

**TMR, CPP-GMR 薄膜のサブナノオーダー厚さ領域における
磁性体のスピン分極状態解析**
**Analysis of Spin Polarized state on Magnetic Materials of Tunneling
Magneto-resistive (TMR) and Current Perpendicular to Plane
(CPP)-Giant Magneto-resistive (GMR) subnanometer films**

平田京^a, 柳内克昭^a, 石田洋一^a, 土屋芳弘^a, 中村哲也^b
Kei Hirata^a, Katsuaki Yanagiuchi^a, Yoichi Ishida^a, Yoshihiro Tsuchiya^a, Tetsuya Nakamura^b

^aTDK 株式会社, ^b(財)高輝度光科学研究センター
^aTDK corp., ^bJASRI

非磁性中間層に接する FeCo 膜の膜厚依存性、および、MgO、Cu、Ru、それぞれを下地材料とした FeCo/Ni 膜の積層膜における FeCo のスピン分極率と MgO/FeCo/NiFe 積層体中に 1 原子層オーダーの極薄非磁性層 (Ta) を挿入した場合の強磁性体のスピン分極率の変化を XMCD 測定によって調べた。その結果、FeCo の単位膜厚あたりの XMCD 信号強度が異なり、各膜厚において FeCo のスピン分極状態の違いが見出された。また、下地材料によって FeCo の分極状態が異なることが分かり、FeCo の結晶性ないしは界面における原子状態の違いがスピン分極に影響していることが判明した。NiFe 中への非磁性材料の挿入効果は NiFe の結晶化を阻害し、FeCo の bcc 構造を優先的に配向させる効果が見出された。

キーワード： 磁気多層膜、磁気記録、スピンエレクトロニクス、X 線吸収分光 磁気円二色性

【背景と研究目的】

ハードディスクドライブ (HDD) 再生ヘッドにおける高記録密度化には、高 MR 比・狭シールド間ギャップ長・狭トラック幅・低抵抗の 4 つが主に重要な要件となる。TMR 膜または GMR 膜を構成する材料に対しては、高 MR 比と狭シールド間ギャップ長を実現する観点から、薄い膜厚において高い MR 比を示すことが必要となる。これまで強磁性層中に薄く挿入した各種非磁性層 (Ti, V, Cr, Mn, Cu, Mo, Ru, Pd, Ag) の分極状態の解析 [1] と 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を行い [2]、スピン分極状態は隣接する材料と膜厚に依存することが見出された。特に、非磁性中間層 (バリア層・スペーサー層) に接する材料は、MR 比の大小を大きく左右するため、スピバルブ膜を構成するフリー層、特に非磁性中間層と接する材料のスピン分極状態について調べるのが重要である。具体的には、FeCo/Ni (NiFe) 膜を用いて、FeCo の膜厚、非磁性中間層の種類、膜中に極薄の非磁性材料を挿入した膜構成での FeCo のスピン分極状態を解析することである。

この解析には、磁性材料のスピン分極状態を直接観察することのできる、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事により、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。本課題では、TMR/ CPP-GMR 素子のサブナノオーダー領域における強磁性層の分極状態に対する膜厚と隣接材料の影響を見積もり [3] [4]、将来の高密度記録に対応した素子の構築に対する知見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。Table 1 に試料の一覧を示す。Ta (1 nm) / Ru (2 nm) / MgO (1 nm) or Cu (3 nm) / Fe70Co30 (0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1

nm) / Ni (4 nm) / Cap の多層膜と Ta (1 nm) / Ru (2 nm) / MgO (1 nm) / Fe70Co30 (0.4, 1 nm) / NiFe (2 nm) / Ta (0, 0.2 nm) / NiFe (2 nm) / Cap の多層膜それぞれを窒化シリコンメンブレン基板上にスパッタ法によって堆積し、透過法にて XAS 及び XMCD 測定を行った。軟 X 線波数ベクトルと電磁石磁界の方向には 10 度の伏角があり、試料面から測った印加磁界の方向は 20 度、軟 X 線波数ベクトルの方向は 30 度とした。なお、測定は室温にて行った。

