

Spring-8 利用推進協議会
第6回先端磁性材料研究会

Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層膜の 交換磁気異方性と界面非補償反強磁性スピン

角田匡清

(東北大学 工学研究科 電子工学専攻)

共同研究者： 高橋宏和、小田洋平、三俣千春、佐久間昭正（東北大学）
中村哲也、児玉謙司（JASRI/SPring-8）

2013年3月11日 東京



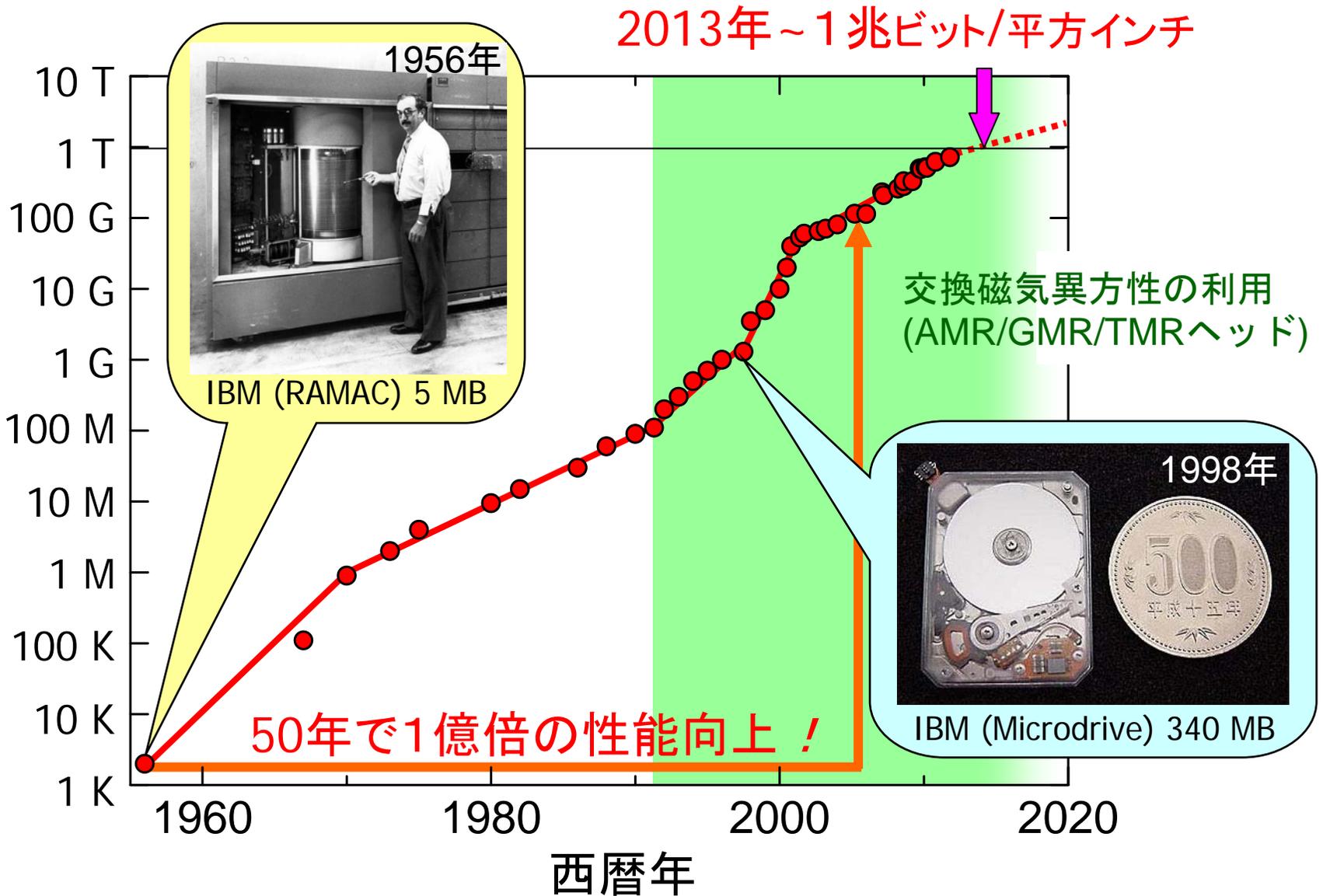
Outline

1. はじめに
～ 交換磁気異方性とその応用 ～
2. Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層膜の交換磁気異方性
～ 強磁性層材料依存性 ～
3. Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層膜の非補償反強磁性スピン
～ XMCD計測とシミュレーション ～
4. まとめ

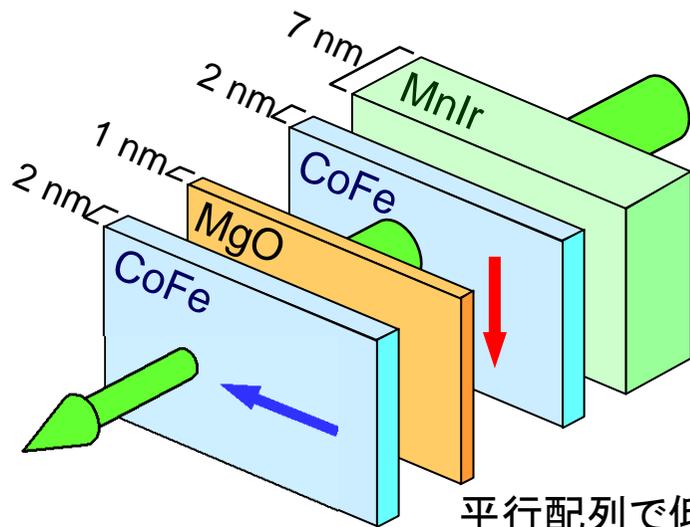
ハードディスクの面記録密度の推移



面記録密度 (ビット/平方インチ)



1 Tbit/inch²のHDD

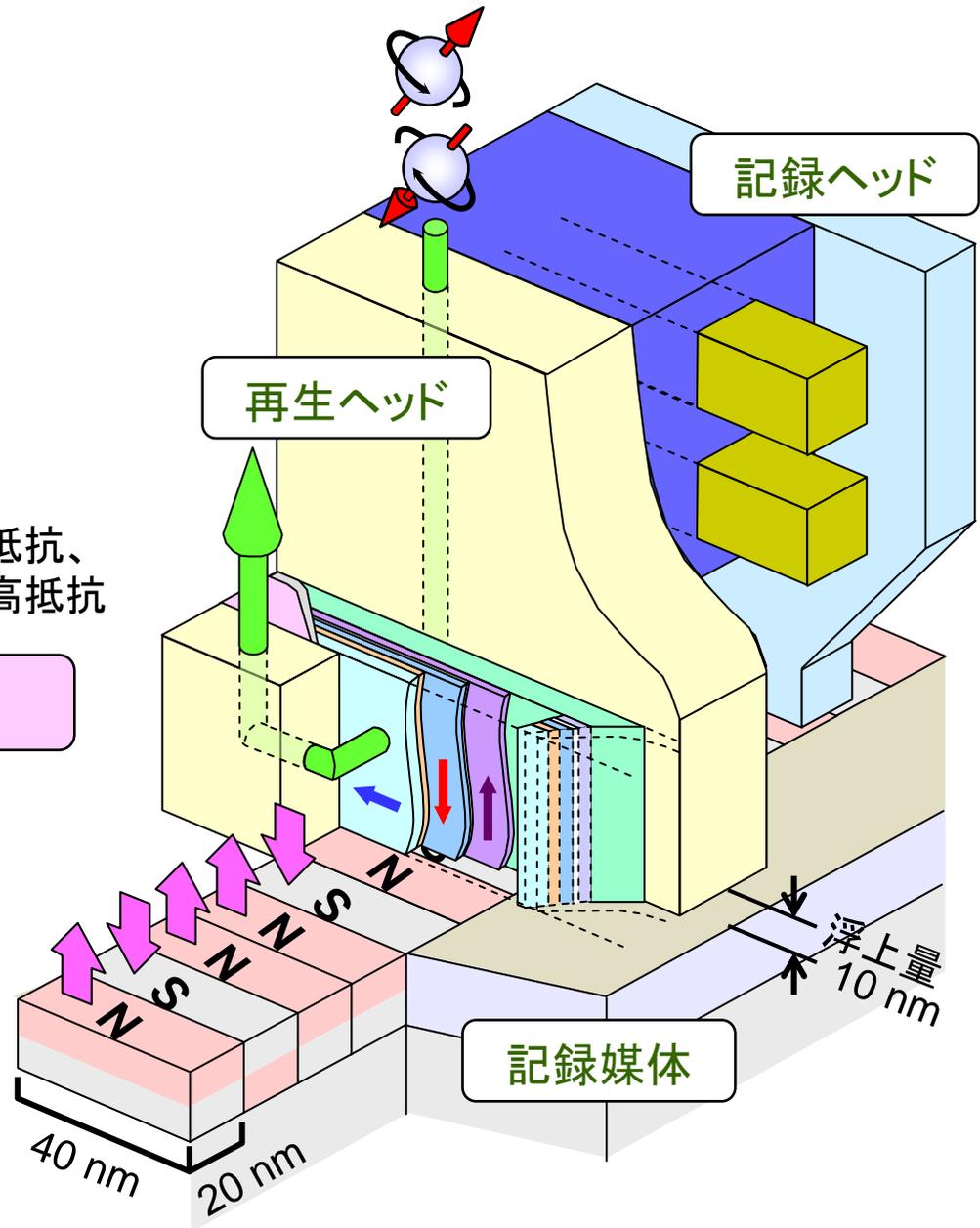


平行配列で低抵抗、
反平行配列で高抵抗

トンネル磁気抵抗効果

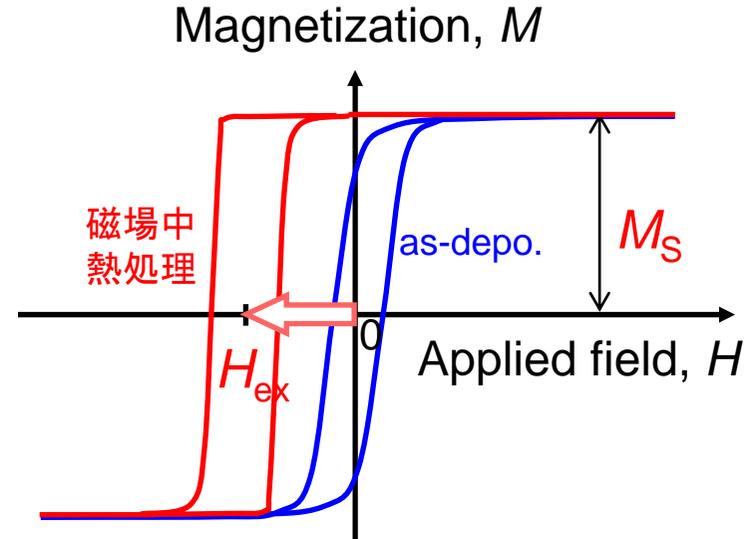
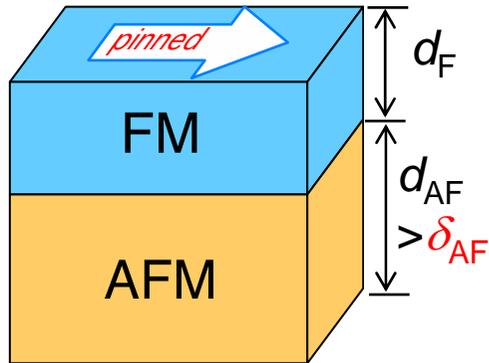
1 Tbit/inch²用の再生ヘッドを作るためには、...

