

論文の内容の要旨

論文題目 制御層導入による金属多層膜の構造制御と物性に関する研究

氏名 千早 宏昭

近年の薄膜作製技術の進歩に伴い、物質を原子レベルまで薄膜化することで多くの新しい物性や機能が発見されている。薄膜或いは多層膜の研究は、今や科学技術における主要な研究分野の一つになっている。金属多層膜は磁性分野とのつながりが大きく、ハードディスク装置の記録密度向上に貢献し続けてきた。近年、ますます大きくなっている超常磁性限界の問題を克服するためには、磁気ヘッド側の感度の向上やヘッド自身の小型化、及びヘッド自身の超常磁性対策が今後ますます重要となる事は間違いない。

金属多層膜を用いた磁気ヘッド材料の特性向上のためには、主に2種類のアプローチがある。まず、一つは結晶構造制御である。金属多層膜に見られる諸磁気現象は、異種界面での価電子同士の相互作用、或いは伝導電子の界面或いは磁性層内での散乱等がその根本となっている。従って、多層膜の配向面や界面構造等がそれら諸現象の特性と密接に関わっている事は想像に難くない。

もう一つのアプローチとは、磁気構造の制御である。巨大磁気抵抗効果に代表されるような伝導現象では、多層膜内部のスピン配列等がスピン依存散乱を制御すると考えられるため、多層膜の磁気構造制御、即ち内部のスピン配列を制御することができれば、結晶構造制御と同様に、あるいはより直接的な形で物性向上に寄与することが可能であろう。このような結晶構造及び磁気構造の制御は金属多層膜を実用基幹材料として発展させるための両輪であり、それぞれが重要な役割を担っていると言える。

本研究の目的は、多層膜の構造制御により磁気特性を向上させ、スピントロニクス分野の発展に貢献することである。具体的には、①シーディッドエピタキシー法及び層間反強磁性的結合を促すRu層を用いる事により金属多層膜の結晶構造及び磁気構造制御を行い、これらの構造制御が巨大磁気抵抗効果及び垂直磁気異方性に与える効果について知見を得ることにより、また、②シーディッドエピタキシー法のメカニズムについて考察し、同手法の実用化に向けて提言を行うことにより、更なる磁気記録密度の向上のための一助となることを目的とした。

本論文は全六章で構成されており、内容は以下の通りである。

第一章では金属磁性薄膜・多層膜の研究の歴史について、主に磁気記録装置（ハードディスク）との関わりに焦点を当て概観した。

第二章では、本研究で用いた試料作製手法及び構造・組成解析手法の基礎知識について解説を行った。

第三章以降は本研究の結果である。まず、第三章では、巨大磁気抵抗効果を示すことで知られているCo/Cu多層膜に対してTiシード層を用いて構造制御を行い、Tiシード層厚の変化が与える影響について考察を行った。

第四章では、Coシード層を用いることによりCo/Pd多層膜の構造制御を行い、シーディッドエピタキシー法の適用がCo/Pd多層膜に与える影響について研究を行った。また、TEM及びEELSを用いて基板-薄膜界面における結晶構造及び電子状態について詳細な解析を行い、シーディッドエピタキシー法のメカニズムについての知見を得ることとした。

第五章は、多層膜の結晶構造制御による物性向上を目的としたものではなく、多層膜内部の磁気構造制御による物性向上を目指したものである。Ru層を用いて垂直磁気異方性多層膜の磁気構造制御を行い、磁気抵抗率の変化に与える影響について研究を行った。

第六章は本研究の総括である。一連の研究結果に基づき、金属多層膜の構造制御と物性に関して議論した。

本研究で得られた知見を以下にまとめる。

[シーディッドエピタキシー法を用いた結晶構造制御]

Tiシード層を用いた場合、Tiシード層厚の増加に伴いCo/Cu多層膜の配向がfcc(001)配向からfcc(111)配向へと崩れる事をOut-of-plane XRD測定及びIn-plane XRD測定の結果より確認した。配向の変化が生じ始めるTi層厚は約40Å近傍であった。Ti層のピークを観察した結果、Cuバッファー層の構造変化はTi層自体がhcp(0001)配向へと構造変化する事に起因するものであることが確認されたが、この時のTi層の配向はMgO[100]方向に対して±15°の相対角度を示しており、Discommensuration lineの発生により歪みを解放するメカニズムによって説明がつくことが分かった。

