

磁気記録装置の記憶容量の増大には、磁気ヘッドの性能向上が必要である。本研究では、GMR 再生ヘッドにおいて磁気検出用の強磁性膜の磁化を特定方向に固定する反強磁性膜の材料探索を行い、磁化方向固定機構を検討した。高感度で耐久性に優れた再生ヘッドを実現するため反強磁性材料には、(1) 高耐食性、(2) 大きな一方向性磁気異方性エネルギー、(3) 高いブロッキング温度、(4) 高い電気抵抗、(5) 極薄膜化、(6) 適度な熱処理温度、の6条件を満たすことが要求される。本研究では、既知の反強磁性材料 CrMn 合金に添加する第3元素の系統的な探索を行い、Pt を添加した CrMnPt 反強磁性膜が上記6条件を満たすことを見出した。更に、NiFe、及び Co 強磁性膜と CrMnPt 反強磁性膜の交換結合機構を結晶構造の観点から検討し、Pt 元素添加、或いは結晶格子歪が反強磁性特性、及び積層膜における磁氣的交換結合に大きな影響を及ぼしていることを明らかにした。

1. はじめに

磁気ディスク装置は、コンピュータの主要な外部記憶装置であり、基幹製品である。情報化社会の進展に伴い、計算機の処理能力向上と大容量の情報記録に対する要求が強くなっている。特に、早い情報アクセス、転送速度、記憶容量あたりの費用が安価な磁気ディスク装置への期待が増大している。これらの要求に応えるためには、磁気ディスク装置の面記録密度を年率60-100%の割合で向上させることが必要とされる。磁気ディスク装置は、記録再生を行う磁気ヘッド、情報が記録されている磁気ディスク、磁気ヘッドの位置決め機構、情報処理を行う半導体回路等の要素技術で構成されている。記憶容量を増大させるためには、特に磁気ヘッドの性能向上が必要である。磁気ヘッドは、情報を記録する電磁誘導型の記録ヘッドと情報を再生する磁気抵抗効果型磁気ヘッドで構成されている。情報再生用の磁気ヘッドは、面記録密度の向上に対応して、異方性磁気抵抗効果型 (AMR) 磁気ヘッド、巨大磁気抵抗効果型 (GMR) 磁気ヘッド、トンネル型磁気抵抗効果型 (TMR) 磁気ヘッド、縦方向巨大磁気抵抗効果型 (CPP-GMR) 磁気ヘッドと変遷している。本研究は、AMRヘッドからGMRヘッドへの移行期のスピバルブ型GMRヘッドに関わる。

GMR効果は、1989年にドイツのGrunbergとフランスのFertによって発見された。スピバルブ型GMR膜は、強磁性体 (自由層, 下層) /非磁性層/強磁性体 (固定層) /反強磁性層 (上層) の積層膜で構成される。図1に、GMR効果の原理を示す。自由層と固定層との磁化方向が平行の場合、電気伝導を担うスピン電子は層間を比較的自由に通過することができるため電気抵抗が低い状態、反平行の場合にはスピン電子散乱確率が増大するため、電気抵抗が高い状態となる。磁気記録媒体から漏洩する磁場の影響で自由層の磁化方向が変化すると、電気抵抗が増減する現象を活用して磁気検出を行うのがGMRヘッドである。GMRヘッドでは固定層に一方向磁気異方性を付与する必要があり、反強磁性膜が活用される。GMRヘッド研究着手時、既知の材料としてNiMn, FeMn反強磁性膜が知られていた。しかしながら、これらの反強磁性膜はMnを主成分とする合金のため耐食性が悪く、実用化に至らなかった。そこで、耐食性に優れたCrMn合金を主成分とする反強磁性膜に着目し、さらに、一方向性磁気異方性を増大させるため、CrMn合金にPtを添加したCrMnPt反強磁性膜を検討することにした。スピバルブ型GMRヘッド用の反強磁性膜は、再生信号検出部に適用することから、次の6条件を同時に満たす必要がある。(1) 高耐食性、(2) 大きな結合磁界 (一方向性磁気異方性エネルギー一定数換算で 0.10 erg/cm^2 以上)、(3) 高いブロッキング温度 (250°C 以上)、(4) 高比抵抗、(5) 薄膜化 (20 nm以下)、(6) 結合磁界、若しくは一方向性磁気異方性エネルギー一定数を得るための熱処理温度が低いこと (230°C 以下)、である。そこで、本研究の第1課題として、NiFe/CrMnPt積層膜、Co/CrMnPt積層膜を用い、上述の6条件を満たすか否かの検討を行い、CrMnPt反強磁性膜のGMRヘッドへの応用の可能性を検討する。第2課題として、CrMnPt反強磁性膜と強磁性膜との交換結合特性を明らかにする。具体的には、CrMnPt反強磁性膜のPtの磁氣的な役割を検討する。また、Pt以外の添加元素MとしてCu, Rh, Pd、及びIrを取り上げ、NiFe/CrMnM積層膜の検討、更にはCo/CrMnPt積層膜の一方向性磁気異方性エネルギー一定数向上機構に及ぼす熱処理の影響、Co強磁性膜上のCrMnPt反強磁性膜の格子歪の要因等について検討する。

