

強磁性体薄膜中に挿入した Cu 層のスピンの分極変化

Change of spin-polarization in Cu inserted layer into ferromagnetic thin films

平田京^a, 原晋治^a, 島沢幸司^a, 柳内克昭^a, 野口潔^a, 磯上慎二^b, 角田匡清^b, 中村哲也^c
Kei Hirata^a, Shinji Hara^a, Kouji Shimazawa^a, Katsuaki Yanagiuchi^a, Kiyoshi Noguchi^a,
Shinji Isogami^b, Masakiyo Tsunoda^b, Tetsuya Nakamura^c

^aTDK 株式会社, ^b東北大学大学院工学研究科電子工学専攻, ^c高輝度光科学研究センター
^aTDK corp., ^bDept. of Electronic Eng., Grad. School of Eng., Tohoku University, ^cJASRI

Cu 非磁性層を FeCo 強磁性層中に薄く挿入した FeCo/Cu 多層膜について、Cu 層に誘起されるスピンの分極と多層膜積層構造との相関について XMCD 測定を用いて調べた。Cu 層厚の増加に伴い Cu-L₃ 吸収端の XMCD スペクトル強度は上昇するが、全膜厚の増加分に比べて鈍く、薄い Cu の挿入が分極を増強するために効果的であることが示唆された。FeCo 厚が 0.5 nm と非常に薄い場合、Cu 原子の分極量は FeCo 厚が 1.0 nm 以上の場合と比較して減少した。

We investigated the influence of multilayer structure of FeCo and Cu on Cu polarization by XMCD measurement. The absolute intensity of XMCD spectrum of Cu-L₃ edge increased by increasing inserted Cu layer thickness, however, the increment of XMCD spectrum was insensitive even though that have larger Cu atom amount. Thus, the thinner Cu insertion into FeCo seems to be effective to increase the polarization of Cu. The Cu polarization was decreased with 0.5 nm FeCo thickness compared to above 1.0 nm FeCo thickness.

背景と研究目的

ハードディスクドライブの高密度化に伴い、薄膜磁気ヘッドの性能向上が要求されており、信号再生用の磁気抵抗効果素子としては膜面垂直方向に通電し動作させるタイプの CPP (Current Perpendicular to the Plane)構造を持った GMR(Giant Magnetoresistive)素子が次世代の有力な候補として挙げられている。下部電極上に、バッファ層、反強磁性層、反強磁性層により磁化方向が固定されるピンド層、非磁性中間層、外部磁場に応じ磁化方向が自由に变化するフリー層、上部電極を順次積層して構成された、いわゆるスピンバルブがこの CPP-GMR 素子の代表的な構造となっている。CPP-GMR は非磁性中間層が金属であり、本質的に素子抵抗が低く、高周波応答性の向上やショットキー雑音の低減による SN 比の向上等、将来的なヘッド素子の微細化を考えた場合に大きなメリットとなる。しかしながら、同じく CPP 構造を持つ TMR (Tunneling Magnetoresistive)素子に比べ磁気抵抗 (MR: Magnetoresistance)比が低く、再生出力が低いため、MR 比の更なる向上が渴望されている。

CPP-GMR 素子において実際に MR 発現を担うのはピンド層とフリー層であるが、Co, Fe, Ni 等

の組み合わせで構築されることが一般的であり、その改善による具体的な MR 比向上手法の報告は数少ない。その中の 1 つに、非磁性体である Cu を強磁性体中に薄く挿入することにより MR 比を向上させる技術がある[1,2]。磁性体中に挿入した Cu 原子の分極状態を見積もるためには、XMCD (X-ray Magnetic Circular Dichroism)測定が有効である。XMCD 測定は内殻電子吸収法(XAS: X-ray Absorption Spectroscopy)の一種であり、円偏光を入射し吸収スペクトルの円二色性を測定することにより、各元素の特定と、電子の軌道を選択したフェルミ準位近傍のスピン依存電子状態の直接的な情報が得られる。前回報告[3]では、様々な非磁性材料を FeCo 中に挿入した場合の非磁性材料の分極と、実際に試作した CPP-GMR 素子の MR 比、第一原理計算によるバンド構造の解析を組合せ、Cu が MR 比を増強するための適した材料となる可能性があることを報告した。

本課題では、Cu 挿入厚と母材である FeCo の膜厚比を変化させることで最適な Cu 挿入厚と FeCo 膜厚を調べ、Cu の分極メカニズムの解析と CPP-GMR 膜の設計指針を得ることを目的とした。

