NiFe/FeMn 膜の交換結合における熱処理の効果

Effect of Annealing on Exchange-Coupled NiFe/FeMn Films

金井 均・兼 淳一・山本尚之

富士通株式会社・先端テクノロジー研究部, 厚木市森の里若宮 10-1 (☎243-01)

H. Kanai, J. Kane, and T. Yamamoto

Future File Technology Development, Fujitsu Ltd., 10-1 Morinosato-Wakamiya, Atsugi-shi 243-01

The effects of thermal annealing (from 25°C to 300°C) on exchange-coupling fields in NiFe/FeMn films were investigated. The exchange-coupling fields decrease with an increase in the temperature from 90°C to 210°C but remain constant at 210°C or higher in Ta/NiFe/FeMn films with a Ta underlayer. However, the exchange-coupling fields in these annealed Ta/NiFe/FeMn films make a dramatic recovery if the FeMn layers are thinned by ion-milling and annealed again at 210°C or higher. These changes in the exchange-coupling fields are explained as thermal fluctuations in FeMn spins. On the other hand, the exchange-coupling fields increase at 210°C or higher in NiFe/FeMn films without Ta underlayers. XPS depth-profile results reveal interdiffusion in the NiFe-FeMn interface after annealing at higher than 210°C in the NiFe/FeMn films.

Key words: FeMn, antiferromagnetic, exchange-coupling, annealing, MR head, spin-valve head, XPS

1. はじめに

NiFe/FeMn 膜では, NiFe-FeMn 間の交換結合により FeMn 膜から NiFe 膜に交換結合磁界 (H_{ua}) が作用し, NiFe 膜の磁化が一方向にピンニングされる¹⁾. このため NiFe/FeMn 膜は, MR ヘッドの磁区制御膜²⁾あるいはスピンバルブヘッドのピンニング磁性層³⁾として応用されている. ところが, ヘッド製造プロセス上必要な熱処理によってこの H_{ua} が減少することが知られている. これまで, H_{ua} に及ぼす熱処理の効果については, 金属キャッピング層の拡散⁴⁾や NiFe-FeMn 界面での相互拡散⁵⁾, また FeMn 膜の結晶性⁶⁾などが検討されてきた. しかしながらいずれも 250°C 前後の熱処理での実験であり, それより低い温度での H_{ua} の振舞については検討されていない. また H_{ua} 変化における FeMn 膜厚の効果も明らかでない.

本論文では, Ta/NiFe/FeMn/Ta 膜において室温 25°C から 300°C の範囲で H_{ua} と熱処理温度との関係を示す. また H_{ua} に及ぼす FeMn 膜の薄膜化の影響も明らかにし, H_{ua} 変化の原因を FeMn スピンの熱揺らぎという観点から考察する. さらに Ta 下地層の無い NiFe/FeMn/Ta 膜についても, 同様の温度範囲で H_{ua} の熱処理温度依存を明らかにし, Ta/NiFe/FeMn/Ta 膜との違いを議論する.

2. 実 験

RF スパッタ装置により, Si(110) 基板の上に, Ta 下地層のあ
日本応用磁気学会誌 Vol. 20, No. 2, 1996

る Ta (100Å)/NiFe (200Å)/FeMn (250Å)/Ta (100Å) 膜ならびに Ta 下地層がない NiFe (200Å)/FeMn (250Å)/Ta (100Å) 膜を磁場中 (300 Oe) で成膜した. FeMn 層上の 100Å 厚の Ta はキャッピング層, スパッタ背圧ならびにスパッタガス圧はそれぞれ 5×10^{-5} Pa 以下と 0.5 Pa である. 本積層膜サンプルの磁気特性 (H_{ua} , 保磁力 H_c) の測定ならびに熱処理には, 加熱機構付きの VSM 装置を用いた. 熱処理は 1 kOe の磁場中で 20 分間行い, 磁場の方向は成膜時の印加磁場方向に一致させた. また XPS 装置により NiFe-FeMn 界面の分析や X 線回折装置により結晶構造解析も行った.