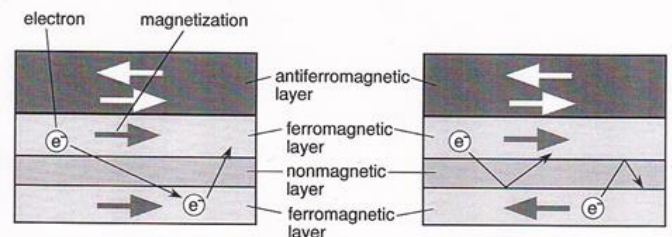


Fig. 1 Schematic illustration of GMR effect.

2. 交換相互作用と交換結合特性を示す材料系

2種類の磁性材料間の磁氣的相互作用の一種である交換磁気異方性は、バルク材料のCo-CoO系で1956年に発見された現象である[1]。薄膜材料では、1982年に強磁性材料のNiFeと反強磁性材料のFeMnからなる積層膜で一方向性磁気異方性の発現が報告[2]されている。交換磁気異方性が存在すると、強磁性膜の磁気特性へのバイアス効果が生じ、磁化曲線が一方向に移動する現象が生ずる。反強磁性材料と強磁性材料の間で生ずる交換相互作用に

における結合磁界と強磁性膜で生じる保磁力の発生原因が解明されている。すなわち、結合磁界は、反強磁性結晶粒の局所結晶磁気異方性エネルギーが強磁性/反強磁性界面での局所一方向性磁気異方性エネルギーよりも大きい局所交換結合領域で出現し、一方の保磁力は、強磁性/反強磁性界面での局所一方向性磁気異方性エネルギーが反強磁性結晶粒の局所反強磁性結晶磁気異方性エネルギーよりも大きい局所交換結合領域で出現する[3]。

強磁性/反強磁性の交換結合現象を説明するモデルとして、Meiklejohn, Malozemoff, Mauri, 及び Koon の 4 種類のモデルが提唱されている。本研究で扱う Co/CrMnPt 積層膜では Mauri モデル[4]が妥当であると考え、このモデルに従って検討を進める。Mauri のモデルは、強磁性/反強磁性界面での反強磁性膜側のスピン配列が強磁性的スピン配列状態にあるとし、界面で強磁性的スピン配列をしている反強磁性スピンの強磁性スピンの一方向性磁気異方性を付与するモデルである。また、反強磁性膜の面内方向に磁壁を取り入れたモデルである。一方向性磁気異方性エネルギー一定数は、反強磁性膜の面内方向に取り入れた磁壁固定に必要なエネルギーの程度とされる[4]。

3. 実験方法

交換結合積層膜の製膜には、高周波マグネトロンスパッタリング装置を用いた。強磁性/CrMnPt 反強磁性積層膜の強磁性膜への一方向性磁気異方性を付与するための熱処理には、真空中磁場中熱処理装置を用いた。強磁性/CrMnPt 反強磁性積層膜の結合磁界、磁化容易軸と困難軸の保磁力、異方性磁界の計測には、M-Hループトレーサー、及び振動試料型磁力計を用いた。ブロッキング温度の計測には、マイクロカー効果装置を用いた。強磁性/CrMnPt 反強磁性膜の CrMnPt 反強磁性膜の結晶構造を、X線回折装置を用いた $\omega-2\theta$ スキャン、薄膜 X線回折装置を用いた 2θ スキャン、及び 3 軸 X線回折装置を用いた非対称 2θ スキャンの計測を行い検討した。

