GMR・スピンバルブ素子用多層膜の界面調整と特性制御

Relationships between MR Characteristics and the Structures at Interfaces for GMR / Spin Valve Devices

中川 茂樹, 宮本 泰敬, 葭谷 徹, 直江 正彦

東京工業大学・工学部・電子物理工学科

Shigeki NAKAGAWA, Yasuyoshi MIYAMOTO, Tohru YOSHITANI and Masahiko NAOE
Department of Physical Electronics, Tokyo Institute of Technology

Abstract $[\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Cu}]_{30}$ multilayers with giant magnetoresistance were deposited using Dual Ion Beam Sputtering apparatus, which can control the crystallite orientation and interfacial structure by using ion bombardment effects. In this study, it was confirmed that the bulk scattering is remarkable for Ni-Fe/Cu multilayers, but the field sensitivity is much influenced by the structures at interfaces. The ion bombardment to Ni-Fe thin underlayers for $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ anti-ferromagnetic layers in Spin Valve multilayers was also useful to attain a large exchange bias field.

1. はじめに

強磁性・非磁性多層膜において巨大磁気抵抗効果(GMR)が発見されて以来[1]、基礎物性から工学的応用まで様々な研究が行われてきた。また磁気記録用再生ヘッドに、GMR あるいはスピンバルブ素子を応用する研究も進んでいる。多層膜構造での GMR においては、各層間の界面の構造が各層中の結晶子配向や多層膜全体の構造を決定し、ひいては MR 特性や交換異方性磁界の大きさをも決定する因子となる[2, 3]ため、この界面構造の制御が重要と考えられる。一方、GMR やスピンバルブ特性においては、伝導キャリアのスピン依存散乱の主要因が界面散乱か磁性層中のバルク散乱なのか[4]を判別する意味においても界面構造を制御することが重要となる。今回我々は、材料として比較的軟磁気特性に優れた Ni-Fe/Cu 多層膜を採用した。その結果、イオン照射効果を用いて GMR 多層膜の配向や界面の状態を変化させて磁気抵抗特性を制御できることを確認した。また FeMn 層を交換バイアス印加層としたスピンバルブ膜の界面制御効果についてもまとめて報告する。

2. 実験方法

GMR多層構造膜やスピンバルブ素子の作製にはデュアルイオンビームスパッタ法を用いた。 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$, Cu, $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$ の組成を有するターゲットをArガスを用いてスパッタし、Siウェハー基板上に室温で堆積した。 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Cu}$ 多層構造膜においてはFeバッファ層を50 Å堆積したのち、 $[\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Cu}]$ 層を30周期堆積した。各層界面の構造制御およびFeバッファ層の配向制御にはサブイオンガンで堆積中に膜面に加速エネルギー V_{sg} でArイオンを照射する事により行った。この時の各層厚をそれぞれ $\delta_{\text{Ni-Fe}}$, δ_{Cu} とし、それぞれ5~30 Åの範囲で変化させた。スパッタ動作ガス圧は0.2 mTorr一定とした。その他の作製条件は、表1に示す。

表1: 実験条件

スパッタガス	Ar
到達真空度	2×10^{-7} Torr
スパッタガス圧 P_{Ar}	0.2 mTorr
基板	Si(100)ウェハー
メインガン加速電圧 V_{mg}	500 V
基板温度	Room Temperature
堆積速度	Fe : 11 Å/min
	Ni-Fe: 14 Å/min
	Cu : 23.5 Å/min

3. 実験結果

3.1 $[\text{Ni-Fe/Cu}]$ 多層膜界面へのイオン照射

GMR発現機構としてのスピン依存散乱現象の主因が、界面散乱かバルク散乱なのかについて多く議論がなされている[4]。したがってGMR発現機構を実験的に解明する上では、界面の状態を変化させることが有効であると考えられる。そこで、多層膜

図1 $[\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Cu}]$ 多層膜の各界面にイオン照射を行った試料の断面構造図

図2 加速電圧 V_{sg} の変化による低角域 XRD の変化

中の各界面へイオン照射を行うことで、界面の状態を積極的に変化させ、それに伴う磁気抵抗特性の変化を調べた。

図1に実際に作製した多層膜の構造を示した。成長中の膜面へイオン照射を行うことで、界面付近の原子状態を変化させ、界面での原子のローカルなミキシングを期待した。本実験では V_{mg} を 500 V とし、 V_{sg} を 0~350 V とした。また各層厚 $\delta_{\text{Ni-Fe}}$ 、 δ_{Cu} はそれぞれ 10 Å 一定(約6原子層に相当)とし、Fe バッファ層厚は 50 Å とした。

