

特集 磁気エレクトロニクスの最近の進歩

Co/Cu/Fe/Cu 異方性人工格子膜の 磁気抵抗効果と熱安定性

榮岩 哲二*・寺崎 泰弘**・松本 光功***

Magnetoresistance and Thermal Stability of Co/Cu/Fe/Cu Anisotropic Multilayers

Tetsuji HAEIWA, Yasuhiro TERASAKI, and Mitsunori MATSUMOTO

The magnetoresistance (MR) and thermal stability of Co/Cu/Fe/Cu anisotropic multilayers prepared by 3-target dc magnetron sputtering were investigated. At weak applied magnetic field, about 20 Oe, the magnetizations of successive magnetic layers (Fe and Co) are oriented antiparallely, and then the electric resistance due to spin-oriented electron scattering increases. The MR ratio was anisotropic for the directional combinations of applied magnetic field, current and easy-axis of films. The maximum of MR ratio ($\Delta\rho/\rho=2.7\%$) was obtained by applying magnetic field parallel to the easy-axis and perpendicular to the current direction when the Cu layer thickness (δ_{Cu}) was about 64 Å. After annealing at 200°C, the layer structure of the film was maintained and the MR ratio increased up to 3.2%.

1. はじめに

金属強磁性体における磁気抵抗効果 (MR 効果) は, 磁性体の磁化状態に依存して比抵抗が変化する現象である。FeNi, CoNi 合金は弱磁界に対して感度の高いMR効果を示すことから, 磁気センサーとして盛んに研究されてきた¹⁾。一方, Fe/Cr 人工格子膜における巨大なMR効果の発見^{2),3)}は, 磁性人工格子膜の新たな研究分野を開くものとして注目され, 今日の各種磁性金属/非磁性金属人工格子膜のMR効果⁴⁾⁻⁶⁾の研究の引金になった。人工格子膜のMR効果は, 隣合う磁性層の磁化方向が反平行状態 (以下AF状態と略す) となることで, スピンに依存した電子の散乱が増加し, 電流-磁界の方向に関係なくAF状態で比抵抗が極大値をとる。これは, 従来型のMR素子が電流-磁界の方向に依存して異方的なMR効果 (異方性MR効果と呼ぶ) を示すのと比べ人工格子MR効果に特徴的なところである。AF状態は, (A)磁性層間に反強磁性的相互作用が働くFe/Cr^{2),3)}, Co/Ru⁴⁾, Co/Cu⁴⁾, CoFe/Cu⁵⁾等, ならびに(B)磁性層として磁気特性 (特に保磁力) の異

* 情報工学科 助手

** 大学院博士前期課程 情報工学専攻

*** 情報工学科 教授

なる金属を交互に積層した FeNi/Cu/Co/Cu⁹等の人工格子膜, において実現されている. 前者はA F状態から平行にスピンを揃えるのに数十 kOe の強磁界が必要なのに対し, 後者では50Oe程度で実現できることから, 磁気センサーへの応用を考えた場合, 後者の方が実用性が高いと考えることができる.

人工格子膜のMR効果に関する理論的な研究も進められており, Inoue 等は, 上向きスピんと下向きスピンのポテンシャルの差及び非磁性層のポテンシャルと界面の原子配列の乱れを結び付け, 界面付近でのポテンシャルの乱れの感じ方が電子のスピンの上下により異なることで電気伝導度が変わることを示している⁷⁾. 彼等によると, Fe/Cr の場合, Fe の上向きと下向きスピンのポテンシャルの差が大きいことから界面付近でのスピンをもち電子の感じるポテンシャルに乱れが大きくなり, 大きな比抵抗の変化が期待できると説明している. 一方, 著者の中の榮岩と松本は, Fe 非磁性金属人工格子膜において, Fe 層厚を30 Å程度にすることで優れた軟磁気性層特性を示し, 軟磁性層として磁気モーメントの大きなFeを単体で使用できることを報告している⁸⁾.