- 基準の磁気モーメント ↓ を確実に固定する。
- 磁気抵抗変化率を増大させる。

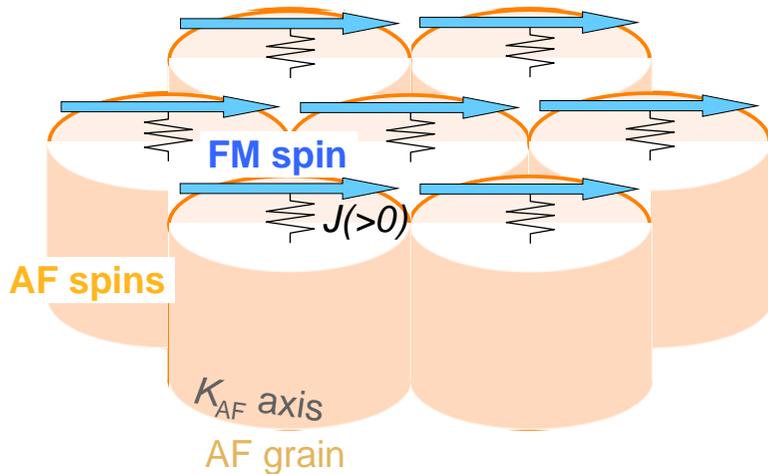


交換磁気異方性の誘導 ～磁界中熱処理～

磁場中熱処理 @ $T > T_B$



As-deposited @ $T > T_B$



交換磁気異方性 (Exchange anisotropy)

一方向磁気異方性定数: $J_K = M_S d_F H_{ex}$

ブロッキング温度: T_B

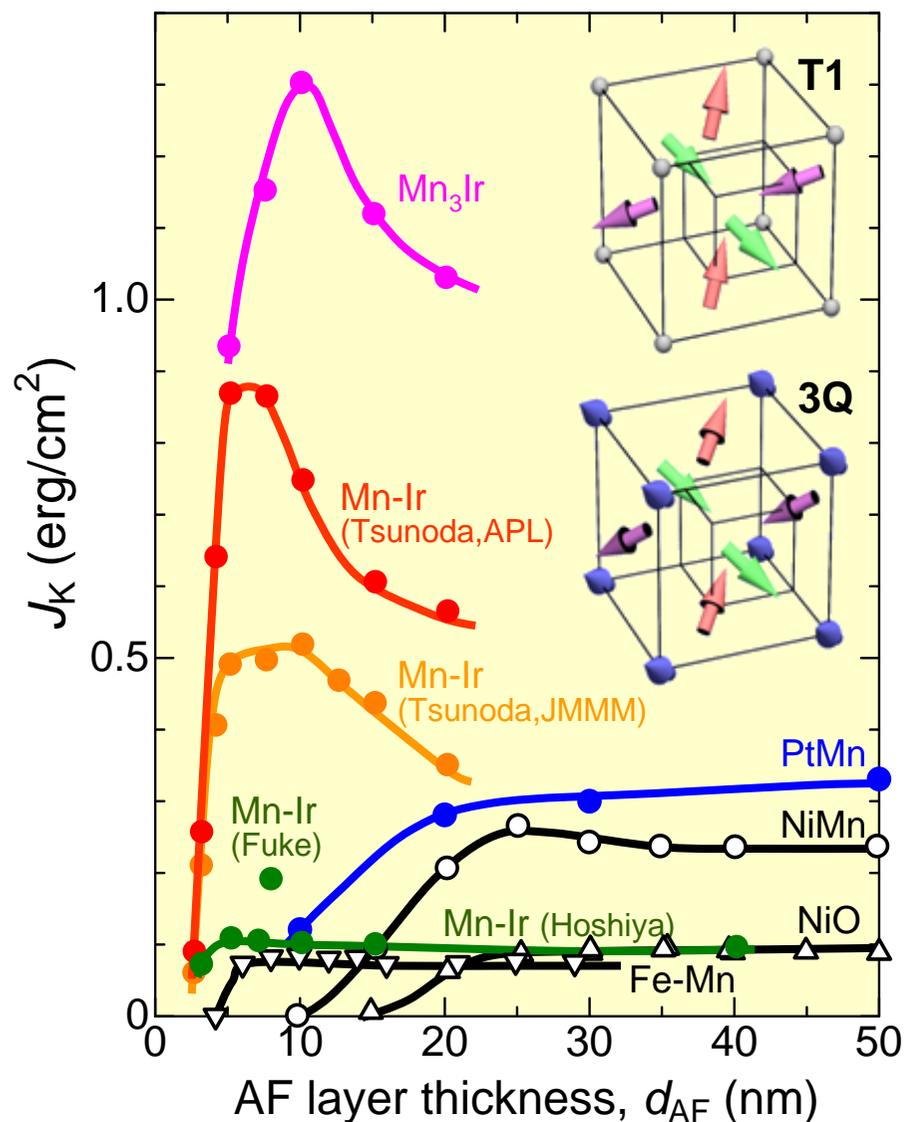
臨界膜厚: δ_{AF}

交換磁気異方性のミクロスコピックな起源は
完全には明らかにされていない

*Single Spin Ensemble Model

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

交換磁気異方性の反強磁性材料依存性



材料的観点

1. **Mn-Ir**, Ir = 20 at.%
*K. Hoshino, JJAP 35, 607 (1996),
H. Fuke, JAP 81, 4004 (1997).*
2. Large J_K with **CoFe**, Fe = 25~30 at.%
M. Tsunoda, JMMM 239, 182 (2002).
3. **L1₂-Mn₃Ir** brings **giant J_K** & high T_B
K. Imakita, APL 85, 3812 (2004).
4. L1₂-Mn₃Ir, best matching with MgO-MTJs
K. Komagaki, IEEE Trans. Mag 43, 3535 (2007).
5. γ -Mn alloy is the most promising AF material to reduce **critical thickness**
C. Mitumata, JPSJ 77, 044602 (2007).

薄膜組織依存性

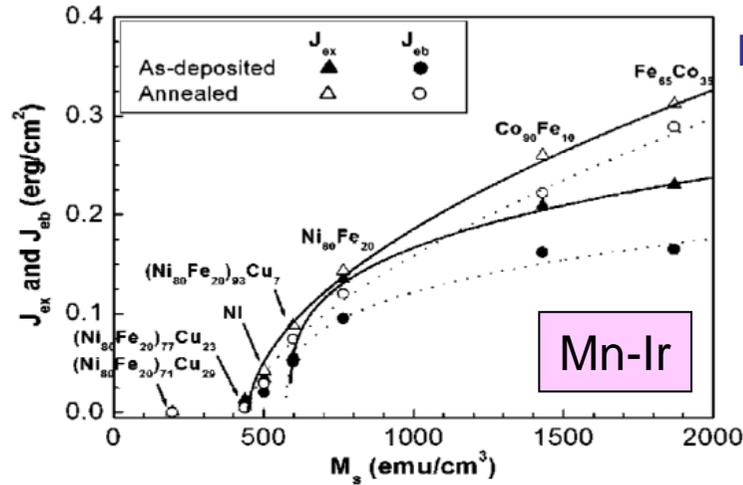
6. Large AF grains for **high T_B** (& large J_K)
M. Takahashi, JMSJ 23, 1841 (1999).
7. (111) orientation is better for **directional control**
M. Takahashi, JPD 35, 2365 (2002).

プロセス依存性

8. Long-time annealing enhances J_K
M. Tsunoda, APL 84, 5222 (2004).

AF 材料依存性 → HDD応用にはMn-Ir が最適

交換磁気異方性の強磁性材料依存性



H.S.Jung, JAP (2004)

$$J_K = \alpha(M_s - C)^\beta$$

FIG. 1. Effect of the saturation magnetization (M_s) on the exchange coupling constants J_{ex} and J_{eb} in as-deposited and annealed IrMn/FM films. Solid and dotted lines are the results of curve fitting using a formula $J = \alpha(M_s - M_{s\text{ critical}})^\beta$.

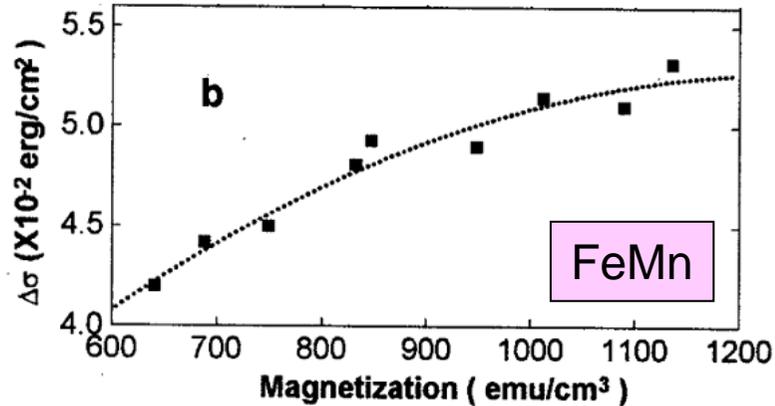


FIG. 3. Dependence of (a) product of exchange bias field H_E and thickness t_{FM} and (b) exchange coupling energy $\Delta\sigma = H_E t_{FM} M_{FM}$ on magnetization M_{FM} of Co-Ni/FeMn(150 Å) bilayers at room temperature.

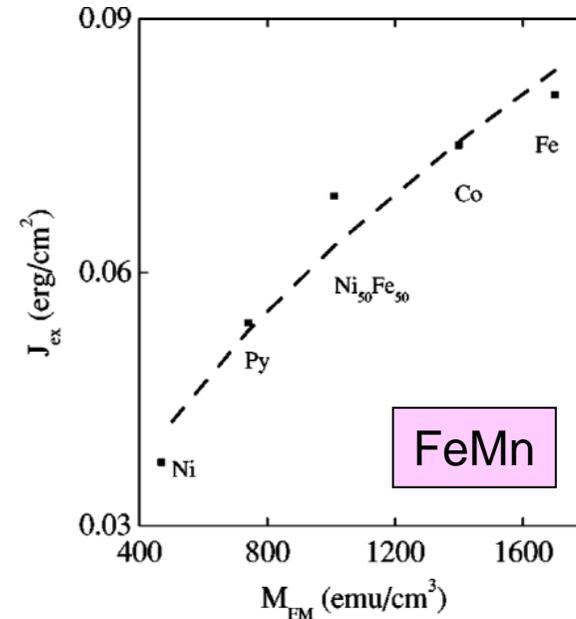
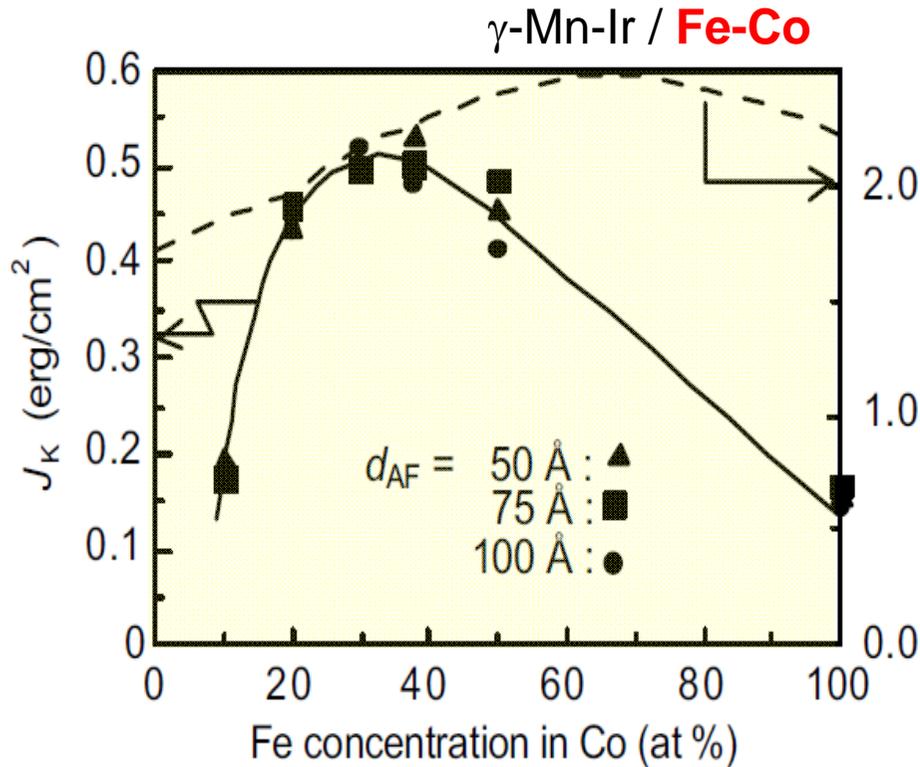


FIG. 2. Dependence of the exchange coupling energy on the FM magnetization in FM/FeMn(15 nm) bilayers (solid symbol), where FM=Fe, Co, Fe₅₀Ni₅₀, Py, and Ni. The dashed line is a $\sqrt{M_{FM}}$ fit.