Table 1 Sample configuration of the experiment

Sample No.	Buffer	Spacer	Magnetic layer	Cap layer
1	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(0.2)/Ni(4.0)	Ru/Ta
2	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(0.4)/Ni(4.0)	Ru/Ta
3	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(0.6)/Ni(4.0)	Ru/Ta
4	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(0.8)/Ni(4.0)	Ru/Ta
5	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(1.0)/Ni(4.0)	Ru/Ta
6	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(1.0)/Ni(4.0)	Ru/Ta
7	Ta/Ru	Cu(3.0)	FeCo(1.0)/Ni(4.0)	Ru/Ta
8	Ta/Ru	-	FeCo(1.0)/Ni(4.0)	Ru/Ta
9	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(0.4)/NiFe(4.0)	Ru/Ta
10	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(0.4)/NiFe(2.0)/Ta(0.2)/NiFe(2.0)	Ru/Ta
11	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(1.0)/NiFe(4.0)	Ru/Ta
12	Ta/Ru	MgO(1.0)	FeCo(1.0)/NiFe(2.0)/Ta(0.2)/NiFe(2.0)	Ru/Ta

【結果および考察】

はじめに、試料 1~5 を用いて、非磁性中間層に接する FeCo 膜の XMCD 信号の膜厚依存性を調べた。その結果を Fig.1 に示す。L3 吸収端における XMCD 信号強度は、Fe と Co 共に膜厚に対して、二次関数によるフィッティングと最もよく合致した。XMCD 信号強度を FeCo 膜厚で割った単位膜厚あたりの場合も同様であり、FeCo 膜厚が 1 nm 以上と厚くなる場合、若しくは 0.4 nm 以下の原子層オーダーになる場合に単位膜厚あたりの XMCD 信号強度がやや増加しており、各膜厚において FeCo のスピン分極状態が異なる事が示唆された。

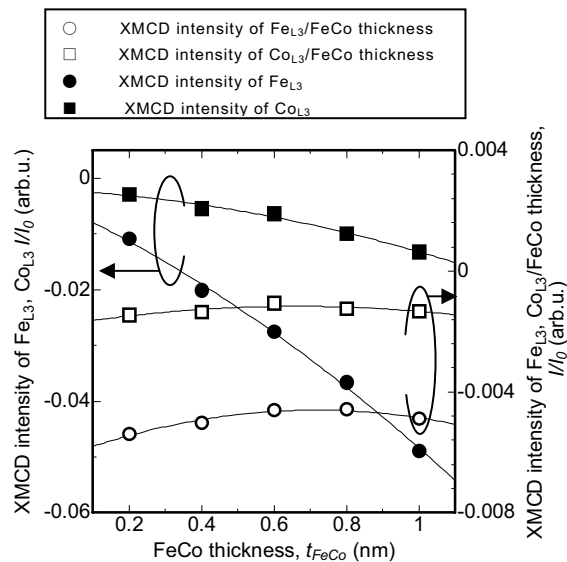


Fig.1 XMCD signal intensity of Fe and Co L3 edge of FeCo/Ni laminated film.

次に試料 6~8 を用いて、非磁性中間層を MgO、Cu または非磁性中間層を取り外した Ru 上に FeCo/Ni 膜を積層し、下地材料による Fe および Co のスピン分極状態を調べた結果を Fig.2 に示す。

MgO 上の Fe および Co が最も負の方向に大きい XMCD 信号を示したのに対して、Cu 上での信号強度は約半分の値、Ru 上では MgO 上の約 8 割の信号強度を示し、下地材料によってスピン分極状態が異なることが分かった。体心立方 (b.c.c.) 構造である FeCo と、各下地材料との格子定数とのミスフィットをバルク状態での格子定数を基に計算すると、NaCl 構造 MgO (100) 面に対して+3.8 %、f.c.c.構造の Cu (111) 面に対して-10.9 %、六方最密充填 (h.c.p) 構造の Ru (0001) 面に対して-5.1 %となり、ミスフィットは Cu が最も大きい結果となった。

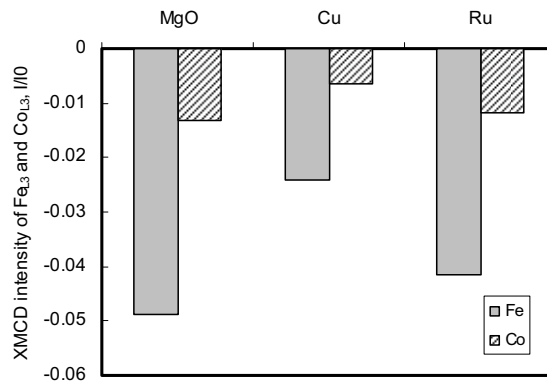


Fig.2 XMCD signal intensity of Fe and Co L3 edge with various under layer material.