界面の 2 原子層相当に加速電圧 V_{sg} でイオン照射を行った試料の低角 X 線回折ダイアグラムを図 2 に示す。いずれの試料においても、積層数 30 層に相当する Laue 関数

図3 V_{sg} の変化による高角域 XRD の変化

図4 イオン照射試料の磁気抵抗変化率および磁界感度の V_{sg} 依存性

の裾部分に相当する振動とともに、20 Å の積層周期に相当する 1 次回折線 ($2\theta=4.42^\circ$ 近傍)が観測されている。2 次以降の高次の回折線は観測されなかったが、界面へのイオン照射を行なっても長周期構造が確立されていることがわかる。

図3は界面の2原子層分に加速電圧 V_{sg} のイオン照射を行った試料における高角域 X 線回折ダイアグラムを示したものである。 V_{sg} が 160 V で Ni-Fe および Cu の (111) 配向が

極大となっているが、これは最も有効にイオンアシスト効果が働き、原子が最密格子を形成したためと思われる。さらに V_{sg} が200 V以上では、弱くブロードな(200)ピークを示しており、 V_{sg} が160~200 Vの範囲内で急激な結晶配向の変化が生じたものと考えられる。ちなみに界面の1ないし3原子層相当にイオン照射を行った試料についても、 V_{sg} が160~200 Vの範囲で、(111)配向から弱い(100)配向への変化が起こっていた。これは、高エネルギーアルゴンイオンの照射によって生じた原子再配列や層間拡散によるものと考えている。この弱い(100)配向については、必ずしも膜全体が(100)配向していることを示しているわけではなく、ローカルでのNi-FeおよびCuの原子層オーダーでの混合がある割合で生じ、界面付近で(100)配向を持っているようにみえたためと思われる。

図4にイオン照射を2原子層相当に行ったサンプルにおける、磁気抵抗変化率MR ratioおよび印加磁界10 Oeでの磁界感度 $\Delta MR/\Delta H$ のイオン照射加速電圧 V_{sg} 依存性を示した。 V_{sg} が高くなるにつれて徐々に抵抗変化率は減少しているが、300 V以上となるまでは急激な変化は見られない。つまりイオン照射のエネルギーが高くなり界面付近が「荒れた」状態になっても、それほど大きな影響を受けていないといえる。一般にNi-Fe/Cu多層膜のスピン依存散乱は主にバルク散乱であると考えられており[4]、界面状態の異なる場合でも、偏極電子の層間の移動過程にはあまり影響を与えないものと予想できる。一方、磁界感度 $\Delta MR/\Delta H$ については V_{sg} が160 V付近で一度弱い極大をとり、更にそれ以上では急激に減少している。この時、磁化特性は面内異方性がなくなり等方的となった。またこのとき飽和磁界 H_s についても V_{sg} が200 V以上で急激に数100 Oeから数kOeへと増大していることが確認できた。これらの結果は各磁性層内の磁化ベクトルのふるまいが界面近傍の構造に大きく影響を受けていることを示唆している。またイオン照射を界面から1, 3原子層相当に行った試料についても同様な傾向を有していることを確認した。

これらのことより、Ni-Fe/Cu多層膜では界面ではなく、主に各層内部でのスピン依存散乱

(バルク散乱)がGMRの主因と考えられる。しかし、各磁性層の磁化ベクトルのふるまいは界面付近の構造やそれに伴う各層中の結晶子配向に敏感に反応しており、イオン照射によって磁気抵抗特性が変化するものと思われる。いずれにしろ、数Åオーダーでの各界面の原子配列状態を検証できれば、より明確な関連を調査できるだろう。

3.2 スピンバルブ用FeMn層の配向制御

磁気記録用再生ヘッドへの応用にスピンバルブ素子が注目されている。交換バイアス磁界印加用の反強磁性FeMn層は、通常はGMRサンドイッチ構造3層膜の堆積後に成膜されているが、耐蝕性の観点からはFeMn層の上に多層

