig.4-2  
MgO{001} / Cu 200Å / Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å) / Co-Fe 40Å / Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイル.

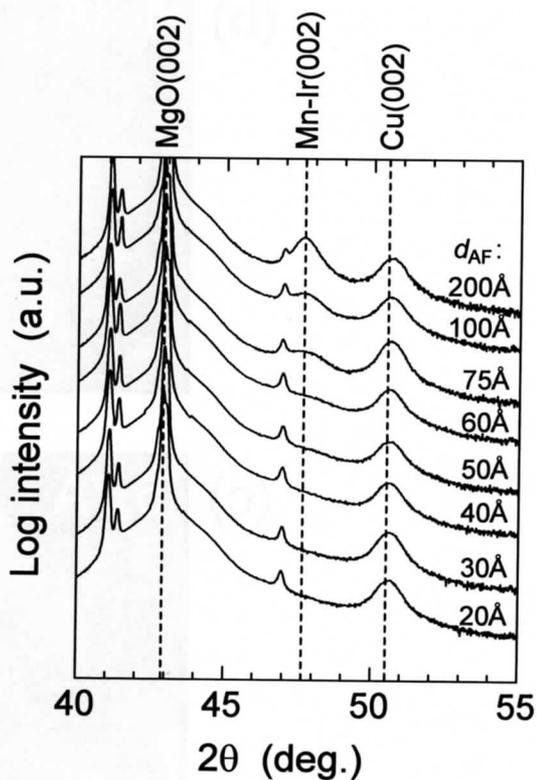
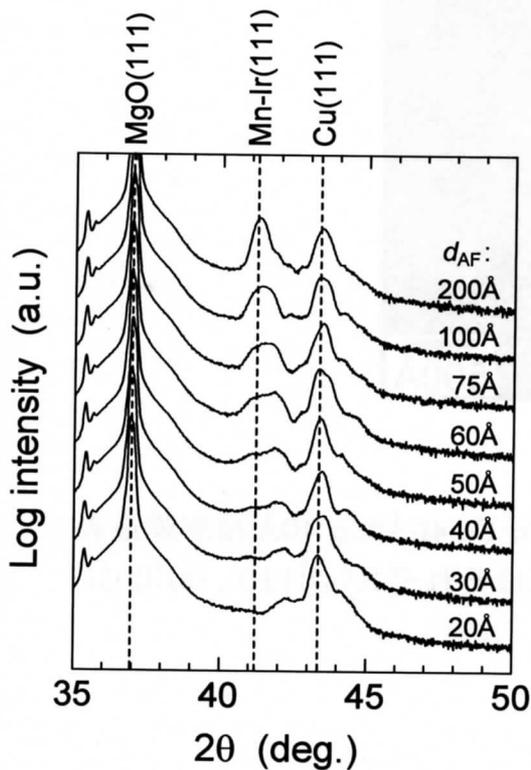


Fig.4-3  
MgO{111} / Cu 200Å / Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å) / Co-Fe 40Å / Cu 40Å 積層膜の XRD プロファイル.

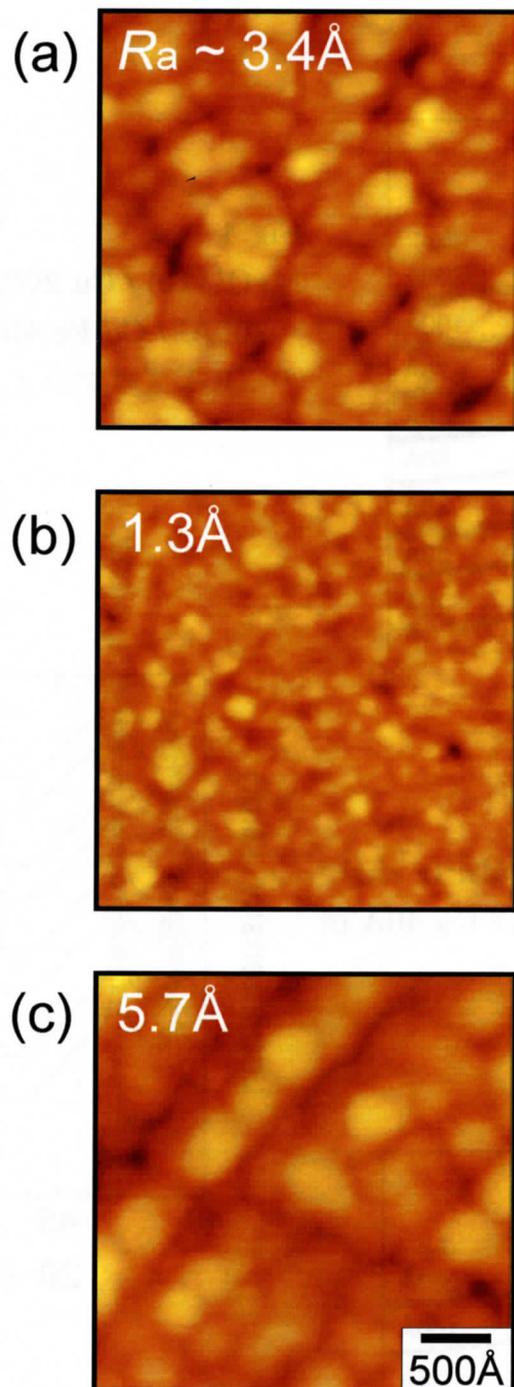


Fig.4-4 MgO/ Cu 200 $\text{\AA}$ / Mn-Ir 100 $\text{\AA}$ / Co-Fe 40 $\text{\AA}$ /Cu 40 $\text{\AA}$  積層膜最表面の AFM 像. 基板の結晶配向面はそれぞれ(a){110}, (b){001}, および(c){111}である.

### 3-2. 交換磁気異方性の熱処理温度依存性

本項では、前項で示した種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の熱処理温度依存性について検討を行い、交換磁気異方性の誘導に最適な熱処理温度を決定する。

Fig.4-5 に、MgO/ Cu 200Å/ Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å 積層膜の一方向異方性定数  $J_K$  の熱処理温度依存性を示す。いずれの熱処理温度においても(110)、(111)、(001)の結晶配向面の順に  $J_K$  が大きく誘導されていることがわかる。また、熱処理温度による  $J_K$  の変化は結晶配向面によって大きく異なる。(001)配向の場合においては、熱処理温度 240 ~ 320°C では  $J_K$  に大きな変化がなく約 0.2 erg/cm<sup>2</sup> であることがわかる。しかしながら、(111)配向の場合においては、熱処理温度 280°C で最大値  $J_K = 0.43$  erg/cm<sup>2</sup> を示し、300°C では  $J_K$  が減少している。また、(110)面配向の場合には、熱処理温度 240°C で  $J_K = 0.68$  erg/cm<sup>2</sup> を示すが、より高温の熱処理温度では減少していることがわかる。これらの  $J_K$  の減少は、AFM 像で見られるように(001)面配向の場合に対し積層膜界面の粗さが大きいために熱によって各積層が相互拡散したことによると考えられる。そこで、本節においては、いずれの結晶配向面の積層膜においても熱処理による膜劣化が生じていないと考えられる 240°C を最適な熱処理温度として検討を行う。

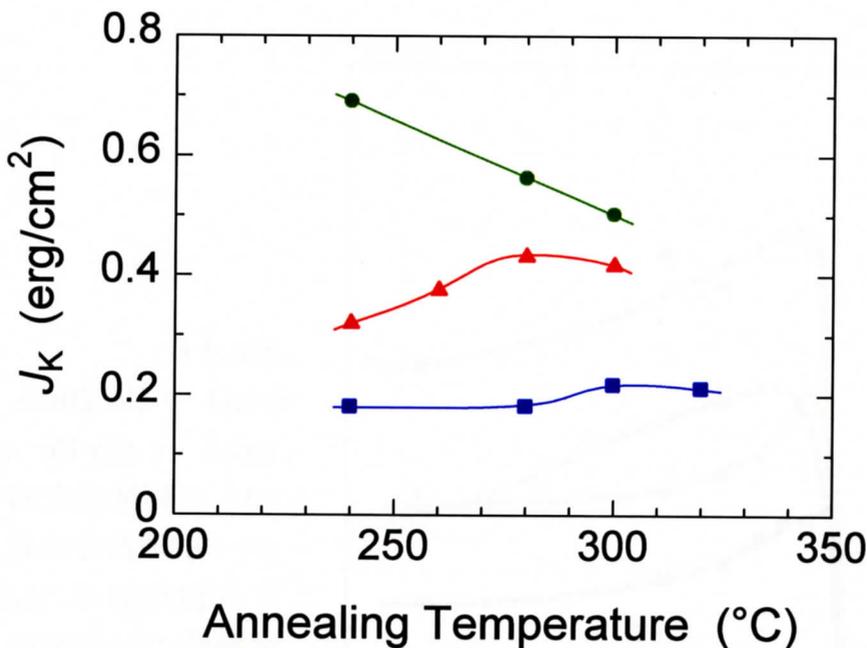


Fig.4-5 MgO/ Cu 200Å/ Mn-Ir 100Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の一方向異方性定数  $J_K$  の熱処理温度依存性. 積層膜の結晶配向面はそれぞれ●(110), ■(001), および▲(111)である.

### 3-3. 結晶配向面による交換磁気異方性の変化

磁気再生ヘッドに用いる交換磁気異方性には、その狭ギャップ化の要求から極薄の  $d_{AF}^{cr}$ 、および、外部磁界、ESD、素子微細化による反磁界による強磁性固定層の磁化反転の抑制からより大きな  $J_K$  が求められている。本項では、前項で決定した熱処理温度  $240^\circ\text{C}$  を用いて結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜に磁界中熱処理を施し、その交換磁気異方性について検討する。

Fig.4-6 に、結晶配向面の異なる MgO/ Cu  $200\text{\AA}$ / Mn-Ir  $100\text{\AA}$ / Co-Fe  $40\text{\AA}$ / Cu  $40\text{\AA}$  の膜構造を持つ積層膜の  $J_K$  の  $d_{AF}$  依存性を示す。比較のために、 $250^\circ\text{C}$  で磁界中熱処理を施した Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta  $50\text{\AA}$ / Ni-Fe  $20\text{\AA}$ / Cu  $50\text{\AA}$ / Mn-Ir  $d_{AF}(=25\sim 200\text{\AA})$ / Co-Fe  $40\text{\AA}$ / Cu  $10\text{\AA}$ / Ta  $20\text{\AA}$  の膜構成を持つ(111)面配向の多結晶積層膜の結果<sup>86</sup>を合わせて示す。 $J_K$  の最大値は結晶配向面の違いによって大きく異なり、(001)面配向では  $0.28\text{ erg/cm}^2$ 、(111)面配向では  $0.47\text{ erg/cm}^2$ 、(110)面配向では  $0.73\text{ erg/cm}^2$  となった。この(110)面配向の積層膜の  $J_K$  の最大値は、現在スピバルブヘッドに実用されている PtMn を用いた積層膜に比較し約 2 倍の値である。また、(111)面配向の積層膜においては、擬単結晶積層膜と多結晶積層膜の  $J_K$  の値は同程度となった。しかしながら、いずれの結晶配向面を持つ積層膜においても  $J_K$  の増大が急峻であり、 $d_{AF}^{cr}$  は約  $30\text{\AA}$  とほぼ一定であることがわかる。

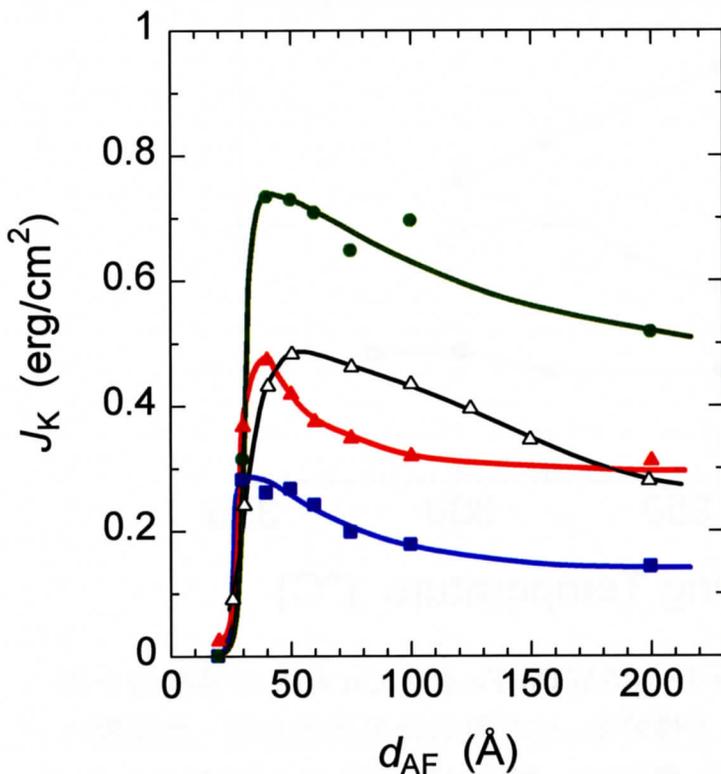


Fig.4-6  
MgO / Cu  $200\text{\AA}$  / Mn-Ir  $100\text{\AA}$  / Co-Fe  $40\text{\AA}$  / Cu  $40\text{\AA}$  の膜構造を持つ積層膜の一方向異方性定数  $J_K$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性。積層膜の結晶配向面はそれぞれ ● (110), ■ (001), および ▲ (111) である。(111) 面配向の多結晶積層膜の場合(△)もあわせて示す。

### 3-4. 交換磁気異方性の温度特性

交換磁気異方性における  $T_B$  は、再生ヘッド動作時における安定性を保つために高温であることが求められている。そこで本項では、種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性について検討し、Mn-Ir を反強磁性層に用いた積層膜でのより高い  $T_B$  の実現を試みる。

Fig.4-7 に、MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 40, 50, 100, 200Å)/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性を示す。いずれの  $d_{AF}$  の積層膜においても温度の上昇とともに  $H_{ex}$  が単調に減少し消失していることがわかる。また、 $T_B$  は  $d_{AF}$  の増大とともに上昇していることがわかる。

Fig.4-8 に、MgO{001}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 40, 50, 100, 200Å)/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性を示す。また、Fig.4-9 に、MgO{111}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 40, 50, 100, 200Å)/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性を示す。いずれの結晶配向面の場合も(110)面配向の積層膜の場合と同様に、温度の上昇とともに  $H_{ex}$  が単調に減少した後に消失し、また、 $T_B$  は  $d_{AF}$  の増大とともに上昇していることがわかる。

Fig.4-10 に、これらの結果から得られたそれぞれの結晶配向面における  $T_B$  の  $d_{AF}$  依存性を示す。参考に(111)面配向の多結晶積層膜の場合の結果<sup>87</sup>も示した。上で述べたように、いずれの結晶配向面を持つ積層膜においても  $d_{AF}$  の増大とともに  $T_B$  が増大していることがわかる。しかしながら、各  $d_{AF}$  での  $T_B$  の結晶配向面の違いによる変化がわずかで、同程度の値を示していることがわかる。また、それらの値は多結晶積層膜の場合のとも一致する結果となっていることがわかる。いずれの結晶配向面においても  $J_K$  が最大値を示した  $d_{AF} = 40\text{Å}$  の積層膜において  $T_B$  は約  $160^\circ\text{C}$  であった。また、今回検討した中で最も高い  $T_B$  を示した  $d_{AF} = 200\text{Å}$  の積層膜において  $T_B$  は約  $320^\circ\text{C}$  であった。このように、PtMn を用いた積層膜の場合の  $T_B$ (約  $380^\circ\text{C}$ )に対し、Mn-Ir を用いた積層膜の  $T_B$  は明らかに低く、これに関しては更なる検討の必要がある。

$T_B$  に関しても前項で示した  $J_K$ 、 $d_{AF}^{cr}$  と同様に第 5 節において詳細な検討を行う。

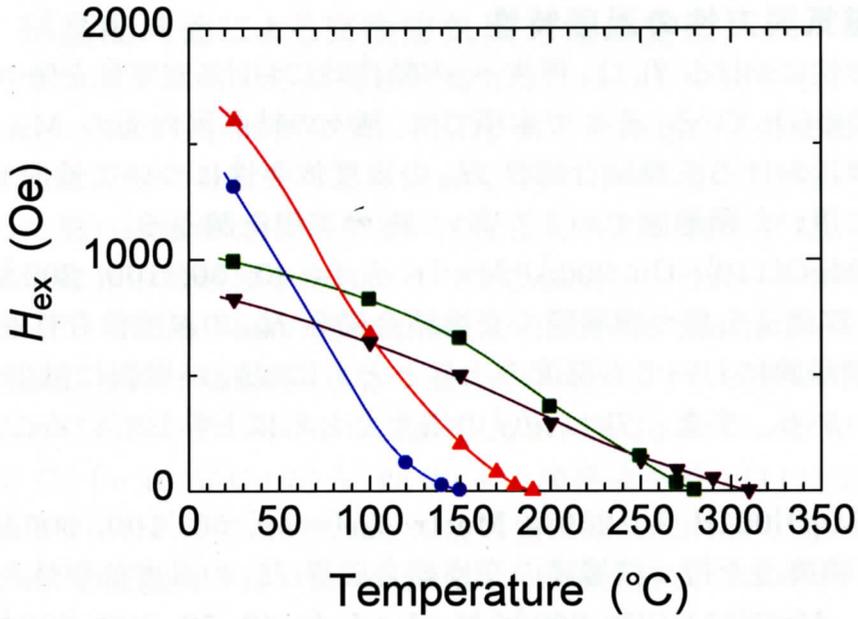


Fig.4-7 MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性. 積層膜の反強磁性層厚  $d_{AF}$  は ●:40Å, ▲:50Å, ■:100Å, および ▼:200Å である.

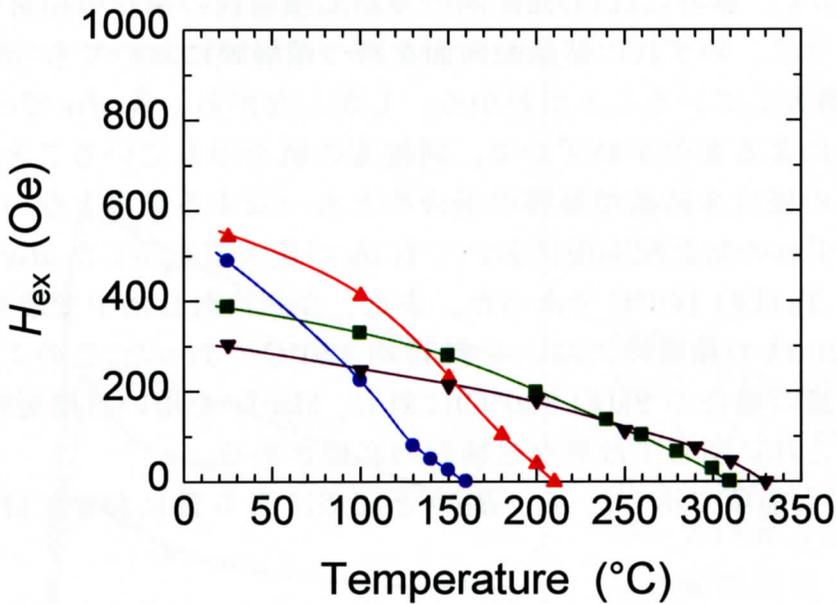


Fig.4-8 MgO{001}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性. 積層膜の反強磁性層厚  $d_{AF}$  は ●:40Å, ▲:50Å, ■:100Å, および ▼:200Å である.

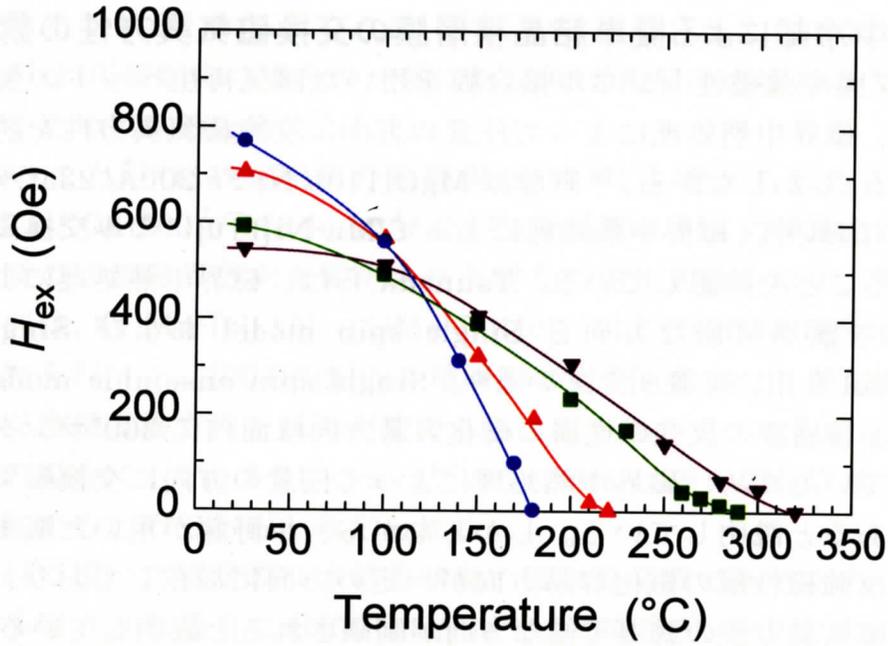


Fig.4-9 MgO{111}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の交換結合磁界  $H_{ex}$  の温度依存性. 積層膜の反強磁性層厚  $d_{AF}$  は ●:40Å, ▲:50Å, ■:100Å, および ▼:200Å である.

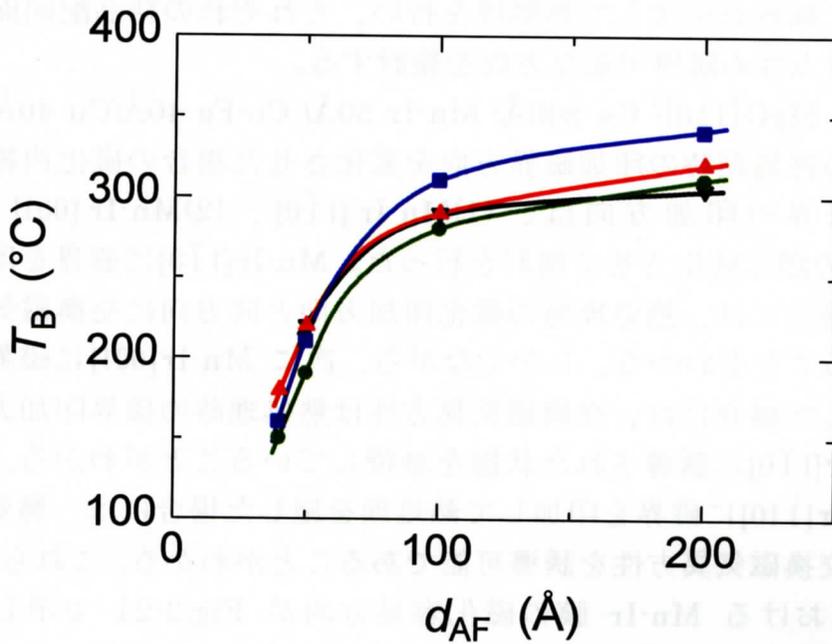


Fig.4-10 MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 40, 50, 100, 200Å)/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜のブロッキング温度  $T_B$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性. 積層膜の結晶配向面は,それぞれ ●:(110), ▲:(111), ■:(001)である. また ▼は、(111)面配向を持つ多結晶積層膜の結果<sup>6</sup>である.