本論文では, 軟磁性層としてFeを, 高保磁力層としてCoを用いた Co/Cu/Fe/Cu 人工格子膜を3ターゲット式スパッタ装置を用いて作製し, Cu層厚に対する

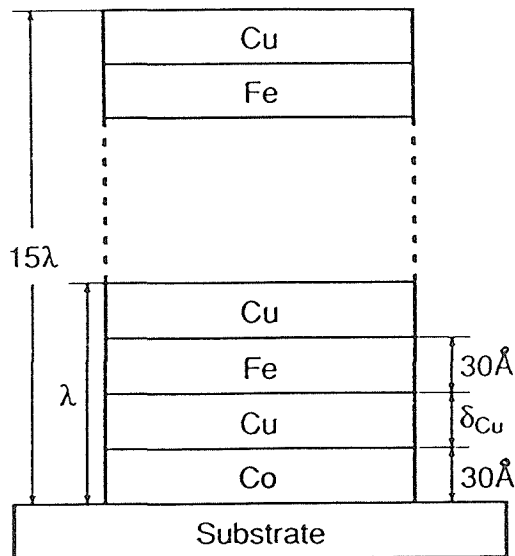


図1 人工格子薄膜の断面模式図

$$\delta_{Cu}=62\text{\AA}$$

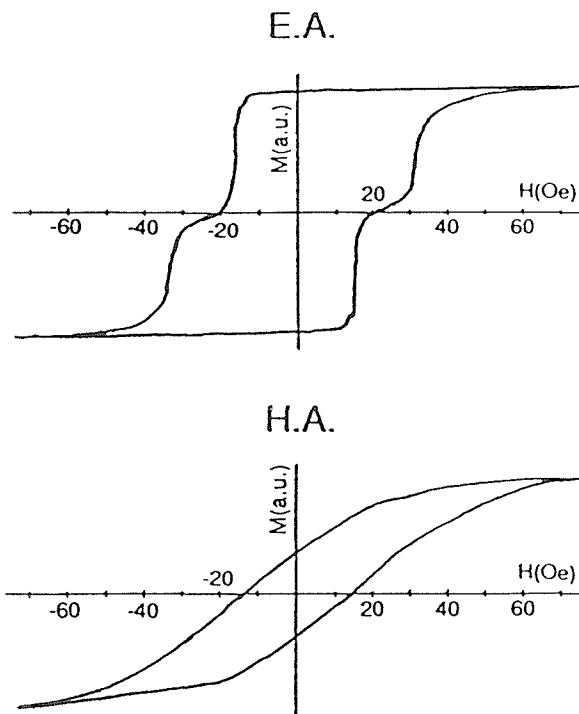
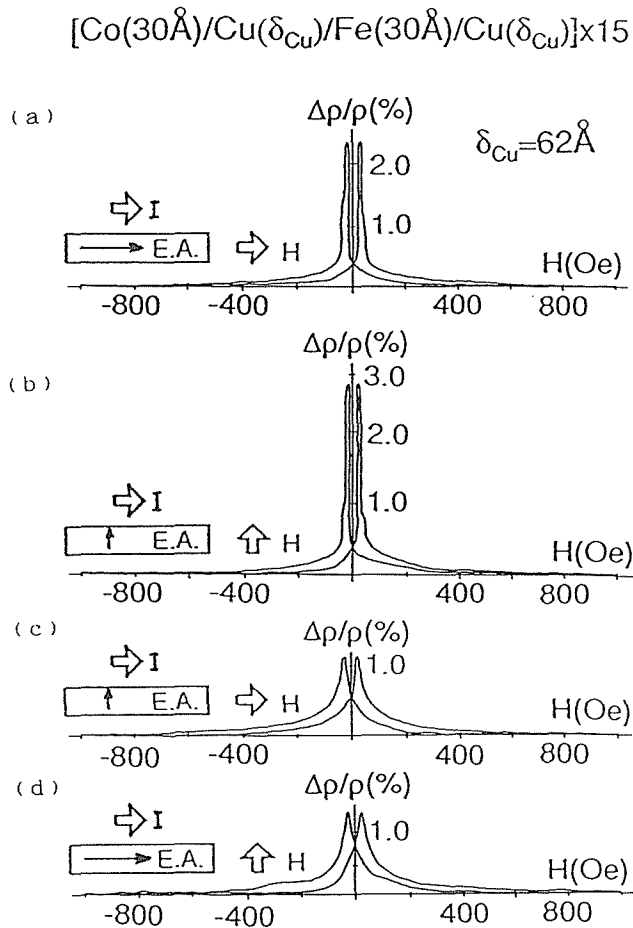