作製したCo/Cu多層膜に対して抵抗率測定を行った結果、Ti層厚の増加に伴う構造変化と共にMR比はほぼ単調増加的な傾向を示した。一方、MR比の大きさを表す指標として良く用いられる反強磁性率はMR比のような単調増加的な傾向は示さず、むしろ配向面の変化の際には減少した。このような傾向の違いについては界面構造・配向面からは説明できない。一方、下地層の抵抗率の測定結果からシャント効果の影響が考えられ、二流体モデルを試料のシャント効果の見積もりに適用したところ、導出されたMR比の式はTi層厚が80Å以下程度の実験結果を定性的に説明できた。以上の考察により、Tiシード層の効果として配向

面の制御・界面構造の制御以外に、シャント効果の低減によるMR比の向上効果を加え、シーディッドエピタキシー法をより簡便で有効な物性向上のための制御手法として位置付けることができた。

次に、Co/Pd多層膜に対してCoシード層を用いて構造制御を行った結果、シード層を用いずに作製した試料と比較してPdバッファ層の面内配向性が向上し、表面平坦性についてはRMSラフネスを1/10程度にまで抑制する事に成功した。これら二種類の試料に対して界面の詳細な解析を行った結果、Coシード層を用いた場合にのみ基板表面における酸素原子とのd-p軌道混成による相互作用を実験的に確認した。一方、Pd層の場合はd軌道が閉殻であるためそのようなd-p相互作用は見られず、基板との相互作用は薄膜内部に分極を生じることによる静電的な相互作用と考えられた。基板とCo層との間に生じたd-p混成軌道は酸素の $2p_z$ 軌道とCoの $3d_{(3z^2-r^2)}$ 軌道との間に生じるものと考えられるため、膜垂直方向へ方向性を持った結合が生じていると言える。このような、方向性を持った結合によりCo原子の基板上の位置をより強く決定できると考えられる。

作製したCo/Pd多層膜は、Coシード層を用いることで垂直磁気異方性定数が向上することが分かり、主に平坦性向上による界面結晶磁気異方性の向上によるものと結論付けられた。一方、シード層を用いた場合は保持力 H_c 及び残留磁化 M_r が共に減少していた。この原因としては、下地層の構造制御による多層膜内部の構造欠陥の減少が挙げられる。従って、シーディッドエピタキシー法により作製したCo/Pd多層膜はむしろ磁気感度が求められる磁気センサーとしての用途が適していると考えられ、本研究によりシーディッドエピタキシー法の実用化に向けた方向性が提言された。

[Ru層を用いた磁気構造制御]

Co/Pd及びCo/Au多層膜に対するRu層の挿入効果について、Ru層厚及び積層回数を変えた場合の影響について評価し、考察を行った。

Co/Pd多層膜にRu層を用いた試料に対して得られた磁化曲線の変化から、Ru層を用いることにより、多層膜内部の小多層膜同士が反強磁性的に結合している事が分かった。磁化曲線を詳細に解析した結果、本研究では磁化反転の挙動が従来のものとは異なっている事が判明した。即ち、磁場の印加と共に小多層膜内部に反強磁性的な磁化配列が生じ、それが最終的にCo/Ru/Co部分での磁化回転と共に飽和するというモデルである。実際に、Ru層数及びCo/Pd多層膜の積層回数を変化させて作製した試料から得られた磁化曲線を解析することにより、本研究で推測する磁化反転のモデルは妥当であると結論付けた。このような従来とは異なる磁化の変化と、内部に反強磁性的な磁化配列が生じる現象が、本研究の特色である。この推測は、抵抗率測定においても裏付けられた。Co/Pd多層膜に対してRu層を

用いた場合、Co/Pd多層膜のみでは現れなかった磁気抵抗効果が発現したのである。従来の報告と抵抗率変化を比較することにより、本研究と従来の研究が異なる点は小多層膜内部の結晶構造と推測され、界面の平坦性及び相互拡散を制御することが本研究で見られた抵抗率変化を発現する鍵であると考えられる。

一方、Co/Au多層膜に対してRu層を用いた場合はRu層を用いずに作製したCo/Au多層膜に比べて抵抗率変化が減少した。測定結果を詳細に見ると、飽和磁化の前後で異なる抵抗率変化の挙動が観察された。飽和磁化以前の傾向はCo/Pdと同様に多層膜内部の反強磁性的磁化配列によるものと言える。一方、飽和磁化以後での抵抗率の挙動についてはRu層による層間結合の効果ではなく、単純にRu層が存在することによるものと言える。従って、この時の抵抗率変化の原因としては、Co/Ru界面で多数スピンの散乱されるために（仮束縛状態）、飽和後の抵抗率の減少にその散乱による抵抗率増加分が足し合わされたと考えられる。このように、Co/Au多層膜の場合には磁気抵抗効果の向上は見られなかったが、Ru層挿入による抵抗率変化への寄与についてより詳細に考察することができた。本手法を用いることにより、その他の垂直磁気異方性多層膜における磁気抵抗効果についても評価することが可能と考えられる。