3. 結果および考察

まず, Ta 下地層がある Ta/NiFe/FeMn/Ta 膜について結果を示す. Fig. 1 は, 室温 (25°C) から徐々に 300°C まで熱処理の温度を上げたときの H_{ua} ならびに H_c の熱処理温度依存である. H_c は 300°C までの熱処理温度に対してほとんど変化していない. しかし H_{ua} は, 90°C から減少を開始して 210°C までの範囲で徐々に低下している. そして 210°C 以上の温度では飽和し, 一定になっている.

さらに Fig. 2 は, Fig. 1 で 300°C の熱処理によって H_{ua} が減少した Ta/NiFe/FeMn/Ta 膜 (c) について, イオンミリングによって FeMn を薄く削り, Ta キャッピング層 (100Å 厚) を再度形成した後, 再び 210°C 以上で熱処理を行い, 熱処理前後の H_{ua} を比較した結果である. 図中, (d) はイオンミリングし Ta キャッピング層を形成した直後 (温度 25°C), (e) はさらにこのサンプルを磁場中で 210°C, 300°C で熱処理した後の H_{ua} の値である. FeMn の残膜厚は 75Å および 125Å の 2 種類とした. またイオンミリングは, ミリング・レートが小さく, しかも表面分析によりミリング残量を推定できる XPS 装置を用いて行った (FeMn のミリング・レート: 約 0.5Å/s).

Fig. 2 から, イオンミリング直後, すなわち単に FeMn を薄膜化し Ta キャッピング層を形成した直後 (d) では, H_{ua} はイオンミリング前の値と変わっていないことが分かる. すなわち H_{ua} は熱処理によって劣化したままである. しかし 210°C 以上で再度熱処理を行うと, 減少していた H_{ua} は, as depo. 時の値近くまで回復し, しかも 210°C と 300°C で回復した H_{ua} の値がほぼ同じで, また FeMn の残膜厚が薄い FeMn 75Å のサンプルの方が回復が大きくなっている.

H_{ua} 変化の原因として, 熱処理により FeMn の組成や結晶性

が変わったことも考えられる。しかし後述するようにこれらは変化していない。一方、210℃という温度はバルクのFeMnのネール温度(約220℃)⁷⁾にほぼ等しい。そしてFig.1で熱処理温度に対する H_{ua} 減少の様子が210℃を境に変化し、Fig.3で210℃以上の熱処理で H_{ua} が回復しほぼ飽和するという事実から、むしろ H_{ua} の変化はFeMnスピンの揺らぎに関係していると考えるのが妥当である。分子磁場近似からも、NiFe-FeMn界面のFeMnスピンの揺らぎ平均 $\langle S(\text{FeMn}) \rangle$ と H_{ua} は比例関係にあり、($H_{ua} \propto J \times \langle S(\text{FeMn}) \rangle$, J : NiFe-FeMn 間交換積分)⁷⁾、FeMnスピンの揺らぎが大きくなると H_{ua} が減少することが予想できる。

そこで、Fig.1, Fig.2の(a)から(e)までの H_{ua} 変化を、Fig.

3に従って次のように考察できる。

(a) FeMnは、常に下地の表面(最初は印加磁場によって磁化がピンニングしたNiFe表面、その後はその前に付着したFeMnの表面)と交換結合しながら膜成長する。そこでFeMnスピンは、印加磁場方向に逐次反平行に揃いながら形成される。このためas depo. 膜のFeMnスピンは印加磁場方向によく揃い、その結果その方向の H_{ua} は大きい。

(b) 熱処理されるとFeMnスピンは擾乱する。ネール温度以上では、FeMnスピンは完全にランダムとなる。

(c) 温度を下げて磁場中冷却すると、ネール温度以下でFeMnのスピンは互いに揃い出す。このときFeMnスピンはNiFe界面から交換結合を受けるが、表面付近ではNiFe界面

Fig. 1 Dependence of exchange-coupling field H_{ua} and coercivity H_c on the annealing temperature in Ta/NiFe/FeMn/Ta films.