4. CrMnPt 反強磁性膜と NiFe 強磁性膜の交換結合特性

NiFe/CrMnPt積層膜について、前述した6条件に対する検討を行い、CrMnPt反強磁性膜のGMRヘッドへの応用の可能性を検討した。(1) CrMnPt反強磁性膜は、酸性側、アルカリ性側双方共に既知の反強磁性膜であるFeMn, NiO反強磁性膜と比べ腐食速度が遅く耐食性に優れる、(2) NiFe/CrMnPt積層膜の結合磁界はNiFe強磁性膜厚が40 nmのとき約22 Oeであり、一方向性磁気異方性エネルギー一定数に換算すると約0.07 erg/cm²で、要求特性(0.10 erg/cm²以上)に未達である、(3) NiFe/CrMnPt積層膜のブロッキング温度は約380°Cで、高ブロッキング温度を有する、(4) NiFe強磁性膜上のCrMnPt反強磁性膜の比抵抗は約350 $\mu\Omega\text{cm}$ で、高比抵抗を有する、(5) 安定で良好な交換結合特性を得るためには、CrMnPt反強磁性膜厚は約30 nm以上必要で、要求特性(20 nm以下)に未達である、(6) (2) の結合磁界は、室温で製膜したNiFe/CrMnPt積層膜試料の結果であることから、結合磁界を得るための熱処理温度が低いこと(230°C以下)を満たす、ことが分かった。以上の検討から、NiFe強磁性膜上のCrMnPt反強磁性膜は、6条件の中で(1)の高耐食性、(3)の高ブロッキング温度(250°C以上)、(4)の高比抵抗、(6)の結合磁界を得るための熱処理温度が低いこと(230°C以下)の4条件を満たすが、(2)の大きな一方向性磁気異方性エネルギー一定数換算で0.10 erg/cm²以上、(5)の20 nm以下への薄膜化については、要求特性に未達であることが分かった。したがって、(2)の一方向性磁気異方性エネルギー一定数を0.10 erg/cm²以上まで大きくすること、(5)の膜厚を20 nm以下に薄くすること、の2技術課題が未解決課題として残された。

図2に、結合磁界約22 Oeが得られているNi₈₁Fe₁₉(40 nm)/CrMnPt₈(50 nm)(組成: at. %)積層膜の磁化曲線、図3に、Ni₈₁Fe₁₉(20 nm)/CrMnPt₈(100 nm)(組成: at. %)積層膜において 2θ スキャンを実施し計測されたX線回折図形を示す。図2から、交換結合の結果、磁化容易軸方向の磁化曲線が負の磁場方向に移動していることが分かる。一方、図3より、NiFe膜上のCrMnPt膜は反強磁性 α 相を有していることが分かる。したがって、NiFe(40 nm)/CrMnPt(50 nm)積層膜で比較的大きな結合磁界約22 Oeが得られる理由は、NiFe強磁性膜上でCrMnPt反強磁性膜が反強磁性 α 相を示すためと考えられる。

また、Ni₈₁Fe₁₉(40 nm)/CrMnPt_{1.4-15.1}(50 nm)(組成: at. %)積層膜のブロッキング温度とCrMnPt反強磁性膜のMn最隣接原子間距離との関係を、局在型反強磁性体におけるMn原子間相互作用定数とMn原子間距離との関係

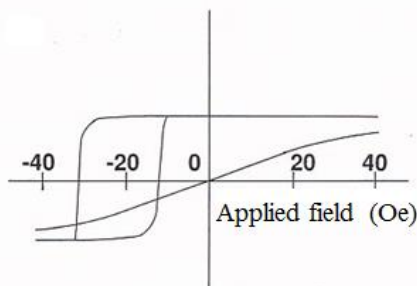


Fig. 2 Magnetization curve of the exchange-coupled Ni₈₁Fe₁₉(40 nm)/CrMnPt₈(50 nm) laminated films.

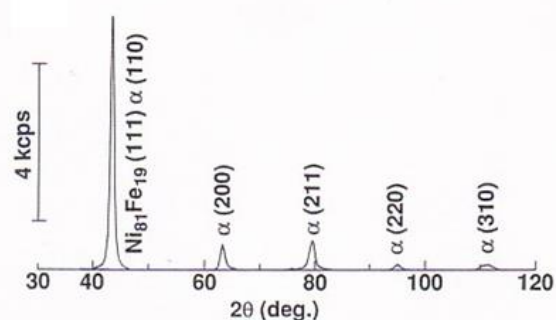


Fig. 3 XRD profile of 2θ scan measured by using thin film XRD (TF-XRD) apparatus for the exchange-coupled Ni₈₁Fe₁₉(20 nm)/CrMnPt₈(100 nm) laminated films.