図5 FeMn層上のスピンバルブ多層膜: (a)下地層なし, (b)下地Ni-Fe層, (c)イオン照射下地Ni-Fe層

図6 FeMn層厚50および500 Å上のFe(50 Å)/Cu(20 Å)/Ni-Fe(50 Å)3層膜のX線回折ダイアグラム

図7 3種類のスピバルブ構造の多層膜のX線回折ダイアグラム

膜を形成することが適していると考えられる。また、高いMR比や磁界感度が得られるとされる Symmetric Spin Valve [5]の構造にするためには反強磁性層を基板面側に配置する技術が必要となる。そこで、図5(a)に示されるようなスピバルブ構造についての実験を行なった。一般にFeMn反強磁性層による交換バイアスは、FeMn層の(111)配向した界面に接した磁性層に対して効率良く印加される[6]ものと期待される。しかしながら、図5(a)に示されるような構造の多層膜において、FeMn層を直接基板上に堆積した膜では(111)配向は得難い。

図6にNi-Fe(50 Å)/Cu(20 Å)/Ni-Fe(50 Å)の3層膜を異なる膜厚を有するFeMn層に堆積させた場合のX線回折ダイアグラムを示す。FeMn層の膜厚が50 Åの場合にはFeMnあるいはNi-FeやCuの(111)配向が鮮明に現れるが、FeMn層の厚みが500 Åになるとこの(111)配向の回折強度は劣化している。これはFeMn層が厚くなった場合にはFeMn層の(111)配向した結晶子が表面に現れていないために全体の(111)配向度が低下したものと考えられる。このように(111)配向度の低下した膜においては、ほとんど交換バイアス磁界を確認できなかった。

このため、FeMn層の配向度制御層として50 ÅのNi-Fe層を下地層として付与した図5(b)の構造の膜と、さらに下地Ni-Fe層の(111)配向を高めるために、 $V_{\text{sg}}=160$ Vでイオン照射を行なった[7]図5(c)の構造の膜を作製した。

図7に図5に示した3種類のスピバルブ構造の多層膜のX線回折ダイアグラムを示す。(a)の構造では(111)回折線はほとんど観測されないが、配向度制御層として50 ÅのNi-Fe層を下地層として作製した(b)の構造の膜では(111)回折強度の増大が認められる。さらにNi-Fe下地層にイオン照射を行なった図5(c)の構造の膜を作製した膜においては、FeMn層厚が500 Åと厚いにもかかわらず極めて高い(111)配向膜を得ることができた。これにより交換バイアス磁界も安定して印加でき、この場合20~30 Oeの交換バイアス磁界の印加を確認した。

4. まとめ

Ni-Fe/Cu巨大磁気抵抗効果多層膜において、結晶子配向および界面構造と磁気抵抗特性との関連を調査するために、各界面へのイオン照射実験を行った。Ni-Fe/Cu多層膜の各界面へイオン照射を行うことで、界面の状態を変化させた場合の磁気抵抗特性の変化について調査した。磁気抵抗変化率は加速電圧による変化量が少なく、Ni-Fe/Cu多層膜ではバルク散乱がスピン依存散乱の主因であると考えられる。また磁界感度は磁化ベクトルの動きと考えることができ、界面構造に大きく影響を受けることがわかった。また、スピバルブ素子における交換バイアス磁界印加用の反強磁性FeMn層においては、[6]に示された強磁性層界面での(111)配向が重要であることを確認した。極薄Ni-Fe層を下地膜として採用し、さらに堆積中にイオン照射を行うことによりFeMnの(111)配向度を向上させることに成功した。

参考文献

- [1] M. N. Baibich *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472, (1988)
- [2] R. Nakatani *et al.*: *J. Magn. Magn. Mater.*, **126**, 492, (1993)
- [3] M. Naoe, Y. Miyamoto and S. Nakagawa: *J. Appl. Phys.*, **75**, 6525, (1994)
- [4] B. Dieny: *Europhys. Lett.*, **17**, 261, (1992)
- [5] T.C. Anthony, J.A. Brug and S. Zhang: *IEEE Trans. on Magn.*, **30**, 3819, (1994)
- [6] R. Nakatani *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **33**, 133, (1994)
- [7] 例えば Y. Miyamoto *et al.*: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **18**, S1, 409, (1994)