Co/Cu 系多層膜の積層回数とその MR 特性及び磁気特性

Dependence of the Number of Bilayers (Co/Cu) on the Magnetoresistance and Magnetic Characteristics of (Co/Cu) Multilayer Systems

田ノ上 修二

住友金属工業 (株)、尼崎市扶桑町 1-8 (☎ 660-0891)

S. Tanoue

Sumitomo Metal Industries, Ltd., 1-8 Fuso-cho, Amagasaki, 660-0891

(1998年10月15日受理、1999年1月21日採録)

The magnetoresistance and magnetic characteristics of $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ and $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ multilayer systems were investigated in terms of the number of bilayers (Co/Cu). In a $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ system, no interaction was found among Co layers for $N \leq 3$, but weak antiferromagnetic interaction emerged for $N = 4$ and increased for $N \geq 5$. In a $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ system, a uniaxial exchange-coupling field was found for $N \leq 2$, spin-valve like interaction emerged for $N = 3, 4$ and antiferromagnetic interaction was dominant for $N \geq 5$. Antiferromagnetic coupling energies were estimated from magnetization loops and were found to increase as the number of bilayers N increased, reaching 0.0078 erg/cm^2 for $N = 10$. These values were independent of the presence of an IrMn layer, and this fact proved that owing to weak interaction between the top Co layer and the inner Co layer, no antiferromagnetic domain reorientation occurred when the top Co layer was unidirectionally pinned by IrMn.

Key Words: magnetoresistance, spin-valve, multilayer, antiferromagnetic coupling, saturation field, exchange-coupling

1. はじめに

人工格子における巨大磁気抵抗効果(GMR)の研究は、その高MR特性から注目をあびてきたが、磁気ヘッドへの適用には、その高い飽和磁場の減少が必要であり、比較的飽和磁場が小さい $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ 、 NiFe 系とCuとの多層膜が有望とされている。更にこのような系においても、反強磁性的結合が起こる第1ピークでは数kOeを越えるため、第2ピークが有望と考えられる。またその積層回数も重要であり、従来のような積層回数の多い30-50層では膜厚が1000 Å程度となり、現状のMRセンサーの2倍の厚みとなり、磁気ヘッドとしては適用が困難となる。本報告では、 (Co/Cu) 系の第2ピークの膜厚を選択し、積層回数が10回以下でのMR特性や磁性層間の相互作用について積層回数との関係について検討した。また反強磁性的な結合が各磁性層のドメインを通じて行われるならば、一方向異方性を持つIrMnを最上部のCo層に積層した場合、その相互作用を通じて、最上部Co層のドメインが消失し、その下のCo層間の反強磁性的結合もそれに対応して再配列すると考え、MR挙動や磁化挙動の変化について検討を行った。

2. 実験方法

成膜はロードロック方式のDCマグネトロンスパッタ装置を用いて、2"ガラス基板に行った。装置の背圧は $3 \times 10^{-8} \text{ Torr}$ 以下であり、成膜前にチャンバー内でガラス基板のスパッタ

エッチを行った。Coの成膜条件は50 W, 2 mTorr, 50 Oeの交番磁場中で、Cuは25 W, 2 mTorr, 無磁場, IrMnは50 W, 8 mTorr, 一方向磁場50 Oeで成膜を行った。なおIrMnのターゲット組成は $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}(\text{at}\%)$ であった。成膜速度はそれぞれ0.64 Å/s, 0.64 Å/s, 1.0 Å/sであった。Co膜厚, Cu膜厚は、 $(\text{Co/Cu})_{20}$ でのMR比が最大となる第2ピークの最適化を各膜厚に行い、それぞれ9.5 Å, 19.5 Åと決定した。なおこの時のMR比は25%であった。成膜は、はじめにガラス基板の上にCoを成膜し、その後Cuを成膜した。基本構成は $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ と $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ であり、積層回数 N は前者では2~10, 後者では1~10とした。最上層はCoとし、150 Å IrMnとの一方向異方性を確保した。MR特性は直流4端子法で $\pm 2000 \text{ Oe}$ 範囲で成膜印加磁場方向と平行な方向で、また一部の試料については、成膜の印加磁場方向と直角方向で測定した。磁気特性は、振動試料型磁力計(VSM)で測定した。膜構造解析には、Co管球のX線回折測定と透過型電子顕微鏡観察(TEM)を行った。

3. 実験結果及び考察

3-1. 積層構造解析

Fig. 1に $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ 多層膜X線回折のピーク強度の積層回数依存性を示す。Cu(111)のピーク強度は積層回数が増えるに従い増加しており、10層ではfcc-Co(111)のピークも認められることから、積層は最密充填の(111)面を中心にした積層と考えられる。Fig. 2には $(\text{Co/Cu})_{10}/\text{Co}$ の断面TEM観察結果を示す。積層構造に若干の凹凸が認められるが、積層構造は、崩れていないと観察される。

