NiFe/FeMn 積層膜の交換結合に対する界面性状の影響

Effect of Interface Characteristics on Exchange Coupling in NiFe/FeMn Bilayer Films

永井秀康・田ノ上修二

住友金属工業(株), 兵庫県尼崎市扶桑町 1-8 (〒660)

H. Nagai and S. Tanoue

Sumitomo Metal Industries, Ltd., 1-8, Fusosho, Amagasaki, Hyogo 660

The effect of interface characteristics on exchange coupling in Ni-Fe/Fe-Mn bilayer films has been discussed in order to explain the mechanism of exchange coupling. The condition of the interface was changed by Ar ion bombardment of the Ni-Fe surface before Fe-Mn deposition. The results showed that when the Ni-Fe surface was oxidized by exposure to the air before depositing the Fe-Mn, the exchange coupling could be observed only by removing the oxidized surface. Furthermore, when bilayer films were deposited without exposing the Ni-Fe surface to the air, the exchange coupling had a peak when the angle of Ar ion bombardment was about 30°. The results of STM observation and X-ray diffraction showed that the exchange coupling did not depend on the surface roughness of a Ni-Fe film, but depended on the X-ray intensity ratio of (200) to (111). Therefore we concluded that the preferred crystal orientation of Ni-Fe surface might affect the exchange coupling in Ni-Fe/Fe-Mn bilayer films.

Key words: exchange coupling, Ni-Fe, Fe-Mn, Ar ion bombardment, interface characteristics, surface roughness, crystal structure

1. はじめに

Ni-Fe 膜上に反強磁性 Fe-Mn 膜を積層した場合、Ni-Fe 膜と Fe-Mn 膜が界面上で交換結合し、Ni-Fe 膜に一方向磁気異方性を示す交換結合磁場が生じることが知られている¹⁾。交換結合の発生メカニズムは界面を単結晶面としたモデルで説明した例^{2), 3)}が多いが、積層膜をスパッタで成膜する場合、界面は単結晶面とはならず多結晶が作る複雑な面になる。一般にスパッタの積層界面は異なる結晶面から構成されており凹凸も見られる。このような界面が交換結合に及ぼす影響はまだ十分に明らかになっていない^{4), 5)}。そこで本報告では界面性状が交換結合に与える影響を検討した結果を報告する。

2. 実験方法

試料作製は3つのプロセスに分れており、初めに Ni-Fe 膜を RF スパッタ装置またはデュアルイオンビームスパッタ装置で成膜し、次に Ni-Fe 表面性状を変化させるためにデュアルイオンビームスパッタ装置で Ar イオン照射による Ni-Fe 表面のスパッタエッチングを行った。最後に Fe-Mn 膜をデュアルイオンビームスパッタ装置で成膜した。ここで基板はガラスを用い、ターゲットは Ni₈₀Fe₂₀at% と Fe₅₀Mn₅₀at% の組成のものを用いた。成膜後の Ni-Fe 組成に変化は認められなかったが、Fe-Mn 膜の組成は Fe₆₀Mn₄₀at% にずれていた。また基板面に平行に 50 Oe 以上の一方向磁場を印加しながら全プロセスを行った。Ar イオン照射と Fe-Mn 成膜は大気開放せずに連続で行った。また Ni-Fe 膜を RF スパッタ装置で成膜した場合は、Ni-Fe 成膜と Ar イオン照射の間で試料は大気にさらされることになった。一方 Ni-Fe 膜をデュアルイオンビームスパッタ装置で成膜した場合は全プロセスを大気開放せず連続で行った。この場合のターゲットは Ni₇₉Fe₂₁at% で、成膜後の Ni-Fe 組成に変化は認められなかった。スパッタエッチングされた後の Ni-Fe 膜厚は 450 Å に固定した。界面性状を変化させる手段として Ar イオン照射角度とスパッタエッチング厚を変化させたが、基板温度の上昇による Ni-Fe 膜の再結晶化を避けるために Ar イオン照射エネルギーは 300 eV と小さく抑えた。Fe-Mn 膜厚は 500 Å を中心に変化させた。

膜組成は ICP 発光分光法で決定し、交換結合は VSM で測定した BH ループのずれから得た交換結合磁場(以下 H_{ex} と略す)の大きさで評価した。界面性状の測定は XPS と薄膜 X 線回折と STM で行った。