実験

XMCD測定はSPring-8, BL25SUの電磁石MCD装置を用いて行った。Ta (1.0 nm) / Ru (2.0 nm) / $[\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}(x)/\text{Cu}(y)]z$ / $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}$ (1.0 nm) / Ru (2.0 nm) / Ta (1.0 nm) の多層膜を窒化シリコンメンブレン基板の上にスパッタ法によって堆積させ、透過法にて XAS 及び XMCD 測定を行った。なお、FeCo 膜厚 x , Cu 膜厚 y , 積層回数 z の値は Table 1 に示した。

軟 X 線波数ベクトルと電磁石磁界の方向には 10° の伏角があり、試料面から測った印加磁界の方向は 20° 、軟 X 線波数ベクトルの方向は 30° とした。なお、測定は室温にて行った。

Table 1 Sample configuration of the experiment

サンプルNo.	FeCo厚み, x(nm)	Cu厚み, y(nm)	積層回数, z
0	10	-	-
1	1.0	0.3	9
2	1.0	0.25	9
3	1.0	0.2	9
4	1.0	0.15	9
5	1.0	0.1	9
6	1.5	0.3	6
7	0.5	0.1	18

実験結果及び考察

1) Cu 挿入膜厚と XMCD スペクトル強度の関係

Cu 挿入膜厚に対する Cu 分極の変化を調べた。Fig.1 に、積層回数と FeCo 厚を 1.0 nm 一定とし、挿入 Cu 厚だけを変化させたサンプル No.1~5 の Cu の L_3 吸収端での規格化した XMCD スペクトル強度の絶対量、並びに Cu の単位膜厚当たりで規格化した XMCD スペクトル強度を示す。Cu 厚 0.2 nm のサンプル No. 3 を 1 として規格化した。これより、Cu 挿入厚が増加するに従って Cu- L_3 端の XMCD スペクトル強度は増加した。しかしながら、単位膜厚当たりの XMCD スペク

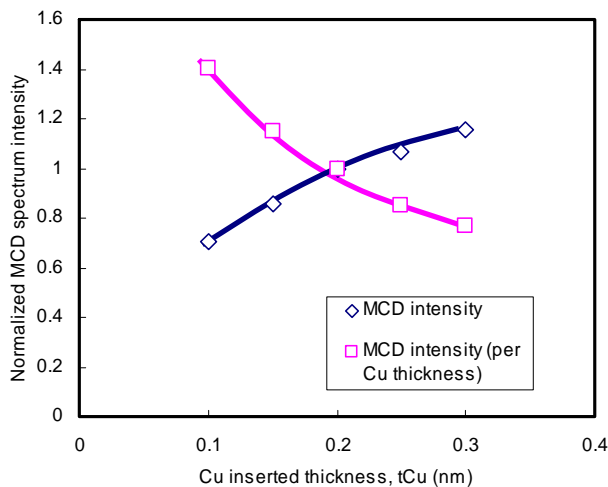


Fig. 1 Thickness dependence of the inserted Cu layer on the intensity of XMCD peak at the Cu- L_3 -edge.

トル強度は Cu 挿入厚が増加するに従って減少し、Cu 挿入厚が最も厚い 0.3 nm では Cu 厚が最も薄い 0.1 nm の 6 割程度まで減少した。また、Cu 厚が増加するに従って XMCD 強度の増加(減少)の割合が小さくなっており、Cu の分極が飽和に近づいていることを示唆している。このような Cu 厚と XMCD 強度の関係が得られた要因は、Fe 又は Co の近接効果によって、FeCo に隣接している Cu 原子は分極し、そうでない Cu 原子は分極していないためであると考えられる[4]。ここで、実際のスパッタ膜の膜成長過程を考えると、0.5 nm 以下の極薄領域では、スパッタ膜は膜成長初期過程であるため、層状ではなく島状に成長することが知られており[5]、Cu 原子は FeCo 表面上にクラスター状に分散して存在していると考えられる。Cu 層厚を 0.1 nm と薄く堆積させた場合は、FeCo が Cu を包み込むようになるため、FeCo 表面上に存在する Cu 全体が分極する。Cu 厚が 0.3 nm の場合は Cu の島が大きくなり、Cu 表面だけが分極するため、FeCo に隣接しない Cu 原子が存在し、その原子は磁気的に分極しない。よって、単位膜厚当たりの XMCD スペクトル強度が Cu 膜厚の増加に伴い減少したと考えられる。XMCD スペクトル自体の強度増加は、FeCo に接する Cu 原子の絶対量が増加したためであると考えられる。