3-2. MR 特性

Fig. 3には $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ 系の $N=3, 4, 5$ のMR曲線を示す。 $N=3$ ではCo層間には相互作用はなく、Coの異方性磁気抵抗効果のみが観測された。 $N=4$ でCo層間には弱い相互作用が生じており、 $N=5$ で相互作用が急激に大きくなり、MRピークが2つに分離しており、反強磁性結合がCo層間に生じたことが解る。Fig. 4には積層回数 N とMR比の関係を示すが、積層回数が5以上でMR比は急激に立ち上がり、 $N=10$ でMR比は約20%であった。この時の $N=10$ の $\pm 1000 \text{ Oe}$ での磁化曲線をFig. 5に示すが、磁化曲線には反強磁性結合に対応する直線的な折れ曲がりが生じており、 -1000 Oe から $+1000 \text{ Oe}$ への磁化曲線上で -1000 Oe からこの直線が終わる部分とこの直線が始まる部分から $+1000 \text{ Oe}$ までの部分を反強磁性結合に寄与している部分とした。反強磁性結合の体積を磁化曲線から見積もる方法としては、G. Rupp等³⁾の報告にあるように残留磁化 M_r や直線の

Fig. 1 XRD peak patterns for $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ multilayers ($N = 1-10$).

Fig. 2 Cross-sectional TEM image of a $(\text{Co/Cu})_{10}/\text{Co}$ multilayer.

接線が M_s 軸を切る点などが用いられるが、今回の場合は Co/Cu の第2ピークであり、先の報告にあるように飽和磁場が大きくないので、この方法で反強磁性結合の体積を見積もった。また飽和磁場(H_s)として折れ曲がりの直線のスタートする点と M_s との交点との差を H_s と見積もった。このような見積で、反強磁性体積分率とMR比の関係を示したのがFig. 6である。反強磁性体積分率の増加とともに直線的にMR比は増加しており、最大でMR比は27%に達すると推定される。この値は我々の同膜厚構成の多層積層実験の最大値25%、また別の同構成実験⁹で得られている室温の最大値25%に近いものであり、妥当な値であると考えられる。

また積層回数 N が5以上の試料については、MR測定、磁気測定を成膜時印加磁場方向と直角方向で行ったが、MR曲線、磁化曲線とも成膜時印加磁場平行方向と差がなく、反強磁性結合には優先的な方位はなく、一様な多磁区構造を取っているものと推定される。

Fig. 7には $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ 系の $N=3, 4, 5$ のMR曲線を示す。 $N=3, 4$ ではスピンプル的な振る舞いを示すが、 $N=5$ では、 Co 層間の反強磁性の相互作用が支配的になるため、一方向異方性の寄与が小さくなる。Fig. 8に積層回数 N とMR比の関係を示すが、 $N=1, 2$ では、 IrMn に固定される磁性層とそうでない磁性層の分離が十分でなく、スピンプルの挙動を示さず、MR比は1%以下であった。MR比はスピンプルを示す $N=3$ から増大し、 $N=10$ でMR比は約19%となった。 $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ の時と

Fig. 3 MR curves for $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ multilayers ($N = 3, 4, 5$).

Fig. 4 MR ratio dependence on the number of (Co/Cu) bilayers N in $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ multilayers.

Fig. 5 Magnetization curve for $(\text{Co/Cu})_{10}/\text{Co}$ multilayers.

Fig. 6 MR ratio dependence on the antiferromagnetic volume fraction.

Fig. 8 MR ratio dependence on the number of (Co/Cu) bilayers N in $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ multilayers.

同様に磁化曲線から見積もった反強磁性体積分率とMR比の関係 ($N=3, 4$ はスピンパルプの挙動のため除いた) を示したのが Fig. 9 であり、反強磁性体積分率の増加とともに直線的に MR 比は増加しており、IrMn のシャント効果のため、 $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ の時より若干低いが、最大で MR 比は 25% に達すると推定される。Fig. 10 には $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ のピンド Co 層の交換結合磁場 H_{ex} 、保磁力 H_c と積層回数 N の関係を示す。 H_{ex} は $N=3$ 以上で約 850 Oe と一定で IrMn の直下の Co 層のみに交換結合磁場が働いていることを示している。一方 $N=1, 2$ では H_{ex} は約半分の 400 Oe 以下であり、この場合 IrMn の一方向性交換結

Fig. 7 MR curves for $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}/\text{IrMn}$ multilayers ($N = 3, 4, 5$).

Fig. 9 MR ratio dependence on the antiferromagnetic volume fraction.

Fig. 10 Hex and Hc dependence on the number of (Co/Cu) bilayers N in $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ multilayers.