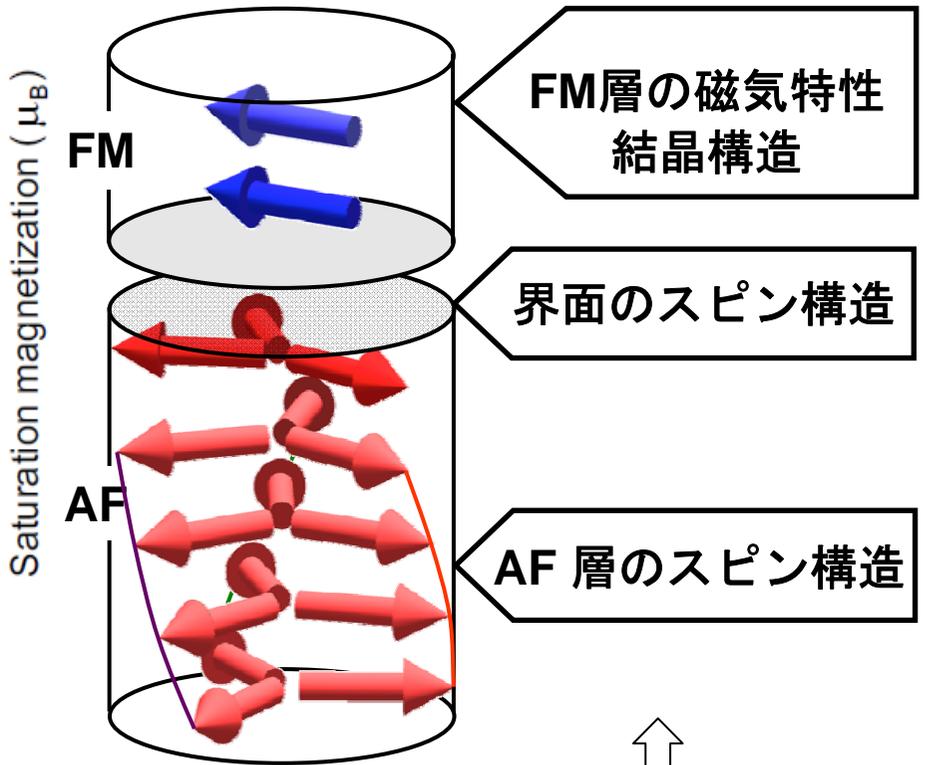
S.M.Zhou, PRB (2000)

S.J.Yuan, APL (2002)

本研究の目的

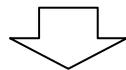


J_K^{in} は強磁性材料によって大きく変化
 γ -Mn-Ir / bcc-Fe₃₀Co₇₀ で極大
 M. Tsunoda *et al.*, *JMMM*, **239**, 182 (2002)



↑
 交換磁気異方性との
 関係は理解されていない

FM層材料を積極的に変化



交換磁気異方性とFM層の構造, AF界面・内部のスピン構造との関係を理解

実験方法

成膜条件

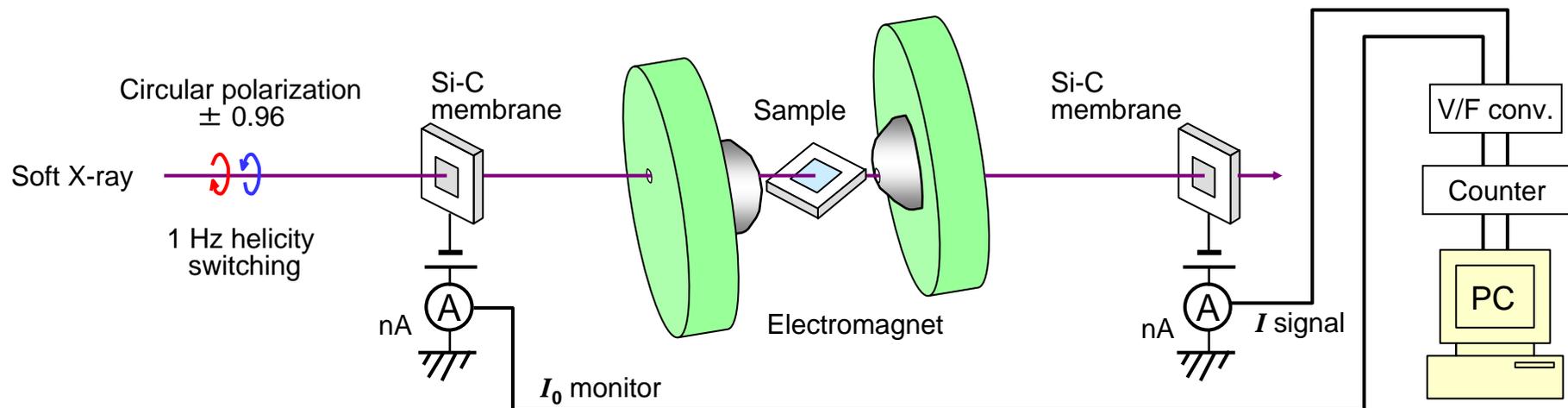
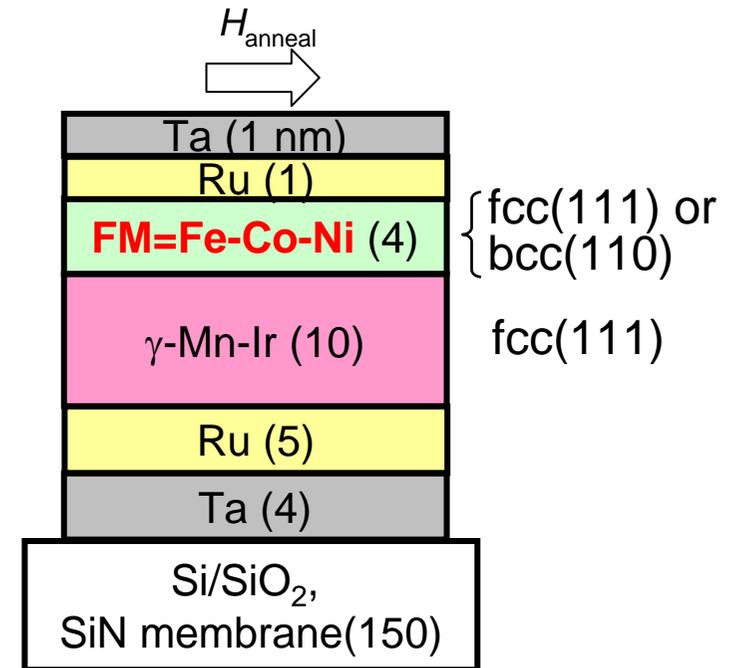
成膜 : RF & DC マグネトロンスパッタリング
FM 層成膜: 複数ターゲットからの同時スパッタリング

熱処理条件

$T_a = 280 \text{ }^\circ\text{C} \times 1 \text{ hr}, 3 \text{ kOe}$

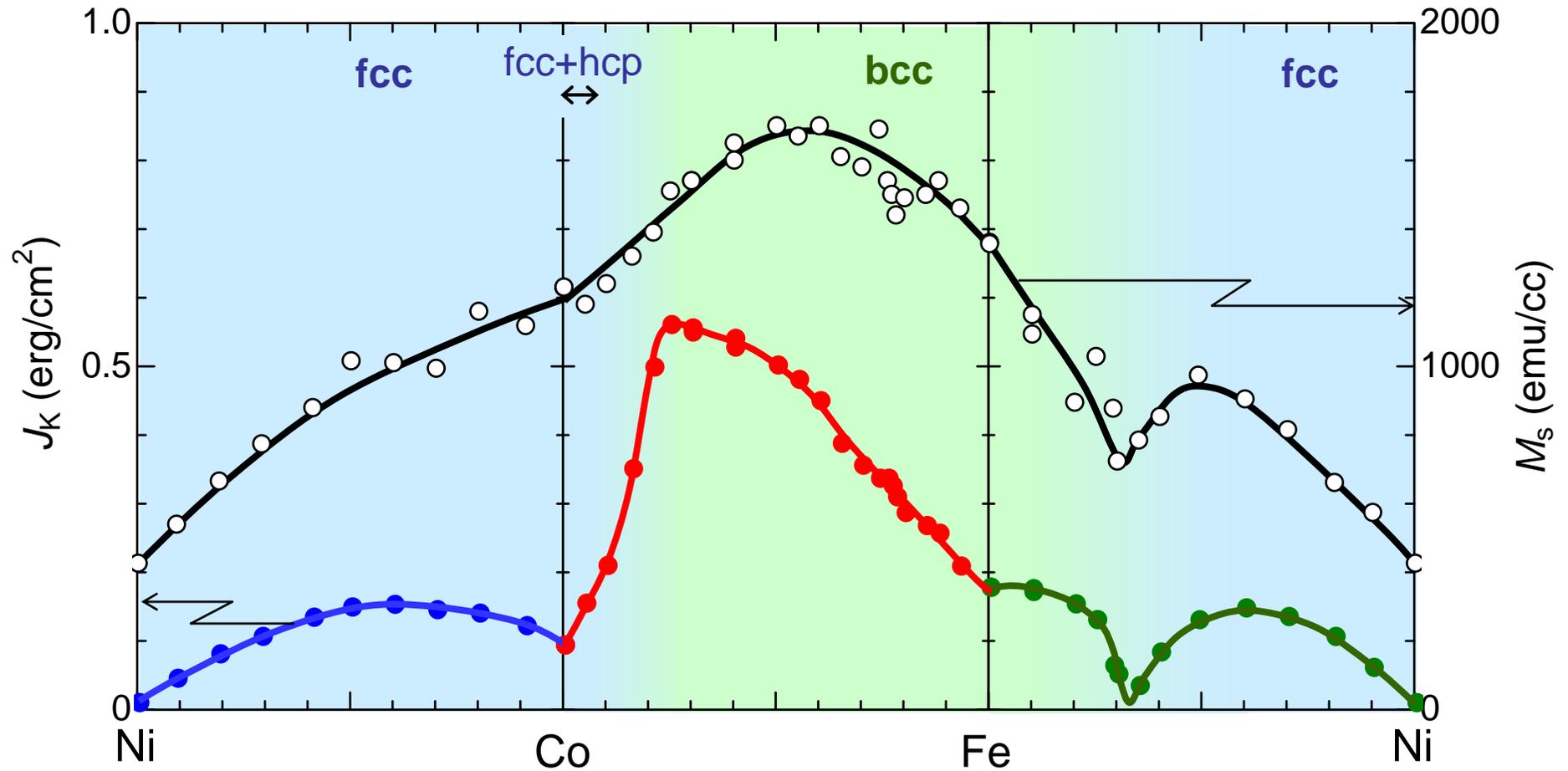
測定方法

構造解析: XRD (Cu- $K\alpha$)
組成分析: 蛍光X線分析
磁気特性: VSM, XMCD(BL25SU@SPring-8)