### 3-5. 磁界中冷却による擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の誘導

スピバルブ膜や強磁性トンネル接合膜を用いた磁気再生ヘッドの製造過程を考慮すると、磁界中熱処理によって任意の方向に交換磁気異方性を誘導可能にする必要がある。しかしながら、甲野藤は  $\text{MgO}\{110\}/\text{Ni-Fe } 200\text{\AA}/23\text{at.}\%\text{Ni-Mn } 1000\text{\AA}$  二層膜において、磁界中熱処理によって  $\text{Mn-Ni}[1\bar{1}0]$  にのみ交換磁気異方性が誘導であることを確認している。Tsunoda らは、磁界中熱処理によって交換磁気異方性を誘導可能な方向を Single spin model および Single spin ensemble model を用いて説明している<sup>88</sup>。Single spin ensemble model<sup>89,90</sup>によれば、多結晶積層膜の反強磁性層の磁化容易方向は面内に  $360^\circ$  ランダムで分散して存在しているため、磁界中熱処理によって任意の方向に交換磁気異方性を誘導可能であると説明している。しかしながら、甲野藤が用いた擬単結晶膜の場合には、反強磁性層の磁化容易方向が一定の方向に局在しており、そこに発現する交換磁気異方性の誘導可能な方向が制限されると説明している。

第2節において、結晶配向面によって Mn-Ir 膜の磁気異方性の対称性が異なることがわかっている。そのため、結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜において交換磁気異方性の誘導可能な方向が大きく異なることが予想される。そこで本項では、結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜に対し様々な方向に磁界を印加して熱処理を行い、それぞれの結晶配向面の積層膜での交換磁気異方性の誘導可能な方向を検討する。

Fig.4-11 に、 $\text{MgO}\{110\}/\text{Cu } 200\text{\AA}/\text{Mn-Ir } 50\text{\AA}/\text{Co-Fe } 40\text{\AA}/\text{Cu } 40\text{\AA}$  の膜構造を持つ積層膜の熱処理時の印加磁界方向を変化させた場合の磁化曲線を示す。熱処理時の磁界の印加方向は、(1)Mn-Ir  $[1\bar{1}0]$ 、(2)Mn-Ir  $[001]$ 、および(3)Mn-Ir  $[\bar{1}10]$  の順に変化させて検討を行った。Mn-Ir  $[1\bar{1}0]$  に磁界を印加して熱処理を施した場合には、熱処理時の磁化印加方向と同方向に交換磁気異方性が誘導されていることがわかる。しかしながら、次に Mn-Ir  $[001]$  に磁界を印加して熱処理を施した場合には、交換磁気異方性は熱処理時の磁界印加方向に誘導されず、Mn-Ir  $[1\bar{1}0]$  に誘導された状態を維持していることがわかる。この積層膜を更に Mn-Ir  $[\bar{1}10]$  に磁界を印加して熱処理を施した場合には、熱処理時の磁界印加方向に交換磁気異方性を誘導可能であることがわかる。これらの結果は、(110)面配向における Mn-Ir 膜の磁化容易方向が Fig.3-21 で示したように Mn-Ir  $[1\bar{1}0]$  および Mn-Ir  $[\bar{1}10]$  であることによると考えられる。

Fig.4-12 に、 $\text{MgO}\{001\}/\text{Cu } 200\text{\AA}/\text{Mn-Ir } 50\text{\AA}/\text{Co-Fe } 40\text{\AA}/\text{Cu } 40\text{\AA}$  の膜構造を持つ積層膜の熱処理時の印加磁界方向を変化させた場合の磁化曲線を示す。熱処理時の磁界印加方向は、(1)Mn-Ir  $[100]$ 、(2)Mn-Ir  $[110]$ 、および(3)Mn-Ir  $[010]$  の順に変化させて検討を行った。(110)面配向の積層膜の場合に対し(001)面配向の積層膜の場合においては、熱処理時の磁界印加方向に交換磁気異方性を誘導

可能であることがわかる。これは、Fig.3-21 で示したように Mn-Ir 膜の磁化容易磁区が(110)面配向の場合の一軸に対し(001)面配向の場合には 4 方向と多く存在するためであると考えられる。

同様のことが(111)面配向の積層膜についても考えられる。Fig.4-13 に、MgO{111}/ Cu 200Å/ Mn-Ir 50Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の熱処理時の印加磁界方向を変化させた場合の磁化曲線を示す。熱処理時の磁界印加方向は、(1)Mn-Ir[1 $\bar{1}$ 0]、(2)Mn-Ir[110]、および(3)Mn-Ir[ $\bar{1}$ 10]の順に変化させて検討を行った。(001)面配向の積層膜の場合と同様に、熱処理時の磁界印加方向に交換磁気異方性を誘導可能であることがわかる。これは、(111)面配向の積層膜の場合にも Fig.3-21 で示したように Mn-Ir 膜の磁化容易方向が 6 方向と多く存在するためであると考えられる。

本検討で用いた積層膜は多結晶状態の擬単結晶膜であるため、実際の単結晶素子が作製された場合には(001)面配向および(111)面配向においても磁界中冷却による交換磁気異方性の誘導方向が制限されることが考えられる。

以上の結果は、Single spin ensemble model によって説明可能であることがわかる。また、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における交換磁気異方性の誘導方向制御の観点においては、(110)面配向の積層膜は単結晶スピバルブ素子に不適である。

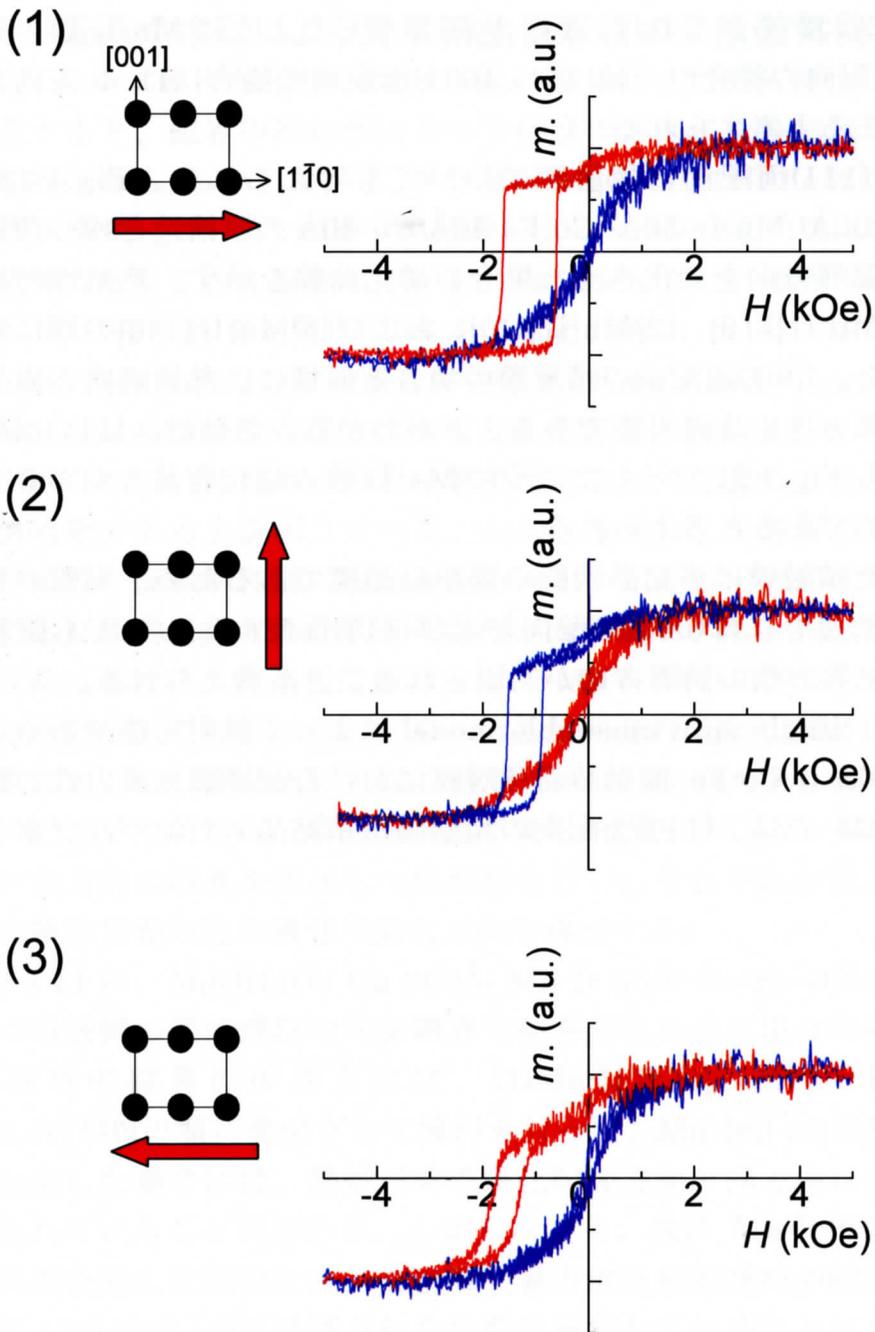


Fig.4-11 MgO{110}/ Cu 200Å/ Mn-Ir 50Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Åの膜構造を持つ積層膜の熱処理時の印加磁界方向を変化させた場合の磁化曲線. 赤矢印はMn-Ir層に対する熱処理時の印加磁界方向をである. また、赤線は熱処理時の印加磁界方向、青線はそれに対し90°の方向の磁化曲線である.

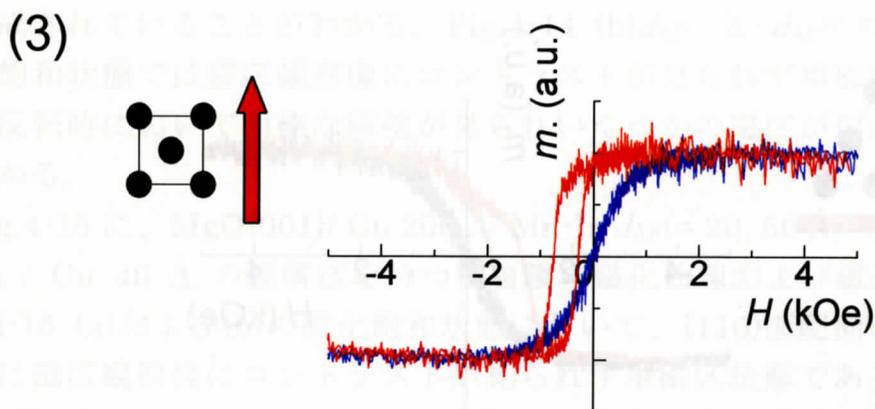
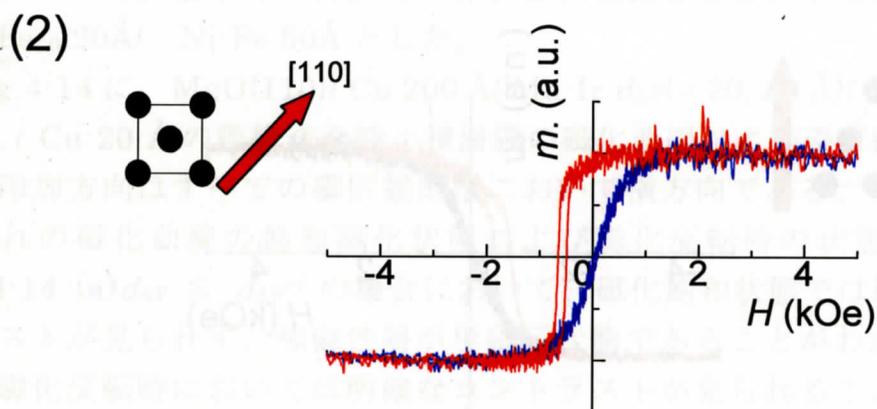
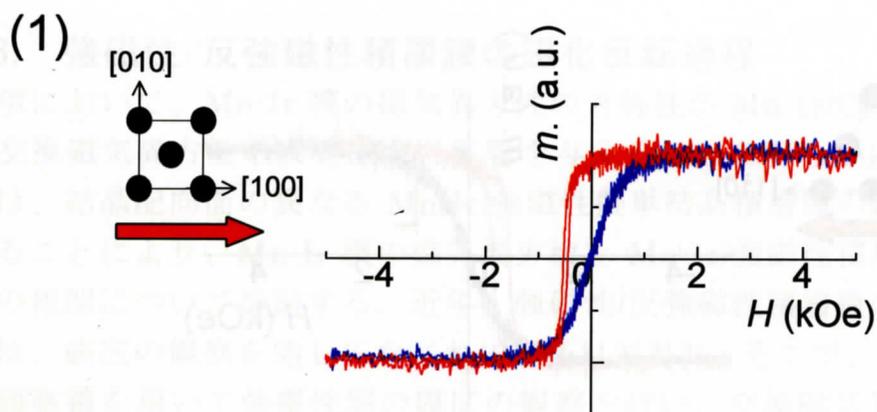
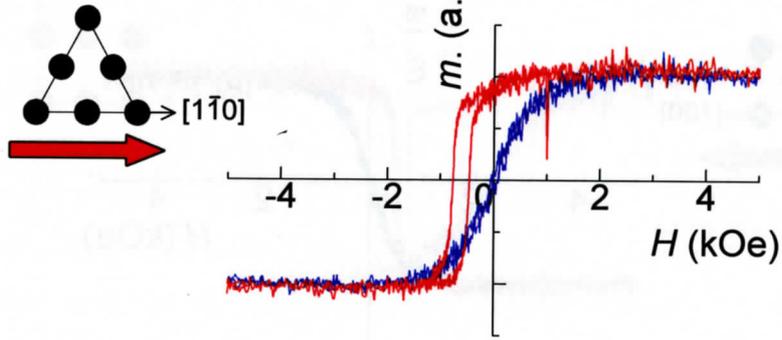
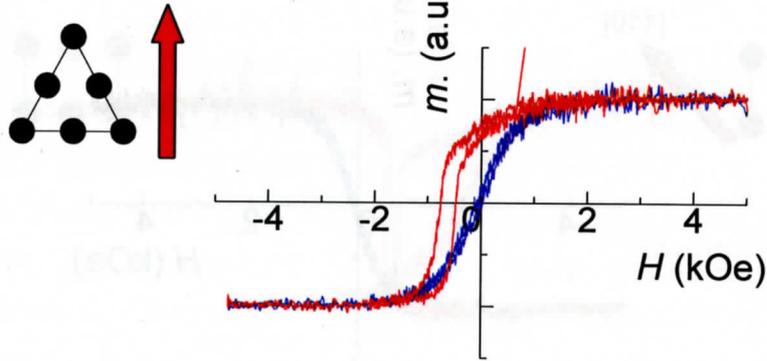


Fig.4-12 MgO{001}/ Cu 200Å/ Mn-Ir 50Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Åの膜構造を持つ積層膜の熱処理時の印加磁界方向を変化させた場合の磁化曲線. 赤矢印はMn-Ir層に対する熱処理時の印加磁界方向をである. また、赤線は熱処理時の印加磁界方向、青線はそれに対し90°の方向の磁化曲線である.

(1)



(2)



(3)

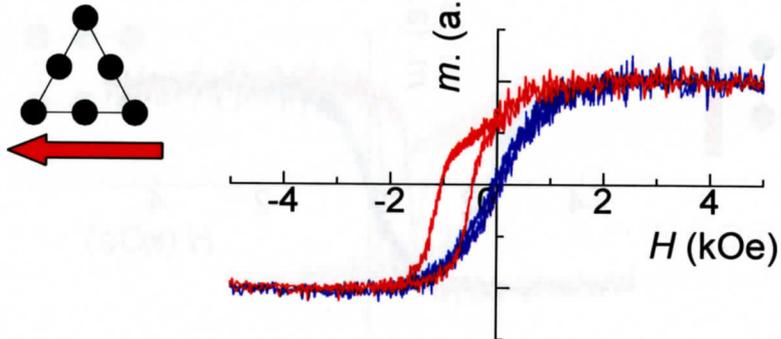


Fig.4-13 MgO{111}/ Cu 200Å/ Mn-Ir 50Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Åの膜構造を持つ積層膜の熱処理時の印加磁界方向を変化させた場合の磁化曲線. 赤矢印はMn-Ir層に対する熱処理時の印加磁界方向をである. また、赤線は熱処理時の印加磁界方向、青線はそれに対し90°の方向の磁化曲線である.

### 3-6. 強磁性/反強磁性積層膜の磁化反転過程

前項において、Mn-Ir 膜の磁気異方性の対称性が Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の誘導方向に影響を与えることを明らかにした。本項においては、結晶配向面の異なる Mn-Ir/強磁性擬単結晶積層膜の磁化反転過程を評価することにより、Mn-Ir 膜の磁気異方性と Mn-Ir/強磁性積層膜の磁化反転過程との相関について検討する。近年、強磁性/反強磁性積層膜の磁化反転過程の研究は、磁区の観察を通してなされている<sup>91,92,93,94</sup>。そこで、本検討では Kerr 効果顕微鏡を用いて強磁性層の磁区の観察を行い、交換磁気異方性の磁化反転過程について評価を行った。その際、磁区観察を容易にするため、強磁性層は Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 20Å / Ni-Fe 50Å とした。

Fig.4-14 に、MgO{110}/ Cu 200 Å / Mn-Ir  $d_{AF}(= 20, 50 \text{ \AA})$  / Co-Fe 20 Å / Ni-Fe 50 Å / Cu 20 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁区観察像を示す。磁界の印加方向はすべての磁区観察像において横方向である。磁区観察像は、それぞれの磁化曲線の飽和磁化状態および磁化反転時の状態について示す。Fig.4-14 (a)  $d_{AF} \leq d_{AF}^{cr}$  の場合において、磁化飽和状態では磁区観察像にコントラストが見られず、強磁性層が単磁区状態であることがわかる。しかしながら、磁化反転時においては明確なコントラストが見られることがわかる。このコントラストの境界線は 180°磁壁を示し、磁化反転時においていくつかの磁区が形成されていることがわかる。Fig.4-14 (b)  $d_{AF} \geq d_{AF}^{cr}$  の場合においても、磁化飽和状態では磁区観察像にコントラストが見られず単磁区状態であるが、磁化反転時において明確な磁壁が見られいくつかの磁区が形成されていることがわかる。

Fig.4-15 に、MgO{001}/ Cu 200 Å / Mn-Ir  $d_{AF}(= 20, 50 \text{ \AA})$  / Co-Fe 20 Å / Ni-Fe 50 Å / Cu 40 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁区観察像を示す。Fig.4-15 (a)および(b)の磁化飽和状態において、(110)面配向の積層膜の場合と同様に磁区観察像にコントラストが見られず単磁区状態であることがわかる。磁化反転時においては、Fig.4-15 (a)および(b)いずれにおいても(110)面配向の積層膜の場合と同様に磁区が形成されていることがわかる。しかしながら、それらの磁区の大きさは小さく、磁壁がぼやけた状態であることがわかる。

Fig.4-16 に、MgO{111}/ Cu 200 Å / Mn-Ir  $d_{AF}(= 20, 50 \text{ \AA})$  / Co-Fe 20 Å / Ni-Fe 50 Å / Cu 40 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁化反転過程における磁区観察像を示す。いずれの磁区観察像においても直線状の様相が見られるが、これは MgO 単結晶基板作製時の研磨傷を反映したものである。他の結晶配向面の積層膜と同様に、飽和磁化状態においては単磁区状態であることがわかる。Fig.4-16 (a)および(b)いずれにおいても、磁化反転時に研磨傷付近にコントラス

トが見られるが、他の結晶配向面の積層膜に見られたような大きな磁区が明確には見られないことがわかる。

以上に示した異なる結晶配向面を持つ積層膜の磁化反転時における磁区形成の差異が、それぞれの結晶配向面における強磁性層の磁気異方性に起因しないことを確認するために、MgO/Cu 200 Å/Co-Fe 20 Å/Ni-Fe 50 Å/Cu 40 Åの膜構造を持つ積層膜の磁区観察を行った。Fig.4-17に、(a)(110)面配向、(b)(001)面配向、(c)(111)面配向の積層膜の磁化曲線および磁区観察像を示す。 $H_c$ は結晶配向面によって大きな変化はなく10~25 Oeであることがわかる。磁化反転時の磁区観察像に注目すると、いずれの結晶配向面の場合においても大きな磁区が明確に観察でき、強磁性層のみの磁化反転過程において結晶配向面の違いによって変化がないことがわかる。これは、Mn-Ir/Co-Fe/Ni-Fe積層膜の磁化反転時に見られた結晶配向面による磁区形成の変化が強磁性層に起因するものではないことを示している。

それぞれの結晶配向面におけるMn-Ir/Co-Fe/Ni-Fe積層膜の磁化曲線に注目すると、磁化反転がある磁界で一斉に起こっている(110)面配向の積層膜においては大きな磁区が観測され、磁化反転をする磁界にばらつきがある(111)面配向の積層膜では小さい磁区が観測されることがわかる。このような結果は、Single spin ensemble modeを用いて説明することが可能であると考えられる。本研究で用いた擬単結晶積層膜はFig.4-4で示したAFM像から分かるように、結晶方位が揃った多結晶状態となっている。そのため、結晶方位が揃うことによりMn-Ir膜の磁気異方性の方位は揃っているが、個々の反強磁性結晶粒子は独立してエネルギー的に安定な状態で存在している。積層膜の結晶配向面が変化することによってMn-Ir膜の磁気異方性の対称性が変化し、反強磁性結晶粒子のスピンの存在する方向が多くなると、スピンの安定状態にばらつきが生じるものと考えられる。Fig.3-21で示したように、Mn-Ir膜の磁気異方性は(110)、(001)、(111)の順に対称性が高くなっている。(110)面配向の積層膜の場合ではMn-Ir膜の磁気異方性が一軸であるために、 $d_{AF}^{cr}$ 以下の $d_{AF} = 20\text{\AA}$ の場合ではFig.18(a)で示したように、ある磁化容易方向に存在した反強磁性結晶粒子のスピンの結合した強磁性層のスピンの反強磁性結晶粒子とともに磁化反転し逆方向の反強磁性結晶粒子の磁化容易方向に遷移したため、Fig.4-15(b)で示したような明確な180°磁壁および大きな磁区が見られたと考えられる。 $d_{AF}^{cr}$ 以上の $d_{AF} = 50\text{\AA}$ の場合では、反強磁性結晶粒子のスピンの1つの磁化容易方向に固定されているために、そこに発現する交換磁気異方性にばらつきが無く一斉に磁化反転を起こし大きな磁区が見られたと考えられる。(001)面配向や(111)面配向の積層膜の場合ではFig.4-18(b)に示すように、反強磁性結晶粒子の磁気異方性の対称性が高くなると、反強磁性結晶粒子のスピンの存在する方向にばらつき

が生じ、磁化反転に要する磁界にばらつきが現れ、磁区は小さく、また磁壁が不明瞭な状態になっていると考えられる。

また、Fig.4-19にはそれぞれの積層膜の磁化反転時の磁区形成の再現性を示した。いずれの積層膜の場合においても磁化反転時に再現性良く磁区が形成されていることがわかる。これは Fig.4-20に示したように部分的に反強磁性結晶粒子のスピンの強磁性層のスピンの状態にあるために、他に対して弱い磁界で磁化反転が起こっていると考えられる。

以上の結果から、強磁性/反強磁性積層膜の磁化反転過程に反強磁性層の磁気異方性の対称性が密接に関係しており、磁界中熱処理による交換磁気異方性の誘導方向と同様に Single spin ensemble model で説明可能であることが明らかとなった。