[5]を同一の図に示し、両者の関係を比較検討した。これら二つの関係は、概ね合致していることが分かった。このことから、CrMnPt 反強磁性膜は、局在型反強磁性体[5]であると考察された。また、Pt は Mn 原子の磁気モーメントを局在化させ、CrMn 合金の結晶磁気異方性エネルギー一定数を大きくする作用を有していると考えられた。更には、高いブロッキング温度を得るため効果的な Pt 濃度は約 5~8 at. %であるが、NiFe/CrMnPt₅₋₈ 積層膜で高いブロッキング温度が得られる理由は、この濃度に対応する CrMnPt₅₋₈ 反強磁性膜の Mn 最隣接原子間距離が Mn 原子間距離が負の最大値を示す Mn 原子間距離になっているためと考察された。

5. Pt 以外の元素 (M) を用いた CrMnM 反強磁性膜と NiFe 強磁性膜の交換結合特性

Pt 以外の Cu, Rh, Pd, Ag, Ir, 及び Au を取り上げ、未解決課題として残っており、前述した条件 (2) の一方向性磁気異方性エネルギー一定数が 0.10 erg/cm² 以上を満たすか否かの検討を行った。大きい結合磁界を得るため効果的な添加元素 M は Pd, 効果的な濃度は約 5 at.% で、Ni₈₁Fe₁₉/CrMnPd₅ (組成: at. %) 積層膜の結合磁界は NiFe 膜厚 40 nm のとき約 28 Oe であることが分かった。この結合磁界を一方向性磁気異方性エネルギー一定数に換算すると約 0.09 erg/cm² で、(2) の一方向性磁気異方性エネルギー一定数を 0.10 erg/cm² 以上まで大きくすることの技術課題が未解決課題として残された。また、前記と同様の考察を行うことにより、Pd, Rh も Mn 原子の磁気モーメントを局在化させ、CrMn 合金の結晶磁気異方性エネルギー一定数を大きくする作用を有すると考察された。

6. CrMnPt 反強磁性膜と Co 強磁性膜との交換結合特性

NiFe/CrMnPt 積層膜を Co/CrMnPt 積層膜に変更し、230°C で 3 h の熱処理を行った積層膜について、前述した 6 条件に対する検討を行い、CrMnPt 反強磁性膜の GMR ヘッドへの応用の可能性を検討した。(1) CrMnPt 反強磁性膜の耐食性は、既述のとおり優れる、(2) Co/CrMnPt 積層膜の一方向性磁気異方性エネルギー一定数は約 0.163 erg/cm² である。この値は、製膜直後の場合の約 2 倍であり、既述の NiFe/CrMnPt 積層膜と比較しても約 2 倍である。また、既述の NiFe/CrMnPd 積層膜を以ってしても達成できなかった値で、要求特性 (0.10 erg/cm²) を大きく凌駕する値である、(3) Co/CrMnPt 積層膜のブロッキング温度は約 330°C で、高ブロッキング温度を有する、(4) Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜の比抵抗は、約 330 μΩ cm で、高比抵抗を有する、(5) 安定で良好な交換結合特性を得るための CrMnPt 反強磁性膜厚は約 20 nm である。この値は、既述の NiFe 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜で達成できなかった値で、要求特性 (20 nm 以下) を満たす、(6) (2) の一方向性磁気異方性エネルギー一定数は 230°C で 3 h の熱処理を行った Co/CrMnPt 積層膜試料の結果であることから、熱処理温度が低いこと (230°C 以下) を満たす、ことが分かった。以上の検討から、Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜は、スピンバルブ型 GMR ヘッドの反強磁性膜として採用するための 6 条件すべてを満たすことが分かった。