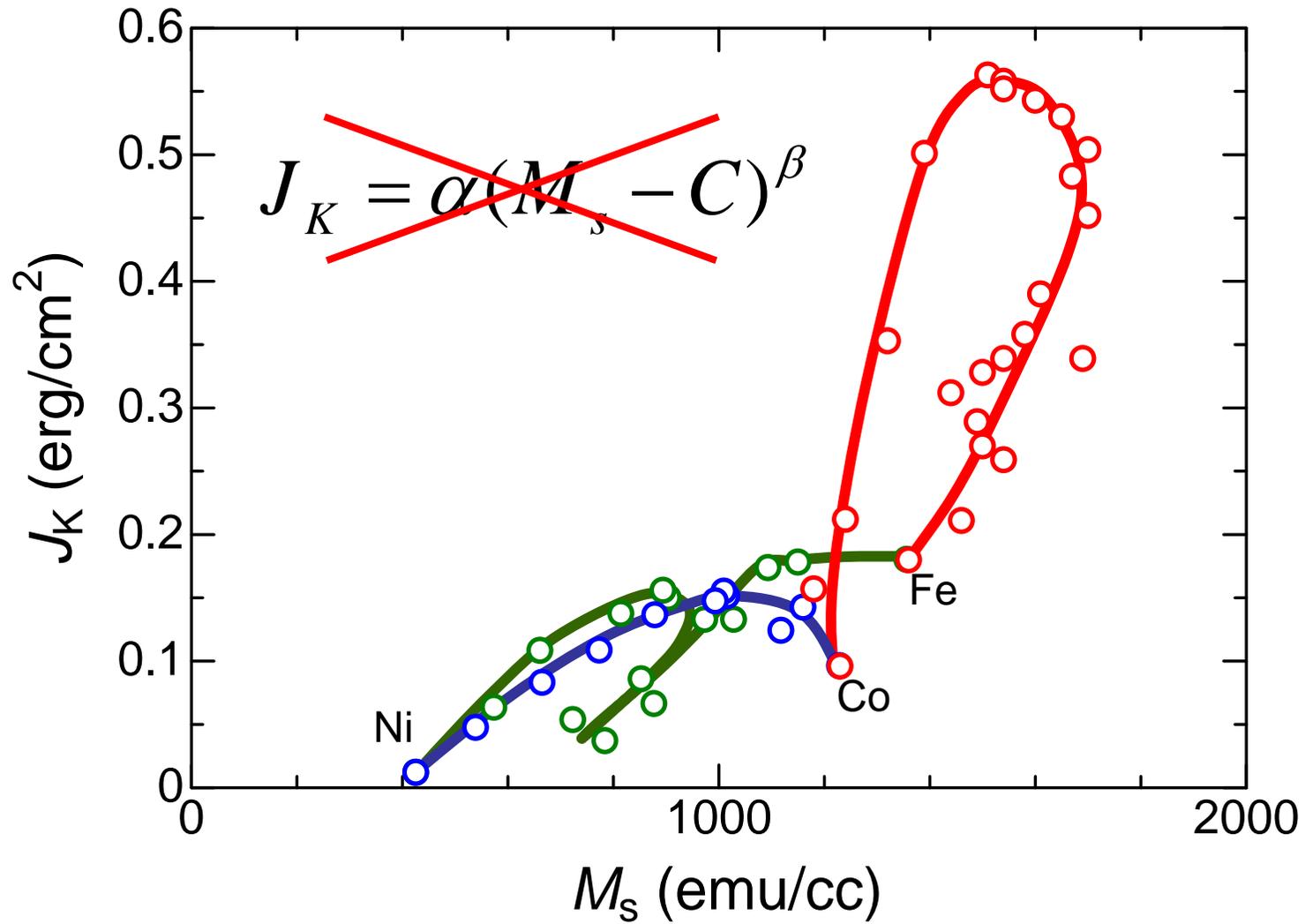


J_K & M_s as a function of FM composition



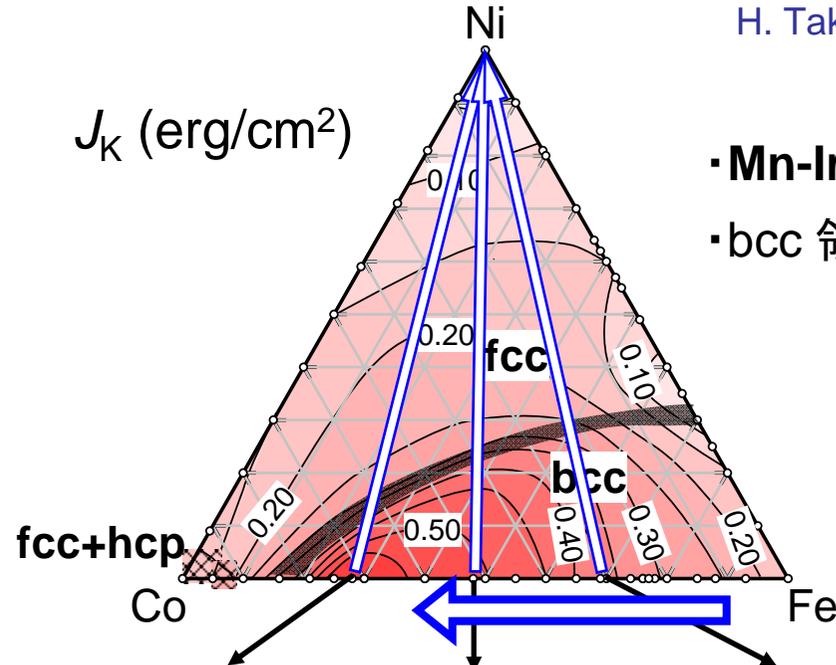


Correlation between M_s and J_K

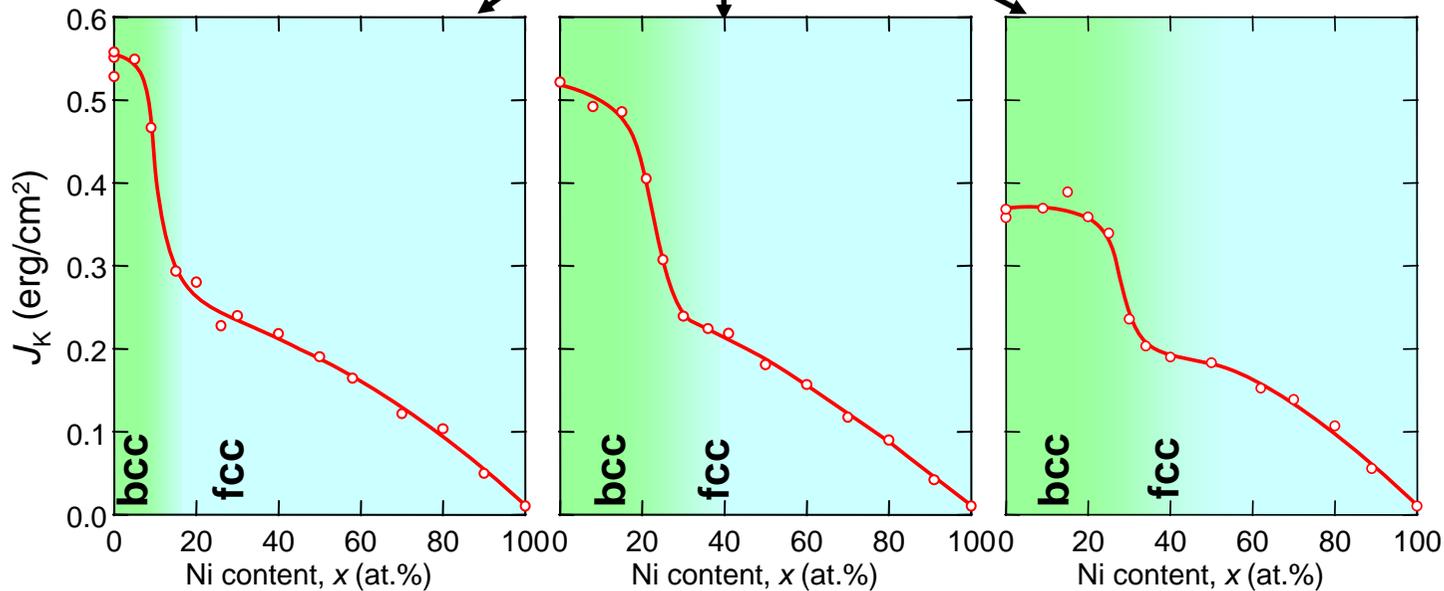


J_K of γ -Mn-Ir / Fe-Co-Ni bilayers

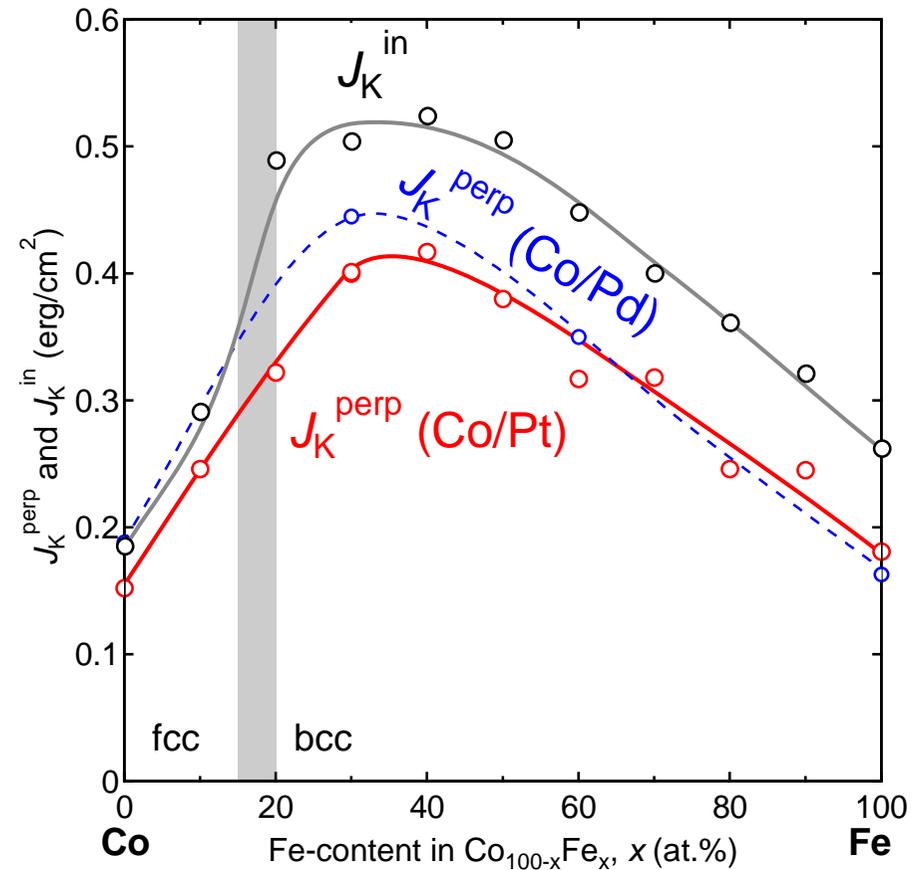
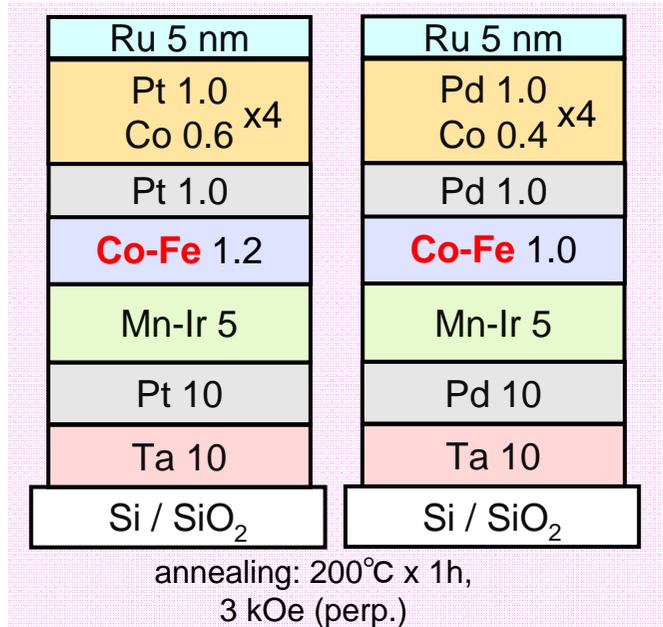
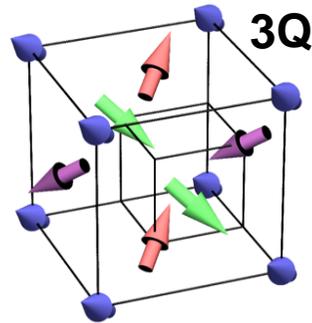
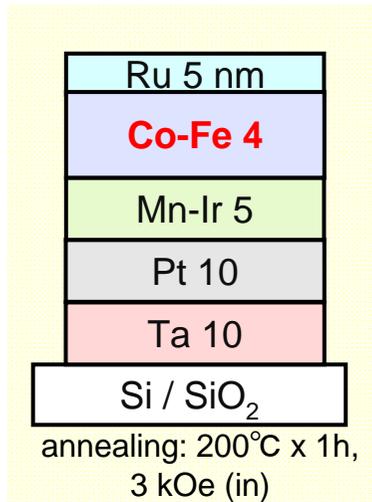
H. Takahashi et al., *J. Magn. Soc. Jpn.* **34**, 285 (2010)