合磁場は、直下のCo層ばかりでなく、Cuを通じてその下のCo層まで、影響が及んでいることがわかる。このことは前述の $N=1, 2$ でスピバルブ的挙動を示さなかったことを支持しており、Cu膜厚が19.5 Åと薄く、Co/Cuの積層回数の少ないところでは、積層膜の平滑性などの問題で磁気的分離が行われなかったと考えられる。

3-3. 反強磁性結合エネルギー

反強磁性結合エネルギーの大きさの評価のため、S. K. J. Lenczowski等⁷⁾の提案した $J = m\mu_0 H_s/4$ を用いて評価した。 m はCoの飽和磁化であり、この実験で得られた $m=1260 \text{ emu/cm}^3$ を用いた。バルクの値では $m=1422 \text{ emu/cm}^3$ であるが薄膜ではCurie温度の低下や、ミキシングのため低下し、H. Holloway等⁸⁾も実験値として 1300 emu/cm^3 を採用しているためである。 μ_0 はCoの膜厚(9.5 Å)であり、 H_s は飽和磁場である。Fig. 11に $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ 系と $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ 系の反強磁性結合エネルギー J と積層回数 N の関係を示すが、IrMnの一方方向異方性の有無に依存せず、 J は差がなく、また積層回数が多いほど J は大きくなり、 $N=10$ で 0.0078 erg/cm^2 になることが判明した。このエネル

Fig. 11 Antiferromagnetic coupling energy dependence on the number of (Co/Cu) bilayer for $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ and $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ multilayers.

ギーの値は、H. Holloway等の報告の 0.006 erg/cm^2 に近く妥当な値と考えられる。IrMnの一方方向異方性の有無に依存せず、 J に差がなかったことは以下のように解釈される。飽和磁場 H_s は $\pm 1000 \text{ Oe}$ で評価されたものであり、 $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ 系では、IrMn直下のCo層は、Fig. 10に示されているように大きなHexとHcにより、 $\pm 1000 \text{ Oe}$ の測定ループに入っていない。つまり、 $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ 系での J の評価は $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ 系の最表面Co層を除いたものの J の評価になっている。この値がほとんど等しいことは、最表面のCo層と内部のCo層との相互作用は小さく、最表面Co層の磁化をIrMnで一方方向異方性により固定しても、その下のCo層は内部Co層からの反強磁性相互作用の支配を受けていることを示しており、反強磁性的なドメインの再配列は生じていないと解釈される。今後は、IrMn成膜時の磁場強度を更に弱めていくことで最表面Co層と内部Co層との反強磁性相互作用の大きさを評価していく必要がある。

4. まとめ

Co/Cu系多層膜の第2ピークの相当する膜厚構成で積層回数 N が10回以下の多層膜のMR挙動や反強磁性結合について、 $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ 系と一方方向異方性をつけた $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ 系で検討した。その結果、 (Co/Cu) 初期成長段階 ($N \leq 2$) での膜の平坦性等に課題が残るが、本実験の多層膜において以下の結論を得た。

(1) $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co}$ 系の積層回数 N とCo層間の相互作用

- $N \leq 3$ 相互作用なし
- $N=4$ 弱い反強磁性的結合
- $N \geq 5$ 反強磁性的結合

(2) $(\text{Co/Cu})_N/\text{Co/IrMn}$ 系の積層回数 N とCo層間の相互作用

- $N \leq 2$ IrMnの一方方向相互作用のみ
- $N=3, 4$ スピバルブ的相互作用
- $N \geq 5$ 反強磁性的結合

(3) 積層回数が増えるに従い、Co層間の反強磁性結合エネルギー J は増加し、反強磁性的結合の体積も増大する。

(4) 最表面Co層は内部のCo層との相互作用が小さいため、反強磁性結合エネルギー J の大きさは一方方向異方性を付与するIrMn層の有無に依存しなかった。

文献

- 1) 角田匡清, 高橋研, 宮崎照宣: 日本応用磁気学会誌, 17, 826 (1993)
- 2) Y. Saito and K. Inomata: Jpn. J. Appl. Phys., 30, L1773 (1991)
- 3) 上野昌紀, 田ノ上修二: 日本応用磁気学会誌, 19, 401 (1995)
- 4) 濱田直, 細糸信好, 小野輝男, 新庄輝也: 日本応用磁気学会誌, 22, 405 (1998)
- 5) G. Rupp and H. A. M. van den Berg: IEEE Trans. Mag., 29, 3102 (1993)
- 6) A. M. Shukh, D. H. Shin, and H. Hoffmann: J. Appl. Phys., 76, 6507 (1994)
- 7) S. K. J. Lenczowski, M. A. M. Gijs, J. B. Giesbers, R. J. M. van de Veerdonk and W. J. M. de Jonge: Phys. Rev. B 50, 9982 (1994)
- 8) H. Holloway and D. J. Kubinski: J. Appl. Phys., 83, 2705 (1998)