図2 $\delta_{Cu}=62\text{\AA}$ の時の磁化曲線

図3 $\delta_{Cu}=62\text{\AA}$ の時のMR曲線

磁気特性とMR特性を調べたので報告する。また、これ等の人工格子膜の熱処理効果についても述べる。

2. 実験方法

成膜には3ターゲット式DCマグネトロンスパッタ装置を用いた。Arガス圧を2 mTorrとし、水冷された回転テーブルに基板(スライドガラス)を固定し、テーブルを一定速度で往復回転運動させることで積層を行った。図1に人工格子膜の断面の模式図を示す。Co側及びFe側ターゲットの投入電力をそれぞれ44W, 67Wに固定し、一層当りの膜厚(δ_{Co} , δ_{Fe})を30Å一定とした。Cu側のターゲットの投入電力を30~260Wの範囲で変更することにより、Cu一層当りの膜厚(δ_{Cu})を制御した。積層回数は15回とした。

また、MR効果の測定は5 mm \times 25mmの短冊状の試料を用い、四端子法で測定を行った。MR変化率 $\Delta R/R$ ($\Delta\rho/\rho$)は、印加磁場3kGのときの比抵抗の値を ρ_{3k} 、比抵抗

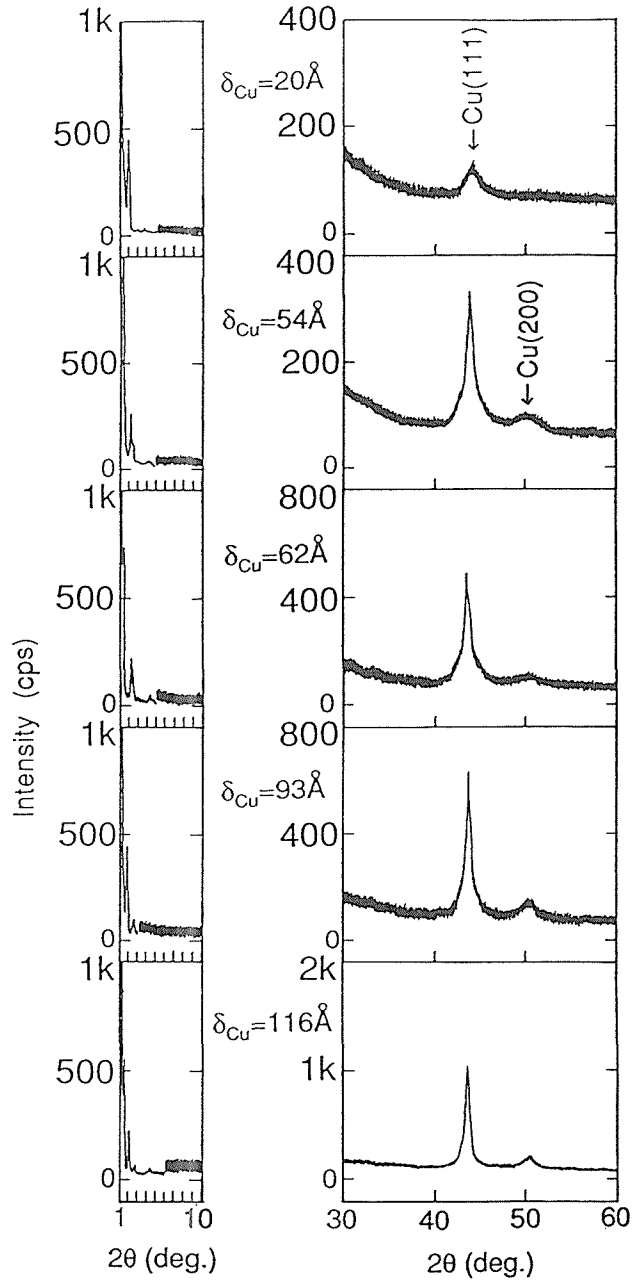
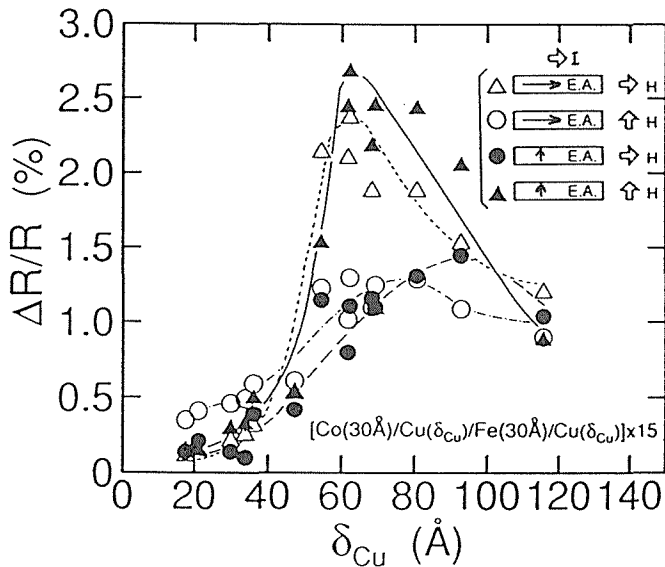