- Mn-Ir / bcc-FM で大きな J_K^{in} (>0.3 erg/cm²)
- bcc 領域では Co に向かって J_K^{in} が増大



垂直交換磁気異方性の界面Co-Fe組成依存性

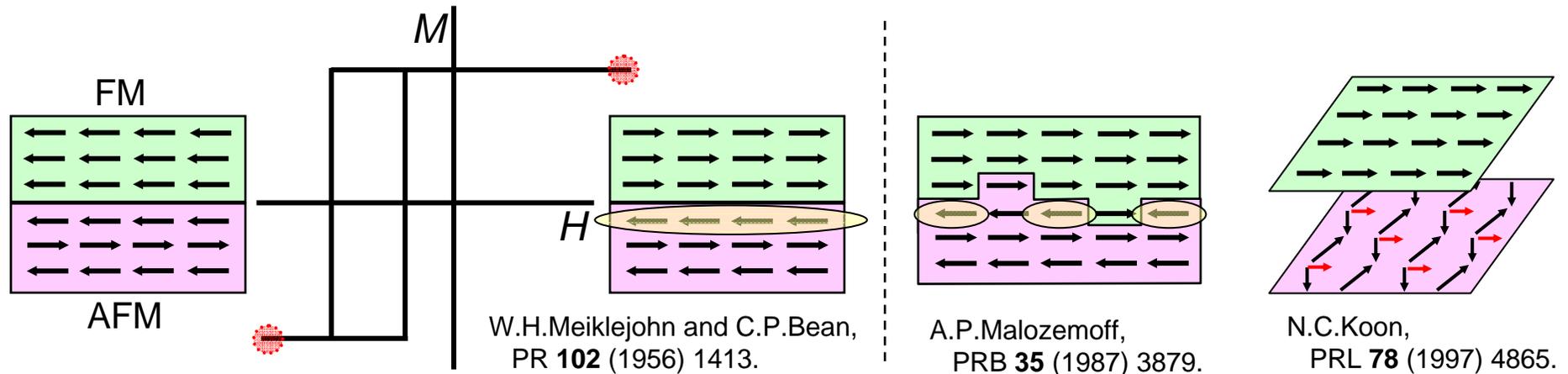


FM=Co₇₀Fe₃₀ で極大: $J_K^{\text{perp}} > 0.4 \text{ erg/cm}^2$

垂直, 面内交換磁気異方性のメカニズムは同じ?



Uncompensated AFM spins: A clue to investigate the microscopic origin of E.B.



Observations of UC-AFM spins

K. Takano et al., PRL 79 (1997) 1130; [CoO/MgO]₁₅, SQUID

A. Hoffmann et al., PRB 66 (2002) 220406; LaFeO₃/Co, polarized neutron

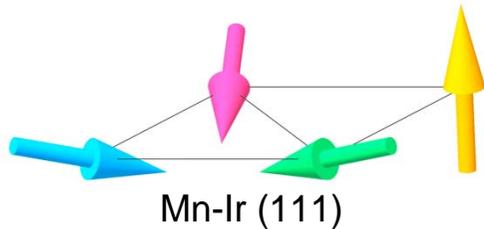
W.J. Antel Jr. et al., PRL 83 (1999) 1439; FeMn/Co, XMCD (TEY)

T.P.A. Hase et al., APL 79 (2001) 985; IrMn/Co, XMCD (scatter)

H. Ohldag et al., PRL 87 (2001) 247201; NiO/Co, XMCD (TEY)

H. Ohldag et al., PRL 91 (2003) 017203; NiO/Co, IrMn/Co, PtMn/CoFe, XMCD (TEY)

XMCDによる非補償スピンの検出



X線磁気円二色性
X-ray Magnetic Circular Dichroism,
元素選択性, 高感度

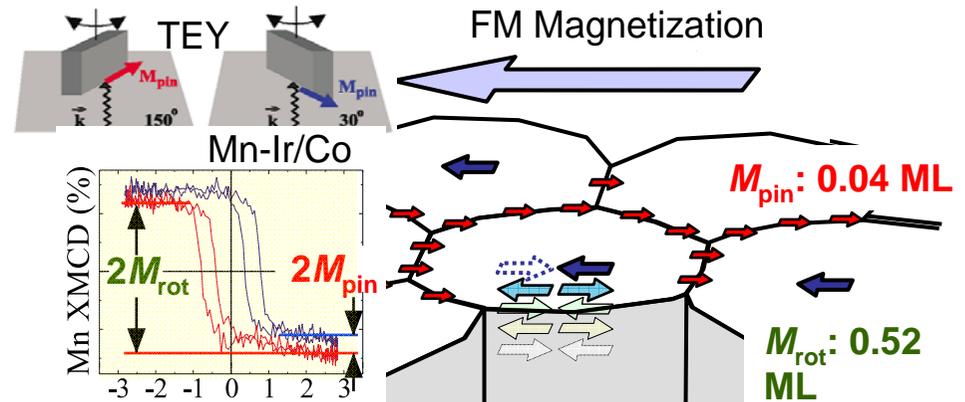
- 1) T.P.A. Hase *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 985 (2001).
- 2) H. Ohldag *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 017203 (2003).
- 3) M. Tsunoda *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 172501 (2006).
- 4) M. Tsunoda *et al.*, *J. Appl. Phys.* **101**, 09E510 (2007).
- 5) S. Brück *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 126402 (2008).
- 6) I. Schmid, *EuroPhys. Lett.* **81**, 17001 (2008).
- 7) S. Doi *et al.* *Appl. Phys. Lett.* **94**, 232504 (2009).

- Mn-Ir / FM 積層膜に非補償スピが存在
- 非補償スピに pinned, rotatable 成分が存在。
Pinned 成分の割合と J_K^{in} に相関^{2,6)}。
- Pinned 成分は存在せず, J_K^{in} と対応しない³⁾。
- 非補償スピは AF 界面だけでなく内部にも存在^{5,7)}。
- 非補償スピは AF/FM の界面数層に存在⁴⁾
- ミクロスコピックな起源が不明
Roughness, Canting, ...

非補償スピンのFM層材料依存性



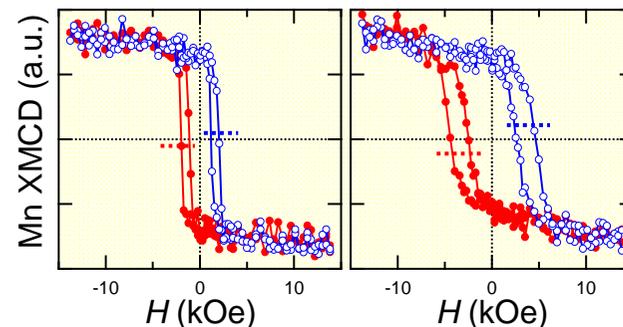
非補償スピンの発現メカニズムの検討
界面スピ構造が交換磁気異方性に与える影響の明確化



反強磁性非補償スピ中の **pinned**成分
(\propto vertical offset)が J_K^{in} に比例

$$\gamma\text{-Mn-Ir/Co}_{70}\text{Fe}_{30} \quad L1_2\text{-Mn}_3\text{Ir/Co}_{70}\text{Fe}_{30}$$