Fig. 2 Relationships between exchange-coupling field H_{ua} and the annealing temperature in Ta/NiFe/FeMn/Ta films with 75 Å and 125 Å FeMn layers thinned by ion-milling. The films were annealed at 300°C before this ion-milling.

	(a) As depo.	(b) Neel temp. or higher	(c) After annealing	(d) Ion-milling	(e) After annealing
FeMn Spin	Ordered <div> </div>	Disordered <div> </div>	Disordered <div> </div>	Disordered <div> </div>	Ordered <div> </div>
	<div> Field </div>	<div> Field </div>	<div> Field </div>	<div> Field </div>	<div> Field </div>
H_{ua}	Large	Zero	Small	Small	Large

Fig. 3 Explanation of the change in exchange-coupling field H_{ua} caused by annealing.

から遠いため NiFe 界面との交換結合が弱い。そこで表面付近のスピンは印加磁場の方向に必ずしも揃わないと思われる。界面付近の FeMn スピンは、この表面付近とも交換結合するためその影響を受け、磁場中冷却後に印加磁場方向にそのスピンの揃う度合いは、逐次スピンの印加磁場方向に揃って成長した as depo. 膜の場合よりも低いことが予想される。このため H_{ua} が減少すると思われる。

Fig. 4 Dependence of exchange-coupling field H_{ua} and coercivity H_c on the annealing temperature in NiFe/FeMn/Ta films without Ta underlayers.

(d) FeMn 表面を除去しても NiFe 界面付近の FeMn スピンはイオンミリング前の不揃いのままとして残っている。よって H_{ua} は小さいままで (c) と同じ値を示す。

(e) 再度熱処理し磁場中冷却すると、FeMn スピンは、再び揃い出す。ところが、界面から遠い FeMn 部分が除去されているため、今度は NiFe 界面だけからの影響を受け、印加磁場方向に揃い H_{ua} は回復すると考えられる。

このように FeMn スピンの熱揺らぎで H_{ua} 変化を考えると、210°C 以上の熱処理で H_{ua} が一定値に安定したこと、FeMn 膜厚が薄いほど H_{ua} の回復が大きいことも説明できる。

一方、Fig. 4 は、Ta 下地層が無い NiFe/FeMn/Ta 膜の H_{ua} の熱処理温度依存である。熱処理温度 200°C 付近までは、 H_{ua} は、Fig. 1 の Ta/NiFe/FeMn/Ta 膜と全く同じ減少のカーブを示している。この場合も、熱処理により FeMn スピンが熱揺らぎ、 H_{ua} が減少したものと考えられる。しかし 200°C 以上で熱処理を行うと、今度は、 H_{ua} は温度とともに増加する傾向を示している。 H_c を見ると極端に増大しており、膜の磁気特性自体が変化している可能性がある。

そこで、as depo. 膜、210°C の熱処理膜、300°C の熱処理膜のそれぞれについて、XPS により組成の深さ方向の分析した。結果を Fig. 5 に示す。210°C で熱処理した膜は、as depo. 膜とほとんど変わらない XPS 深さプロファイルを示しているが、300°C で熱処理した膜では、NiFe-FeMn 界面で拡散が生じ、NiFeMn の三元合金層が形成されている。文献 5 に、NiFeMn

Fig. 5 Comparison of XPS depth-profiles for as-deposited NiFe/FeMn/Ta films and NiFe/FeMn/Ta films annealed at 210°C and 300°C.

Fig. 6 Dependence of exchange-coupling field H_{ua} on the measurement temperature in NiFe/FeMn/Ta films without Ta underlayers.