### 3-7. Mn-Ir 膜の磁気異方性と交換磁気異方性との相関

前項までに、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜を用い、結晶配向面の違いによる  $J_K$ 、 $d_{AF}^{cr}$ 、 $T_B$ 、交換磁気異方性の誘導方向などの特性の変化について検討を行った。本項においては、それらの検討結果と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を考察する。

本節冒頭で述べたように、これらの特性は Mn-Ir 膜の磁気異方性を反映すると考えられる。交換磁気異方性の磁界中熱処理によって誘導できる方向は  $K_{AF}$  の対称性を良く反映している結果となり、これは積層膜の強磁性層の磁化反転過程における磁区の形成状態からも確認することができた。これらの結果は Single spin ensemble model によって説明可能である。しかしながら、 $J_K$ 、 $d_{AF}^{cr}$ 、 $T_B$  に関しては Single spin model や Domain wall model などの微視的なモデルから予想される結果とは異なった。

Fig.4-6 で示したように、 $J_K$  はいずれの  $d_{AF}$  においても結晶配向面の違いによって大きな変化が見られた。しかしながら、Single spin model および Domain wall model においては  $K_{AF}$  の増大に伴い  $J_K$  が増大すると考えられるが、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜では  $K_{AF}((110) > (001) > (111))$  と  $J_K((110) > (111) > (001))$  のそれぞれの大小関係が対応しない結果となった。また、Fig.4-6 および Fig.4-10 で示したように、 $d_{AF}^{cr}$  および  $T_B$  は結晶配向面の違いによる変化は見られず同程度の値であった。これらの結果については、第 5 節において詳細に考察を行う。

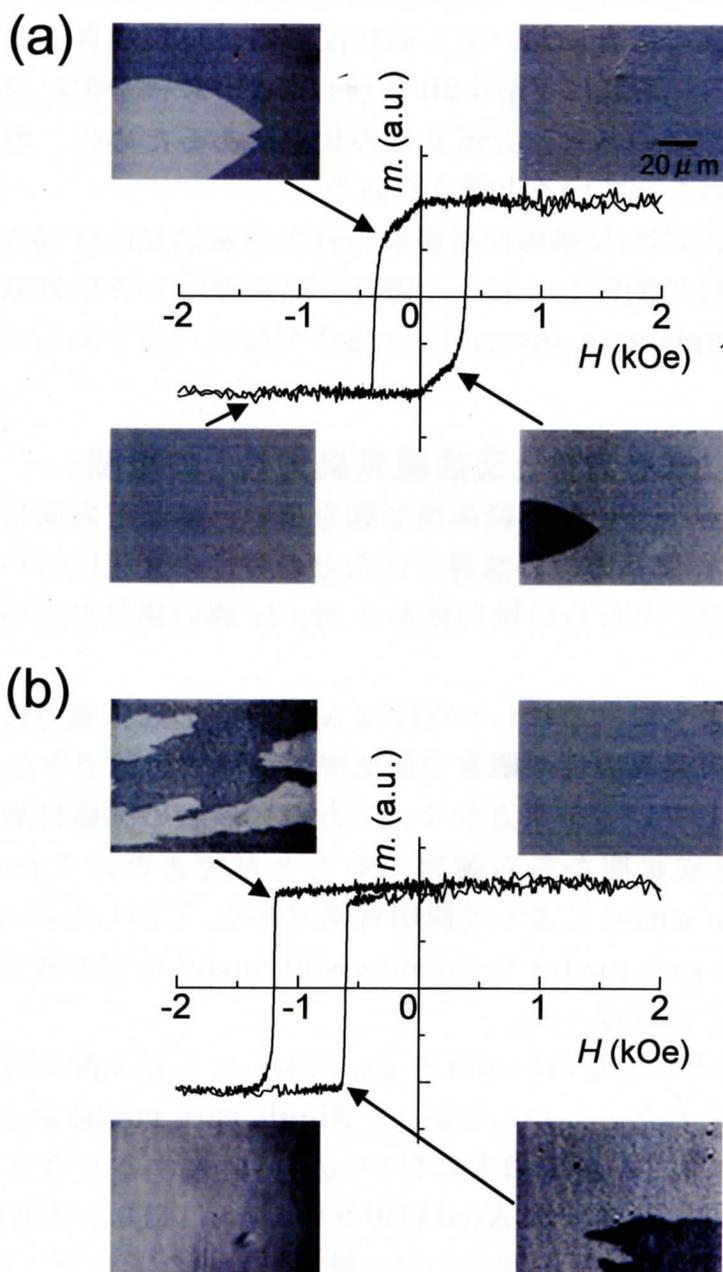


Fig.4-14 MgO{110}/ Cu 200 Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 20 Å/ Ni-Fe 50 Å / Cu 20 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁区観察像. 反強磁性層厚  $d_{AF}$  は,(a)20Å および(b)50Å である.

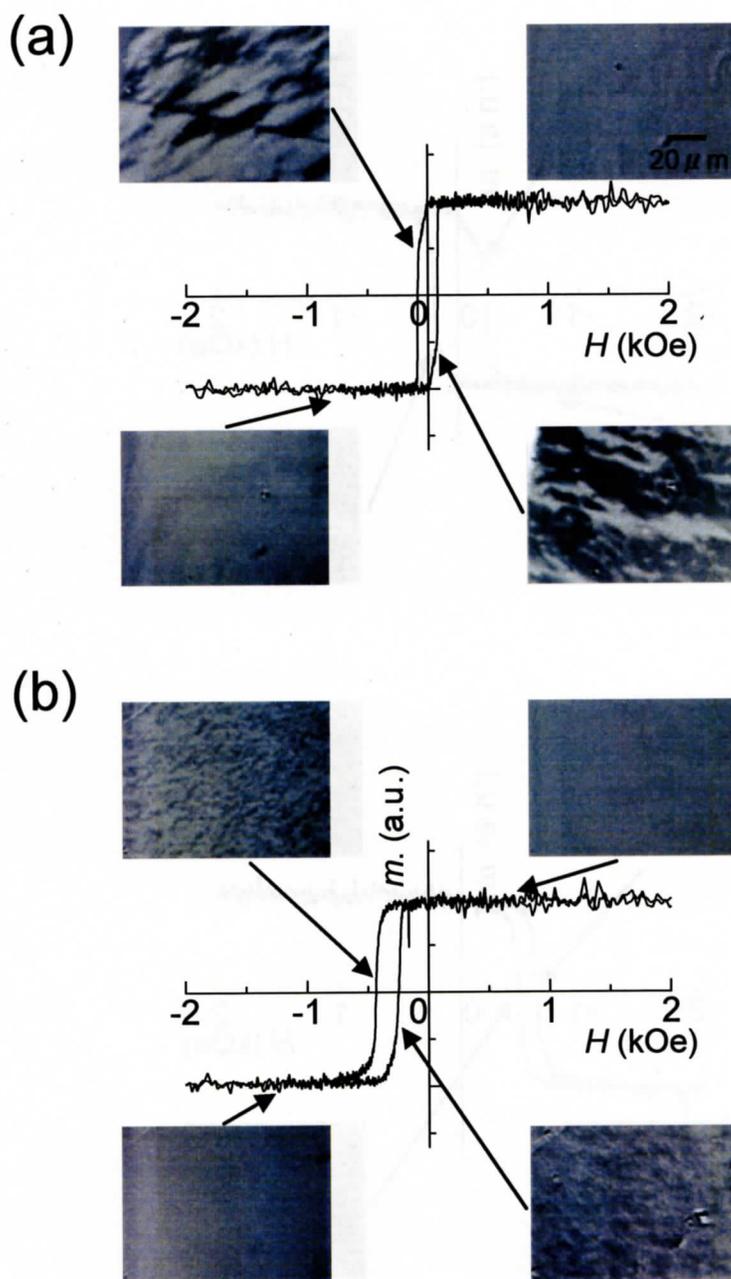


Fig.4-15 MgO{001}/ Cu 200 Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 20 Å/ Ni-Fe 50 Å / Cu 20 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁区観察像. 反強磁性層厚  $d_{AF}$  は,(a)20Å および(b)50Å である.

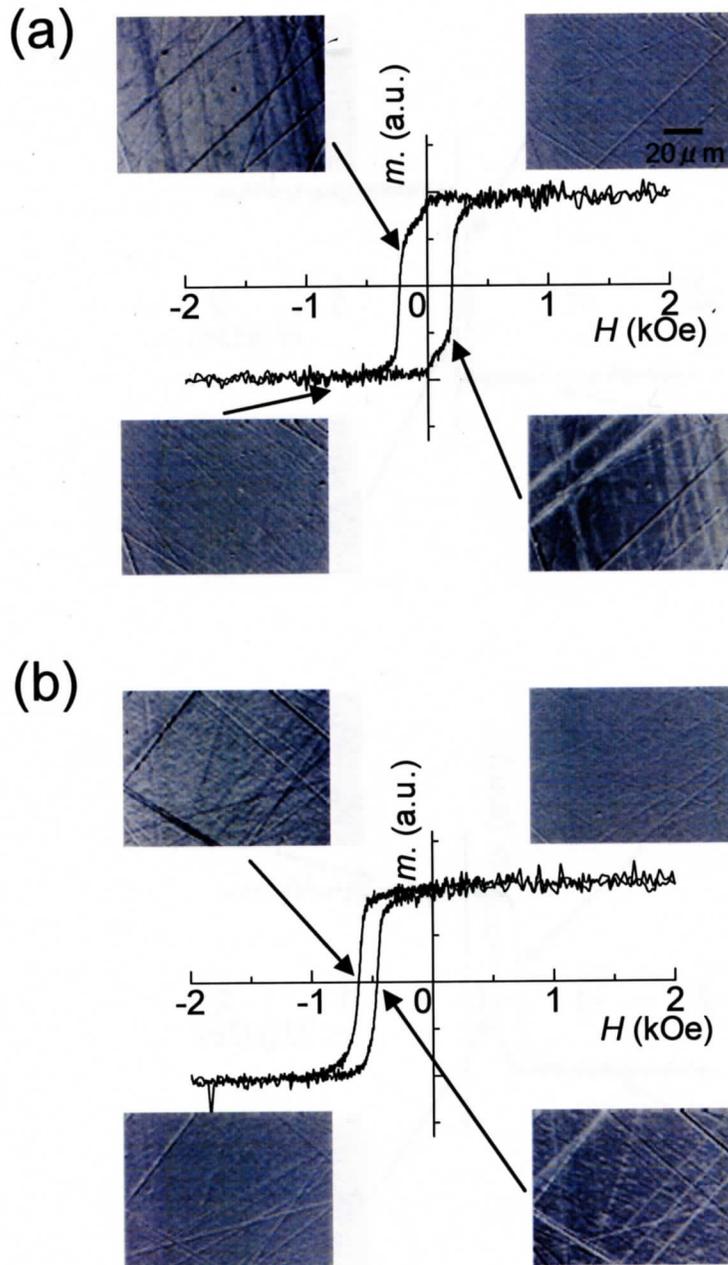


Fig.4-16 MgO{111}/ Cu 200 Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 20 Å/ Ni-Fe 50 Å / Cu 20 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁区観察像. 反強磁性層厚  $d_{AF}$  は,(a)20Å および(b)50Å である.

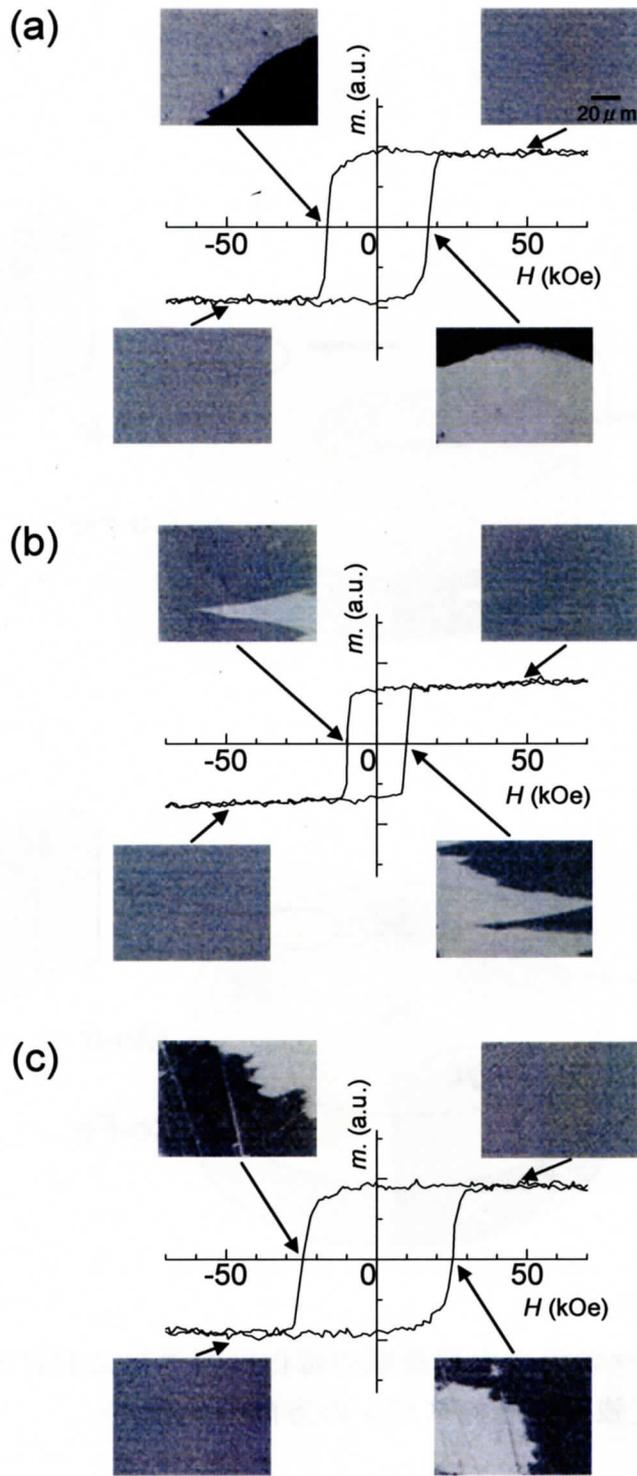


Fig.4-17 MgO/ Cu 200 Å/ Co-Fe 20 Å/ Ni-Fe 50 Å / Cu 20 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化曲線および磁区観察像. 積層膜の結晶配向面は, (a)(110), (b)(001), (c)(111)である.

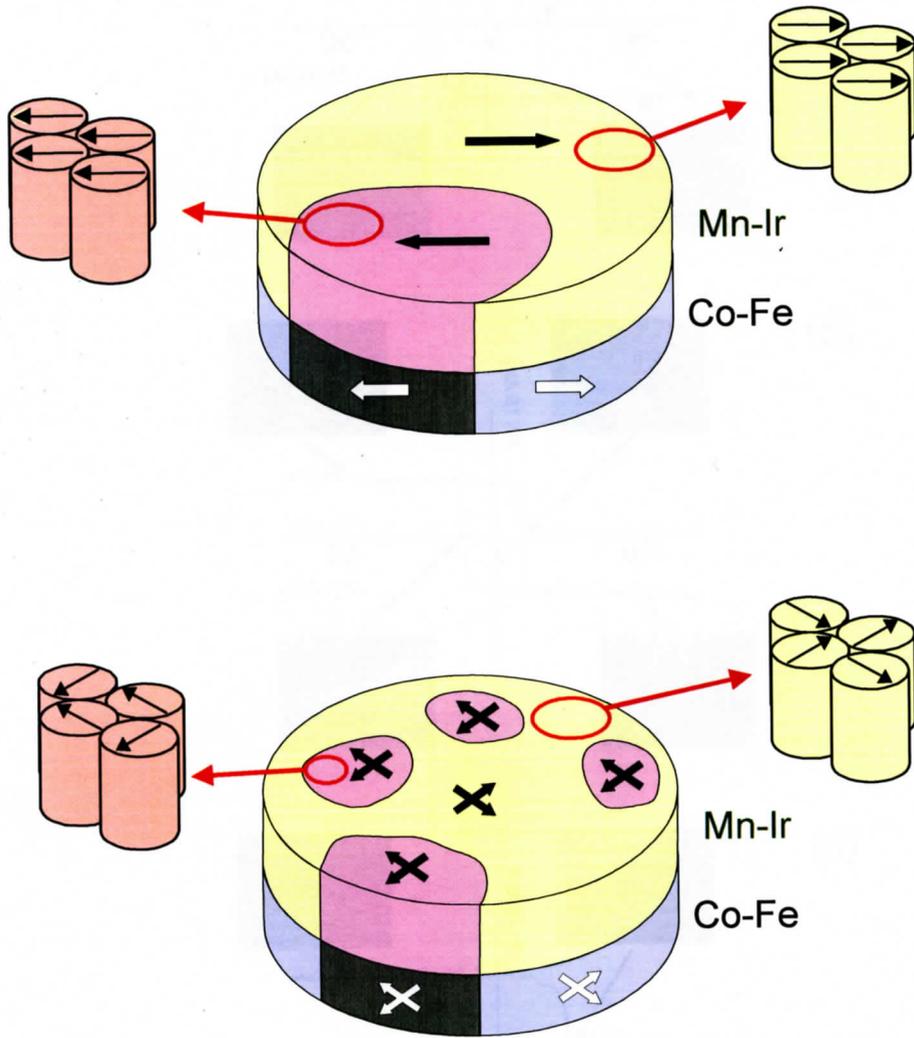


Fig.4-18  $d_{AF} < d_{AF}^{cr}$  の場合の積層膜の磁化反転過程における強磁性層および反強磁性層のスピンの方向の変化.

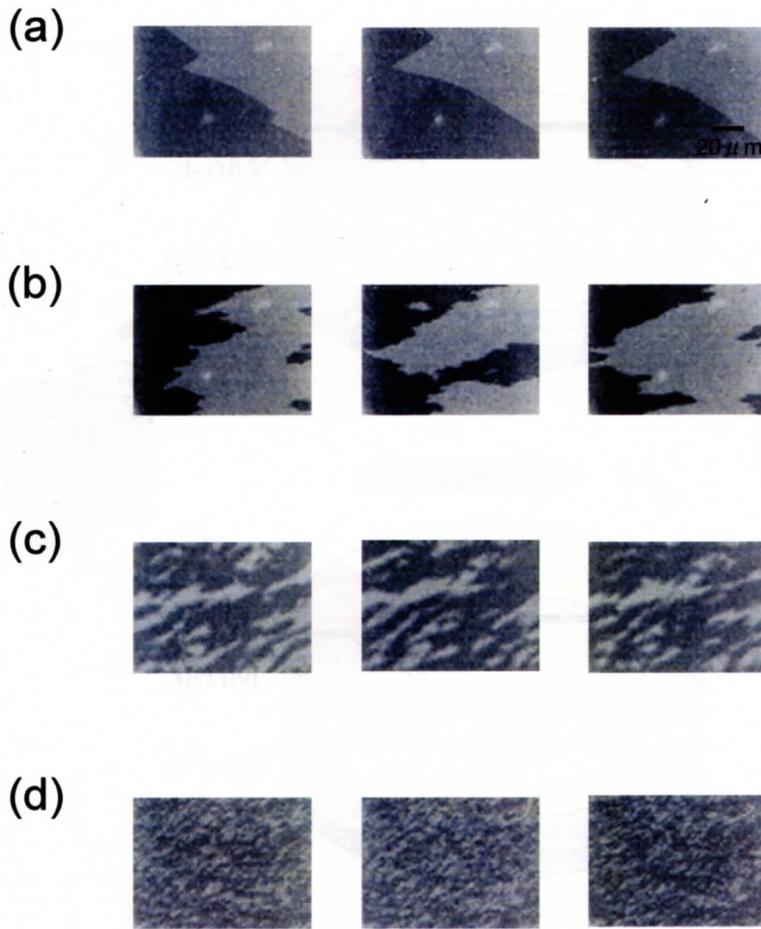


Fig.4-19 MgO/ Cu 200 Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ / Co-Fe 20 Å/ Ni-Fe 50 Å / Cu 20 Å の膜構造を持つ積層膜の磁化反転過程における磁区観察像の再現性. (a)(110) $d_{AF} = 20\text{Å}$ , (b)(110) $d_{AF} = 50\text{Å}$ , (c)(001) $d_{AF} = 20\text{Å}$ , (d)(001) $d_{AF} = 50\text{Å}$  である.

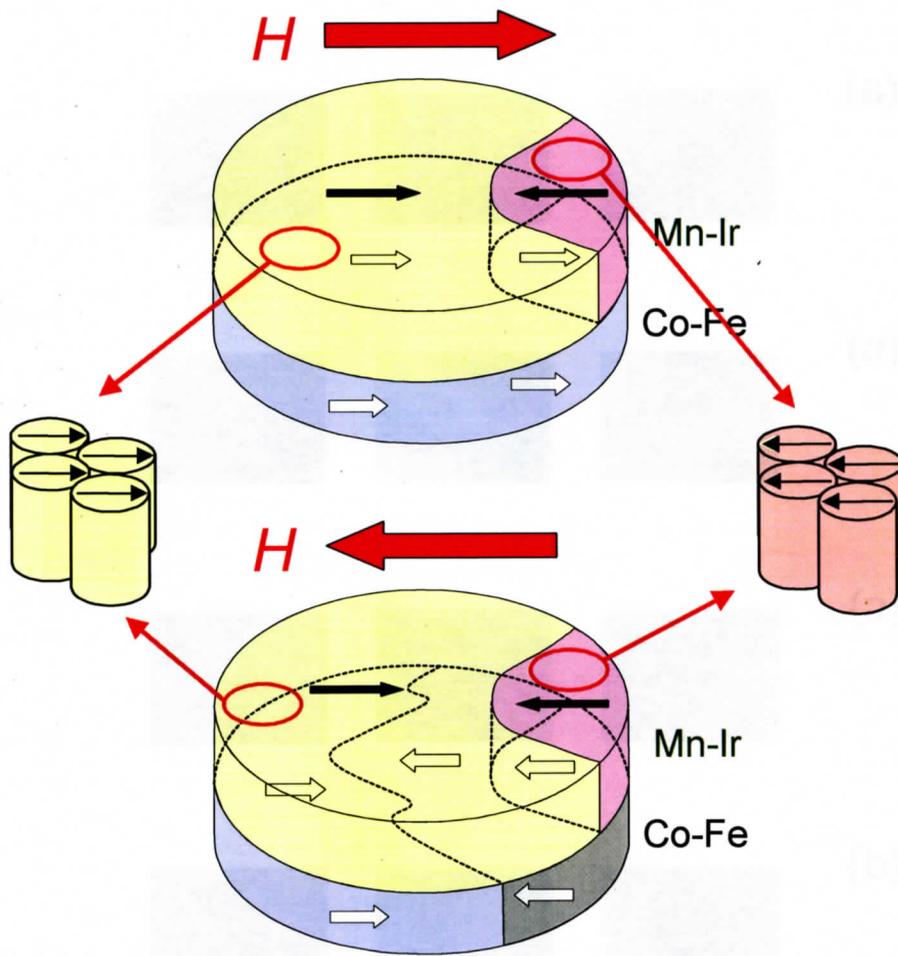


Fig.4-20  $d_{AF} > d_{AF}^{cr}$  の場合の積層膜の磁化反転過程における強磁性層および反強磁性層のスピンの方向の変化.