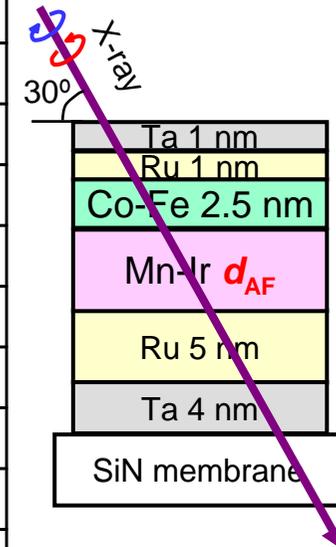
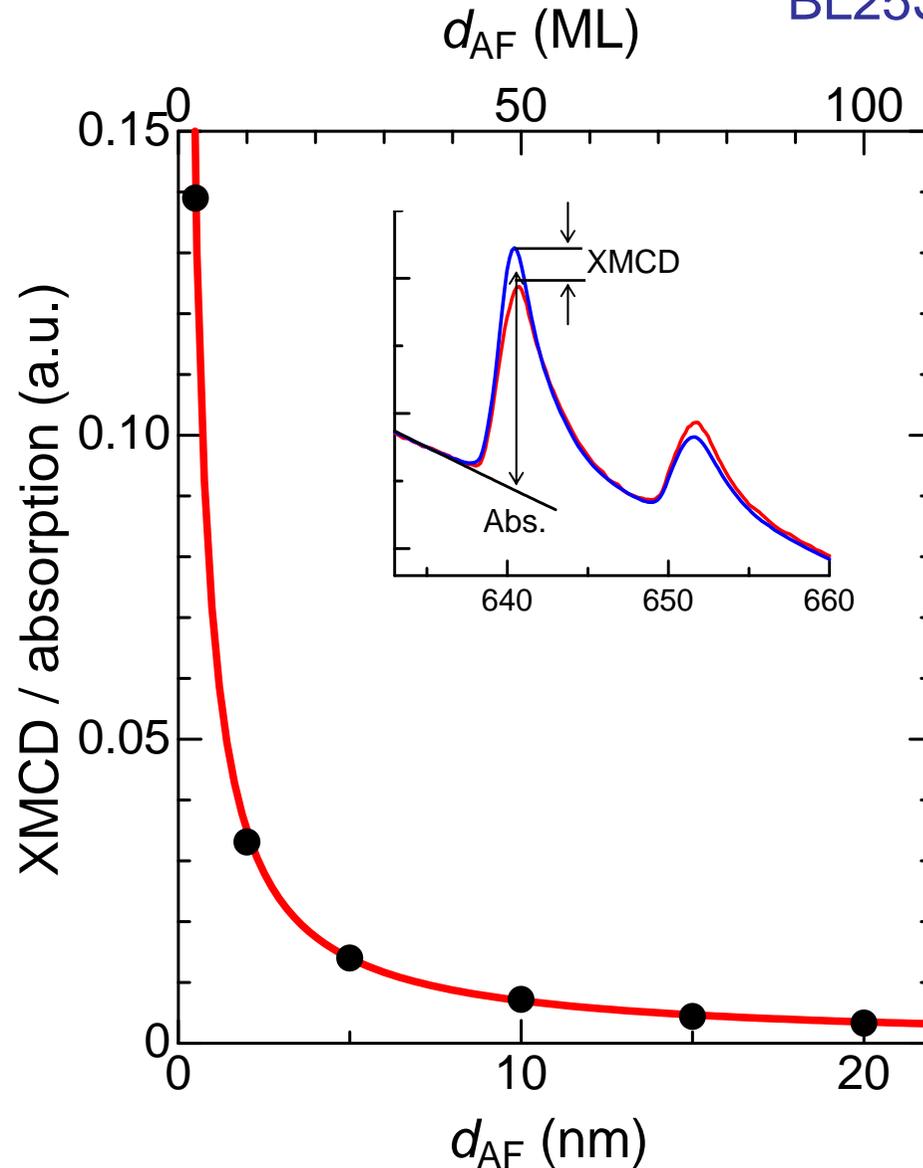
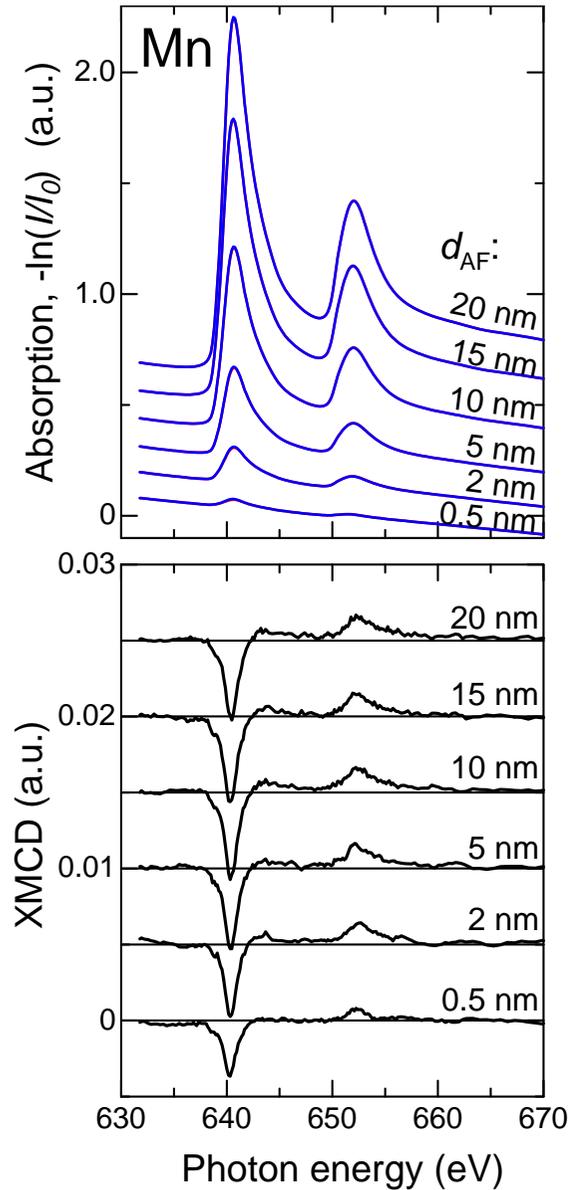
$$J_K^{in} = 0.55 \text{ erg/cm}^2 \quad J_K^{in} = 1.18 \text{ erg/cm}^2$$



Pinned成分 (\propto vertical offset)
は存在しない。

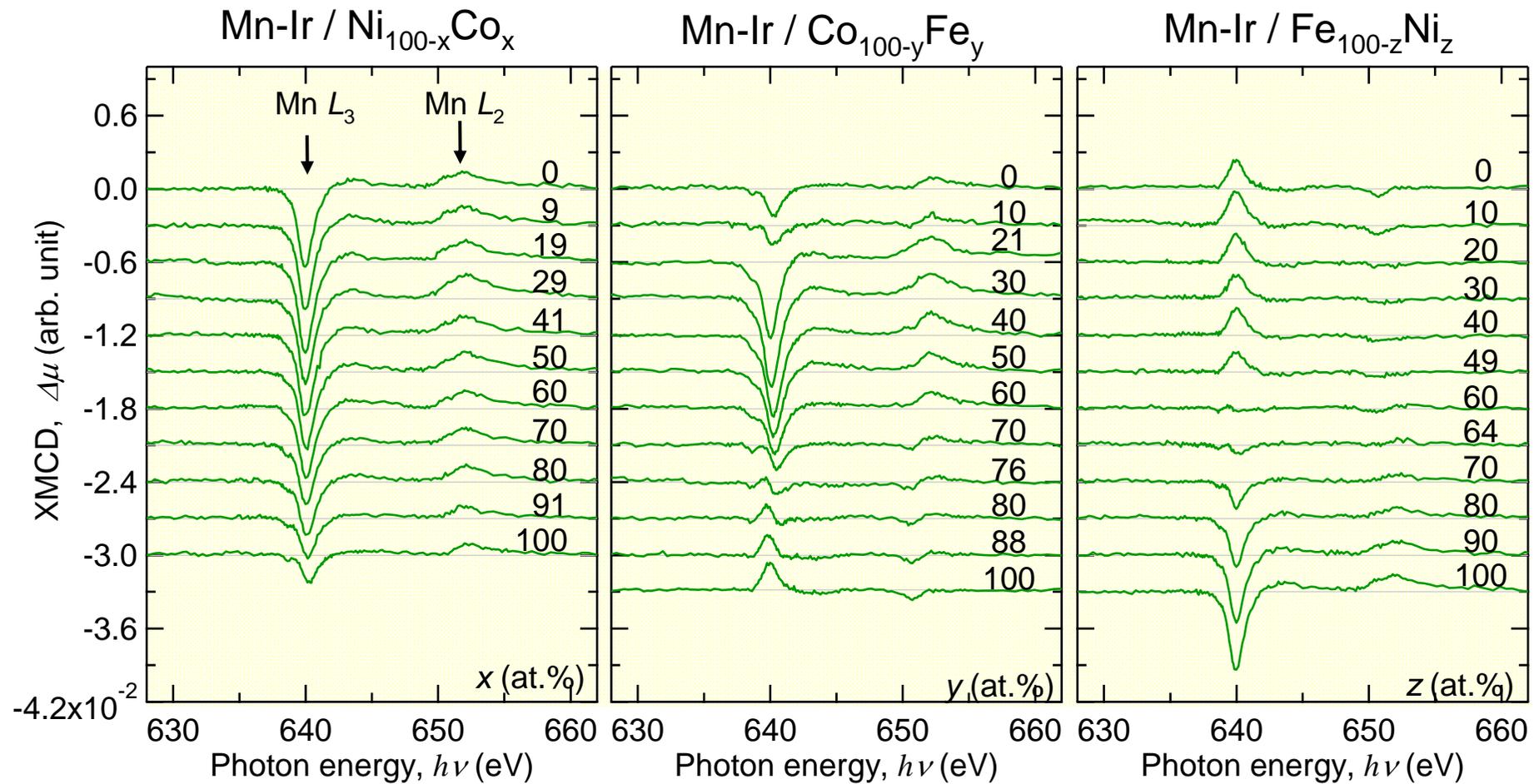
AFM layer thickness dependence of XMCD

BL25SU in SPring-8





Transmission XMCD of Mn-Ir / Fe-Co-Ni

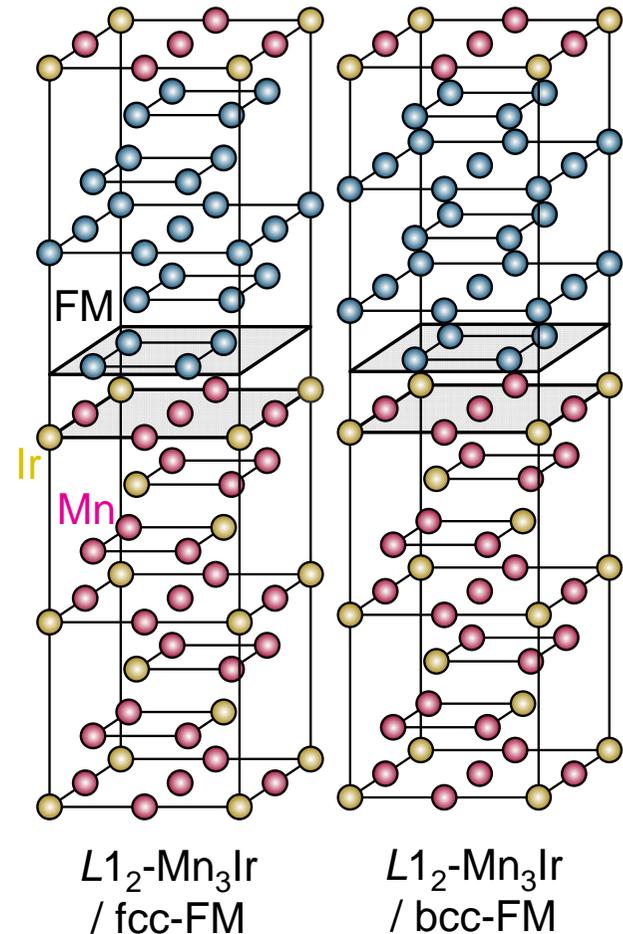
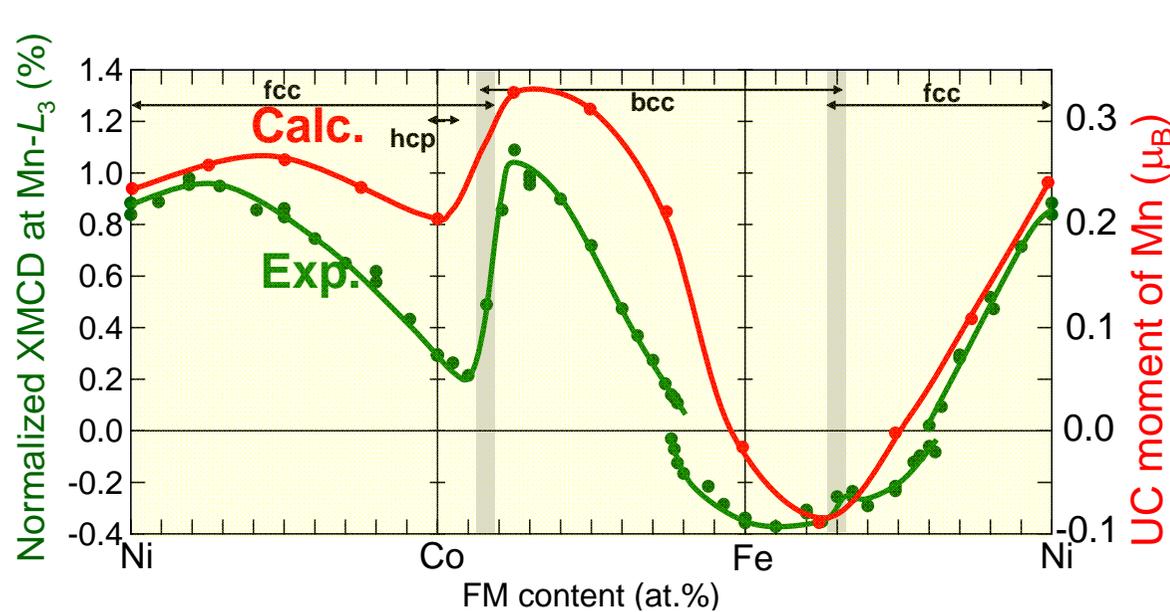


