Mn-Ir/Co-Fe 積層膜における交換結合磁界と強磁性層磁区サイズ との相関

Correlation between the exchange bias field and domain size of ferromagnetic layer in Mn-Ir/Co-Fe bilayers

角田匡清^a,高橋宏和^a,福本恵紀^b,新井邦明^c,中村哲也^b,木下豊彦^{b,d} M. Tsunoda^a, H. Takahashi^a, K. Fukumoto^b, K. Arai^c, T. Nakamura^b, T. Kinoshita^{b,d}

^a 東北大学,^b高輝度光科学研究センター,^c東京大学,^dCREST ^aTohoku University,^bJASRI,^cThe University of Tokyo,^dCREST

強磁性/反強磁性積層膜の交換磁気異方性の大きさと磁区構造との対応関係を明らかとすることを 目的として、XMCD-PEEMの手法を用いて Co-L₃端で Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の強磁性層磁区観察を行っ た。As-depo、ならびに無磁界および回転磁界中で熱処理した3種類の積層膜について観察を行った 結果、交換結合磁界の大きさと、強磁性層磁区の大きさとの間に正の相関を見出した。

In order to clarify the correlation between the exchange bias strength and magnetic domain structure in ferromagnetic / antiferromagnetic bilayers, ferromagnetic domain structure was observed at Co- L_3 edge for Mn-Ir / Co-Fe bilayers with using XMCD-PEEM technique. From the observation for three different samples, as-deposited and thermally annealed with/without applying rotating magnetic field, we found a positive correlation between the exchange bias field and the ferromagnetic domain size.

キーワード:次世代磁気記録、スピンバルブ、MRAM、交換磁気異方性、X線磁気円二色性、PEEM

1. 研究背景と目的

強磁性/反強磁性積層膜(以下交換結合膜)で観 測される交換磁気異方性は、磁気ランダムアクセス メモリ (MRAM) や超高密度ハードディスク (HDD) 用スピンバルブヘッド等に既に実用化されている他、 近年では、超高密度垂直磁気記録媒体の裏打ち軟磁 性膜、マイクロ波帯用薄膜磁気デバイスなど、これ までにない広い応用分野での検討がなされている。 一方で、およそ半世紀前の交換磁気異方性の発見以 来、その物理の理解と特性開発が多くの研究者によ って行なわれてきたものの、現在に至るまで本事象 の統一的解釈は得られていない。例えば、磁界中熱 処理・冷却のプロセスを種々変化させた場合に積層 膜の交換磁気異方性の方向や大きさが変化する現象 は良く知られるが、提唱されているメカニズム[1-2] に対して実験的確証は十分に得られてはいない。強 磁性体の磁化過程が、その磁区構造と不可分の関係 にあることは良く知られているが、交換結合膜にお ける磁区構造、特に反強磁性磁区に関する知見は、 NiO や LaFeO₃ などを反強磁性層に用いた試料での 報告例[3-4]の他に数少なく、実用材料系での研究が 応用上重要である。また、MRAM やHDD ヘッドに おいてはデバイスサイズが近年 100 nm を下回るた め、交換結合膜の磁区のサイズや役割に関する議論 が近い将来のデバイス特性を左右するといっても過

言ではない。そこで本研究では、Mn-Ir/Co-Fe 交換結 合膜の磁区構造と交換磁気異方性との相関の解明を 目的に、X線光電子顕微分光の手法による交換結合 膜の強磁性層磁区観察を行った。

2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上に作製した Subst./Ta(4)/Ru (5)/Mn₇₆Ir₂₄(10)/Co₇₀Fe₃₀(2)/Ru(0.5)/Ta(0.5 nm)の構造 の積層膜について、BL25SU に設置されている光電 子顕微鏡 (PEEM)を用いて Co-L₃ 吸収端における 磁気円二色性 (XMCD) により磁区構造を観察した。 観察時の印加磁界は 0 である。①熱処理なし (as-depo)の試料を含め、熱処理方法の異なる 3つ の積層膜試料について観察を行った。高真空中で1 時間 280℃の加熱処理を行った後、②無磁場中 (ZFC)、 もしくは③回転磁界 (3 kOe)中 (RFC)で室温まで 冷却した試料を用いた。