### 3-8. 結言

第2節において、Mn-Ir 擬単結晶膜は結晶配向面の違いによってその磁気異方性を大きく変化することがわかった。本節ではその結果をふまえ、交換磁気異方性の結晶配向面依存性について検討した。具体的には、結晶配向面を(110)、(001)、(111)と変化させた場合の交換磁気異方性の諸特性( $d_{AF}^{cr}$ 、 $J_K$ 、 $T_B$ 、誘導方向)に及ぼす影響を調べた。これにより、単結晶 SV 素子に最適な結晶配向面の選択を行った。以下に、本節で得られた知見を小括する。

#### 1. 積層膜の微細構造

作製した種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜において、Cu 下地層および Mn-Ir 層は第3章の Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の場合と同様に MgO 単結晶基板に対しエピタキシャル関係を持って成長をしていた。AFM により解析した積層膜の微細構造は、表面粗さ  $R_a = 1.3 \sim 5.7 \text{ \AA}$ 、面内結晶粒径  $D_{in-plane} = 200 \sim 400 \text{ \AA}$  と積層膜によって大きな変化がないことがわかった。

#### 2. 交換磁気異方性の熱処理温度依存性

種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における交換磁気異方性の熱処理温度に対する変化を検討した結果、結晶配向面によって  $J_K$  が最大となる熱処理温度が異なった。(001)面配向の場合では熱処理温度によらず  $J_K$  は約  $0.2 \text{ erg/cm}^2$  であった。しかしながら、(110)面配向の場合では  $240^\circ\text{C}$  の熱処理後の  $J_K = 0.73 \text{ erg/cm}^2$  を最大に、それ以上の熱処理温度では  $J_K$  が減少した。(111)面配向の場合では  $300^\circ\text{C}$  の熱処理後の  $J_K = 0.47 \text{ erg/cm}^2$  を最大にそれ以上の熱処理温度では  $J_K$  は減少した。これらの  $J_K$  の減少は積層界面での粗さが大きいことによる積層間の相互拡散によるものと考えられる。よって、いずれの結晶配向面の積層膜においても熱拡散が起こらない  $240^\circ\text{C}$  を最適熱処理温度とした。

#### 3. 結晶配向面による交換磁気異方性の変化

結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の  $J_K$  の  $d_{AF}$  依存性を検討した。その結果、いずれの結晶配向面の場合においても  $d_{AF}^{cr} = 30 \text{ \AA}$  であり、 $J_K$  が極薄の  $d_{AF}$  で急峻に増大していることがわかった。しかしながら、いずれの  $d_{AF}$  においても  $J_K$  は結晶配向面の違いによって大きく異なり、その最大値は(001)配向では  $0.28 \text{ erg/cm}^2$  ( $d_{AF} = 30 \text{ \AA}$ )、(111)配向では  $0.47 \text{ erg/cm}^2$  ( $d_{AF} = 40 \text{ \AA}$ )、(110)配向では  $0.73 \text{ erg/cm}^2$  ( $d_{AF} = 40 \text{ \AA}$ )となった。また、(111)配向の積層膜においては、擬単結晶積層膜と多結晶積層膜の場合で  $J_K$  の値は同程度となった。このように、本検討では PtMn を用いた積層膜の場合に比べ  $d_{AF}^{cr}$  は  $1/3$  以下、 $J_K$  は  $2$  倍以上の値を実現している。

#### 4. 交換磁気異方性の温度特性

結晶配向面の異なる積層膜における交換磁気異方性の温度依存性を検討した。その結果、 $T_B$  はいずれの  $d_{AF}$  においても結晶配向面によらず同程度の値を示し、

いずれの結晶配向面においても反強磁性層膜厚の増大とともに  $T_B$  は増大した。また、いずれの結晶配向面の場合においても  $J_K$  の最大値を示した  $d_{AF} = 40\text{\AA}$  では  $T_B = 160^\circ\text{C}$ 、また、 $d_{AF} = 200\text{\AA}$  の最も高い場合でも  $T_B = 320^\circ\text{C}$  となり、PtMn を用いた積層膜の場合の  $T_B (> 380^\circ\text{C})$  対し大きく下回ることがわかった。

## 5. 磁界中冷却による擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の誘導

結晶配向面の異なる積層膜の磁界中冷却による交換磁気異方性の誘導方向の変化を検討した。その結果、(110)面配向の積層膜においては $\langle 110 \rangle$ にのみ交換磁気異方性を誘導可能であることがわかった。それに対し、(001)および(111)面配向の積層膜においては任意の方向に誘導可能であった。これは、反強磁性層の磁気異方性の対称性を反映したと考えられる。つまり、(110)面配向の積層膜においては磁化容易方向が $\langle 110 \rangle$ であるために、その方向にのみ交換磁気異方性が誘導され、反強磁性層の磁気異方性の対称性が高い(001)および(111)配向の積層膜においては任意の方向に交換磁気異方性を誘導可能であると考えられる。

## 6. 強磁性/反強磁性積層膜の磁化反転過程

結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の磁化反転過程における強磁性層の磁区観察を行った。その結果、いずれの積層膜においても磁化反転時において磁区が観察された。これらの磁化反転時における磁区構造は、第 7 節で示した磁界中熱処理による交換磁気異方性の誘導可能方向と同様に、反強磁性層の磁気異方性の対称性をよく反映していた。

## 7. Mn-Ir 膜の磁気異方性と交換磁気異方性との相関

以上の結果を Mn-Ir 膜の磁気異方性を用い検討した結果、交換磁気異方性の誘導方向および磁化反転時における磁区構造と反強磁性層の磁気異方性の対称性と相関関係があることが明らかになった。しかしながら、 $d_{AF}^{cr}$  および  $T_B$  においては反強磁性層の磁気異方性と直接的な相関が見られなかった。

$J_K$  は(110)面配向の積層膜で最大値を示したが、誘導可能な交換磁気異方性の方向を考慮すると、将来スピバルブ単結晶素子の実現時において反強磁性層の磁気異方性の対称性が高い(111)面配向の場合が最適であると考えられる。

## 第4節 長時間熱処理による巨大交換磁気異方性の誘導

第3節において、交換磁気異方性の結晶配向面の違いによる変化について検討を行った。その結果、(110)面配向、 $d_{AF} = 40 \text{ \AA}$ の積層膜において $J_K$ は最大値 $0.73 \text{ erg/cm}^2$ を得ることができた。しかしながら、(001)面配向および(111)面配向の積層膜で磁界中熱処理によって交換磁気異方性を任意の方向に誘導可能であったのに対し、(110)面配向の積層膜では交換磁気異方性の誘導方向に制限があることが分かった。そのため、単結晶スピンバルブ素子の実現を考えた場合、 $J_K$ の最大値が $0.47 \text{ erg/cm}^2$ を示す(111)面配向の積層膜が有効であることになると考えられる。しかしながら、外部磁界、ESD<sup>95,96</sup>、素子微細化による反磁界などでスピンバルブ素子のピン層磁化が反転するのを抑制するためには、より大きな交換磁気異方性の誘導が必要である。

第1節でのべたように、Mn-Ir/Co-Fe積層膜において試料作製時の雰囲気の上<sup>97</sup>、Mn-Ir膜およびCo-Fe膜の組成の最適化<sup>98,99</sup>、および真空中赤外線照射によるMn-Ir膜表面の膜質改善<sup>100</sup>などにより交換磁気異方性の向上が実現されている。本節においては、交換磁気異方性の誘導のために強磁性/反強磁性積層膜に施される磁界中熱処理の条件(熱処理温度、保持時間)を変化させて交換磁気異方性の変化について検討を行う。

4-1においては、反強磁性層厚を変化させたMn-Ir/Co-Fe多結晶積層膜を用い、熱処理温度を変化させて熱処理を行った場合の交換磁気異方性の変化を検討する。その結果から、最適な熱処理温度を決定する。

4-2においては、反強磁性層厚を変化させたMn-Ir/Co-Fe多結晶積層膜を用い、保持時間を変化させて熱処理を行った場合の交換磁気異方性の変化を検討し、

より大きな交換磁気異方性の誘導を試みる。不規則合金であるMn-Irを用いた積層膜の場合には保持時間を0.5 ~ 1 hrsとした熱処理が一般的に行われる<sup>6,101</sup>が、本検討においては累積の保持時間を0.5 ~ 200 hrsと変化させて長時間の熱処理を行う。

4-3においては、4-2で得られた長時間熱処理によるMn-Ir/Co-Fe多結晶積層膜の交換磁気異方性の変化のメカニズムについて、Single spin ensemble model<sup>102,103</sup>を用いて考察を行う。

4-4においては、種々の結晶配向面のMn-Ir/Co-Fe擬単結晶積層膜に長時間熱処理を施した場合の交換磁気異方性の変化を検討する。

4-5においては、前項までに得られた実験結果から、長時間熱処理による交換磁気異方性の増大とMn-Ir膜の磁気異方性との相関について検討する。

#### 4-1. 多結晶積層膜の交換磁気異方性の熱処理温度依存性

一般的に反強磁性層/強磁性層の順に積層された積層膜は、交換磁気異方性の誘導のために磁界中熱処理が必要である。これは、反強磁性層作製時においては反強磁性層のスピンを揃わせる外力が働いておらず、as depo.では反強磁性層内のスピンの方向が面内でランダムに存在するからである。この磁界中熱処理は、一般に積層膜のブロック温度( $T_B$ )付近の温度で行われている。

本項においては、第1節でも示した Tsundoa らによって報告された Mn-Ir/Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 多結晶積層膜の交換磁気異方性の熱処理温度に対する変化<sup>104</sup>について検討する。

Fig.1-5 に、Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 20 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の一方向異方性定数  $J_K$  の熱処理温度  $T_a$  依存性を示す。すべての積層膜は、熱処理温度を 100 ~ 400°C で変化させて繰り返し保持時間 0.5 hrs の磁界中熱処理を施されている。 $J_K$  はそれぞれの温度での磁界中熱処理後に室温で測定された結果である。いずれの  $d_{AF}$  においても as depo.において  $J_K$  は約 0.1 erg/cm<sup>2</sup> 程度であったが、熱処理温度とともに  $J_K$  は増大し、400°C の熱処理後  $d_{AF} = 100Å$  の積層膜において  $J_K$  は 0.6 erg/cm<sup>2</sup> 以上となっていることがわかる。しかしながら、 $d_{AF} < 100Å$  の積層膜においては 300°C 以上の熱処理によって  $J_K$  が大きく減少していることがわかる。これは熱処理温度の上昇に伴い積層間で熱拡散が起り、反強磁性層の実効的な膜厚が減少したためと考えられる。これらの結果を考慮すると、極薄の  $d_{AF}$  で交換磁気異方性を誘導するためには、300°C 以下の低温での熱処理を行う必要があることがわかる。

#### 4-2. 長時間熱処理による多結晶積層膜の交換磁気異方性の変化

前項において、熱処理温度の上昇に伴い  $J_K$  が増大するが、磁気再生ヘッドへの応用を考えた場合に要求される極薄  $d_{AF} (< 100Å)$  の積層膜においては、熱処理温度 300°C 以上の場合で積層間での熱拡散が原因と考えられる  $J_K$  の減少が顕著に現れた。そこで、本項においては熱処理温度を 300°C 以下の低温に設定して積層間での熱拡散を抑制し、熱処理時間を大きく変化させることによって  $J_K$  の増大を検討する。

本検討では、 $d_{AF} = 25 \sim 200Å$  の Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜を用い、同一の積層膜に繰り返し同一温度で熱処理を行い、毎熱処理後に室温において  $J_K$  の測定を行った。熱処理条件は、熱処理温度を 200、250、300°C 変化させ、累積保持時間を 0.5 ~ 200 hrs とした。

Fig.5-1 に、熱処理温度 200°C における Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 25 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜

の  $J_K$  の累積熱処理時間  $t_a$  依存性を示す。  $d_{AF}^{cr}$  以下と考えられる  $d_{AF} = 20\text{\AA}$  の積層膜の場合には、  $t_a$  によって  $J_K$  に変化が無く  $0.2 \text{ erg/cm}^2$  以下の値であることが分かる。一方、  $d_{AF} \geq 30\text{\AA}$  の積層膜の場合においては、熱拡散による  $J_K$  の減少が見られず、  $t_a$  の増加に伴い  $J_K$  が単調に増大していることが分かる。特に、累積熱処理時間 200 hrs の熱処理を施した  $d_{AF} = 40\text{\AA}$  の積層膜において、  $J_K$  は最大値の  $0.69 \text{ erg/cm}^2$  となった。

Fig.5-2 に、熱処理温度  $250^\circ\text{C}$  における Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}(= 25 \sim 200\text{\AA})$ / Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の  $J_K$  の  $t_a$  依存性を示す。  $d_{AF} = 20\text{\AA}$  の積層膜の場合には、熱処理温度  $200^\circ\text{C}$  の場合と同様に累積熱処理時間に対する  $J_K$  の変化が見られないことが分かる。  $d_{AF} = 30\text{\AA}$  の積層膜の場合には、  $t_a = 5 \text{ hrs}$  までは  $J_K$  の増大が見られたが、その後  $J_K$  が減少していることが分かる。これは熱処理温度を  $250^\circ\text{C}$  にすることにより積層間の熱拡散が起こっていると考えられる。  $d_{AF} \geq 40\text{\AA}$  の積層膜の場合においては、累積熱処理時間の増大とともに  $J_K$  は増大し、その  $J_K$  の増大は熱処理温度  $200^\circ\text{C}$  の場合に対して急峻に起こっていることがわかる。  $J_K$  の最大値は  $d_{AF} = 50\text{\AA}$  において  $0.87 \text{ erg/cm}^2$  となった。

Fig.5-3 に、熱処理温度  $300^\circ\text{C}$  における Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}(= 25 \sim 200\text{\AA})$ / Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の一方方向異方性定数  $J_K$  の  $t_a$  依存性を示す。  $d_{AF} \leq 40\text{\AA}$  の積層膜において、  $t_a \geq 2 \text{ hrs}$  の熱処理により  $J_K$  の減少が始まっていることが分かる。また、  $d_{AF} \geq 50\text{\AA}$  の積層膜において  $t_a$  の増加とともに  $J_K$  が増大しているものの、その値は最大で  $0.73 \text{ erg/cm}^2$  と熱処理温度  $250^\circ\text{C}$  の場合の最大値に対し小さく、  $t_a = 200 \text{ hrs}$  において  $J_K$  が減少していることが分かる。これは熱処理温度  $300^\circ\text{C}$  では積層間の熱拡散が顕著に起こっているためと考えられる。

Fig.5-4 に、最も  $J_K$  の増大した熱処理温度  $250^\circ\text{C}$ 、累積熱処理時間 200 hrs の熱処理を施した Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}(= 25 \sim 200\text{\AA})$ / Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の一方方向異方性定数  $J_K$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性を示す。  $J_K$  は  $d_{AF} = 25\text{\AA}$  から急峻に増大し、極薄の  $d_{AF}$  である  $50\text{\AA}$  において最大  $0.87 \text{ erg/cm}^2$  の値を実現している。また、  $d_{AF} \geq 100\text{\AA}$  の積層膜においては、  $d_{AF}$  の増大とともに  $J_K$  が減少をしていることがわかる。これらの検討から、現在磁気再生ヘッドに実用されている PtMn を用いた積層膜の場合の値に比べ、Mn-Ir を用いた場合には約半分の  $d_{AF}$  で約 2 倍の大きさの  $J_K$  となり、応用上において優れた材料と成り得ることがわかる。

ここで、以上に示した結果を熱力学的に考察する。本項で検討した長時間熱処理による  $J_K$  の変化は、熱エネルギーによって  $J_K$  の増大する現象と積層間の熱拡散によって  $J_K$  が減少する現象による変化と考えることができる。そこで、

実験結果から得られた  $J_K$  の累積熱処理時間( $t$ )依存性を

$$J_K = J_K^{\max} \left( 1 - \exp \frac{-(t-t_0)}{\tau_{act}} \right) \left( (1-\Delta) - \Delta \exp \frac{-t}{\tau_{deg}} \right) \quad \text{eq.5-1}$$

を用いてそれぞれの熱処理温度においてフィッティングし、熱処理による  $J_K$  増大の活性化エネルギー( $E_a$ )の算出を行った。ここで、 $J_K^{\max}$ 、 $\Delta$ 、 $t_0$ 、 $\tau_{act}$ 、および  $\tau_{deg}$  はフィッティングパラメーターである。 $J_K^{\max}$  は熱拡散が起こらなかった場合のそれぞれの積層膜の取り得る  $J_K$  の最大値である。 $\Delta$  は熱拡散による  $J_K$  の減少量である。 $t_0$  は as depo.における反強磁性結晶粒子のスピンの分散状態を意味する。 $\tau_{act}$  および  $\tau_{deg}$  は熱処理による  $J_K$  の増大の時定数および熱拡散による  $J_K$  の減少の時定数である。Fig.5-1、Fig.5-2、Fig.5-3 に示した曲線は、eq. 5-1 を用いたフィッティングの結果である。 $d_{AF}$  以下である  $d_{AF} = 20\text{\AA}$  の積層膜の場合や熱処理温度  $300^\circ\text{C}$  において熱劣化が顕著に見られた  $d_{AF} \leq 50\text{\AA}$  の積層膜の場合にはフィッティングが困難であったため、それら以外の積層膜の場合について示した。

Table 5-1 に、フィッティングによって得られた  $J_K^{\max}$ 、 $\Delta$ 、 $t_0$ 、 $\tau_{act}$ 、および  $\tau_{deg}$  の値を示す。いずれの熱処理温度においても  $J_K^{\max}$  は  $1.5 \text{ erg/cm}^2$  となった。これは(111)面配向の Mn-Ir/Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 多結晶積層膜において  $J_K$  が最大で  $1.5 \text{ erg/cm}^2$  を発現しうることを示している。また、 $\tau_{act}$  が熱処理温度の上昇とともに減少していることから、高い熱処理温度が  $J_K$  増大に効果的であることがわかる。しかしながら、熱処理温度の増大とともに  $\tau_{deg}$  も減少をしており積層間の熱拡散を促進させていることがわかる。それぞれの熱処理温度において得られた  $\tau_{act}$  を用い、各  $d_{AF}$  でのアレニウスプロットにより長時間熱処理による  $J_K$  増大の活性化エネルギーの算出を行った。Fig.5-5 の挿入図に  $d_{AF} = 75\text{\AA}$  の場合の  $\ln(\tau_{act})$  の  $1000/T$  依存性を示す。 $\ln(\tau_{act})$  は  $1/T$  に対し直線的に変化していることがわかる。一般に  $E_a$  はこの直線の傾きから算出することができ、 $d_{AF} = 75\text{\AA}$  の場合には  $E_a = 0.43 \text{ eV}$  となった。 $d_{AF} = 100$ 、 $150$ 、および  $200\text{\AA}$  の場合についても同様に  $E_a$  を算出し、その結果から得られた Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}(= 75 \sim 200\text{\AA})$ / Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の  $J_K$  増大に要する  $E_a$  の  $d_{AF}$  依存性を Fig.5-5 に示す。 $E_a$  は  $d_{AF}$  に対し傾き  $2.8 \times 10^{-4} \text{ eV/\AA}$  で直線的に増加していることがわかる。また、 $d_{AF} = 0$  において、 $0.41 \text{ eV}$  のエネルギーが存在することがわかる。

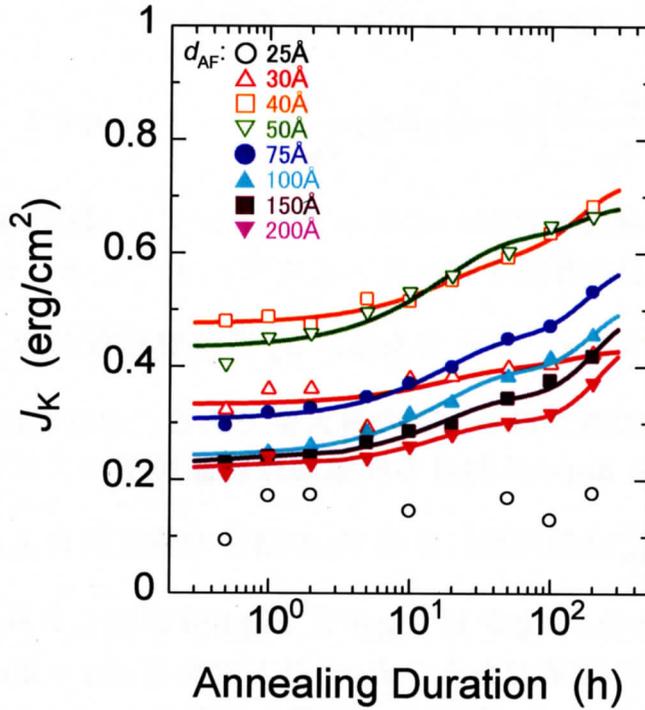


Fig.5-1 熱処理温度200°CにおけるSi/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 25 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜の一方向異方性定数 $J_K$ の積算熱処理時間依存性.

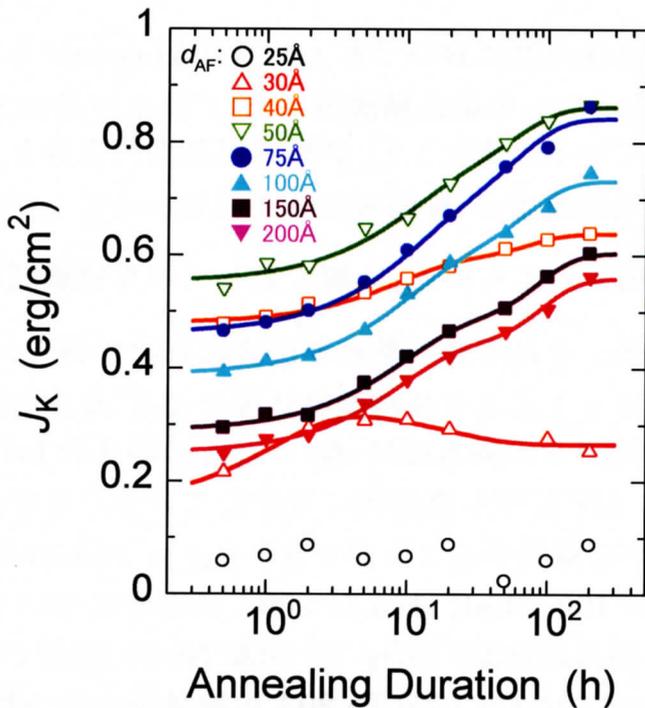


Fig.5-2 熱処理温度250°CにおけるSi/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 25 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜の一方向異方性定数 $J_K$ の積算熱処理時間依存性.

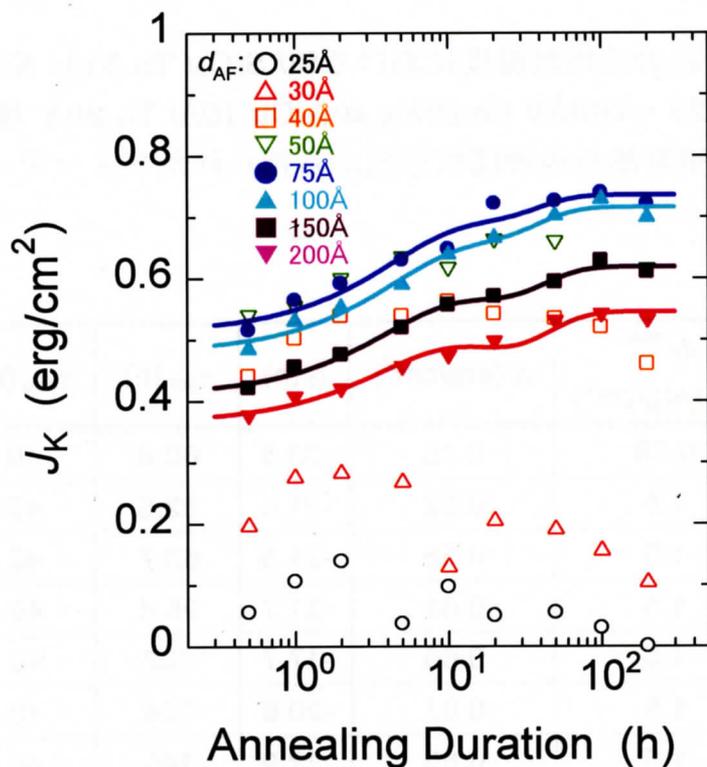


Fig.5-3 熱処理温度300°CにおけるSi/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 25 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜の一方方向異方性定数 $J_K$ の積算熱処理時間依存性.