3. 実験結果および考察

3.1 Ni-Fe 表面酸化の影響

Ni-Fe 膜を RF スパッタ装置で成膜した後、Ar イオ

ン照射を行わずに Fe-Mn 膜を成膜すると交換結合が現れなかった。この原因は積層膜を 2 種類のスパッタ装置で成膜したことにあると考え、Ni-Fe 成膜後に試料が大気さらされたため Ni-Fe 表面に酸化層が存在し交換結合が働かなかったと推論した。そこで Ar イオンによるスパッタエッチングを組合せた XPS を使用して深さ方向の元素分析を行った。その結果を Fig. 1 に示す。525 eV の信号が O を示しており、O は Ni-Fe 表面に存在するが内部に入るに従って急激に減少し、18 Å で検出されたが 79 Å では検出されなかった。他の試料において 26 Å で O が検出されなかったことから、表面酸化層の厚さは約 25 Å であり、表面に近いほど酸化の度合いは強いといえる。

この表面酸化層が交換結合を妨げていることを確認するため、Ni-Fe 表面を Ar イオンでスパッタエッチングした後に Fe-Mn 膜を積層した。ここでは Ar イオン照射角度を 30° にし、Fe-Mn 膜厚を 500 Å にした。Fig. 2 にスパッタエッチング厚と H_{ex} の関係を示す。スパッタエッチング厚が 25 Å になると H_{ex} は飽和値の約 1/2 ま

Fig. 1 XPS spectra of Ni-Fe surface.

Fig. 2 Sputter-etching thickness dependence of exchange anisotropy field H_{ex}

で増加し 50 Å 以上で飽和している。このことと酸化層の厚さが約 25 Å であることは対応しているので、 H_{ex} の増加は酸化層が除去されたためと考えられる。したがって Ni-Fe 表面の数原子層にわたって O が存在すると交換結合に大きく影響を与えることが判明した。

3.2 Ar イオン照射の影響

Ni-Fe 表面に酸化層がないことが交換結合に必要なため、Ni-Fe 成膜から Fe-Mn 成膜までデュアルイオンビームスパッタで連続成膜し、試料が大気さらされないようにした。Fig. 3 に Fe-Mn 膜厚と H_{ex} の関係に対する Ar イオン照射の有無の影響を示す。ただしスパッタエッチング厚は 100 Å, Ar イオン照射角度は 30° に固定した。Ar イオン照射がない場合の H_{ex} は 100 e 以下であるが、Ar イオン照射によって 50% 以上増加した。このように交換結合が変化したのは Ar イオン照射によって Ni-Fe 表面性状が変化したためと考えられる。

3.3 Ni-Fe 表面の凹凸および結晶構造の影響

Ar イオン照射による Ni-Fe 表面性状の変化を詳しく調べるため、Ar イオンの照射角度を変化させた。Ni-Fe

Fig. 3 Fe-Mn thickness dependence of H_{ex} with and without Ar bombardment.

Fig. 4 Dependence of H_{ex} on the angle of Ar ion bombardment.

膜はRFスパッタ装置で成膜し、スパッタエッチング厚はFig. 2から H_{ex} が十分に飽和する100Å、Fe-Mn膜厚は500Åに固定した。Fig. 4にArイオン照射角度と H_{ex} の関係を示す。ただし、Arイオン照射角度は基板面からのイオンビーム入射角度と定義したので、0°のデータはスパッタエッチングを行わない時の値である。スパッタエッチングを行わない時は交換結合が生じなかったが、角度が増加すると H_{ex} も増加した。そして30°で H_{ex} は最大となりさらに角度が増加すると減少した。同じ傾向は磁気異方性磁場（以下 H_k と略す）と容易軸方向の保磁力（以下 H_c と略す）にも現れており、Fig. 5(a)に示すように H_k はNi-Fe膜本来の値である4.0 Oeに H_{ex} を加えた値にほぼ一致し、30°で最大を示した。さらにFig. 5(b)に示すように H_k の変化に伴い H_c も30°で最大値2.0 Oeを示した。しかし困難軸方向の保磁力（以下 H_{ch} と略す）は交換結合の発生に伴って多少減少したが角度依存性は見られなかった。

H_{ex} のArイオン照射角度依存性の原因としてArイオン照射により表面凹凸または表面積の増加、表面結晶配向が変化した可能性が考えられる。この可能性を検討するため、大気中でSTMを使用して表面形状を調べた

Fig. 5 Ar ion bombardment angle dependence of magnetic properties: (a) magnetic anisotropy field H_k , (b) coercive force H_c .