図4 各Cu層厚に対するX線回折ダイアグラム

の最大値を ρ_{\max} とし、

$$\Delta\rho/\rho = \Delta R/R = \{(\rho_{\max} - \rho_{3k}) / \rho_{3k}\} \times 100 (\%)$$

で求めた。

図5 MR効果 $\Delta R/R$ のCu層厚依存性

3. 実験結果

3.1 Co/Cu/Fe/Cu人工格子膜

図2に $\delta_{Cu}=62\text{\AA}$ の時の磁化曲線を示す。基板を回転したことにより面内に異方性が誘起されているのが分かる。また、磁化容易方向 (E.A.) の磁化曲線に段差が観察されることから、Co層とFe層の間でA F状態が実現されているのが分かる。また、磁化曲線に段差がいくつも見られるが、これはスパッタ中の投入電力の僅かな変化や、回転テーブルの回転速度の乱れが原因となって各層の膜厚が乱れ、磁性層の磁気特性が各層毎に異なるためではないかと考えられる。

図3に $\delta_{Cu}=62\text{\AA}$ の積層膜における、E.A.に対する電流・磁界方向の組合せの異なる4タイプのMR曲線を示す。(a),(b)が磁化容易方向に磁界を印加した場合、(c),(d)が磁化困難方向に磁界を印加した場合である。電流と磁界の方向に関係なくMR曲線は上に凸の変化をしており、各層の磁化方向がA F状態となることによる ρ の増加と考えることができる。またE.A.と印加磁界が一致した場合に ρ の変化が大きくなっている。これは、図2の磁化曲線から分かるように、E.A.の磁化曲線で観察される明瞭な段差が示すように、A F状態がはっきり実現できるためであると考えられる。

図4に各Cu層厚に対するX線回折ダイアグラムを示す。Cu層厚が薄い場合には、中角領域にCu(111)面からのピークが観察され、Cu層厚の増加にともないこのピーク強度が増し、さらにCu(200)面のブロードなピークも観察される。 $2\theta=10^\circ$ 以下の小角領域には、長周期構造に起因するピークが全 δ_{Cu} で観察され、層構造が実現されているのが分かる。