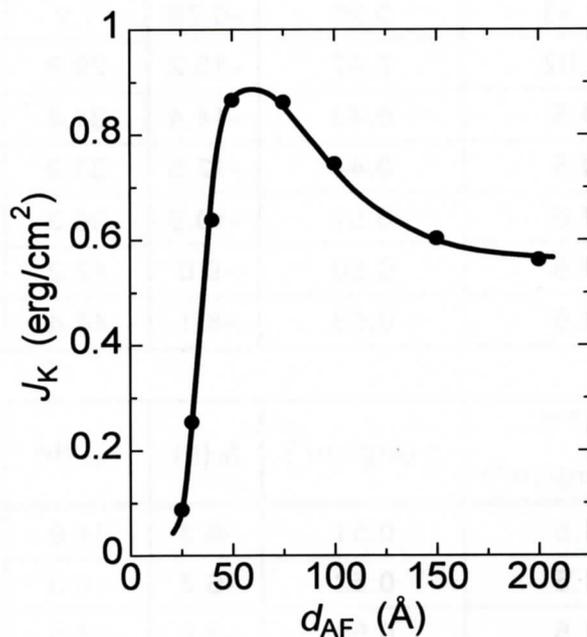


Fig.5-4 熱処理温度 250°C、積算熱処理時間 200hrsの熱処理を施したSi/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}$ (= 25 ~ 200Å)/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜の一方方向異方性定数 $J_K$ の反強磁性層厚 $d_{AF}$ 依存性.

Table 5-1 それぞれの熱処理温度におけるSi/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}(= 25 \sim 200\text{\AA})$ / Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Å 積層膜の一方 向異方性定数  $J_K$  の積算熱処理時間依存性から得られたフィッティングパラ メーター.

(a) 200°C 熱処理

$d_{AF}$ (Å)	$J_K^{\max}$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$\Delta$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$t_0$ (h)	$\tau_{act}$ (h)	$\tau_{deg}$ (h)
30	0.78	0.45	-33.5	60.4	40
40	1.5	0.52	-31.4	82.6	40
50	1.5	0.55	-21.6	63.7	40
75	1.5	0.61	-21.7	95.4	40
100	1.5	0.66	-17.7	102	40
150	1.5	0.67	-20.6	124	40
200	1.5	0.69	-22.9	145	40

(b) 250°C 熱処理

$d_{AF}$ (Å)	$J_K^{\max}$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$\Delta$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$t_0$ (h)	$\tau_{act}$ (h)	$\tau_{deg}$ (h)
30	0.33	0.20	-0.78	1.2	20
40	1.02	0.47	-15.2	29.9	20
50	1.5	0.43	-14.4	31.4	20
75	1.5	0.44	-12.5	33.9	20
100	1.5	0.51	-10.9	36.3	20
150	1.5	0.60	-9.0	42.2	20
200	1.5	0.63	-8.1	44.4	20

(c) 300°C 熱処理

$d_{AF}$ (Å)	$J_K^{\max}$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$\Delta$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$t_0$ (h)	$\tau_{act}$ (h)	$\tau_{deg}$ (h)
75	1.5	0.51	-6.3	14.9	10
100	1.5	0.52	-6.2	16.0	10
150	1.5	0.59	-5.6	17.5	10
200	1.5	0.64	-5.6	20.0	10

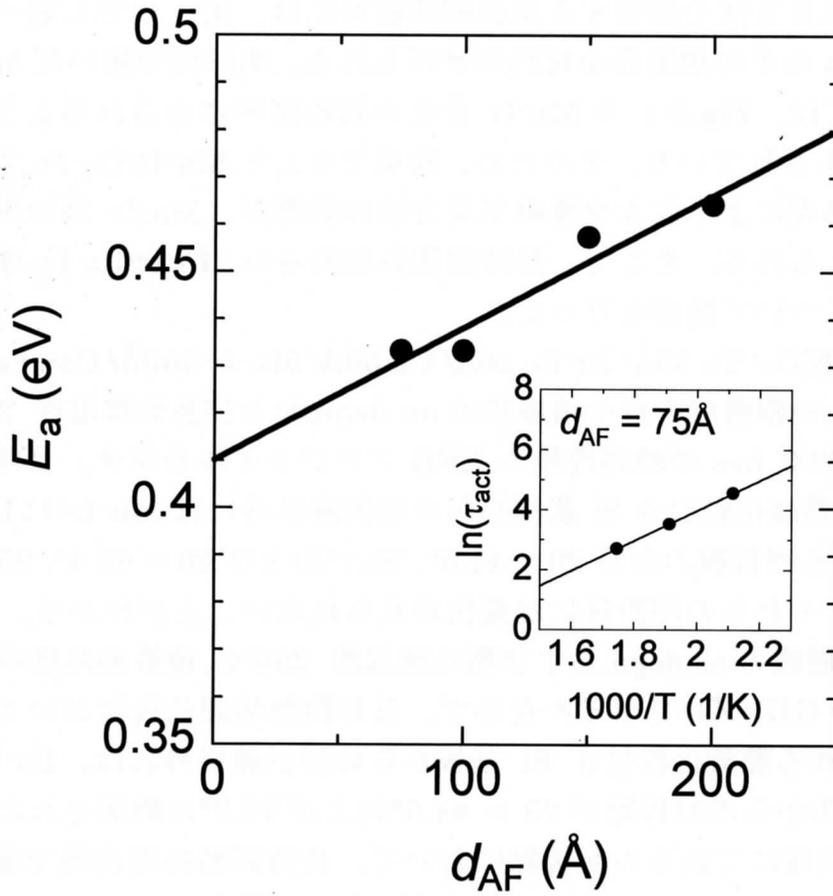


Fig.5-5 Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir  $d_{AF}(= 75 \sim 200\text{\AA})$ / Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜の $J_K$ 増大に必要な活性化エネルギー $E_a$ の反強磁性層厚 $d_{AF}$ 依存性. 挿入図は, $d_{AF} = 75 \text{ \AA}$ の場合における $\ln(\tau_{act})$  vs  $1000/T$ プロットである.

### 4-3. 巨大交換磁気異方性の発現機構

前項において、Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜を低温( $\leq 300^\circ\text{C}$ )長時間の熱処理することによって最大  $0.87 \text{ erg/cm}^2$  の巨大交換磁気異方性を極薄  $d_{\text{AF}}$  である  $50 \text{ \AA}$  で誘導できることがわかった。本項においては、その長時間熱処理による巨大交換磁気異方性の発現機構について、積層膜の結晶構造の変化および磁気的狀態の変化の観点から考察を行う。

大きな交換磁気異方性を発現する反強磁性材料には、第1章でも述べたように PtMn や NiMn などの規則合金材料が挙げられる。本研究で用いた Mn-Ir 膜の組成域においては、Fig.3-1 の Mn-Ir 合金の状態図<sup>105</sup>に示されるように  $L1_2$  型の  $\text{Mn}_3\text{Ir}$  が報告されている。そのため、前項で示した Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜の長時間熱処理による巨大交換磁気異方性の誘導が、Mn-Ir 層の規則化による可能性が考えられる。そこで、長時間熱処理前後の Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜の結晶構造について検討を行った。

Fig.5-6 に、Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir 100Å/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Å の膜構成を持つ積層膜の as depo.および熱処理温度  $250^\circ\text{C}$ 、積算熱処理時間 200 hrs の熱処理後の XRD プロファイルを示す。長時間熱処理前後において、熱酸化膜付き Si 基板からの回折線以外には Mn-Ir(111)および Cu(111)に起因する回折線のみが  $2\theta = 41.5^\circ, 90.1^\circ$  および  $2\theta = 43.4^\circ, 95.3^\circ$  に観測されているが、それらの回折線には変化が見られないことがわかる。

Fig.5-7 に同積層膜の as depo.および熱処理温度  $250^\circ\text{C}$ 、積算熱処理時間 200 hrs の熱処理後の GID プロファイルを示す。長時間熱処理前後において、 $2\theta = 47.3^\circ$  付近に見られる熱酸化膜付き Si 基板からの回折線以外には、Co-Fe(111) および Mn-Ir(220)からの回折線が  $2\theta = 44.6^\circ$  および  $70.3^\circ$  に観測された。XRD プロファイルと同様にこれらの回折線において、長時間熱処理前後で変化が見られないことが分かる。また、Mn-Ir 層が規則化した場合に  $2\theta = 33.5^\circ$  付近に観測されると予想される Mn-Ir(110)からの規則格子線は、長時間熱処理後においても観測されていないことが分かる。

また、Fig.5.8 に同積層膜の as depo.および熱処理温度  $250^\circ\text{C}$ 、積算熱処理時間 200 hrs の熱処理後の X線反射率プロファイルを示す。長時間熱処理前後においてプロファイルに変化が見られないことから、熱拡散による積層界面の大きな変化がないことがわかる。

以上の結果から、長時間熱処理による Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の  $J_K$  の増大は、規則化などの結晶構造の変化によるものでないことが明らかになった。

そこで、長時間熱処理による  $J_K$  の増大を磁気的な変化によるものであると考え、Single spin ensemble model を用いて考察を行った。本研究で用いた

Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜の熱処理前の  $J_K$  は  $0.1 \text{ erg/cm}^2$  程度と小さく、Single spin ensemble model を用いると as depo. では反強磁性結晶粒子のスピンの向きは膜面内に大きく分散していると考えられる。Fig.5-9 に、強磁性層と反強磁性粒子の概念図、および反強磁性結晶粒子の自由エネルギーの反強磁性スピンの角度に対する変化を示す。図中の +state は強磁性層のスピンの向きと反強磁性結晶粒子のスピンの向きが平行で、 $J_K$  の増大に寄与している状態である。それに対し、-state は強磁性層のスピンの向きと反強磁性結晶粒子のスピンの向きが反平行で、 $J_K$  の減少に寄与している状態である。as depo. での反強磁性結晶粒子のスピンの向きが膜面内に大きく分散している状態は、+state と -state がほぼ同程度の割合で分布していると考えられる。このような積層膜において  $J_K$  が増大するためには、Fig.5-9 で示した活性化エネルギー  $E_a$  を超えて、反強磁性結晶粒子のスピンの向きが -state から +state へと遷移する必要がある。本節の検討においては、積層膜に低温で長時間の熱処理を行ったために、積層間の熱拡散を抑制しつつ反強磁性結晶粒子のスピンの向きが -state から +state へとより多く遷移し  $J_K$  が増大したと考えられる。Single spin ensemble model においては、 $E_a$  は反強磁性結晶粒子の磁気異方性エネルギーに相当すると考えられる。前項 Fig.5-5 で示した  $E_a$  が  $d_{AF}$  に対し直線的に増加した結果は、このモデルに一致するものであると考えられる。しかしながら、 $d_{AF} = 0$  において存在する  $0.41 \text{ eV}$  の  $E_a$  は、Single spin ensemble model で説明することができない。このエネルギーの起源については現在のところ不明であるが、ある種の表面効果などによるものと考えている。ここで、反強磁性結晶粒子を  $D_{\text{in-plane}} = 200 \text{ \AA}$  の円柱状であると仮定し、Single spin ensemble model を用い Fig.5-5 の結果をもとに、

$$K_{AF} \approx \frac{E_a}{2v_{AF}} = \frac{2}{\pi D_{AF}^2} \frac{E_a}{d_{AF}} \quad \text{eq.5-2}$$

によって、(111)面配向の Mn-Ir の  $K_{AF}$  を見積もった。その結果、 $K_{AF} = 7.1 \times 10^3 \text{ erg/cm}^3$  となり、磁気トルク法によって決定された  $K_{AF}^{60}$  と同程度の値であった。

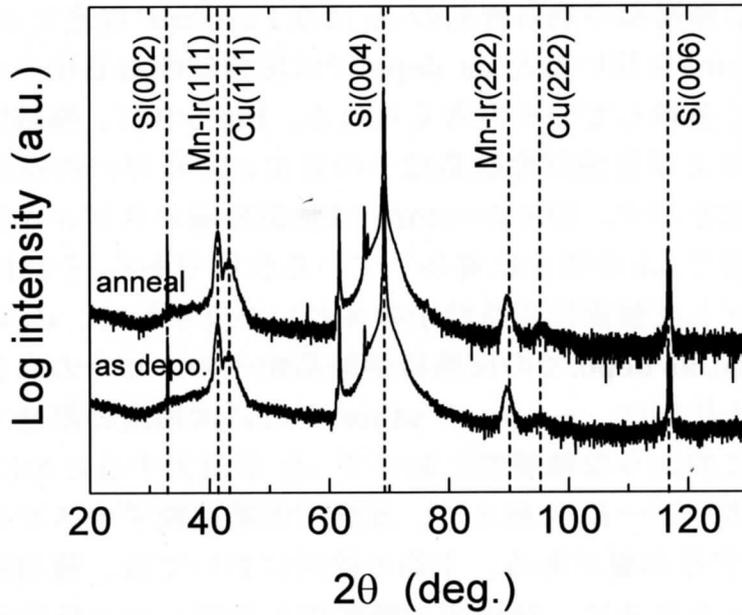


Fig.5-6 Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir 100Å/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜のas depo.および熱処理温度 250°C、積算熱処理時間 200hrsの熱処理後のXRDプロファイル.

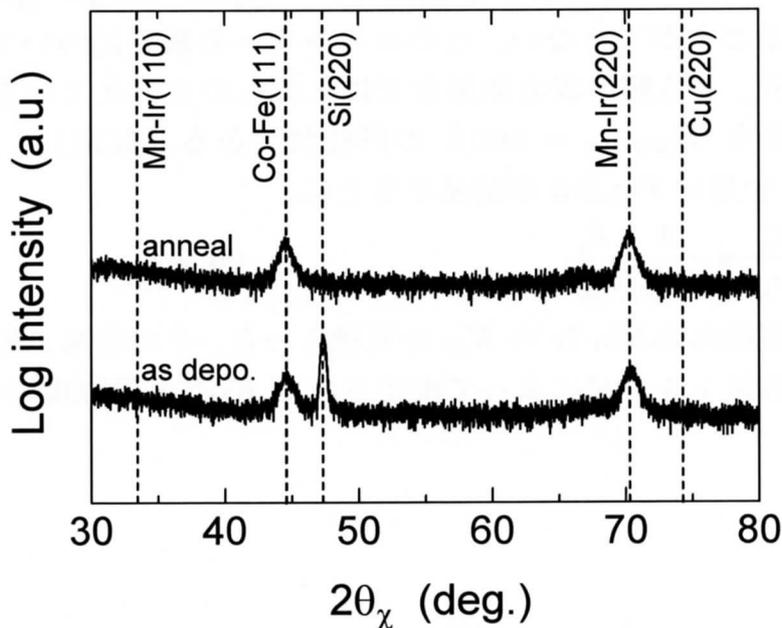


Fig.5-7 Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir 100Å/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜のas depo.および熱処理温度 250°C、積算熱処理時間 200hrsの熱処理後のGIDプロファイル.

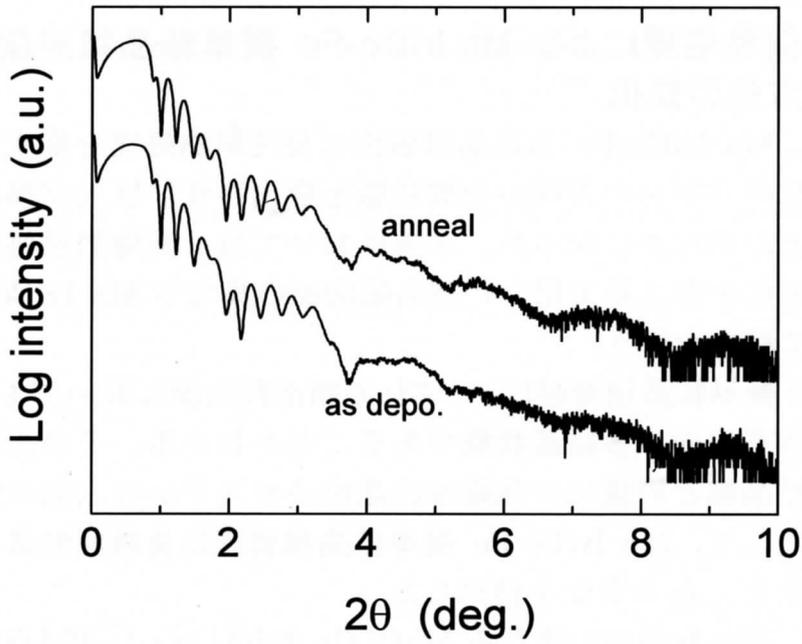


Fig.5-8 Si/ SiO<sub>2</sub>/ Ta 50Å/ Ni-Fe 20Å/ Cu 50Å/ Mn-Ir 100Å/ Co<sub>70</sub>Fe<sub>30</sub> 40Å/ Cu 10Å/ Ta 20Åの膜構成を持つ積層膜のas depo.および熱処理温度 250°C、積算熱処理時間 200hrsの熱処理後のX線反射率プロファイル.

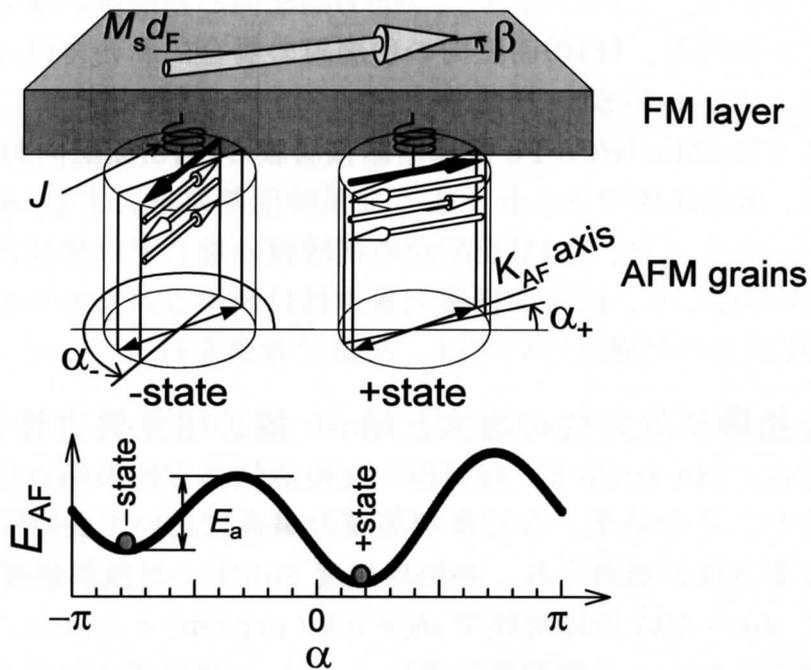


Fig.5-9 強磁性層と反強磁性結晶粒子の概念図, および反強磁性粒子の自由エネルギーの反強磁性スピンの角度に対する変化.

#### 4-4. 長時間熱処理による Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の変化

前項までに、Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜に長時間熱処理を施すことにより、反強磁性結晶粒のスピン方向の分散状態を変化させ、巨大交換磁気異方性が誘導されることが明らかになった。本項においては、長時間熱処理による交換磁気異方性の変化を第3節で用いた結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜について検討を行う。

Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜は、いずれの結晶配向面においても Fig.4-4 に示したように面内高配向の多結晶状態であることがわかる。そのため、前項までに検討した多結晶膜と同様に反強磁性結晶粒子のスピン方向に分散があると考えられる。そこで、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜に長時間熱処理を施しその分散状態を変化せ、 $J_K$  の変化を検討した。

Fig.5-10 に、結晶配向面の異なる MgO/ Cu 200Å/ Mn-Ir 40Å/ Co-Fe 40Å/ Cu 40Å の膜構造を持つ積層膜の一方異方性定数  $J_K$  の  $t_a$  依存性を示す。結晶配向面によって  $J_K$  の累積熱処理時間に対する増大速度が異なることがわかる。(111)面配向の積層膜の場合において、 $t_a = 10$  hrs では熱劣化によるものと思われる  $J_K$  の減少が見られるが、他の結晶配向面の積層膜の場合に対し  $J_K$  の増大速度が速いことがわかる。しかしながら、(001)面配向の積層膜の場合では  $J_K$  の増大速度は緩やかになり、(110)面配向の積層膜の場合においては  $t_a$  に対して  $J_K$  に変化がないことがわかる。

以上のように、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の(110)面配向および(001)面配向の場合では、多結晶膜で見られたような長時間熱処理による  $J_K$  の大きな変化は見られなかった。また、(111)面配向の積層膜の場合では熱拡散によると思われる  $J_K$  の減少が起り、巨大交換磁気異方性は誘導されなかった。この結晶配向面による  $J_K$  増大の差異については、次節で考察を行う。

#### 4-5. 交換磁気異方性の増大と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関

前項までに、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の熱処理による変化について検討した。その結果、多結晶積層膜の場合において長時間熱処理により巨大交換磁気異方性が誘導され、熱処理温度 250°C、累積熱処理時間 200 hrs の熱処理後に  $d_{AF} = 50\text{\AA}$  の積層膜で  $J_K = 0.87 \text{ erg/cm}^2$  となった。また、擬単結晶積層膜の場合において長時間熱処理による  $J_K$  の増加速度が結晶配向面によって異なり、(111)面配向の積層膜においては累積熱処理時間の増加に伴い  $J_K$  が増大するのに対し、(110)面配向の積層膜においては累積熱処理時間にかかわらず  $J_K$  に変化が見られなかった。本項においては、これらの結果と 4-3 で述べた Single spin ensemble model による  $J_K$  増大のメカニズムをもとに、交換磁気異

方性の増大と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関について考察を行う。

4-3 において、Single spin ensemble model を用いると長時間熱処理による交換磁気異方性の増大は反強磁性結晶粒子のスピンの分散状態の変化によって説明できることがわかった。この分散状態の変化は、Fig.5-9 で示した反強磁性結晶粒子の -state から +state への遷移によって起こっており、そのため、 $J_K$  増大に必要となる活性化エネルギー ( $E_a$ ) は反強磁性結晶粒子の持つ磁気異方性エネルギー ( $K_{AF}d_{AF}$ ) に相当する。第 2 節 Fig.3-21 に示したように、Mn-Ir 膜の磁気異方性は結晶配向面によって大きく変化し、(110)面配向では  $K_{AF}^{20} = 8.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 、(001)面配向では  $K_{AF}^{40} = 5.0 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 、(111)面配向では  $K_{AF}^{60} = 10^3 \sim 10^4 \text{ erg/cm}^3$  であることから、同じ  $d_{AF}$  を持つ積層膜において  $E_a$  は (110) > (001) > (111) の大小関係になると考えられる。これを踏まえると、同じ  $d_{AF}$  を持つ積層膜を同条件で熱処理を行った場合には (110) < (001) < (111) の順に反強磁性結晶粒子のスピンの遷移しやすく  $J_K$  が増大する。Fig.5-10 で示したように、擬単結晶膜において熱処理による  $J_K$  の増大量は (110) < (001) < (111) であり、上に示した  $J_K$  増大のモデルを支持する結果となっている。(110)面配向の積層膜において熱処理による  $J_K$  の変化が見られなかったのは、 $K_{AF}^{20}$  が大きいために本研究で行った熱処理によって得られるエネルギーが  $E_a$  に達しなかったためである。しかしながら、高温における熱拡散や熱処理時間を考慮すると、熱処理を用いたより大きな  $J_K$  の誘導は困難である。そのため、更なる  $J_K$  の増大には強磁界などを用いてエネルギーを供給する方法を検討する必要がある。

このように、交換磁気異方性の増大と Mn-Ir 膜の磁気異方性に密接な相関関係があることがわかった。

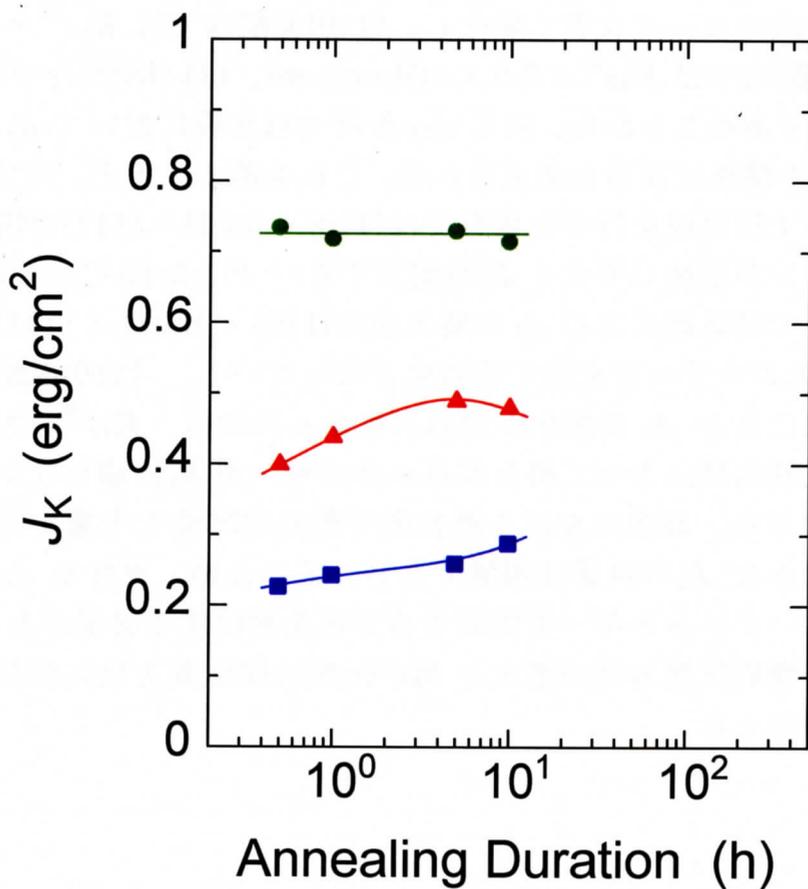


Fig.5-10 MgO/ Cu 200Å/ Mn-Ir 40Å/ Co-Fe 40Å/Cu 40Åの膜構造を持つ積層膜の一方方向異方性定数 $J_K$ の累積熱処理時間依存性. 積層膜の結晶配向面はそれぞれ●(110), ■ (001), および▲(111)である.