結果をFig. 6に示す。ただし表面積の増加はスパッタエッチングしない場合に対する増加率で表した。Arイオン照射を行うと表面凹凸は増加した。凹凸の大きさは結晶粒の大きさに近いので、それぞれの結晶粒に対するスパッタエッチング速度の差が表面凹凸の原因と考えられる。表面凹凸の増加に伴い表面積は数%増加するが、明確な角度依存性は見られなかった。

次に入射角0.5°の薄膜X線回折により結晶配向を調査した。この回折ピークとしては表面に対して25.9°傾いた(111)メインピークと30.1°傾いた(200)セカンドピークが見られた。メインピークの半値幅から見積もった結晶粒径は約150Åであり、Ar照射角度依存性がなくArイオン照射をしない場合との差が見られなかったことから、再結晶化などの変化はなかったと考えられる。しかしFig. 7に示すようにメインピークに対するセカンドピークの強度比が30°で最大を示しており、(111)

Fig. 6 STM profiles and increases in the surface area of a Ni-Fe surface after Ar ion bombardment: (a) before sputter-etching, (b) for an Ar ion bombardment angle of 30°, (c) for an angle of 60°.

Fig. 7 Ar ion bombardment angle dependence of an X-ray intensity ratio of (200) to (111).

Fig. 8 Fe-Mn thickness dependence of H_{ex} .

からの回折を示す結晶粒よりも(200)からの回折を示す結晶粒の方がスパッタエッチングされにくく Ni-Fe 表面に残ったことを意味している。この傾向は Fig. 4 の H_{ex} の Ar 照射角度依存性に対応しており、Ar イオン照射によって特定の結晶粒が表面に残ると交換結合は増加することを示唆していると思われる。

3.4 Fe-Mn 膜厚の影響

RF スパッタ装置で Ni-Fe 膜を成膜した場合の Fe-Mn 膜厚と H_{ex} の関係を Fig. 8 に示す。ただしスパッタエッチング厚は 100Å, Ar イオン照射角度は 30° に固定した。Fe-Mn 膜厚が 50Å 以下では H_{ex} は 0 であり、50Å を越えると H_{ex} は急激に増加し 250Å で極大を示し、さらに Fe-Mn 膜厚が増加すると H_{ex} は緩やかに減少する傾向を示した。これは 50Å 以下では反強磁性が

発生しないが、50Å を越えると反強磁性が発生し、500Å 程度に厚くなると γ -Fe-Mn の一部が不安定になり反強磁性を示さない α 相に変化するためと考えられる⁶⁾。また H_k と H_{ce} は H_{ex} の変化と同じ傾向を示した。しかし H_{ch} は交換結合が発生すると減少したが、その後 Fe-Mn 膜厚が増加しても変化しなかった。

4. ま と め

Ni-Fe/反強磁性 Fe-Mn 2 層膜において、Ni-Fe 表面に Ar イオン照射を行い Ni-Fe 表面性状を変化させたあと Fe-Mn 膜を成膜し、界面性状が交換結合に与える影響を調査した。その結果以下のことが判明した。

Ni-Fe 表面に 25Å 程度の酸化層が存在すると交換結合が生じないが、この層を除去すると交換結合が生じた。Ni-Fe 表面が酸化しないように連続成膜を行った場合においても Ar イオン照射によって交換結合は増加した。STM の観察結果から Ar イオン照射により表面凹凸および表面積は増加するが、交換結合との間に明確な相関は見られなかった。しかし Ar イオン照射により特定の方向の結晶粒が Ni-Fe 表面に残ると交換結合は増加した。また交換結合が生ずるには 50Å 以上の Fe-Mn 膜が必要であり、300Å 以上に厚くなると交換結合磁場は減少した。

謝 辞 本研究を行うに当たり、御討論、御助言を頂きました当社総合研究開発センターの川勝久三上席研究主幹に謝意を表します。

文 献

- 1) R. D. Hempstead, S. Krongelb and D. A. Thompson: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-14**, 521 (1978).
- 2) W. Rave, W. C. Cain, A. Hubert and M. H. Kryder: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-23**, 2164 (1987).
- 3) A. P. Malozemoff: *Phys. Rev. B*, **35**, 3679 (1987).
- 4) C. Tsang, N. Heiman and Kenneth Lee: *J. Appl. Phys.*, **52**, 2471 (1981).
- 5) J. K. Howard and T. C. Huang: *J. Appl. Phys.*, **64**, 6118 (1988).
- 6) C. Hwang, R. H. Geiss and J. K. Howard: *J. Appl. Phys.*, **64**, 6115 (1988).

1992 年 11 月 19 日受理, 1993 年 2 月 2 日採録