2) FeCo 膜厚と Cu 分極量の関係

母材である FeCo の膜厚と Cu の分極の関係をサンプル全膜厚 10 nm 一定として、FeCo 厚と Cu 厚並びに積層回数を変化させたサンプル No. 3, 6, 7 を用いて調べた。Sum rule を用いて全電子収量法によって得られた XMCD スペクトルから求めた軌道・スピンモーメント量 M_L , M_S を Table 2 に示す。Sum rule による計算は、Samant らの論文[4]を基に計算を行った。これより、Cu 厚が薄い方が単位膜厚当たりの分極が増加していた 1) の結果と異なり、Cu 挿入厚 0.1 nm + FeCo 厚 0.5 nm のサンプル No. 7 で M_S の値は最小となった。この原因を解析するため、X 線回折法(管球: Cu, K 線)による結晶構造解析を試みた。

Fig. 3 に、熱酸化 Si 基板の上に堆積したサンプル (No. 0) の X 線回折ダイアグラムを示す。FeCo 厚に対して X 線回折強度が最大となる FeCo(110) 面の回折ピーク位置は、図中の破線で示したよ

Table 2 M_S and M_L values of samples No. 3, 6, and 7 estimated by magneto optical sum rules.

サンプルNo.	FeCo厚み (nm)	Cu厚み (nm)	M_L (μ_B)	M_S (μ_B)
6	1.5	0.3	0.001	0.051
3	1.0	0.2	0.005	0.086
7	0.5	0.1	0.011	0.032

うに Cu 厚が薄くなるに従って僅かに高角側へシフトしており、格子定数が変化していた。この原因は、FeCo 層厚を薄くして Cu の挿入回数を多くしているため、FeCo の格子定数が変化したものと考えられる。また、これらのサンプルの飽和磁化を振動試料型磁力計(VSM)によって測定した結果、いずれのサンプルにおいてもほぼ同程度の飽和磁化となり、FeCo のモーメント量が FeCo 厚の薄層化によって大きく減少していないことを確認した。よって、Cu の分極量の差は FeCo の分極状態による近接効果の違いではなく、FeCo 又は Cu の結晶状態に関係していることが示唆された。

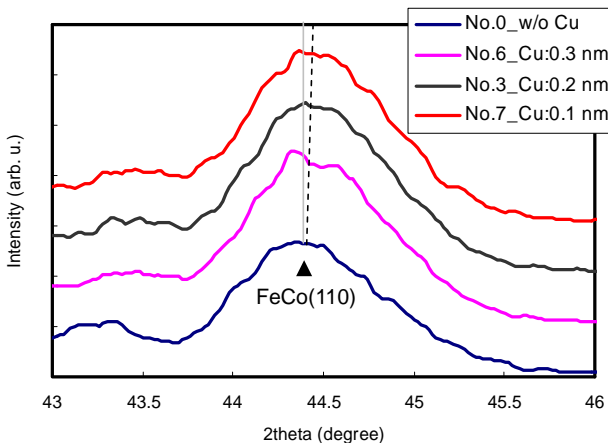


Fig. 3 X-ray diffraction profiles of samples No. 0, 5, 6, and 7. The No.0 is of the sample without Cu insertion.

まとめ

挿入した Cu の膜厚に対する Cu 原子の分極状態と、母材である FeCo の膜厚に対する Cu 原子の分極状態について XMCD 測定を用いて調べた。その結果、FeCo 厚が同じ場合、Cu 層の膜厚が薄い方が単位 Cu 膜厚当たりの Cu-L₃ 吸収端の XMCD スペクトル強度は増加し、その事実から、Cu 原子の分極が増大したことが明らかとなった。Cu 層を薄くすることで、FeCo と Cu の近接効果を最大限に活かし、非磁性元素の分極量を高めることができる可能性が見出された。

また、FeCo 厚と Cu 厚を同時に変化させて Cu 原子の分極量を見積もったところ、FeCo 厚を 0.5 nm まで薄くすると、Cu の分極量が減少することがわかった。X 線回折実験、および、磁化測定の結果も合わせて考慮すると、FeCo 層、または Cu 層の結晶状態が Cu 原子の分極量に影響していることが示唆された。本課題において XMCD 測定によって得られた Cu 原子の分極量と結晶状態の関係の解析については、更なる調査が今後必要である。

以上の結果より、CPP-GMR 素子の MR 比向上のための設計指針として、挿入する Cu 膜厚を薄

くすることが有効であるとの結果が得られた。また、母材である FeCo の結晶状態と Cu の分極が関係しており、Cu 原子の分極をより高めるために、FeCo の結晶状態の制御が必要であるという開発上の指針が得られた。

参考文献

- [1] H.Yuasa *et al.*, J. Appl. Phys., **92**, 2646 (2002).
- [2] S. Isogami *et al.*, phys. Stat. Sol. (a) **204**, 4033 (2007).
- [3] 産業利用課題 利用報告書 2007A1914.
- [4] M. G. Samant *et al.*, Phys. Rev. Lett., **72**, 1112 (1994).
- [5] 例えば、麻蒔立男, 薄膜作成の基礎 第4版 日刊工業新聞社, 東京.