反射率法による磁性多層膜の構造解析

平野 辰巳

((株) 日立製作所 日立研究所)

Structure Analysis of Magnetic Multilayer Using Reflectometry

Tatsumi Hirano

Hitachi Research Lab., Hitachi Ltd.

ABSTRACT

The giant magnetoresistive head, consisting of magnetic and noble metal multilayers, is a key device of hard disk drives. As head properties strongly depend on the magnetic structure, the characterization is important for producing good devices. In this report, we review multi-wave x-ray reflectometry for accurate analysis of the layer thickness, and polarized neutron reflectometry for analysis of magnetic moment. We also mention a future prospect of a neutron experiment.

Keywords: *Giant magnetoresistance, magnetic structure analysis, Reflectometry*

1. はじめに

現在の磁気ディスク装置 (HDD) の記録密度は年率 40 %程度で向上しており、記録密度が 400 Gb/in² の HDD が精力的に研究・開発されている。その開発は磁気ヘッドの高感度化と狭トラック化が鍵である。GMR (Giant MagnetoResistance) ヘッドの基本構造は非磁性層 (Cu) を、固定層、自由層と呼ばれる 2 層の強磁性層 (NiFe, CoFe など) で挟んだ構造で、サブ nm から数 nm 膜厚の反強磁性層/磁化固定層/非磁性層/磁化自由層の積層構造からなる。その高感度化に向けて積層膜の極薄膜化と固定層・自由層の多層化が検討されている。また、狭トラック化により、媒体からの磁束を感じるヘッドの体積も、結晶数 10 個分にしかない。このため、高度な磁化制御技術が必要で、各積層膜の膜厚だけでなく、各磁性層の磁気モーメントや界面における磁気構造の計測技術が重要となっている。そこで、積層磁性膜の各磁気モーメントを分離して計測できる偏極中性子反射率[1]に着目し、基本的な GMR ヘッド構造からなる積層磁性膜に適用した。本稿では、多波長 X 線反射率法によるサブ nm の膜厚解析、偏極中性子反射率による磁気構造解析、中性子実験への期待について紹介する。

2. 多波長 X 線反射率法によるサブ nm 膜厚解析

X 線反射率法は各積層膜の密度 (屈折率に比例)、膜厚、界面凹凸を非破壊で評価する有力な手法である[2]。しかし、遷移金属からなる GMR 膜構造においては、その屈折率差が非常に小さいため、界面で反射する X 線が少なく、積層構造の解析が困難であるという問題があった。そこで、元素の吸収端波長近傍では、屈折率が小さくなる異常分

散効果に着目し、Co-K β 線や Cu-K β 線の X 線波長を用いることで GMR 膜の積層構造を解析できることを確認した[3-5]。更に、複数波長で測定した反射率を同時に解析する多波長 X 線反射率法を開発し、サブ nm の膜厚まで解析できることを示した[6-8]。以下では、その内容について紹介する。

2.1. 実験方法

GMR 膜の構造は、Si 基板/Ta(5)/NiFe(5)/CoFe(1)/Cu(2.3)/CoFe(2)/Ru(t)/CoFe(1.5)/CrMnPt(20)/Ta(3) である。括弧内の数値は nm 単位の膜厚である。Ru の膜厚 t は、0~0.8 nm とした。X 線反射率は Co-K β , Cu-K β , Cu-K α 1 の波長で測定した。最小二乗法により各波長の反射率を同時に解析し、各層の屈折率、膜厚、界面凹凸を最適化した。

2.2. 実験結果

Fig.1 に Ru 膜厚が 0.4 nm での、測定反射率と最適化後の計算反射率を示す。測定反射率と計算反射率は非常に良く一致しており、高い精度で解析できていることがわかる。Ru の解析膜厚と設計膜厚との関係を Fig.2 に示す。両者は、非常に良い直線性を示しており、1) 多波長 X 線反射率法によりサブ nm までの膜厚が解析可能であること、2) 高度な成膜技術により、サブ nm まで膜厚制御が可能であることがわかる。

これらの膜厚評価技術や成膜制御技術は、HDD の GMR ヘッドや記録媒体に活用されている。

3. 偏極中性子反射率法による磁気構造解析

X 線は電子雲との相互作用のため、X 線反射率は電子密度の厚さ方向の構造変化 (密度、膜厚、界面凹凸) に対応する。一方、スピン 1/2 の中性

Fig.1 Experimental and calculated reflectivities measured at Co-K β , Cu-K β and Cu-K α lines for the sample in the Ru thickness of 0.4 nm.