ピーク強度変化

ピーク強度, 符号変化

ピーク強度, 符号変化

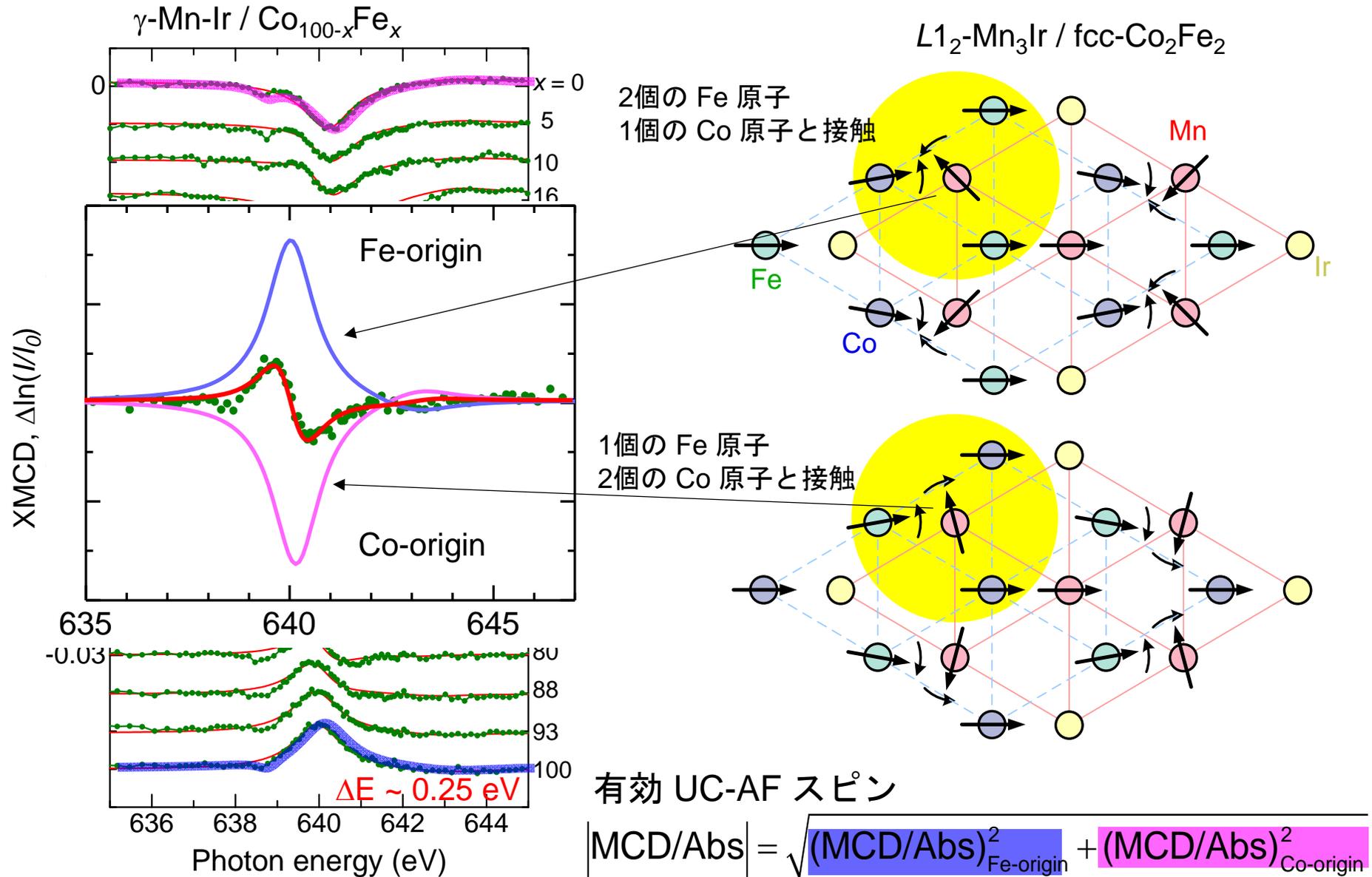
Mn非補償スピンの FM 層組成依存性



第一原理計算

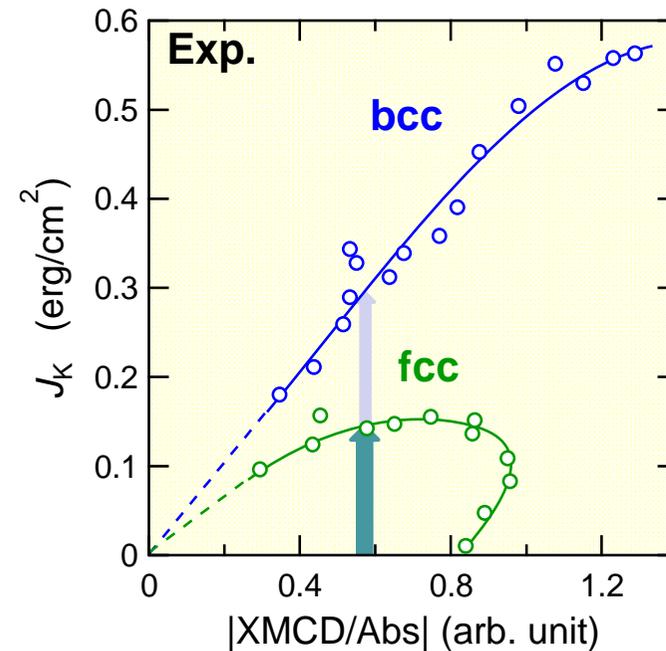
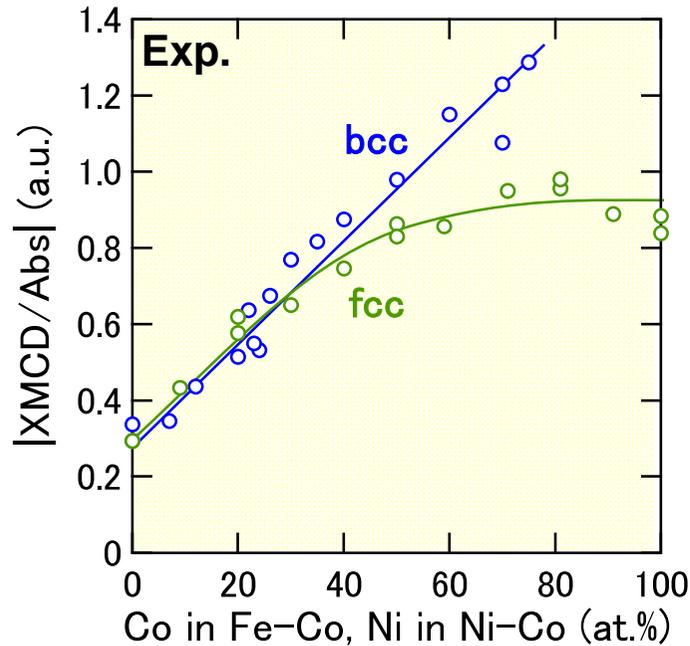
- ・ AF スピンが傾くことで非補償スピンの生成 (calc.)
- ・ 非補償スピンは界面の極数層にのみ存在 (calc.)
- ・ bcc-fcc の相境界で Mn MCD が変化
 ⇒ FM 層の結晶構造が非補償スピンの影響
- ・ FM 組成で非補償スピンの符号が変化
 ⇒ Mn 非補償スピンと
 { Fe moment は反平行結合
 { Co, Ni moment は平行結合

Fine structure of Mn-MCD spectrum





非補償反強磁性スピンと J_K の比較



bcc-FM: Co 組成増加に伴い有効非補償スピン増加

J_K と有効非補償スピンの正の相関

fcc-FM: J_K と有効非補償スピンは対応しない

MCD (~界面スピン構造) が等しくても J_K が大きく異なる



FM 結晶構造で変化する他の要素が
交換磁気異方性を決めている



古典的ハイゼンベルグモデルによるAFM/FM 積層膜のスピン構造計算



Mn-Ir / FM 積層膜の反強磁性層のスピ構造と交換磁気異方性 (計算モデル)

Model Hamiltonian

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{1ij} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \rangle - \sum_{\langle i,k \rangle} J_{2ik} \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_k \rangle - \sum_i D_i \langle \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{n}_i \rangle^2 - g\mu_B \sum_i \langle \mathbf{H}_{app} \cdot \mathbf{S}_i \rangle$$

J_{1ij}, J_{2ik} : Exchange constants (1st or 2nd nearest)