図 4 に、Co/CrMnPt 積層膜を含む Ta (5 nm)/(Ni₈₁Fe₁₉ (5 nm)/Co (1 nm))/Cu (2.5 nm)/Co (3 nm)/CrMnPt₉ (30 nm)/Ta (5 nm) (組成: at. %) 多層膜の磁気抵抗変化曲線を示す。固定層 (上側の Co (3 nm) 層に対応) の一方性の磁化の動きを反映している曲線部が正の磁場方向に移動している。この曲線部の移動量から Co/CrMnPt 積層膜の結合磁界を求め、その結合磁界を一方向性磁気異方性エネルギー一定数に換算して検討を行った。同図に示すように、230°C で 3 h の熱処理を行った Co/CrMnPt 積層膜の一方向性磁気異方性エネルギーは約 0.163 erg/cm² であり、製膜直後の約 0.082 erg/cm² と比べ、約 2 倍に向上していることが分かる。図 5 は、230°C で 3 h の熱処理後の Co/CrMnPt 積層膜を含む Ta (5 nm)/Co (10 nm)/CrMnPt₉ (40 nm)/Ta (5 nm) (組成: at. %) 多層膜について、ω-2θ スキャン、非対称 2θ スキャンの計測を行って示された X 線回折図形である。CrMnPt 反強磁性膜の (110) ピーク、(101) ピークの回折角度は、相対的に高角度側、低角度側にある。この結果は、Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜においては立方対称性が破れていることを意味する。ここで、磁性体では、立方対称性が破れると磁気異方性エネルギーが増大することに着目する [6]。したがって、Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜では、立方対称性が破れることにより、磁気異方性エネルギーが増大する。ここで、磁気異方性エネルギーが結晶の対称性を反映している場合、結晶磁気異方性エネルギーに対応する [6]。したがって、230°C で 3 h の熱処理後の Co/CrMnPt 積層膜において大きい一方向性磁気異方性エネルギー一定数約 0.163 erg/cm² を示す理由は、CrMnPt の立方対称性が破れ、

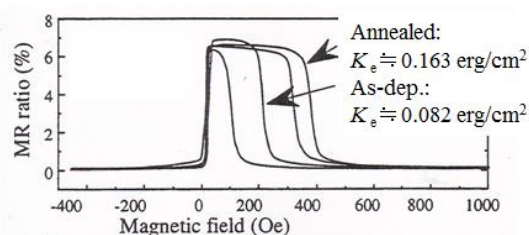


Fig. 4 Magnetoresistive (MR) curve for the Ta(5 nm)/Ni₈₁Fe₁₉(5 nm)/Co(1 nm)/Cu(2.5 nm)/Co(3 nm)/CrMnPt₉(30 nm)/Ta(5 nm)-GMR multilayered films.

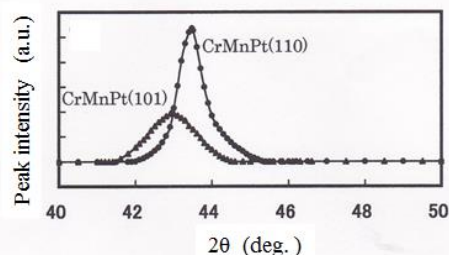


Fig. 5 XRD profiles of ω-2θ scan using XRD apparatus and asymmetrical 2θ scan using 3-axes XRD apparatus while setting ω and χ axes at 0 deg. and about 60 deg. for the Ta(5 nm)/Co(10 nm)/CrMnPt₉(40 nm)/Ta(5 nm) multilayered films annealed at 230 C for 3 h.

このことにより CrMnPt 反強磁性膜の結晶磁気異方性エネルギーが増大するためと考察される。また、Co 強磁性膜上で CrMnPt 反強磁性膜が約 20 nm 以下まで薄くできた理由は、結合磁界、及び保磁力の出現条件[3]を詳細検討することにより、CrMnPt 反強磁性膜の結晶磁気異方性エネルギー一定数が大きくなるためと考察された。

7. Co/CrMnPt 積層膜の一方向性磁気異方性エネルギー一定数向上機構と CrMnPt 反強磁性膜の格子歪の要因

前章で基礎検討課題として浮上した、Co/CrMnPt 積層膜の一方向性磁気異方性エネルギー一定数向上機構に及びす熱処理の影響、及び Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜の格子歪の要因について検討した。

(式 1) に、Co/CrMnPt 積層膜は Mauri のモデル[4]に従うが、その一方向性磁気異方性エネルギー一定数 (K_e)、Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜の結晶磁気異方性エネルギー一定数 (K_{AF})、格子歪 ($\Delta a_0/a_0$) の関係を示す。

$$K_e = 2\sqrt{A_{AF} K_{AF}} = 2\sqrt{A_{AF} \frac{\zeta \times \frac{\Delta a_0}{a_0}}{V_{AF}}} \tag{式 1}$$