## 4-6. 結言

前節において、結晶配向面を変化させることによって  $J_K$  の最大値は大きく変化することが明らかになった。本節では、それらの Mn-Ir/Co-Fe 積層膜において極薄反強磁性層厚での更なる  $J_K$  増大を実現するために、長時間熱処理による  $J_K$  の変化を検討した。以下に、本節で得られた知見を小括する。

### 1. 多結晶積層膜の交換磁気異方性の熱処理温度依存性

Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜を用い熱処理温度を変化させた場合の  $J_K$  の反強磁性層厚依存性において、熱処理温度の上昇とともに  $J_K$  は増大し、熱処理温度 400°C で最大 0.6 erg/cm<sup>2</sup> 以上となることが報告されている。しかしながら、薄い反強磁性層厚においては熱拡散によって  $J_K$  の減少がみられ、熱拡散を抑制して熱処理を行うためには熱処理温度を 300°C 以下にする必要があることがわかった。

### 2. 長時間熱処理による多結晶積層膜の交換磁気異方性の変化

Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜を用い長時間熱処理による  $J_K$  の変化を検討した結果、累積熱処理時間とともに  $J_K$  は増大した。特に 250°C、200h の長時間熱処理後において  $d_{AF} = 50\text{\AA}$  の積層膜で  $J_K$  は最大の 0.87 erg/cm<sup>2</sup> を示した。また、熱処理温度によって累積熱処理時間に対する  $J_K$  の変化は異なった。熱処理温度 300°C においては熱処理時間とともに  $J_K$  が急峻に増大したが、熱拡散による  $J_K$  の劣化が顕著に見られた。熱処理温度 200°C においては、熱処理時間とともに  $J_K$  緩やかに増大した。実験結果から見積もった  $J_K$  増大に必要な  $E_a$  が  $d_{AF}$  とともに直線的に増大することを明らかにした。

### 3. 巨大交換磁気異方性の発現機構

累積熱処理時間の増加に伴う  $J_K$  の増大を Single spin ensemble model を用いて考察した。長時間熱処理による  $J_K$  の増大は、成膜直後において膜面内に大きく分散している反強磁性結晶粒子のスピンの向きが、磁界中で熱処理を施すことによって変化することによると考えられる。また、Single spin ensemble model において  $J_K$  の増大における反強磁性結晶粒子のスピンの遷移するために必要な活性化エネルギーは、反強磁性結晶粒子の磁気異方性エネルギーに相当すると説明される。

### 4. 長時間熱処理による Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の変化

長時間熱処理を種々の結晶配向面での Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜について検討した結果、累積熱処理時間による  $J_K$  の増大の速度は結晶配向面によって異なることがわかった。(111)、(001)面配向の積層膜では  $J_K$  の増大が見られた。

しかしながら、(110)配向の積層膜においては  $J_K$  の増大は見られなかった。

### 5. 交換磁気異方性の増大と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関

3 および 4 をもとに検討した結果、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜においてそれぞれの結晶配向面における  $J_K$  の増加速度は  $K_{AF}$  に対応することが明らかになった。これは、 $J_K$  増大に必要な活性化エネルギーが反強磁性層の磁気異方性エネルギーに相当するためである。

## 第5節 Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の発現機構

前節までに、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜を用いた交換磁気異方性について検討を行ってきた。その結果、交換磁気異方性に関する多くの特性が結晶配向面によって変化することが明らかになった。磁界中熱処理による交換磁気異方性の誘導方向や磁化反転過程は反強磁性層である Mn-Ir 膜の磁気異方性と相関を持つことがわかった。これらの結果は多結晶膜の交換磁気異方性の現象論的モデルである Single spin ensemble model で説明可能であった。一方、結晶配向面を変化させた場合の  $J_K$ 、反強磁性層の臨界膜厚( $d_{AF}^{CF}$ )、ブロッキング温度( $T_B$ )などの微視的な特性は、Single spin model<sup>106</sup>や Domain wall model<sup>107</sup>で説明困難であった。本節では、それらの実験結果を交換磁気異方性のモデルを用いて検討し、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の微視的な発現機構について考察を行う。

5-1 では、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度が結晶配向面によって変化がなく同程度の値を示した実験結果を、Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を考慮して検討する。

5-2 では、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の実験結果を Single spin model を用いて検討し、Single spin model での交換磁気異方性の説明の限界について考察する。

5-3 では、前項をふまえて Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の発現機構についての推察を行う。

### 5-1. 反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度とMn-Ir膜の磁気異方性との相関

本節では、第3節で検討を行った Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における Mn-Ir 層の臨界膜厚およびブロッキング温度が結晶配向面によって変化せずに同程度の値を示したことに注目をして Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関関係を検討する。

Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の  $d_{AF}^{cr}$  は Fig.4-6 で示したように約  $30\text{\AA}$  と結晶配向面によらず一定の値を示した。 $d_{AF}^{cr}$  は Single spin model では  $d_{AF}^{cr} = J/K_{AF}$  で与えられ、また Domain wall model では  $d_{AF}^{cr} \propto \sqrt{A/K_{AF}}$  で与えられる。しかしながら、第2節で得られた実験結果では Mn-Ir 膜の  $K_{AF}$  が結晶配向面によって桁で変化しているが  $d_{AF}^{cr}$  は一致しており、これらのモデルで説明困難であることがわかる。

これらの積層膜の  $T_B$  は Fig.4-10 で示したようにいずれの  $d_{AF}$  の場合においても結晶配向面によらず同程度の値を示している。これらの結果を、ブロッキング温度の評価に用いられている Nishioka らのモデル<sup>108,109</sup>と Finite size effect<sup>110</sup>を用いて検討し、Mn-Ir 膜の  $K_{AF}$  との相関を考察する。

Nishioka らは交換磁気異方性の温度依存性を計算するにあたり、Fulcommer と Charap が提案したモデル<sup>111</sup>に基づいて検討を行っている。Fig.6-1(a)および (b)に、Nishioka らのモデルの概念図を示す。本モデルでは、①反強磁性層は多結晶状態、②反強磁性結晶粒子に粒径分散が存在、③反強磁性結晶粒子の磁化容易軸に分散が存在しない、④Fig.6-1(b)に示したように反強磁性結晶粒子のスピンの熱揺らぎによってエネルギー安定点を遷移する、ことを仮定している。Nishioka らは、このモデルを用い Co/CrMnPt 積層膜の保持力( $H_c$ )および交換結合磁界( $H_p$ :  $H_{ex}$  である)の温度依存性を CrMnPt 膜の磁気異方性エネルギー( $K_{AF}$ )をフィッティングパラメーターとして変化させて Fig.6-1(c)のように良くフィッティングしている。

Fig.6-2(a)に、Co/CrMnPt 積層膜の  $T_B$  の CrMnPt 膜厚( $d_{AF}$ )依存性を示す。 $T_B$  は  $d_{AF} \leq 400\text{\AA}$  では  $d_{AF}$  とともに増大し、 $d_{AF} \geq 400\text{\AA}$  では飽和していることがわかる。これらの結果は、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の場合と同様の傾向を示している。Fig.6-2(b)に、Nishioka らのモデルによるフィッティングによって得られた CrMnPt 膜の  $K_{AF}$  の  $d_{AF}$  依存性を示す。 $K_{AF}$  は  $d_{AF}$  に依存して変化していることがわかる。これらの結果を比較してみると、 $d_{AF}$  による  $T_B$  の増大は  $K_{AF}$  の増大と密接な関係を持ち  $kT_B \propto K_{AF} v_{AF}$  となっていることがわかる。第2節で示したように Mn-Ir 膜の  $K_{AF}$  は結晶配向面によって大きく変化しているため、Nishioka らのモデルを考慮すると  $T_B$  にも変化が見られると考えられ、実験結果と一致しないことがわかる。

次に、Finite size effect を用いて検討を行う。Finite size effect も Nishioka らのモデルと同様に Fulcommer と Charap が提案したモデルに基づいている。本モデルでは、強磁性層/反強磁性層の界面での結合エネルギー  $J_K$  を Random field 近似<sup>112</sup>を用いて  $J_K = J_{INT} \sqrt{N}$  と仮定している。ただし、 $J_{INT}$  は強磁性スピンおよび反強磁性スピンの結合エネルギー、 $N$  は界面での反強磁性スピンの数を示す。よって、 $T_B$  において

$$2K_{AF}(T)d_{AF} = J_K(T) = \frac{J_{INT}(T)}{Da_0} \quad \text{eq.6-1}$$

が成り立つ。そして、 $K_{AF}$ 、 $J_K$ 、 $J_{INT}$  が温度に依存することから、この式を更に

$$\frac{T_N - T_B(d_{AF})}{T_N} = \left( \frac{\xi_0}{d_{AF}} \right)^\delta \quad \text{eq.6-2}$$

のように展開させている。ただし、 $\xi_0 = \frac{J_K(0K)}{2K_{AF}(K)}$  である。一般に、この関係式を用いて  $T_B$  の  $d_{AF}$  に対する変化をフィッティングしている<sup>113,114,115</sup>。

Fig.6-3 に、種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の  $T_B$  の  $d_{AF}$  依存性、および eq.6-2 によるフィッティング結果を示す。いずれの結晶配向面の場合においても、良くフィッティングできていることがわかる。フィッティング結果では、いずれの結晶配向面の場合においても  $25^\circ\text{C}$  を  $T_B$  に持つ  $d_{AF}$  は  $30\text{\AA}$  となった。 $T_B$  は  $J_K$  が消失する温度を示すことから、 $T_B$  におけるそれぞれの積層膜の  $d_{AF}$  は  $d_{AF}^{cr}$  に相当する。Table4-1 で示したようにいずれの結晶配向面においても  $d_{AF}^{cr}$  は約  $30\text{\AA}$  であり、フィッティングから得られる結果と一致していることがわかる。

Table6-1 に、これらのフィッティングから得られたそれぞれの結晶配向面における Mn-Ir のネール温度 ( $T_N$ )、 $\delta$ 、 $\xi_0$  を示す。いずれの結晶配向面においても Mn-Ir の  $T_N$  は  $342^\circ\text{C}$  となっていることがわかる。しかしながら、本研究で用いている組成における Mn-Ir の  $T_N$  は約  $430^\circ\text{C}$  と報告されており<sup>116</sup>、フィッティングから得られた値と一致していないことがわかる。

ここで、Mn-Ir 膜の  $K_{AF}$  の温度依存性に注目する。Fig.6-4 に、種々の結晶配向面の積層膜の結果<sup>117</sup>を示す。(110)および(111)面配向の場合では、 $K_{AF}$  は低温になるにつれ単調に増大し、 $-200^\circ\text{C}$  において  $K_{AF}^{20} = 1.5 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 、 $K_{AF}^{60} = 3.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$  である。また、(001)面配向の場合においては、室温から  $-150^\circ\text{C}$  までは  $K_{AF}^{40}$  は  $\sim 10^4 \text{ erg/cm}^3$  でほぼ一定の値を示しているが、 $-150^\circ\text{C}$  以下では  $K_{AF}^{40}$  は負を示し温度の低下とともに減少していることがわかる。この現象の詳細については、現在検討中である。仮に Nishioka らのモデルを実験結果に対応させようとした場合、Fig.6-4 に示した灰色の破線ようにある温度以上に

において  $K_{AF}$  が一致しなければ、結晶配向面によらず  $T_B$  が一致することを説明できない。しかしながら、このような  $K_{AF}$  の変化は説明困難である。また、Finite size effect を用いることによって得られた Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜のフィッティングパラメーターを用いて算出した  $K_{AF}$  の温度依存性は、Fig.6-4 の緑色 ( $K_{AF}^{20}$ )、青色 ( $K_{AF}^{40}$ )、赤色 ( $K_{AF}^{60}$ ) の破線になる。これらの計算結果は実験結果と一致していないことがわかる。

以上のように、モデルによって与えられる  $d_{AF}^{cr}$  と  $T_B$  と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を実験結果から示すことが困難であることがわかった。そもそも、Nishioka らのモデルや Finite size effect を用いた  $T_B$  の評価は Single spin model を基本においている。そのため、これらのモデルと実験結果の不一致は Single spin model によって交換磁気異方性を説明できる限界によるものであることが考えられる。そこで、次項においては Single spin model を用いて考察を行う。

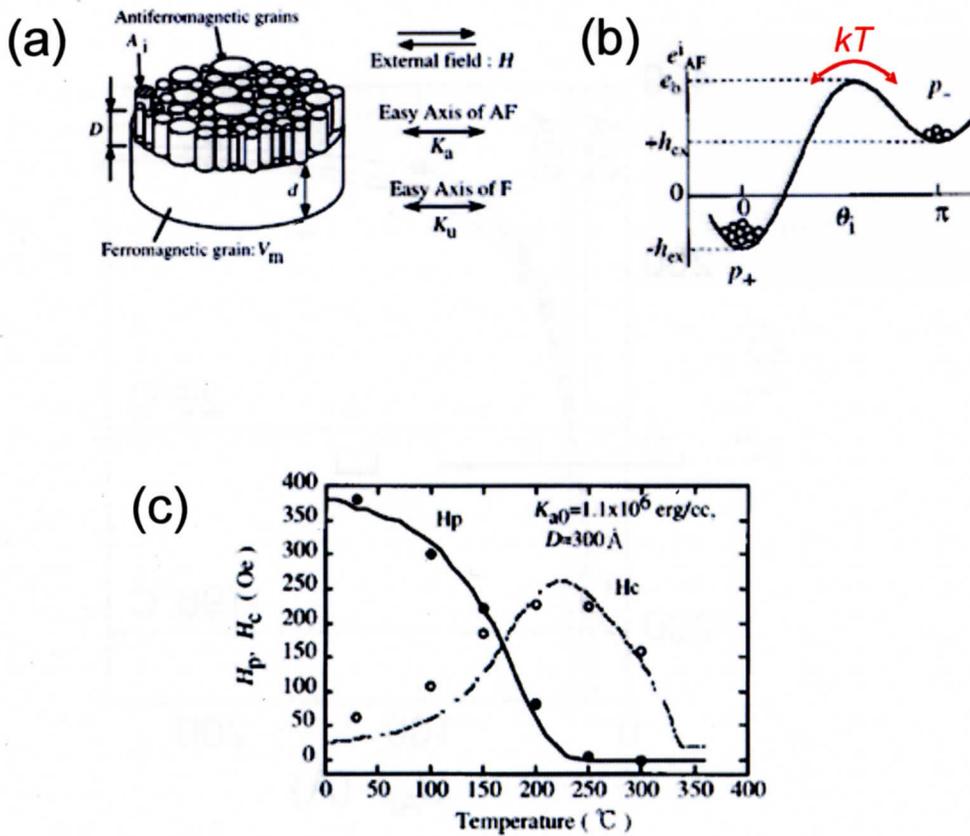


Fig.6-1 (a)反強磁性層に一軸異方性, 反強磁性結晶粒子に粒径分散, および (b)反強磁性結晶粒子の熱揺らぎを仮定した Nishioka のモデル. (c) は、Co/CrMnPt 多結晶積層膜の実験結果、および Nishioka のモデルによるフィッティング結果である.

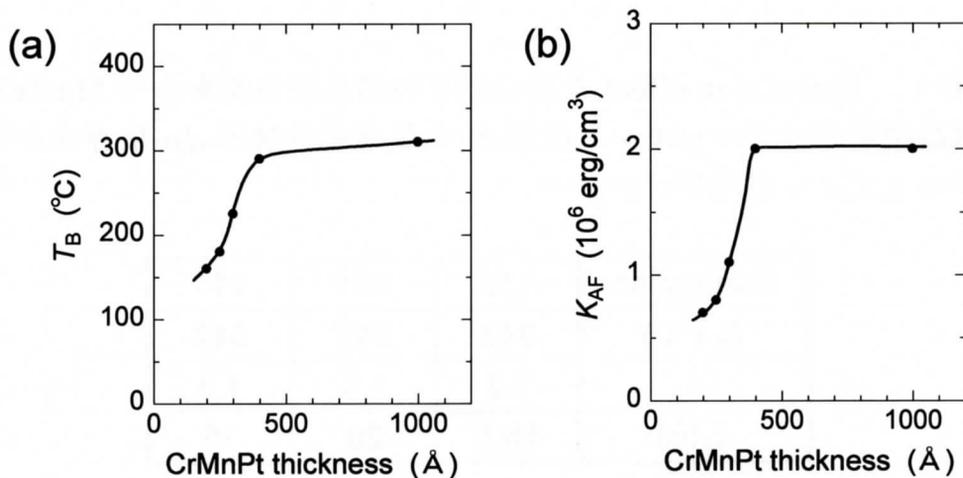


Fig.6-2 (a)Co/CrMnPt 多結晶積層膜のブロッキング温度  $T_B$  の CrMnPt 層厚依存性, および(b)実験結果を Nishioka のモデルを用いてフィッティングすることにより決定された CrMnPt 膜の磁気異方性  $K_{AF}$  の CrMnPt 層厚依存性.

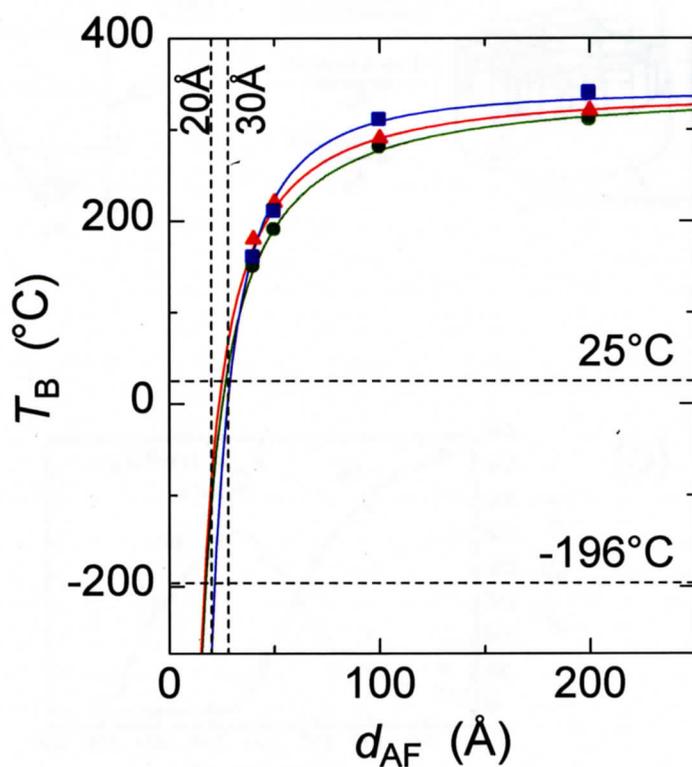


Fig.6-3 種々の結晶配向面のブロッキング温度  $T_B$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性, および Finite size effect によるフィッティング結果.

Table6-1 Finite size effect を用い種々の結晶配向面をもつ Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜のブロッキング温度  $T_B$  の反強磁性層厚  $d_{AF}$  依存性から得られたフィッティングパラメーター.