Fig.2 Designed Ru thickness dependence of analyzed Ru thickness.

子は原子核および磁気モーメントをもつ電子雲との相互作用のため、中性子反射率は、原子核密度および磁気モーメント密度の厚さ方向の構造変化に対応する。積層磁性膜からの中性子反射率では、各層の磁気モーメントや界面での磁気構造変化が解析できる。更に、中性子のスピンの方向をそろえた偏極中性子の反射率では、微小な磁気モーメントや磁気構造が検出できる利点がある。HDDの高記録密度化に伴い、GMRヘッドや記録媒体の高度な磁化制御技術が必要で、各磁性層の磁気モーメントや界面における磁気構造の評価が重要となっている。以下では、その評価例について紹介する[9]。

3.1. 実験方法

測定試料は、GMR構造の一部である以下の膜構成である。ガラス基板/ Ta(1)/ NiFe(2)/ PtMn(12)/ CoFe(2)/ Cu(2.5)/ Ta(1)。括弧内の数値は膜厚で nm 単位である。CoFe 層の着磁のため磁場中で熱処理

Fig.3 M-H loop measured by VSM.

した。測定は、高エネルギー加速器研究機構・中性子科学研究施設に設置してある偏極中性子反射率計 (PORE) を用い、外部磁場 10 kOe 下で計測した。X 線反射率は Cu-K α 1 の波長で測定した。

3.2. 実験結果

Fig.3 に振動試料型磁力計 (Vibrating Sample Magnetometer, VSM) の測定結果を示す。着磁方向は、横軸 (外部磁場) の正方向に対応する。外部磁場が正から負になると、NiFe の磁化が先に反転した後、CoFe の磁化が反転する。ヒステリシスの中央は原点ではなく、負側にずれている。これは、着磁した CoFe の磁化が反転しにくいからである (交換結合バイアス)。これから、NiFe の磁気モーメントは $\sim 0.5 \mu_B$ 、CoFe は $\sim 1.9 \mu_B$ となる。一方、バルク値は、NiFe が $0.92 \mu_B$ 、CoFe が $1.66 \mu_B$ であり、NiFe の磁気モーメントが半減している。

Fig.4 に中性子および X 線反射率の測定と最適化後の計算反射率を併せて示す。横軸は、両者の反射率が比較できる散乱ベクトル q で表示した。

Fig.4 Experimental and calculated reflectivities of neutron and x-ray.

中性子の全反射領域は、X線のそれに比べて 1/5 程度小さい。これは、中性子とX線に対する物質の屈折率の違いによる。中性子反射率では、膜厚による振動の数がX線反射率に比べて少ないため、膜厚の解析精度が低下すると予想される。そこで、X線反射率で膜厚を解析し、その結果を中性子反射率の解析に反映させた。

膜構造モデルは、ガラス基板/界面層(IF)/Ta/NiFe/PtMn/CoFe/Cu/TaOxとした。下線部が成膜した構成と異なる。界面層は、ガラス最表面層とTaとのミキシング層に対応する。表面のTaは1 nmと薄いので、全て酸化していると考えられる。中性子反射率では、ガラス基板とTa間の界面層は中性子反射にはきかないので無視した。

X線反射率の解析では、ガラス基板、下層 Ta, NiFe, PtMn, CoFe, Cu の密度は理論値に固定して解析した。その結果の一部を Table 1 に示す。CoFe, PtMn の解析膜厚はほぼ設計値どおりである。界面幅も 0.4~0.5 nm 程度で従来値である。一方、Ta/NiFe の界面幅は 0.8 nm と大きい。これは、Ta と NiFe の反応層が形成されたため、Fe に比べて Ni が Ta と反応しやすく、Ni 量が Ta 側で若干多くなる現象で、従来より知られている現象である[4]。この反応層の形成が、NiFe の磁気モーメントが半減する要因と考えられる。

中性子反射率の解析では、下層 Ta, NiFe, CoFe の核散乱長密度は理論値に、ガラス基板は実験値に固定して解析した。また、下層 Ta と CoFe の膜厚は、X 線反射率の結果に固定した。外部磁場 10kOe における CoFe と NiFe の磁気モーメントは各々、1.78 μ_B と 0.56 μ_B である。この値は、VSM の結果とほぼ一致している。CoFe の磁気モーメントは理論値と 8%以内で一致している。PtMn の中性子反射率による膜厚は、X 線反射率に比べて 0.8nm 大きい。また、PtMn と CoFe 間の界面幅も 1nm と X 線反射率の結果に比べて大きく、PtMn と CoFe の磁気的な結合は、界面で広がっているものと予想される。また、NiFe と PtMn 間の界面幅についても同様な傾向にある。