合金層はFeMnよりも反強磁性が強いとの報告がある。文献5と同様、このNiFeMn層の形成が、300°Cで熱処理した膜の H_{ua} 増大の原因と思われる。しかしながら文献5のNiFe/FeMn膜では、NiFeMn層の形成によりブロック温度は300°Cを超える高い値を示していた。ところが、本実験の膜では、Fig. 6に H_{ua} の雰囲気温度依存を示すように、as depo.膜と300°C熱処理膜でブロック温度は180°Cと全く同じ結果となった。NiFeMn層が形成されているにもかかわらず、300°C熱処理膜のブロック温度が低い理由はよく分からない。NiFeMn拡散層の組成の違いが影響している可能性もある。なおFig. 5のXPSプロファイルでいずれの熱処理温度でもNiFe膜内にMnが観測されているが、これはFeのオージェ電子によるノイズであり、MnのXPSピークではないことを両者のエネルギーの違いから確認している。また、NiFeとFeMnの界面で拡散しやすい原因は、Ta下地層がない場合、NiFeとFeMnの結晶性が悪く粒界拡散が起きやすくなったためと考えられる。Fig. 7にX線回折パターンをTa下地層の有りで比較して示す。Ta下地層が無い膜では、結晶配向性が悪く、結晶粒が小さくなって粒界拡散が起きやすくなっているのが分かる。

4. ま と め

Ta/NiFe/FeMn/Ta膜の H_{ua} と熱処理温度の関係を調査し、以下のことが明らかとなった。

(1) H_{ua} は、90°Cと比較的低い温度から低下し始め、FeMnのネール温度付近の210°Cまでの範囲で単調に減少する。しかし210°C以上の熱処理を行っても H_{ua} は変化せず一定となる。

Fig. 7 Comparison of the X-ray diffraction patterns for Ta/NiFe/FeMn/Ta and NiFe/FeMn/Ta films.

(2) 熱処理によって H_{ua} が低下していた膜のFeMn表面をイオンミリングし、FeMn層を75Åあるいは125Åまで薄膜化した。イオンミリング直後の H_{ua} に変化はないが、210°C以上で再度の熱処理すると H_{ua} は増加する。この H_{ua} の回復の度合いは、FeMn層が薄い75Åの膜の方が大きい。

(3) (1), (2)における H_{ua} 変化のメカニズムは、FeMnスピンの揺らぎによって説明できる。

また、Ta下地層が無いNiFe/FeMn/Ta膜も、200°C付近の熱処理温度まではTa/NiFe/FeMn/Ta膜と同じ H_{ua} の減少のカーブを示す。しかし210°C以上で熱処理すると、減少していた H_{ua} は逆に増加する傾向を示す。XPS分析の結果、拡散によりNiFe-FeMn界面にNiFeMn層が形成されていることが分かった。これが H_{ua} 増大の原因と思われる。

文 献

- 1) R. D. Hempstead, S. Kronggelb, and D. A. Thompson: *IEEE Trans. Magn.*, **14**, 521 (1978).
- 2) C. Tsang: *IEEE Tans. Magn.*, **25**, 3692, (1989).
- 3) H. Kanai, J. Kane, K. Aoshima, M. Kanamine, and Y. Uehara: *IEEE Trans. Magn.*, **31**, 2612 (1995).
- 4) M. M. Chen, C. Tsang, and N. Gharsallah: *IEEE Trans. Magn.*, **29**, 4077 (1993).
- 5) M. F. Toney, C. Tsang, and J. K. Howard: *J. Appl. Phys.*, **15**, 6227 (1991).
- 6) 永原聖万, 石綿延行, 竹森一広, 橋本匡史, 大橋啓之, 山田一彦: 第17回日本応用磁気学会学術講演概要集, 船橋市, 1993, p. 262 (日本応用磁気学会, 東京, 1993).
- 7) C. Tsang and K. Lee: *J. Appl. Phys.*, **53**, 2605 (1982).

1995年10月16日受理, 1996年1月12日採録