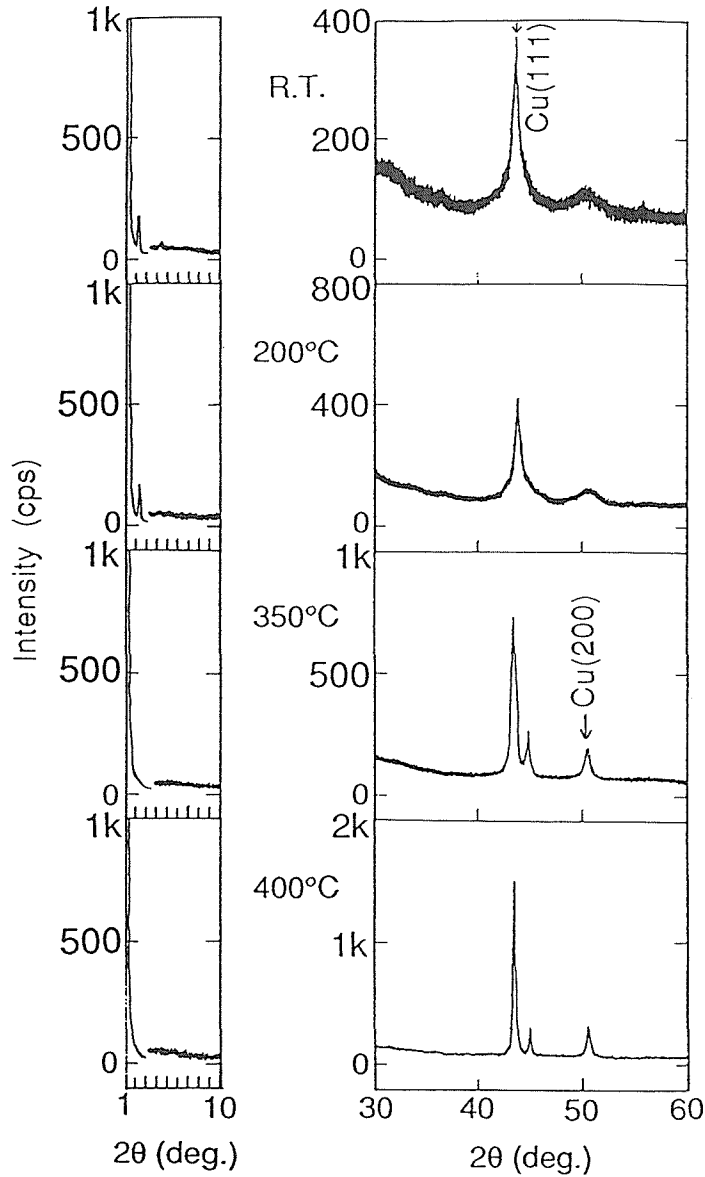


図6 各熱処理温度に対するX線回折ダイアグラム

図5にMR効果 $\Delta R/R$ のCu層厚依存性を示す。これも図3と同様4タイプ示してある。 $\delta_{Cu} = 30 \text{ \AA}$ 以下ではFeNiなどでみられる従来型の異方性MR効果が現れ、それ以上のCu層厚ではAF状態によるMR効果が現れている。Cu層厚の増加にともない4タイプともMR効果は増加し、 $\delta_{Cu} = 60 \text{ \AA}$ 付近で極大値をとり、それ以上では減少している。このときの極大値は2.7%で、これは、同スパッタ装置で作成したCo/Cu/FeNi/Cu人工格子膜よりも1.0%程度大きい値であった。このことは、Feの磁気モーメントがFeNiの磁気モ