*FM-AF spin 間の交換結合

$J_1^{interface}$: 0 ~ J_1

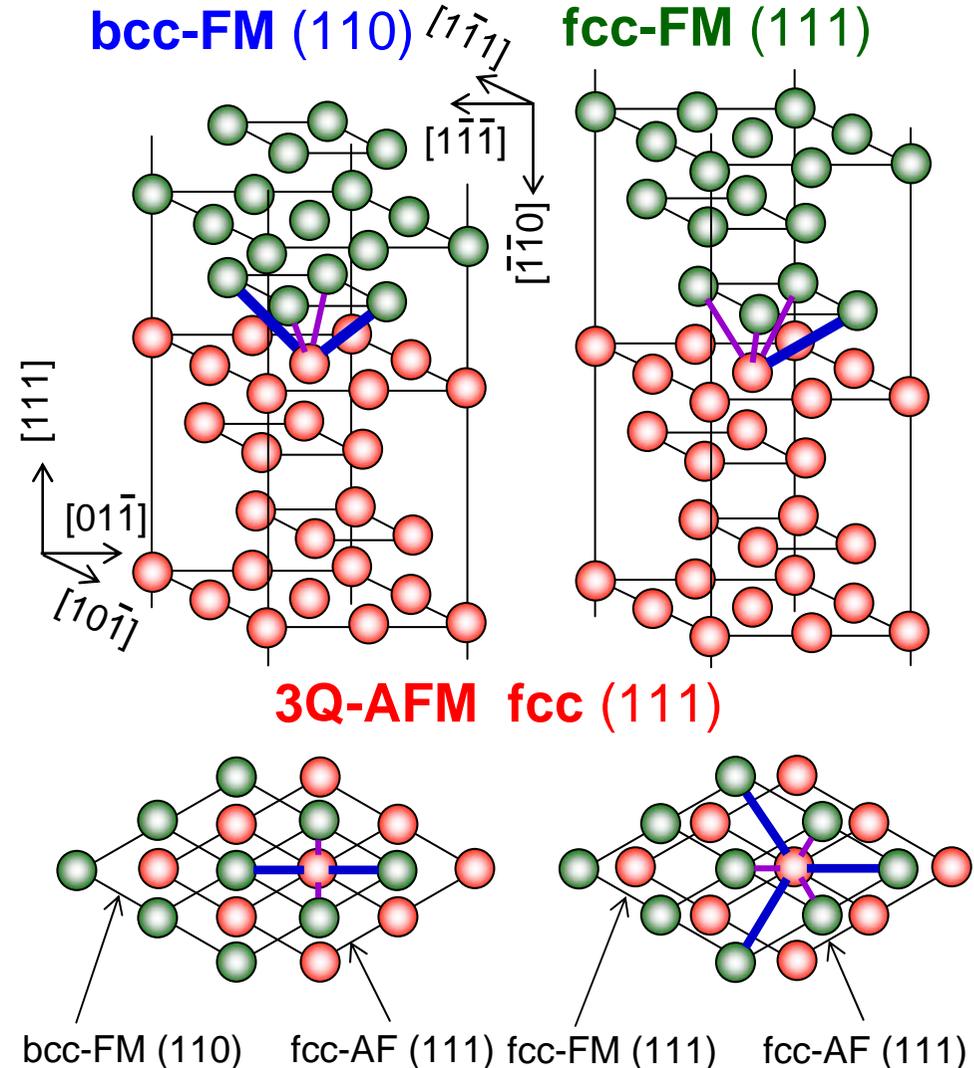
$J_2^{interface}$: 0 ~ J_2

D_i : Single spin anisotropy energy

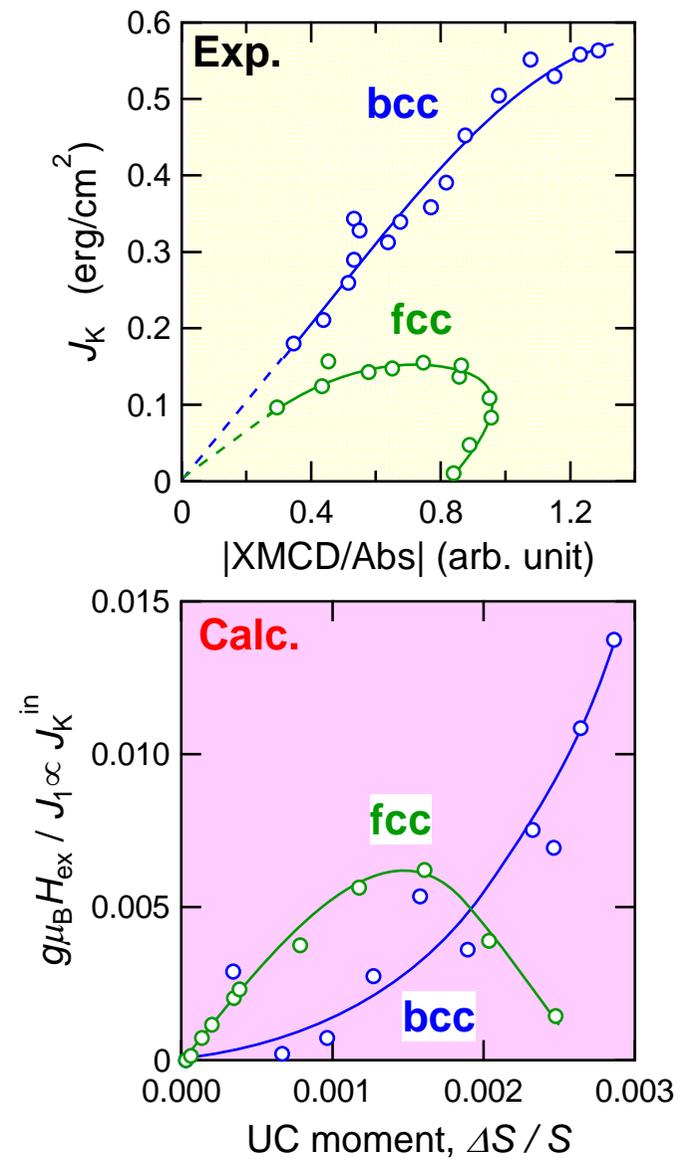
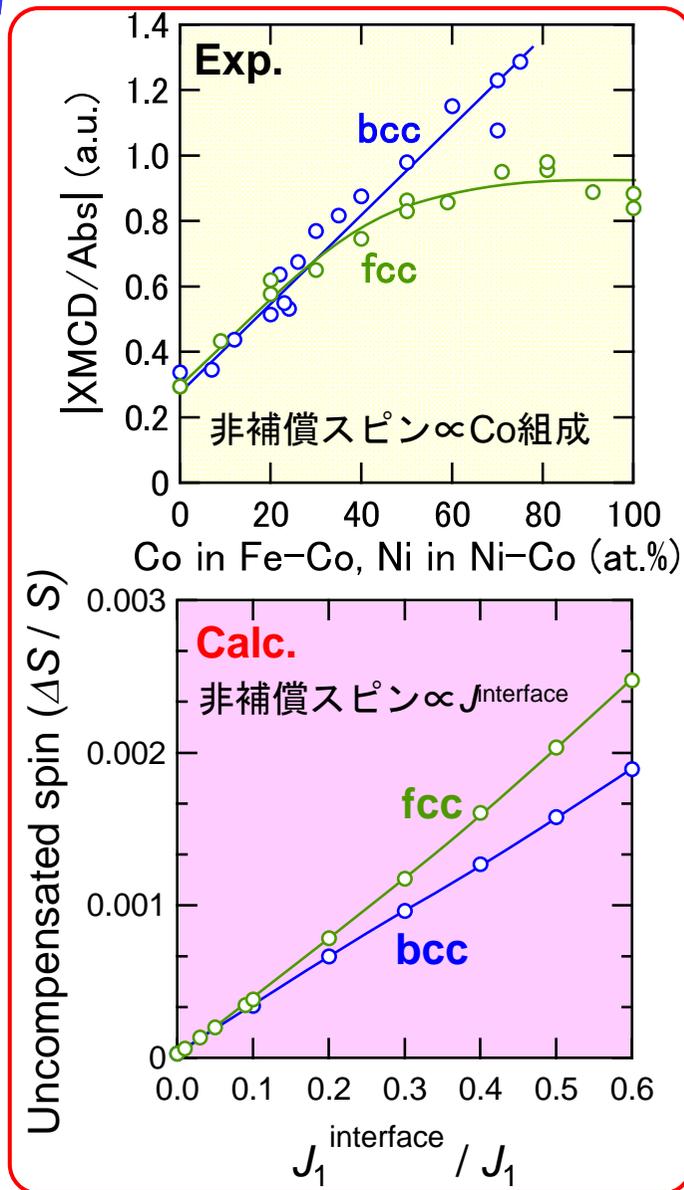
\mathbf{H}_{app} : Applied field

FM layer thickness : 9 MLs

AFM layer thickness : 60 MLs



γ -Mn-Ir/FM界面の交換積分と非補償反強磁性スピン

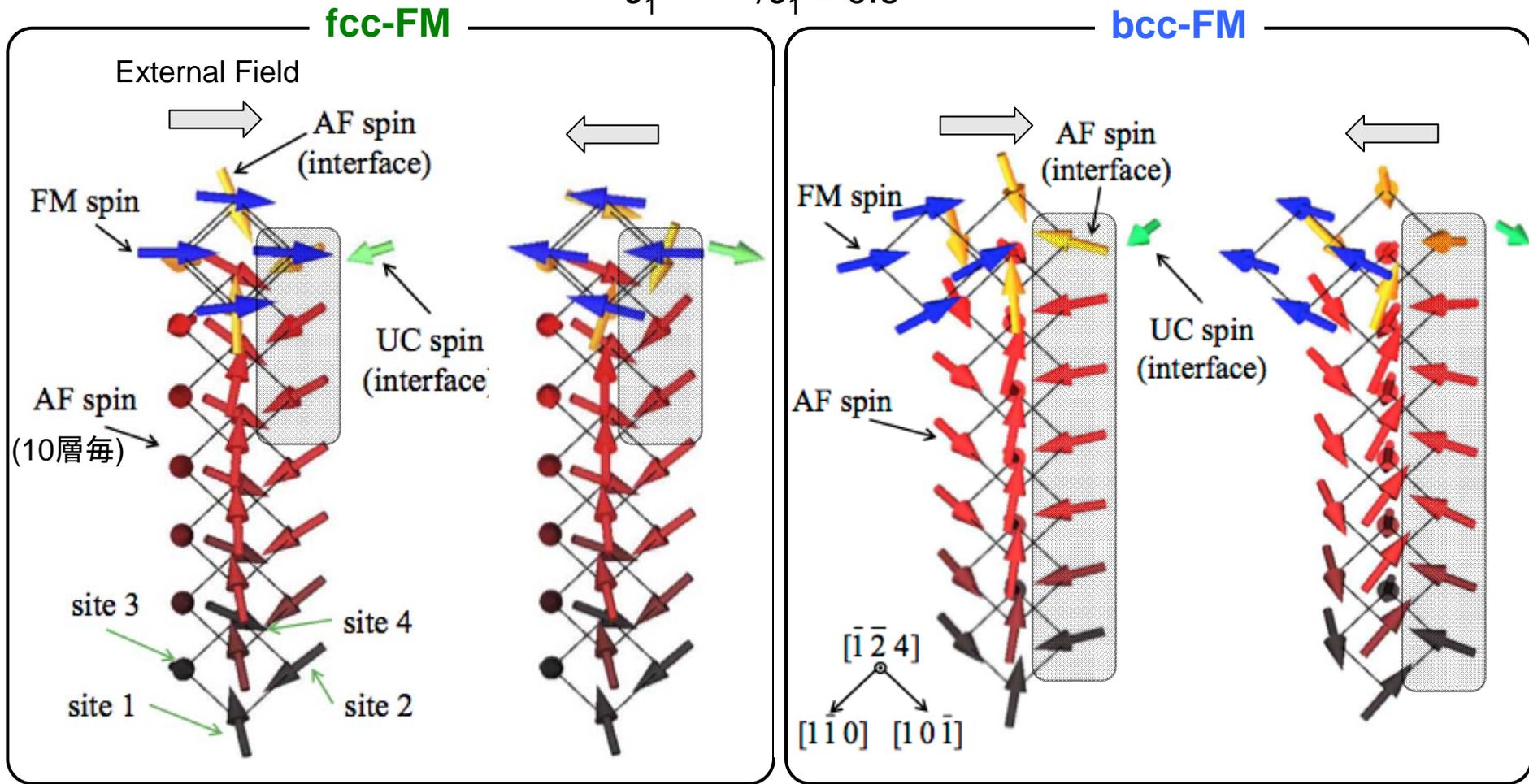


Co 組成増加 (bcc) \Rightarrow $J^{\text{interface}}$ 増加 \Rightarrow UC spin 増加

C. Mitsumata et al., *EPL* **99**, 47006 (2012).

γ -Mn-Ir/FM積層膜の反強磁性層スピン構造

$$J_1^{\text{interface}}/J_1 = 0.6$$



bcc-FM: FMスピンの方向によってAFMのスピン構造が大きく変化
AF 内部までスピンのねじれが誘導される

まとめ

Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層膜の交換磁気異方性

- ・ FM 層の結晶構造・組成が交換磁気異方性に影響
- ・ Co-rich **bcc-FM** で大きな J_K

Mn-Ir / Fe-Co-Ni 積層界面の非補償スピン

- ・ 非補償スピンは AFM / FM 極界面数層にのみ存在
- ・ 非補償スピンは AF スピンが傾くことで生じる
- ・ FM 層の結晶構造・組成が
非補償スピンの大きさ・符号に影響

非補償スピンと面内交換磁気異方性の相関

- ・ **bcc-FM**: J_K と $|XMCD/Abs.|$ との間に正の相関
- ・ **fcc-FM**: 単純な相関は認められない

3Q-AFM / bcc-FM, fcc-FM 積層膜のスピン構造計算

- ・ 非補償スピンの大きさは界面の交換積分 $J^{\text{interface}}$ に対応
- ・ **bcc-FM**: **FMスピン反転で大きなAFMスピンのねじれ構造**
- ・ **fcc-FM**: 界面付近にわずかなAFMスピンのねじれが誘起