この反強磁性層の PtMn と磁化固定層 CoFe 間の磁気構造の制御は、高記録密度に対応した GMR ヘッドの開発において重要な課題となっている。

4. 中性子実験への期待

HDD の高記録密度化に伴い、磁気ヘッドの素子サイズは 100nm 以下と縮小している。この素子加工プロセスにより、反強磁性層で本来固定されるべき強磁性層の磁化が、回転および反転する現象が顕在化し、磁気ヘッド開発の課題となっている[10]。このため、反強磁性層/強磁性層間の安定した磁気結合の実現や、磁気構造の詳細な理解が必要であり、各研究機関で検討されている。

実用化された L1₀ 型の PtMn/CoFe の交換結合エネルギーに比べ、4 倍高い L1₂ 型の MnIr/CoFe が開発[11]され、その実用化が期待されている。またその磁気構造は、フラストレーションモデルに

Table 1 Analytical results for neutron and x-ray reflectivities.

膜構造	磁気モーメント (μ_B)		膜厚 (nm)		界面幅 (nm)	
	理論値	解析値	X線	中性子	X線	中性子
CoFe	1.66	1.78	2.0	←	0.5	0.4
PtMn	0	0	12.6	13.4	0.5	1.0
NiFe	0.92	0.56	1.8	1.6	0.4	0.6
Ta	0	0	1.3	←	0.8	0.8

よる理論的解釈[12]も進められている。一方、磁気構造評価は、磁気円二色性による界面に固着した Mn 磁化の存在[13]や、円偏光X線と偏極中性子の反射率による界面近傍の磁化分布[14]が報告されている。特に、後者の報告では、中性子スピンの垂直な磁化成分により反射した中性子は、そのスピンの反転する現象を利用しており、界面磁気構造の有力な評価技術と考えられる。その実現には、高強度な中性子線源が必要となる。

国内では、世界最高レベルの放射光施設 (Spring-8) が既に稼動しており、同レベルの中性子施設 (J-PARC) の早期稼動が待たれている。HDD は国内の基幹産業の一つであり、高性能材料の開発、理論解釈、X 線や中性子による構造評価を相互に連携/活用することで、世界市場を席巻する産業にすることを期待したい。

謝辞

日本原子力研究開発機構、高エネルギー加速器研究機構、日立グローバルストレージテクノロジーズ、日立製作所の各機関の関係者に感謝いたします。

参考文献

- [1] 武田全康, 日本応用磁気学会誌 26, 1025 (2002).
- [2] T. C. Huang, J. -P. Nozieres, V. S. Speriosu, H. Lefakis and B. H. Gurney, Appl. Phys. Lett. 60, 1573 (1992).
- [3] 宇佐美勝久他, 日本応用磁気学会誌 21, 441 (1997).
- [4] 平野辰巳他, 日本応用磁気学会誌 22, 190 (1998).
- [5] T. Hirano, K. Usami, K. Ueda and H. Hoshiya, J. Synchrotron Rad. 5, 969 (1998).
- [6] 宇佐美勝久他, 日本応用磁気学会誌 24, 551 (2000).
- [7] T. Hirano, K. Ueda and T. Imagawa, Trans. MRS-J 28, 35 (2003).
- [8] S. A. Song, T. Hirano, J. B. Park, K. Kaji, K. H. Kim and S. Terada, Microsc. Microanal. 11, 431 (2005).
- [9] 平野辰巳他, 日本応用磁気学会, 第 140 回研究会資料, "層間磁気結合", 43 (2005).
- [10] 西岡浩一他, 日本応用磁気学会, 第 140 回研

究会資料, "層間磁気結合", 49 (2005).

[11] K. Imakita, M. Tsunoda and M. Takahashi, Appl. Phys. Lett. 85, 3812 (2004).

[12] C. Mitsumata, A. Sakuma and K. Fukamichi, IEEE Trans. Magn. 41, 2700 (2005).

[13] H. Ohldag et. al., Phys. Rev. Lett. 91, 017203 (2003).

[14] S. Roy et. al., Phys. Rev. Lett. 95, 047201 (2005).