Orientation	110	001	111
$T_N$ (°C)	342	342	342
$\delta$	1.2	1.8	1.3
$\xi_0$ (Å)	15.5	20	15

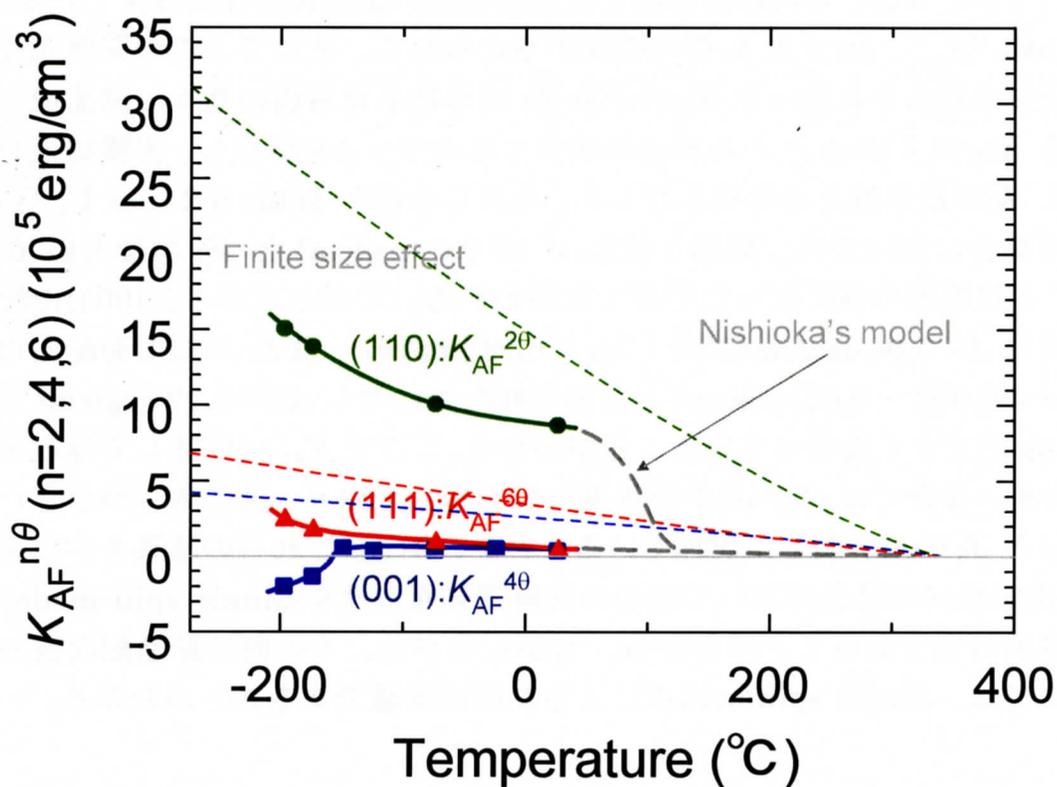


Fig.6-4 種々の結晶配向面における Mn-Ir 膜の磁気異方性  $K_{AF}$  の温度依存性の実験結果および Nishioka のモデルや Finite size effect によって予想される変化.

## 5-2. Single Spin Model の限界

前項においては、Single spin model を基にしたモデルによって  $d_{AF}^{cr}$  および  $T_B$  を説明困難であることがわかった。本項ではそれをふまえ、Single spin model の説明限界について検討する。

本研究で用いた積層膜は  $20 \sim 200 \text{ \AA}$  の極薄の反強磁性層厚を用いており、この交換磁気異方性を議論する上で Single spin model が有効と考えてきた。このモデルに 2 回、4 回、6 回の対称性を反強磁性層の磁気異方性に仮定した場合、 $J_K \sim J = nK_{AF}^{n0} d_{AF}^{cr}$ 、( $n = 2, 4, 6$ ) の関係が与えられる。そこで、この関係式を用いて本研究で明らかになった Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の種々の結晶配向面における  $K_{AF}$  および  $d_{AF}^{cr}$  から界面の結合エネルギー  $J$  を算出し、実験結果から得られた  $J_K$  の最大値との比較を行った。それらの値を Table 6-2 に示す。(110) 面配向の場合においては、算出された  $J$  は  $0.5 \text{ erg/cm}^2$  と  $J_K$  の最大値  $0.73 \text{ erg/cm}^2$  と同程度の値になったことがわかる。しかしながら、(001) 面配向の場合では  $J = 0.06 \text{ erg/cm}^2$  に対し  $J_K = 0.28 \text{ erg/cm}^2$ 、また、(111) 面配向の場合では  $J = 0.002 \sim 0.02 \text{ erg/cm}^2$  と算出された値に対し  $J_K = 0.47 \text{ erg/cm}^2$  となり、 $J$  と  $J_K$  が大きく異なっていることがわかる。ここで  $K_{AF}$  に注目してみると、 $K_{AF}$  が大きい場合では  $J$  と  $J_K$  が同程度の値を示しており、逆に  $K_{AF}$  が小さい場合では  $J$  と  $J_K$  の差が顕著に現れていることがわかる。これらの結果をふまえると、(110) 面配向の場合においてはその交換磁気異方性を Single spin model によって説明可能であることがわかる。しかしながら、その他の結晶配向面の場合においては、Single spin model による説明は困難であることがわかる。

Table 6-2 実験結果から得られた種々の結晶配向面の Mn-Ir 膜の磁気異方性  $K_{AF}$ 、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における反強磁性層の臨界膜厚  $d_{AF}^{cr}$  および一方向異方性定数  $J_K$  の最大値、および実験結果から Single spin model を用いて算出した強磁性層/反強磁性層界面の結合エネルギー  $J$ 。

配向面	$K_{AF}^{n0}$ (erg/cm <sup>3</sup> )	$d_{AF}^{cr}$	$J$ (erg/cm <sup>2</sup> )	$J_K$ (erg/cm <sup>2</sup> )
(110)	$8.5 \times 10^5$	30 Å	0.5	0.73
(001)	$5.0 \times 10^4$	30 Å	0.06	0.28
(111)	$10^3 \sim 10^4$	30 Å	0.002~0.02	0.47

### 5-3. Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の発現機構

前項において、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性を説明するに当たり、(110)面配向においては Single spin model で説明可能であるが、(001)および(111)面配向の場合においては説明が困難であることがわかった。そこで本項では、Single spin model と異なる発現機構によって交換磁気異方性を説明するモデルに注目し検討を行う。

前項で検討を行った Single spin model は強磁性層と反強磁性層の結合エネルギーを界面に存在するとして説明している。しかしながら、(001)および(111)面配向の場合では Single spin model によって算出される結合エネルギー( $J$ )が実際に発現している結合エネルギー( $J_K$ )よりも小さく、異なった状態でエネルギーを蓄えていると考えられる。しかしながら、反強磁性層内に磁壁が生じることによって交換磁気異方性を説明している Domain wall model でも(110)面配向以外の場合については説明が困難であった。これらを考慮すると、すべての結晶配向面の場合の交換磁気異方性を統一して説明できる微視的なモデルが存在していないと考えられる。本研究で用いている Mn-Ir 膜は、その組成から 3Q 構造を形成し、結晶配向面の違いによって界面でのスピン構造は異なっていると考えられる。つまり、結晶配向面の違いによって微視的な交換磁気異方性の発現機構が異なることは十分に考えられる。そこで本検討では、このエネルギーの蓄積に反強磁性層内のスピンの膜厚方向のねじれを用いている三俣と佐久間のモデル<sup>118,119</sup>に注目を行った。

三俣らは、Single spin model や Domain wall model などのように反強磁性層のスピンが反並行配列を持つ共線型スピン構造に限定せずに、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

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{1ij} S_i \cdot S_j - \sum_{\langle i,k \rangle} J_{2ik} S_i \cdot S_k - \sum_i D_i (S_i \cdot n)^2 - g\mu_B \sum_i S_i \cdot H \quad \text{eq.6-3}$$

で表せられるハミルトニアンを用いて強磁性/反強磁性積層膜の磁気構造を決定している。ここで、 $J_1$  および  $J_2$  は第 1 近接および第 2 近接原子間の交換定数、 $S_i$  は  $i$  番目の単位スピンベクトルであり、第 1 項と第 2 項は磁性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 3 項および第 4 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。

三俣らは、このハミルトニアンを用い反強磁性層のみのスピン構造をモンテカルロ法によって決定している。その結果、面心立方構造を持つ反強磁性体に

ある濃度以上の非磁性原子が置換によって不規則に入ってきた場合 Fig.6-5 で示した 3Q 構造が安定化されることを確認している。また、非磁性原子が入ることによって、 $c/a < 1$  に格子がひずんだ場合には 1Q 構造、 $c/a > 1$  にひずんだ場合には 2Q 構造を安定化させるとしている。

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 原子層積層した場合の磁化曲線を Fig.6-6 のように示している。この計算結果では反強磁性層のスピンが共線型構造の 1Q、2Q、AF-I の場合では、強磁性層の保磁力の増大が見られている。それに対し、3Q のスピン構造の場合には磁化曲線がシフトしている。これらのちがいは、スピンが共線型構造の場合では磁化反転前後で反強磁性層のスピンをわずかにしか変化する必要がないが、3Q の場合では磁化反転前後でスピン間の相対角度を大きく変化させないために反強磁性層内にスピンのねじれ構造を作ることによるとしている。

Fig.6-7 には、この 3Q 構造の場合の積層膜の膜厚方向のスピンの方向分布を示した。強磁性/反強磁性界面付近の反強磁性層内にスピンのねじれが見られる。この場合の  $d_{AF^{cr}}$  は 20 原子層 (Mn-Ir 約  $43\text{\AA}$  相当) と示されている。

このように 3Q 構造の F.C.C.(111) の反強磁性層と強磁性層の積層膜では、反強磁性層内にスピンのねじれを持つことにより交換磁気異方性を発現すると考えられている。Single spin model で説明ができなかった (111) 面配向の Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜は、構造解析の結果から F.C.C. 構造であることがわかっており三俣らの計算結果を考慮すると 3Q 構造をとっているものと考えられる。そのため、(111) 面配向の積層膜の交換磁気異方性の発現機構は強磁性層内にスピンのねじれによって考えられる。

以上をふまえると、交換磁気異方性の発現機構は結晶配向面によって異なり、Fig.6-8 に示すように (110) 面配向の場合では Single spin model、また、(111) 面配向の場合では反強磁性層内にスピンのねじれを用いた三俣のモデルによって説明可能と考えられる。

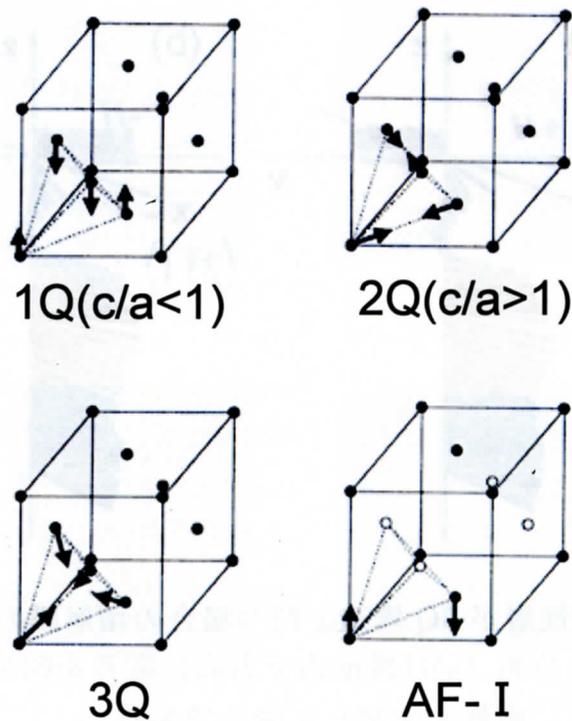


Fig.6-5 モンテカルロ法を用いて決定した面心立方( $\gamma$ 相)反強磁性体のスピン構造. 不規則合金について得られた1Q構造, 2Q構造, 3Q構造, およびL<sub>10</sub>型規則合金について得られたAF-I構造.

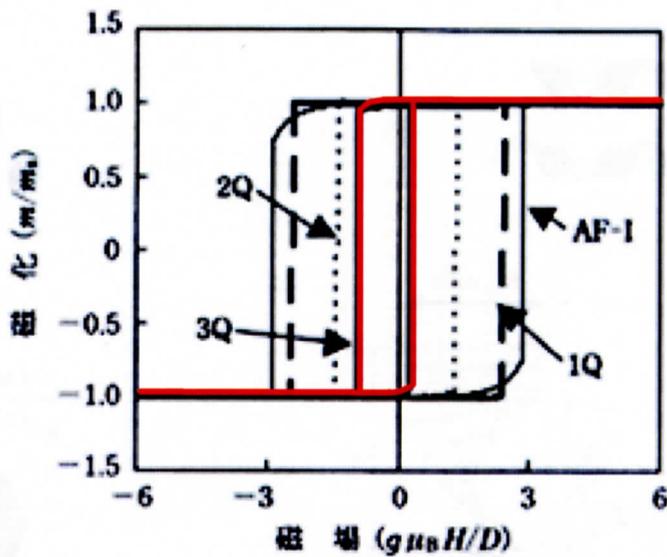


Fig.6-6 種々のスピン構造をもつ反強磁性層に強磁性層を積層した条件で計算された磁化曲線.

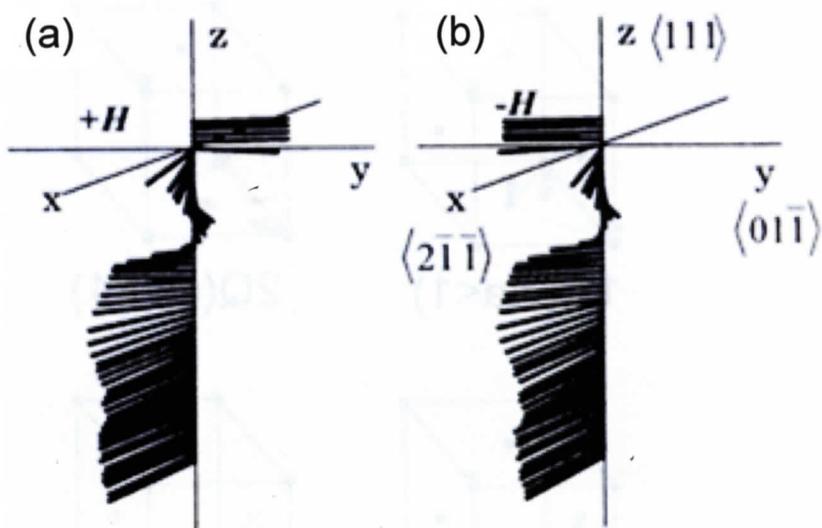


Fig.6-7 反強磁性層が 3Q 構造を持つ場合の積層膜の膜厚方向のスピンの方向分布. (a)は膜面内 y 方向に磁界を印加した場合, (b)は反対向きに磁界を印加した場合である.

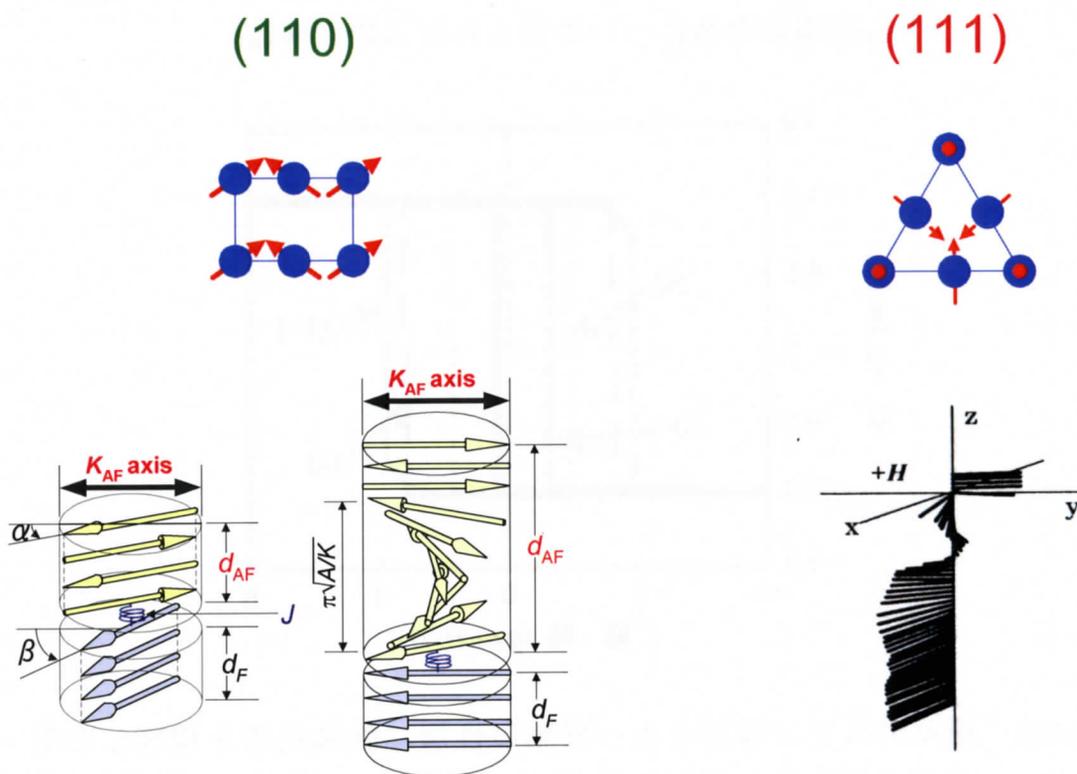


Fig.6-8 種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 積層膜で予想される交換磁気異方性の挙動.

### 5-3. 結言

本節では、前節までの結果の未解明点である反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関について検討し、そこから Single spin model の限界について考察を行った。さらにそれらをもとに、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における交換磁気異方性の発現機構についての推察を行った。以下に、本節で得られた知見を小括する。

#### 1 反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関

Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における反強磁性層の臨界膜厚と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を検討した結果、Single spin model では説明できないことがわかった。また、ブロッキング温度に関しても Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を検討したが、Single spin model をもとにした Nishioka らによるモデルや Finite size effect なので説明できないことがわかった。これらは、交換磁気異方性を Single spin model で説明することに問題があると思われる。

#### 2 Single Spin Model の限界

実験結果と Single spin model を比較することにより、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜において、(110)配向の場合は Single spin model で説明可能であることがわかった。また、Domain wall model との比較の結果もふまえると、異なる結晶配向面における交換磁気異方性の微視的な発現機構を統一的に説明可能なモデルが存在しないと考えられる。

#### 3 Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の発現機構

本節をまとめ Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における交換磁気異方性の発現機構を推察した結果、結晶配向面によって界面における反強磁性層のスピ構造が変化し交換磁気異方性の発現機構が異なると考えられる。(110)配向の場合は Single spin model のように、(111)配向の場合においては、反強磁性層のスピにねじれを生じることによって交換磁気異方性を発現する可能性が考えられる。そのため、異なる結晶配向面での反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度の一致は、反強磁性層の磁気異方性を用いた Single spin model のみで説明が困難であると考えられる。

## 第6節 結 論

### 1. Mn-Ir 擬単結晶膜の作製とその磁気異方性の評価

反強磁性層の磁気異方性は Single spin model や Domain wall model など  $d_{AF}^{cr}$  を決定する要素として示されている。そのため、磁気再生ヘッドの狭ギャップ化のための極薄  $d_{AF}^{cr}$  の実現を考えた場合に反強磁性層の磁気異方性の把握が必要であると考えられる。また、反強磁性層の磁気異方性を把握することは交換磁気異方性の微視的な発現機構を解明する上でも重要であると考えられる。そこで、Mn-Ir 膜の磁気異方性を種々の結晶配向面において決定した。具体的には、MgO 単結晶基板の上にバイアスパッタリング法によって成膜した下地層を用いて種々の結晶配向面の Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶膜を作製し、その磁気トルク曲線の Single spin model による解析から Mn-Ir 膜の磁気異方性の評価を行った。また、磁気トルク法によって決定した反強磁性層の磁気異方性を磁化率法によって得られた結果と比較し、その評価方法の妥当性を検討した。

#### 1-1 種々の下地層を用いた Mn-Ir 擬単結晶膜の作製

MgO{001}単結晶基板の上に下地層として F.C.C.材料および B.C.C.材料を用い、その上に積層される Mn-Ir 膜の結晶成長を XRD によって評価した。その結果、下地層に Cu および Cu 系合金を用いた場合に下地層および Mn-Ir 層が MgO 単結晶基板の上にエピタキシャル成長し、最も良好な Mn-Ir 擬単結晶膜が作製された。

#### 1-2 Cu 下地層を用いた Mn-Ir 擬単結晶膜の結晶構造

X線回折測定による構造解析の結果から、バイアススパッタリング法によって作製したCu下地層上のMn-Ir擬単結晶膜の結晶構造は、種々の結晶配向面のMgO単結晶基板( $\{110\}$ 、 $\{001\}$ 、 $\{111\}$ )上にそれぞれエピタキシャル関係を持って結晶成長しており、結晶配向面の異なるMn-Ir擬単結晶積層膜を実現できた。また、Mn-Ir層の結晶構造は(110)面配向の積層膜ではF.C.T.構造( $c/a = 0.99$ )、(001)面配向の積層膜ではF.C.T.構造( $c/a = 1.02$ )、(111)面配向の積層膜ではF.C.C.構造であった。

### 1-3 Ni-Fe/Mn-Ir 擬単結晶積層膜の磁気トルク解析により評価した Mn-Ir 膜の磁気異方性

種々の結晶配向面を持つNi-Fe/Mn-Ir積層膜の磁気トルク解析を行った結果、十分に大きな印加磁界において(110)面配向の積層膜では2回対称、(001)面配向の積層膜では4回対称の磁気トルク曲線が現れ、Mn-Ir膜の磁気異方性はいずれもMn-Ir層の結晶構造の対称性をよく反映した結果となった。(111)面配向の積層膜ではMn-Ir層の磁気異方性が小さく、強磁性層の磁気異方性が磁気トルク曲線に大きく影響を及ぼした。しかしながら、高印加磁界下において振幅は小さいが6回対称の成分が見られ、他の結晶配向面の場合と同様にMn-Ir膜の磁気異方性がMn-Ir層の結晶構造の対称性を反映した結果となった。また、磁気トルク曲線の飽和振幅から算出したMn-Ir膜の $K_{AF}$ は結晶配向面によって大きく異なり、(110)面配向では $K_{AF}^{20} = 8.5 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 、(001)面配向では $K_{AF}^{40} = 5.0 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ 、(111)面配向では $K_{AF}^{60} = 10^3 \sim 10^4 \text{ erg/cm}^3$ となった。

また、それぞれの結晶配向面の磁気トルク曲線を、立方磁気異方性を考慮して検討を行った結果、(001)および(111)面配向の場合では立方磁気異方性によって説明可能であるが、(110)面配向の場合での一軸異方性は立方異方性での説明は困難であることがわかった。

## 2. Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の結晶配向面依存性

単結晶SV素子実現時において影響を与えられる交換磁気異方性の結晶配向面依存性について検討した。具体的には、結晶配向面を(110)、(001)、(111)と変化させた場合の交換磁気異方性の諸特性( $d_{AF}^{cr}$ 、 $J_K$ 、 $T_B$ 、誘導方向)に及ぼす影響を調べた。

### 2-1 積層膜の微細構造

作製した種々の結晶配向面のMn-Ir/Co-Fe擬単結晶積層膜において、Cu下地層およびMn-Ir層は第3章のNi-Fe/Mn-Ir擬単結晶積層膜の場合と同様にMgO単結晶基板に対しエピタキシャル関係を持って成長をしていた。AFMにより解析した積層膜の微細構造は、表面粗さ $R_a = 1.3 \sim 5.7 \text{ \AA}$ 、面内結晶粒径 $D_{in-plane} = 200 \sim 400 \text{ \AA}$ と積層膜によって大きな変化がないことがわかった。

## 2-2 交換磁気異方性の熱処理温度依存性

種々の結晶配向面の Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における交換磁気異方性の熱処理温度に対する変化を検討した結果、結晶配向面の違いによって  $J_K$  が最大となる熱処理温度が異なった。(001)面配向の場合では熱処理温度によらず  $J_K$  は約  $0.2 \text{ erg/cm}^2$  であった。しかしながら、(110)面配向の場合では  $240^\circ\text{C}$  の熱処理後の  $J_K = 0.73 \text{ erg/cm}^2$  を最大に、それ以上の熱処理温度では  $J_K$  が減少した。(111)面配向の場合では  $300^\circ\text{C}$  の熱処理後の  $J_K = 0.47 \text{ erg/cm}^2$  を最大にそれ以上の熱処理温度では  $J_K$  は減少した。これらの  $J_K$  の減少は積層界面での粗さが大きいことによる積層間の相互拡散によるものと考えられる。よって、いずれの結晶配向面の積層膜においても熱拡散が起こらない  $240^\circ\text{C}$  を最適熱処理温度とした。