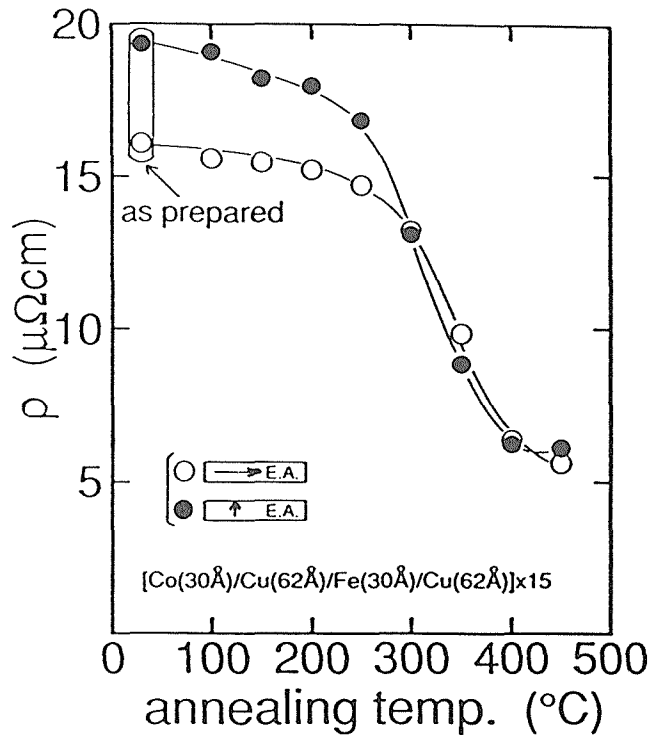


図7 比抵抗 ρ の熱処理温度依存性

メントより大きく、電子の散乱もより大きくなり、その結果抵抗が増加したと考えられる。

3.2 熱処理の効果

人工格子膜の磁气的・電气的性質は各層の結晶性及び界面状態に大きく左右されることが考えられる。水冷された基板上に堆積した as-prepared の人工格子膜は、クエンチ状態で成膜されていると考えられるので、熱処理により膜構造を含めた膜質が変化することが予想される。そこで、MR特性の向上を目的として、真空中で熱処理（アニール処理）を施し、膜質の変化及び熱的安定性を調べた。熱処理は、 1×10^{-4} Torr 以下の真空中で $100^{\circ}\text{C} \sim 450^{\circ}\text{C}$ まで 50°C 刻みで各温度60分行った。試料は、Ar ガス圧2mTorr で作製した $[\text{Co}(30\text{\AA})/\text{Cu}(62\text{\AA})/\text{Fe}(30\text{\AA})/\text{Cu}(62\text{\AA})] \times 15$ の試料を用いた。

図6に各熱処理温度に対するX線回折ダイアグラムの変化を示す。熱処理温度が 200°C までは変化はみられず、中角領域に Cu(111)面のシャープなピークと Cu(200)面のブロードなピークが観察され、 $2\theta = 10^{\circ}$ 以下の小角領域では、長周期構造に起因するピークが観察される。熱処理温度が 350°C 以上になると、中角領域のピークが Cu(111)面のピークと $\alpha\text{-Fe}(110)$ 面のピークに分離し、Cu(200)面のピークとともにピーク強度が増している。また、小角領域でのピークは消滅してしまう。このことから、熱処理温度が 350°C 以上では層構造が崩壊してしまい、Cu, Fe の結晶成長が進むものと思われる。

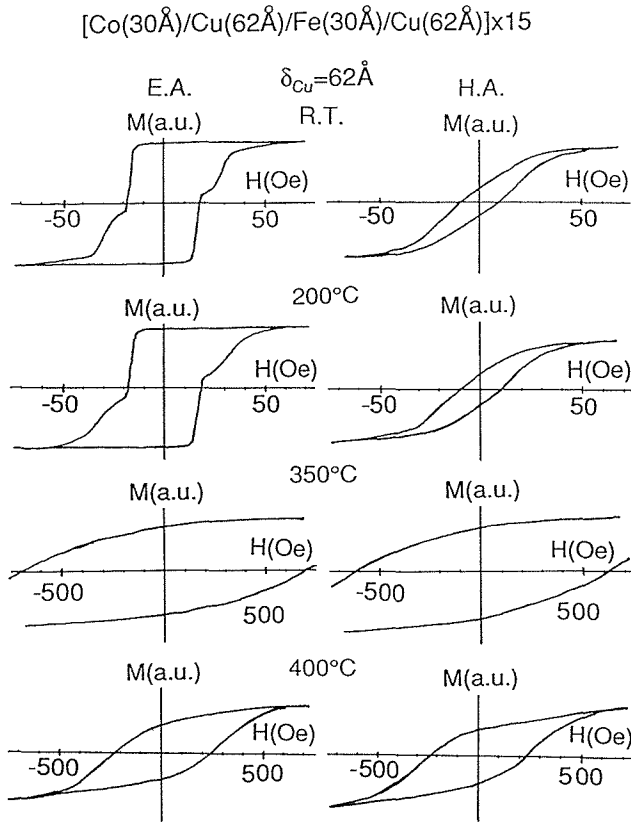


図8 各熱処理温度に対する磁化曲線

図7に比抵抗 ρ の熱処理温度依存性を示す．熱処理温度が300°C付近までは緩やかに減少しているが、それ以上では急激に減少しているのが分かる．これは、Cu, Feが結晶成長したためであると考えられる．