3. 実験結果と考察

Fig.1に、beamtimeに先立ってVSMにより測定した各熱処理(as-depo, ZFC, RFC)試料の磁化曲線を示す。比較のために、直流磁界(3kOe)中で熱処理・ 冷却を行った試料(DCFC)についても合わせて示した。先ず、as-depo試料に着目する。磁化曲線の形状は測定磁場方向を変えて計測した場合にも殆んど 変化せず、同試料の磁気特性は膜面内で等方的であった。これは、成膜時に磁界を印加せず、基板を自転させながら堆積を行ったことに因る。同磁化曲線の残留磁化がほぼ0であることから、無磁場下で強磁性層は多磁区構造を成していることが示唆される。本試料に正もしくは負の磁界を印加・掃引することで磁化曲線はヒステリシスを示し、各磁界印加方向に対してシフト磁界(Hex)を生じている。

次にZFC 試料に関して見る。シフト磁界の大きさ を除き、as-depo 試料と同様の磁化曲線が観測されて いることが判る。一方で、RFC 試料ならびに DCFC 試料の磁化曲線は前二者と大きく異なり、非0の残 留磁化が存在する単一の磁化過程となっている。 DCFC 試料では全強磁性層に相当する磁化に大きな シフト磁界が発生している一方で、RFC 試料ではシ フト磁界は0 である。以上のことから、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜試料の交換磁気異方性の大きさは、熱処理条 件に大きく依存することが明らかとなった。



Fig. 1 Magnetization hysteresis loops of $Mn_{76}Ir_{24}$ (10 nm) / $Co_{70}Fe_{30}$ (2 nm) bilayers, treated with various thermal annealing process.

Fig. 2には、XMCD-PEEMで観察したas-depo, ZFC, RFC 各試料の強磁性層磁区像を示す。先ず、as-depo 試料について見る。視野全面に亘って白〜灰色〜黒 のコントラストが観察され、強磁性層磁化が数十 nm~300 nm程度の大きさの磁区に分割された多磁区 構造を成していることが判る。別途、X線の入射方 向を試料膜面内で相対的に変化させて行った観察か ら、Fig. 2 で見られた各磁区の磁化ベクトルの方向 は、膜面内で等方的に分布していることが判った。 ZFC 試料ならびに RFC 試料についても同様の多磁 区構造が認められた。しかしながら、その強磁性層 磁区の大きさは、3試料によって異なり、RFC 試料 <as-depo 試料<ZFC 試料の順に大きくなっている ことが判った。この磁区の大きさの順序は、Fig.1 に 示した磁化曲線のシフト磁界の大きさの順序に対応 している。DCFC 試料では、Co-L₃端での PEEM 観 察でコントラストを生じなかったため、強磁性層磁 区の大きさを決定することはできなかったが、Fig.1 の磁化曲線で角型比がほぼ1であることから、試料 全域でほぼ単磁区状態となっているものと推察され る。



Fig. 2 XMCD-PEEM images $Mn_{76}Ir_{24}$ (10 nm) / $Co_{70}Fe_{30}$ (2 nm) bilayers, treated with various thermal annealing process. Photon energy was selected at $Co-L_3$ edge.

以上のことから、Mn-Ir/Co-Fe 積層膜の交換磁気異 方性の大きさが、熱処理条件によって変化する原因 は、強磁性層磁区の大きさの変化と相関しているこ とが明らかとなった。多結晶交換結合膜に関する解 析モデル[1-2]では、強磁性層は単磁区として取り扱 われているが、本研究結果から、同取り扱いが不充 分であることが示された。

<u>4. 今後の課題</u>

XMCD-PEEM の手法により、積層界面に誘起された Mn 非補償スピンが形成する磁区構造を観察し、本研究で得られた強磁性層磁区構造との対応関係を検討する。

<u>参考文献</u>

[1] M. Tsunoda *et al.*, J. Appl. Phys., **87**, 4957 (2000).

[2] M. Tsunoda *et al.*, J. Magn. Magn. Mater., **239**, 149 (2002).

[3] H. Ohldag et al., Phys. Rev. Lett., 86, 2878 (2001).

[4] A. Scholl et al., Appl. Phys. Lett., 85, 4085 (2004).