## 2-3 結晶配向面による交換磁気異方性の変化

結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の  $J_K$  の  $d_{AF}$  依存性を検討した。その結果、いずれの結晶配向面の場合においても  $d_{AF}^{cr} = 30\text{\AA}$  であり、 $J_K$  が極薄の  $d_{AF}$  で急峻に増大していることがわかった。しかしながら、いずれの  $d_{AF}$  においても  $J_K$  は結晶配向面によって大きく異なり、その最大値は(001)配向では  $0.28 \text{ erg/cm}^2 (d_{AF} = 30\text{\AA})$ 、(111)配向では  $0.47 \text{ erg/cm}^2 (d_{AF} = 40\text{\AA})$ 、(110)配向では  $0.73 \text{ erg/cm}^2 (d_{AF} = 40\text{\AA})$  となった。また、(111)配向の積層膜においては、擬単結晶積層膜と多結晶積層膜の場合で  $J_K$  の値は同程度となった。このように、本検討では PtMn を用いた積層膜の場合に比べ  $d_{AF}^{cr}$  は  $1/3$  以下、 $J_K$  は  $2$  倍以上の値を実現できている。

## 2-4 交換磁気異方性の温度特性

結晶配向面の異なる積層膜における交換磁気異方性の温度依存性を検討した。その結果、 $T_B$  は結晶配向面によらずほぼ一致し、いずれの結晶配向面においても反強磁性層膜厚の増大とともに  $T_B$  は増大した。また、いずれの結晶配向面の場合においても  $J_K$  の最大値を示した  $d_{AF} = 40\text{\AA}$  では  $T_B = 160^\circ\text{C}$ 、また、今回検討した中で最も高い場合でも  $d_{AF} = 200\text{\AA}$  の  $T_B = 320^\circ\text{C}$  となり、PtMn を用いた積層膜の場合の  $T_B (> 380^\circ\text{C})$  対し大きく下回ることがわかった。

## 2-5 磁界中冷却による擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の誘導

結晶配向面の異なる積層膜の磁界中冷却による交換磁気異方性の誘導方向の変化を検討した。その結果、(110)面配向の積層膜においては  $\langle 110 \rangle$  にのみ交換磁気異方性を誘導可能であることがわかった。それに対し、(001)および(111)面配向の積層膜においては任意の方向に誘導可能であった。これは、反強磁性層の磁気異方性の対称性を反映したと考えられる。つまり、(110)面配向の積層膜においては磁化容易方向が  $\langle 110 \rangle$  であるために、その方向にのみ交換磁気異方性が誘導され、反強磁性層の磁気異方性の対称性が高い(001)および(111)配向の積層膜においては任意の方向に交換磁気異方性を誘導可能であると考えられ

る。

## 2-6 強磁性/反強磁性積層膜の磁化反転過程

結晶配向面の異なる Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の磁化反転過程における磁区観察を行った。その結果、いずれの積層膜においても磁化反転時において磁区が観察された。これらの磁化反転時における磁区構造は、2-5 で示した磁界中熱処理による交換磁気異方性の誘導可能方向と同様に、反強磁性層の磁気異方性の対称性をよく反映していた。また、これらの結果は Single spin ensemble model で説明可能であることがわかった。

## 2-7 Mn-Ir 膜の磁気異方性と交換磁気異方性との相関

以上の結果を Mn-Ir 膜の磁気異方性を用い検討した結果、交換磁気異方性の誘導方向および磁化反転時における磁区構造と反強磁性層の磁気異方性の対称性と相関関係があることが明らかになった。しかしながら、 $d_{AF}^{cr}$  および  $T_B$  においては反強磁性層の磁気異方性と直接的な相関が見られなかった。

$J_K$  は(110)面配向の積層膜で最大値を示したが、誘導可能な交換磁気異方性の方向を考慮すると、将来単結晶スピナルブ素子の実現時において反強磁性層の磁気異方性の対称性が高い(111)面配向の場合が最適であると考えられる。

## 3. 長時間熱処理による巨大交換磁気異方性の誘導

Mn-Ir/Co-Fe 積層膜において極薄反強磁性層厚での更なる  $J_K$  増大を実現するために、長時間熱処理による  $J_K$  の変化を検討した。

### 3-1 多結晶積層膜の交換磁気異方性の熱処理温度依存性

Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜を用い熱処理温度を変化させた場合の  $J_K$  の反強磁性層厚依存性において、熱処理温度の上昇とともに  $J_K$  は増大し、熱処理温度 400°C で最大 0.6 erg/cm<sup>2</sup> 以上となることが報告されている。しかしながら、薄い反強磁性層厚 ( $d_{AF} < 100\text{\AA}$ ) においては熱拡散によって  $J_K$  の減少がみられ、熱拡散を抑制して熱処理を行うためには熱処理温度を 300°C 以下にする必要があることがわかった。

### 3-2 長時間熱処理による多結晶積層膜の交換磁気異方性の変化

Mn-Ir/Co-Fe 多結晶積層膜を用い長時間熱処理による  $J_K$  の変化を検討した結果、累積熱処理時間とともに  $J_K$  は増大した。特に 250°C、200h の長時間熱処理後において  $d_{AF} = 50\text{\AA}$  の積層膜で  $J_K$  は最大の 0.87 erg/cm<sup>2</sup> を示した。また、熱処理温度によって累積熱処理時間に対する  $J_K$  の変化は異なった。熱処理温度 300°C においては熱処理時間とともに  $J_K$  が急峻に増大したが、熱拡散による  $J_K$  の劣化が顕著に見られた。熱処理温度 200°C においては、熱処理時間とともに  $J_K$  緩やかに増大した。実験結果から、 $J_K$  増大に必要な  $E_a$  が  $d_{AF}$  とともに直線

的に増大することを明らかにした。

### 3-3 巨大交換磁気異方性の発現機構

累積熱処理時間の増加に伴う  $J_K$  の増大を **Single spin ensemble model** を用いて考察した。長時間熱処理による  $J_K$  の増大は、**as depo.**において膜面内に大きく分散している反強磁性結晶粒子のスピンの向きが、磁界中で熱処理を施すことによって変化することによると考えられる。また、**Single spin ensemble model** において  $J_K$  の増大における反強磁性結晶粒子のスピンの遷移するために必要な活性化エネルギーは、反強磁性結晶粒子の磁気異方性エネルギーに相当すると説明される。

### 3-4 長時間熱処理による Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜の交換磁気異方性の変化

長時間熱処理を種々の結晶配向面での Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜について検討した結果、累積熱処理時間による  $J_K$  の増大の速度は結晶配向面の違いによって異なることがわかった。(111)、(001)面配向の積層膜では  $J_K$  の増大が見られた。しかしながら、(110)配向の積層膜においては  $J_K$  の増大は見られなかった。

### 3-5 交換磁気異方性の増大と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関

3 および 4 で得られた結果を Mn-Ir 膜の磁気異方性をもとに検討し、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜においてそれぞれの結晶配向面における  $J_K$  の増加速度は  $K_{AF}$  に対応した。これは、 $J_K$  増大に必要な活性化エネルギーが反強磁性層の磁気異方性エネルギーに相当するためである。

## 4. Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の発現機構

本研究で得られた結果の未解明点である反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関について検討し、そこから **Single spin model** の限界について考察を行った。それらをもとに、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における交換磁気異方性の発現機構についての推察を行った。

### 4-1 反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関

Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における反強磁性層の臨界膜厚と Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を検討した結果、**Single spin model** では説明できないことがわかった。また、ブロッキング温度に関しても Mn-Ir 膜の磁気異方性との相関を検討したが、**Single spin model** をもとにした Nishioka らによるモデルや **Finite size effect** なので説明できないことがわかった。これらは、交換磁気異方性の **Single spin model** での説明に限界があるためと思われる。

## 4-2 Single Spin Model の限界

実験結果と Single spin model を比較することにより、Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜において、(110)配向の場合は Single spin model で説明可能であることがわかった。また、Domain wall model との比較の結果もふまえると、異なる結晶配向面における交換磁気異方性の微視的な発現機構を統一的に説明可能なモデルが存在しないと考えられる。

## 4-3 Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異方性の発現機構

Mn-Ir/Co-Fe 擬単結晶積層膜における交換磁気異方性の発現機構を推察した結果、結晶配向面の違いによって界面における反強磁性層のスピンの構造が変化し交換磁気異方性の微視的な発現機構が異なると考えられる。(110)配向の場合は Single spin model のように、(111)配向の場合においては、反強磁性層のスピンのねじれを生じることによって交換磁気異方性を発現する可能性が考えられる。そのため、異なる結晶配向面での反強磁性層の臨界膜厚およびブロッキング温度の一致は、反強磁性層の磁気異方性を用いた Single spin model のみで説明が困難であると考えられる。

## 参考文献

- 1 高橋 研 ; 応用物理, 65, 1218(1996).
- 2 M. Takahashi, A. Kikuchi, J. Nakai, and H. Shoji ; *IEEE Trans. Magn.*, 34, 1573(1998).
- 3 R. E. Jones, Jr. ; *IBM Disk Storage Technology*, GA26-1665-0, 6 (1980).
- 4 R. P. Hunt ; *IEEE Trans. Magn.*, 7, 150(1971).
- 5 T. R. McGuire, and R. I. Potter ; *IEEE Trans. Magn.*, 11, 1018(1975).
- 6 B. Dieny, V. S. Sperious, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri ; *Phys. Rev. B*, 43, 1297(1991).
- 7 B. Dieny, V. S. Sperious, 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).
- 8 B. Dieny, V. S. Sperious, S. Metin, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, P. Baumgart, and D. R. Wilhoit ; *J. Appl. Phys.*, 69, 4774(1991).
- 9 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).
- 10 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *Phys. Rev.*, 105, 904(1957).
- 11 J. Inoue, A. Oguri and S. Maekawa ; *J. Phys. Soc. Jpn.*, 60, 376(1991).
- 12 J. Inoue, A. Oguri and S. Maekawa ; *J. Magn. Magn. Mat.*, 104-107, 1883(1992).
- 13 H. Itoh, J. Inoue and Maekawa ; *Phys. Rev. B*, 47, 5809(1993).
- 14 B. A. Gurney, V. S. Speriosu, J. P. Nozieres, H. Lefakis, D. R. Wilhoit, and O. U. Need ; *Phys. Rev. Lett.*, 71, 4023(1993).
- 15 岩崎 仁志、福澤 英明、鴻井 克彦、佐橋 政司 ; 日本応用磁気学会誌, 24, 1093(2000).
- 16 H. Fukuzawa, H. Iwasaki, Y. Kamiguchi, K. Koi, and M. Sahashi ; *J. Appl. Phys.*, 89, 5581(2001).
- 17 D. E. Heim, and S. S. P. Parkin ; US Patent, No.5, 465, 185(1995).
- 18 J. L. Leal, and M. H. Kryder ; *J. Appl. Phys.*, 83, 3720(1998).
- 19 M. Saito, N. Hasegawa, F. Koike, H. Seki, and T. Kuriyama ; *J. Appl. Phys.*, 85, 4928(1999).
- 20 W. F. Egelhoff, P. J. Chen, C. J. Powell, M. D. Stiles, R. D. McMichael, J. H. Judy, K. Takano, and A. E. Berkowitz ; *J. Appl. Phys.*, 82, 6142(1997).
- 21 Y. Kamiguchi, H. Yuasa, H. Fukuzawa, K. Koi, H. Iwasaki, and M.

- Sahashi ; Digests of INTERMAG 1999, DB-01(1999).
- 22 J. Hong, J. Kane, J. Hashimoto, M. Yamagishi, K. Noma, and H. Kanai ; *IEEE Trans. Magn.*, **38**, 15(2002).
- 23 長坂 恵一、瀬山 喜彦、清水 豊、田中 厚 ; 日本応用磁気学会誌, **25**, 807(2001).
- 24 湯浅 裕美、福澤 英明、岩崎 仁志、吉川 将寿、鴻井 克彦、高岸 雅幸、佐橋 政司 ; 日本応用磁気学会誌, **26**, 942(2002).
- 25 H. Fujiwara, T. Zhao, G. J. Mankey, K. Zhang, W. H. Butler, and S. Matsumura ; *Trans. Magn. Soc. Jpn.*, **3**, 95(2003).
- 26 H. Itoh, J. Inoue, and Maekawa ; *Phys. Rev. B*, **47**, 5809(1993).
- 27 T. Miyazaki, and N. Tezuka ; *J. Magn. Magn. Mat.*, **139**, L231(1995).
- 28 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *Phys. Rev.*, **102**, 1413(1956).
- 29 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *Phys. Rev.*, **105**, 904(1957).
- 30 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *J. Appl. Phys.*, **33**(Suppl.), 1328(1962).
- 31 岩崎 仁志 ; SRC 研究報告 No.16 (全体会議講演資料), pp.37 (2003)
- 32 A. Wallash, and Y. K. Kim ; *IEEE Trans. Magn.*, **34**, 1519(1998).
- 33 M. Takahashi, T. Maeda, K. Inage, M. Sakai, H. Morita, and M. Matsuzaki ; *IEEE Trans. Magn.*, **34**, 1522(1998).
- 34 近角 聡信、太田 恵造、安達 健五、津屋 昇、石川 義和 ; 磁性体ハンドブック, pp.391, (朝倉書店、東京、1975).
- 35 R. D. Hempstead, S. Krongelb, and D. A. Thompson ; *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-14**, 512(1978).
- 36 C. Tsang, N. Heiman, and K. Lee ; *J. Appl. Phys.*, **52**, 2471(1981).
- 37 W. C. Cain, W. H. Meiklejohn and H. Kryder ; *J. Appl. Phys.*, **64**, 4170 (1987).
- 38 O. Allegranza, and M. M. Chen ; *J. Appl. Phys.*, **73**, 6218(1993).
- 39 T. Lin, D. Mauri, N. Staud, C. Hwang, J. K. Howard, and G. L. Gorman ; *Appl. Phys. Lett.*, **65**, 1183(1994).
- 40 T. Lin, C. Tsang, R. E. Fontana, and J. K. Howard ; *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-31**, 2585(1995).
- 41 M. Tsunoda, Y. Tsuchiya, M. Konoto, and M. Takahashi ; *J. Magn. Magn. Mater.*, **171**, 29(1997).

- 42 H. N. Fuke, K. Saito, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, and K. Kobayashi; *J. Appl. Phys.*, **81**, 4004(1997).
- 43 K. Hoshino, R. Nakatani, H. Hoshiya, Y. Sugita, and S. Tsunashima; *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, 607(1996).
- 44 A. J. Devasahayam, P. J. Sides, and M. H. Kryder; *J. Appl. Phys.*, **83**, 7216(1998).
- 45 星屋 裕之, 目黒 賢一, 濱川 佳弘, 福井 宏; 第 22 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 311(1998).
- 46 M. Tsunoda et al., unpublished
- 47 K. Yagami, M. Tsunoda, and M. Takahashi, *J. Appl. Phys.*, **89**, 6609(2001).
- 48 H. Li, P. P. Freitas, Z. Wang, J. B. Sousa, P. Gogol, and J. Chapman, *J. Appl. Phys.*, **89**, 6904(2001).
- 49 H. Hoshiya, S. Soeya, Y. Hamakawa, R. Nakatani, M. Fuyama, H. Fukui and Y. Sugita; *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-33**, 2878(1997).
- 50 中林敬哉、出口治彦、道嶋正司、薦田智久、吉良徹; 第 21 回日本応用磁気学会学術講演会概要集, pp.38(1997).
- 51 瀧口 雅史、菅原 伸浩、岡部 明彦、林 和彦; 第 20 回日本応用磁気学会学術講演概要集, pp.140(1998).
- 52 S. Araki, E. Omata, M. Sano, M. Ohta, K. Noguchi, H. Morita and M. Matsuzaki; *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-34**, 367 (1998).
- 53 T. Lin, C. Tsang, R. E. Fontana, and J. K. Howard; *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-31**, 2585(1995).
- 54 岸 均、北出 康博、小林 和雄; 第 19 回日本応用磁気学会学術講演概要集、pp.268(1996).
- 55 渡辺 克朗、目黒 賢一、荒井礼子、浜川佳弘、府山盛明; 第 20 回日本応用磁気学会学術講演概要集, pp.268(1996).
- 56 斉藤 正路、柿原 芳彦、渡辺 利徳、長谷川 直也; 日本応用磁気学会誌, **21**, 505(1997).
- 57 岸 均、清水 豊、長坂 恵一、田中 厚志、押木 満雅; 第 20 回日本応用磁気

- 学会学術講演概要集、pp.266(1996).
- 58 清水 豊、；第 22 回日本応用磁気学会学術講演概要集、pp.315(1998).
- 59 H. Uyama, Y. Otani, K. Fukamichi, O. Kitakami, Y. Shimada, and J. Echigoya ; *J. Magn. Soc. Jpn.*, **21**, 911(1997).
- 60 S. Soeya, S. Tadokoro, T. Imagawa and M. Fuyama ; *J. Appl. Phys.*, **74**, 6297(1993).
- 61 T. Lin, C. Tsang, R. E. Fontana, and J. K. Howard, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-31**, 2585(1995).
- 62 藤方 潤一、林 一彦、山本 英文、山田 一彦；第 19 回日本応用磁気学会学術講演概要集、pp.360(1996).
- 63 W. C. Cain, W. H. Meiklejohn, and H. Kryder ; *J. Appl. Phys.*, **64**, 4170(1987).
- 64 T. Lin, D. Mauri, N. Staud, C. Hwang, J. K. Howard, and G. L. Gorman ; *Appl. Phys. Lett.*, **65**, 1183(1994).
- 65 P. P. Freitas, J. L. Leal, L. V. Melo, N. J. Oliveira, L. Rodrigues, and A. T. Sousa ; *Appl. Phys. Lett.*, **65**, 493(1994).
- 66 M. Tsunoda, K. Nishikawa, T. Damm, T. Hashimoto, and M. Takahashi ; *J. Magn. Magn. Mater.*, **239**, 182(2002).
- 67 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Magnetism*, **7**(3), 80(2002).
- 68 A. P. Malozemoff ; *Phys. Rev. B*, **35**, 3679(1987).
- 69 N. C. Koon ; *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 4865(1997).
- 70 D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay ; *J. Appl. Phys.*, **62**, 3047 (1987).
- 71 M. Tsunoda, Y. Tsuchiya, T. Hashimoto, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, **87**, 4375(2000).
- 72 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, **87**, 4957(2000).
- 73 甲野藤 真；東北大学博士学位論文(2000).
- 74 M. Tsunoda, M. Konoto, and M. Takahashi, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **189**, No.2, 449(2002).
- 75 星屋 裕之、目黒 賢一、濱川 佳弘、福井 宏；第 22 回日本応用磁気学会学術講演概要集、311(1998).
- 76 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *J. Appl. Phys.*, **33**(Suppl.), 1328(1962).
- 77 D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay ; *J. Appl. Phys.*, **62**, 3047 (1987).

- 78 甲野藤 真 ; 東北大学博士学位論文(2000).
- 79 E. Raub, and W. Mahler, *Z. Metallkd.*, 46(4), 282(1955).
- 80 例えば、吉田 貞史 ; 薄膜、pp.96(培風館、1990).
- 81 M. Tsunoda, M. Konoto, and M. Takahashi ; *Phys. Stat. sol.(a)*, 189, No.2, 449(2002).
- 82 甲野藤 真 ; 東北大学博士学位論文(2000).
- 83 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *J. Appl. Phys.*, 33(Suppl.), 1328(1962).
- 84 D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay ; *J. Appl. Phys.*, 62, 3047 (1987).
- 85 K. Nishioka, S. Shigematsu, T. Imagawa, and S. Narishige ; *J. Appl. Phys.*, 83, 3233(1998).
- 86 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Magnetism*, 7(3), 80(2002).
- 87 西川 和宏 ; 東北大学博士学位論文(2002).
- 88 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Phys. D.*, 35, 2365(2002).
- 89 M. Tsunoda, Y. Tsuchiya, T. Hashimoto, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, 87, 4375(2000).
- 90 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, 87, 4957(2000).
- 91 Z. Qian, M. T. Kief, P. K. George, J. M. Sivertsen, J. H. Judy ; *J. Appl. Phys.*, 85, 5525(1999).
- 92 R. Seidel, O. de Haas, R. Schaefer, L. Schultz, M. Ruehrig, and J. Wecker ; *IEEE Trans. Magn.*, 38, No.5, 2776.
- 93 P. Gogol, J. N. Chapman, M. F. Gillies, and F. W. M. Vanhelmont ; *J. Appl. Phys.*, 92, 1458(2002).
- 94 A. Kirilyuk, Th. Rasing, H. Jaffrès, D. Lacour, and F. Nguyen Van Dau ; *J. Appl. Phys.*, 91, 7745(2002).
- 95 A. Wallash and Y. K. Kim ; *IEEE Trans. Magn.*, 34, 1519 (1998).
- 96 M. Takahashi, T. Maeda, K. Inage, M. Sakai, H. Morita, and M. Matsuzaki ; *IEEE Trans. Magn.*, 34, 1522 (1998).
- 97 M. Tsunoda et al. ; unpublished.
- 98 K. Yagami, M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, 87, 4930(2000).
- 99 M. Tsunoda, K. Nishikawa, T. Damm, T. Hashimoto, and M. Takahashi ; *J. Magn. Magn. Mater.*, 239, 182(2002).
- 100 K. Yagami, M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, 89, 6609(2001).

- 101 H. Li, P. P. Freitas, Z. Wang, J. B. Sousa, P. Gogol, and J. Chapman ; *J. Appl. Phys.*, **89**, 6904(2001).
- 102 M. Tsunoda, Y. Tsuchiya, T. Hashimoto, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, **87**, 4375(2000).
- 103 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Appl. Phys.*, **87**, 4957(2000).
- 104 M. Tsunoda, and M. Takahashi ; *J. Magnetism*, **7**(3), 80(2002).
- 105 E. Raub, and W. Mahler, *Z. Metallkd.*, **46**(4), 282(1955).
- 106 W. H. Meiklejohn, and C. P. Bean ; *J. Appl. Phys.*, **33**(Suppl.), 1328(1962).
- 107 D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay ; *J. Appl. Phys.*, **62**, 3047 (1987).
- 108 K. Nishioka, C. Hou, H. Fujiwara, and R. D. Metzger ; *J. Appl. Phys.*, **80**, 4528(1996).
- 109 K. Nishioka, S. Shigematsu, T. Imagawa, and S. Narishige ; *J. Appl. Phys.*, **83**, 3233(1998).
- 110 D. Lederman, C. A. Ramos, V. Jaccarino, J. L. Cardy, ; *Phys. Rev. B*, **48**, 8365(1993).
- 111 E. Fulcomer and S. H. Charap ; *J. Appl. Phys.*, **43**, 4190(1972).
- 112 M. D. Stiles, and R. D. McMichael, *Phys. Rev. B*, **59**, 3722(1999).
- 113 A. J. Devasahayam, P. J. Sides, and M. H. Kryder ; *J. Appl. Phys.*, **83**, 7216(1998).
- 114 A. J. Devasahayam, and M. H. Kryder ; *J. Appl. Phys.*, **85**, 5519(1999).
- 115 H. Xi, and R. M. White ; *J. Appl. Phys.*, **94**, 5850(2003).
- 116 深道 和明 ; まてりあ, **39**, 10(2000).
- 117 柴田 雅博 ; 未発表.
- 118 C. Mitsumata, A. Sakuma, and K. Fukamichi ; *Phys. Rev. B.*, **68**, 14437(2003).
- 119 R. Y. Umetsu, C. Mitsumata, A. Sakuma, and K. Fukamichi ; *Trans. Magn. Soc. Japan*, **3**, 59(2003).

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。