図8に各熱処理温度に対する磁化曲線の変化を示す．熱処理温度が200°Cまでは磁化容易方向、困難方向ともあまり変化はみられないが、350°C以上では保磁力が増加し異方性も消失し、磁化曲線に段差がみられなくなる．これは、X線回折の結果と一致しており、この温度以上で層構造の崩壊を示していると思われる．

以上のことから、熱処理温度が300°C付近までは層構造・電氣的・磁氣的性質は変化はみられず、熱的に安定しているものと考えられる．しかし、熱処理温度が350°C以上になると、X線回折からもみられるように、層構造が崩壊しCu, Feの結晶成長が進み、比抵抗の急激な減少、保磁力の急激な増加を引き起こしたものと考えられる．

図9に各熱処理温度に対するMR曲線の変化を示す．熱処理温度が200°Cまでは増加している．これは図8にみられるように磁化曲線の段差が明確となり、Co層とFe層の磁化のA F状態による電子の散乱($\Delta\rho$)が増加したためと考えられる．

図10にMR効果 $\Delta R/R$ の熱処理温度依存性を示す．熱処理温度の増加にともないMR

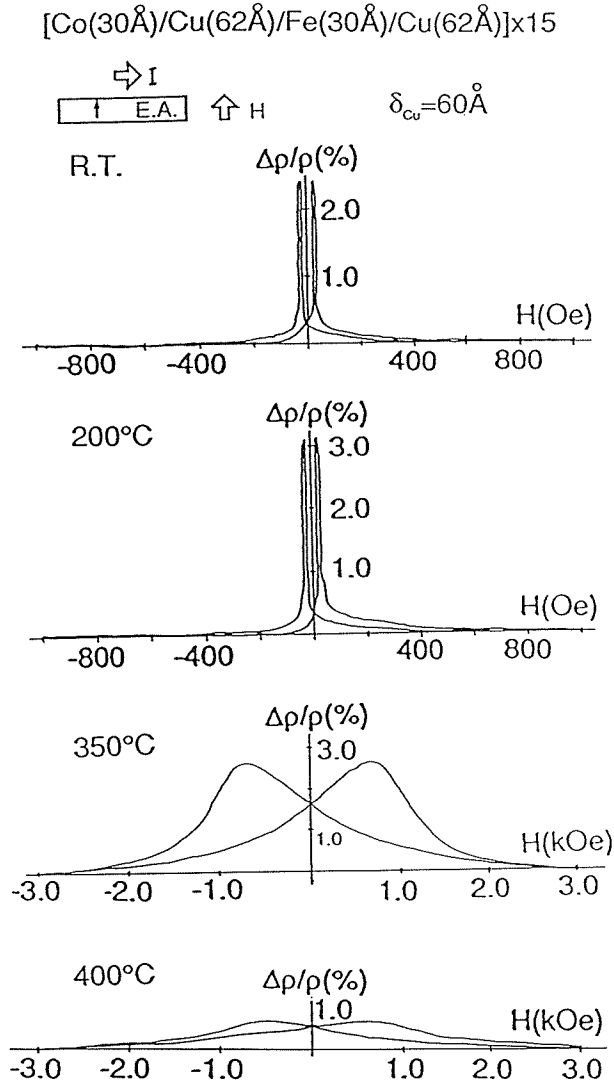


図9 各熱処理温度に対するMR曲線

効果は増加し、200°Cから250°C付近で極大値(3.2%)を示し、それ以上では350°Cで増加するものの減少している。350°CでのMR効果の増加は比抵抗の急激な減少によるものと思われ、それ以上での減少は、層構造の崩壊と磁化曲線の段差消失が示すように、Co層とFe層の間でAF状態が実現できなくなり、電子の散乱($\Delta\rho$)が減少したためと考えられる。