A_{AF} は反強磁性結晶粒の交換ステフィネス定数、 ζ は定数、 V_{AF} は反強磁性結晶粒の体積である。(式 1) から、熱処理に伴い Co/CrMnPt 積層膜の一方向性磁気異方性エネルギー一定数が大きくなる理由は、Co 強磁性膜上で CrMnPt 反強磁性膜の格子歪が増大し、このことにより CrMnPt 反強磁性膜の結晶磁気異方性エネルギー一定数が大きくなるためであることが分かる。

図 6 に、Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜の磁気構造を示す。CrMnPt 反強磁性体は局在型反強磁性体[5]であることの考察結果を得ていること、Co/CrMnPt 積層膜は Mauri のモデルに従う[7]とされていることから膜面内方向にある CrMnPt(110)面内では強磁性的スピン配列、CrMnPt(110)面間では反強磁性的スピン配列を有すると考えられる。このような磁気構造の場合、CrMnPt(110)面間にはクローン引力起因の格子歪である交換歪[8]が働くと考えられる。したがって、Co 強磁性膜上の CrMnPt 反強磁性膜の格子歪の要因は CrMnPt(110)面間に働く交換歪[8]にあると考えられる。

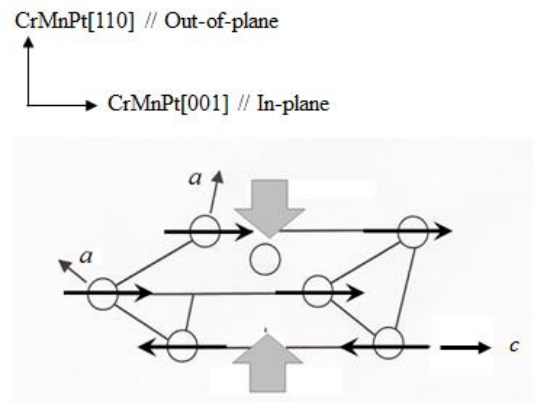


Fig. 6 Magnetic structure of CrMnPt antiferromagnetic film on Co ferromagnetic structure.

8. まとめ

本研究では、CrMnPt反強磁性膜をスピンバルブ型GMRヘッドに活用することを目的に、前述の6条件を満たすCrMnPt反強磁性膜の実現可能性を検討すると共にCrMnPt反強磁性膜と強磁性膜との交換結合特性を検討した。結果を以下に要約する。(a) 前述の6条件すべてを満たす既知の材料には無い新しいCrMnPt反強磁性膜を見出した。(b) Pt, Pd, 及びRhは、Mn原子の磁気モーメントを局在化させると共にCrMn合金の結晶磁気異方性エネルギー一定数を大きくする作用を有すると考察された。(c) NiFe/CrMnPt積層膜の交換結合特性とCrMnPt反強磁性膜のMn最隣接原子間距離との間には密接な関連性がある。(d) 熱処理に伴いCo/CrMnPt積層膜の一方向性磁気異方性エネルギー一定数が大きくなる理由は、Co強磁性膜上でCrMnPt反強磁性膜の格子歪が増大し、このことによりCrMnPt反強磁性膜の結晶磁気異方性エネルギー一定数が大きくなるためと考察された。(e) Co強磁性膜上でCrMnPt反強磁性膜に発生している格子歪の要因は、交換歪にあると考察された。

本研究を通して見出されたCrMnPt反強磁性膜は面記録密度3 Gb/in²の磁気ディスク装置の再生用GMRヘッドに採用され、磁気記録装置の高密度化に貢献した。

参考文献

- [1] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean : *Phys. Rev.* **102**, p.1413 (1956).
- [2] C. Tsang and K. Lee : *J. Appl. Phys.* **53**, p.2605 (1982).
- [3] T. Lin, C. Tsang, R. E. Fontana, and J. K. Howard : *IEEE Trans. Magn.* **31**, p.2585 (1995).
- [4] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay : *J. Appl. Phys.* **62**, p.3047 (1987).
- [5] 遠藤 康夫, 石川 義和 : 固体物理, **5**, p.316 (1970).
- [6] 近角 聡信 : 強磁性体の物理 (下), p.1 (物理学選書18, 裳華房, 1984) .
- [7] H. Xi and R. H. White : *J. Appl. Phys.* **87**, p.410 (2000).
- [8] 西山 善次 : マルテンサイト変態基本編, p.84 (丸善, 1971) .

研究業績

有査読学術論文25件 (筆頭21件, 共著4件)
国際会議発表5件 (筆頭5件)