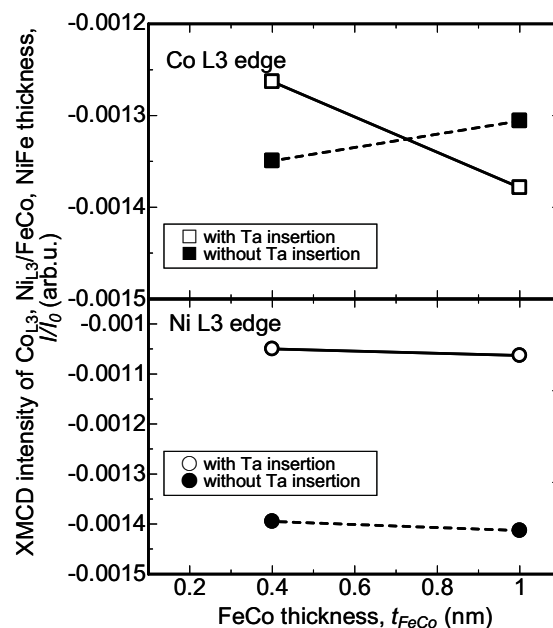


Fig.3 XMCD signal intensity of Co and Ni L3 edge of FeCo/NiFe laminated film with and without Ta insertion.

これより、FeCo のスピン分極状態は隣接する材料の結晶構造に強く依存する可能性が示唆された。Fig.1 で示した FeCo の膜厚依存性の結果も含めて考察すると、FeCo が原子層オーダーの薄い場合と 1 nm 以上の厚い領域において、スピン分極率が大きくなる傾向を示した。FeCo 上に積層されている f.c.c.構造の Ni とのミスフィットは-12.9 %で、Cu よりも大きいミスフィット率であった。FeCo 厚みが 1 nm 以上の領域では、FeCo は自身の膜厚に

よる自己組織化によって結晶性を高めることができるが、FeCo厚が0.4 nmよりも厚く1.0 nmよりも薄い領域では積層されている厚いNiによってFeCo自身の良好な結晶性が実現できず、スピン分極率の低下を招いている可能性がある。ただし、FeCoが0.4 nm以下の原子層オーダーの薄い領域では、FeCoの結晶は下地材料であるMgOの結晶構造に強く影響されるため、スピン分極状態が増加に転じると考えられる。

以上の考察を確かめるため、Free層NiFe中にTaを0.2 nm挿入した試料のCoならびにNiのL3吸収端における単位膜厚あたりのXMCD信号強度をFig.3に示す。FeCo厚を0.4 nmとした場合は、Coの分極率はTa挿入ありの場合で低下していたが、FeCo厚1.0 nmの場合は逆に増加していた。NiのXMCD信号強度はTa挿入によって低下しており、挿入側材料であるNiFeの微結晶化が促進され、スピン分極率が低下した可能性がある。FeCo膜厚が0.4 nmの場合は先に述べた理由から、Free層全体の結晶性の低下に伴ってTa挿入ありの場合の分極率が低下を示したが、FeCo膜厚1.0 nmの場合はTa挿入によってNiFeが微結晶化したため、FeCo自身の結晶性が向上した結果、スピン分極率が増加していることを示唆している。

【今後の課題】

Free層を構成するFeCoの膜厚、下地材料、極薄Ta挿入に対するスピン分極状態を調べた。その結果、FeCoの結晶性に対してスピン分極状態が変化している可能性を示す結果が得られた。つまり、高いMR比を得るためには、非磁性中間層と接するFeCoの結晶性の制御が重要であることがわかった。この結果は、TMR膜またはGMR膜全体を薄層化して狭シールド間ギャップ長を実現し、かつ高いMR比を得るための材料設計指針として、非常に重要である。

【参考文献】

- [1] 2007 A 1914 重点産業利用課題報告書
- [2] 2007 B 1914 重点産業利用課題報告書
- [3] 齋藤 真司, 三代川 廣野, 片山 利一, 湯浅 新治, 神野 友之, 花島 幸司, 齋藤 敏明, 鈴木 義茂, 間宮 一敏, 小出 常晴: J. Magn. Soc. Jpn., 29, 463 (2005)
- [4] 黒崎 義成, 長浜 太郎, 湯浅 新治, 鈴木 義茂, 片山 利一: J. Magn. Soc. Jpn., 29, 446 (2005)