4. ま と め

スパッタ法により人工格子膜を作製した結果、以下のことが分かった。

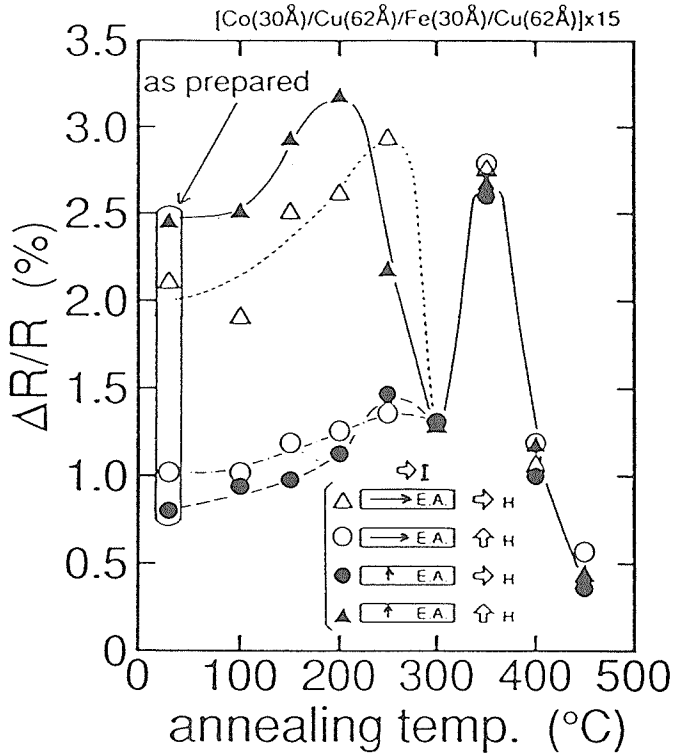


図10 MR効果 $\Delta R/R$ の熱処理温度依存性

- (1) Co/Cu/Fe/Cu 人工格子膜では、従来型の異方性MR効果とは異なる、層間磁化のA F状態に起因するMR効果が観察された。RKKY的振動は観察されないことから、磁性層の反強磁性的結合はなく、2種類の磁性層の磁気特性の違いによって、磁化過程においてA F状態が実現されているものと考えられる。
- (2) 磁性層を磁気モーメントの大きいFeに変えることにより、FeNi系に比べ大きなMR効果を得ることができた。
- (3) 異方性を誘起させることにより、磁化容易方向に対し磁化曲線に明確な段差がみられ、A F状態が実現でき、大きなMR効果を得ることができた。
- (4) 熱処理温度が300°C付近までは層構造・電氣的・磁氣的性質に変化はなく、磁化曲線の段差の明確化が示すCo層とFe層の間のA F状態による電子の散乱($\Delta\rho$)が増加するためMR効果は増加する。しかし、熱処理温度が350°Cを越えるとX線回折からもみられるように、層構造が崩壊しCu, Feの結晶成長が進み、比抵抗の急激な減少、保磁力の急激な増加を引き起こし、さらにA F状態が実現できなくなるためMR効果は減少する。

参 考 文 献

- 1) 松本, 榮岩, 井上, 田中, 日本応用磁気学会誌 15, 461 (1991).
- 2) M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett., 61, 2472 (1988).
- 3) G.Binasch, P.Grunberg, F. Saurenbach, and W.Zinn, Phys. Rev. **B36**, 4828 (1989).
- 4) S.S.P.Parkin, N.More, and K.P.Roche, Phys. Rev. Lett., 64, 2304 (1990).
- 5) Y.Saito and K.Inomata, Jpn. J.Appl. Phys., 30, L1733 (1991).
- 6) T.Shinjo and H.Yamamoto, J.Phys. Soc. Jpn., 59, 3061 (1990).
- 7) J.Inoue, A.Oguri, and S.Maekawa, J.Phys. Soc. Jpn., 60, 376 (1991).
- 8) 松本, 榮岩, 根来, 日本応用磁気学会誌 15, 395 (1991).