

## 強磁性体中に挿入した各種非磁性体の分極と磁気抵抗効果の相関

**Correlation between the polarization and the magnetoresistance of non-magnetic materials inserted into ferro-magnetic materials**

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

<sup>a</sup>TDK 株式会社, <sup>b</sup>東北大学大学院工学研究科電子工学専攻, <sup>c</sup>高輝度光科学研究センター

<sup>a</sup>TDK corp., <sup>b</sup>Dept. of Electronic Eng., Grad. School of Eng., Tohoku University, <sup>c</sup>JASRI

各種非磁性層 (Ti, V, Cr, Mn, Cu, Mo, Ru, Pd, Ag) を強磁性層中に薄く挿入した薄膜試料に対し XMCD 測定を行い、その分極を見積もった。また、一部の前記非磁性体を挿入した CPP-GMR 素子を作製し、分極と MR 比の関係を導出した。XMCD 測定において観測される分極と磁気抵抗効果に相関がある事が判明したが線形の関係はなく、挿入非磁性体におけるフェルミエネルギー近傍でのバンド形状が磁気抵抗効果の発現に大きく影響する可能性が高い事が明らかとなった。

In order to estimate the polarization of the multilayered thin film into which non magnetic layers (Ti, V, Cr, Mn, Cu, Mo, Ru, Pd, and Ag) were laminated, XMCD measurements were performed. Furthermore, CPP-GMR elements with the above-mentioned laminated layers were prepared and the measured MR ratio was compared with their polarization. The two parameters had a correlation, which is not "linear", and it was revealed that DOS near Fermi energy is very important and might raise MR effects.

**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、読み出し用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層、非磁性中間層、外部磁場に応じ磁化方向が自由に変化するフリー層、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 は将来的なヘッドの微細化を考慮に入れた場合に大きなメリットを持つが、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、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事が一般的であり、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。その中の一つに、非磁性体である

Cu を強磁性体中に薄く挿入する事により MR 比を向上させる技術がある[1,2]。しかしその微小領域においてどのような原理で MR 比が向上するかについては不明な点が多い。

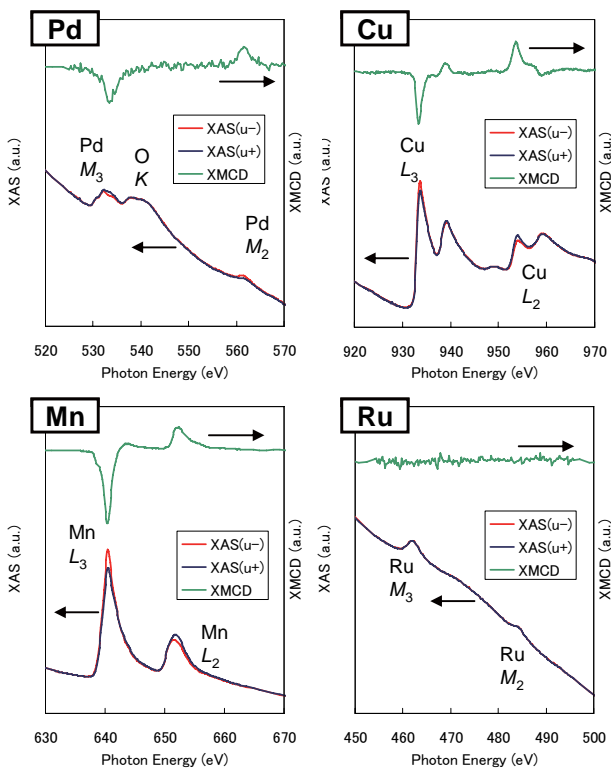
この現象の理解のためには、挿入した非磁性体のスピン状態解析は必須であり、XMCD (X-ray Magnetic Circular Dichroism) 測定が有効である。XMCD 測定は内殻電子吸収法 (XAS: X-ray Absorption Spectroscopy) の一種であり、円偏光を入射し吸収スペクトルの円二色性を測定する事により、各元素の特定と、電子の軌道を選択したフェルミ準位近傍のスピン依存電子状態の直接的な情報が得られる。本課題では、このような CPP-GMR 薄膜用材料の開発指針を新たに構築すべく、強磁性層中に添加する不純物元素の磁気輸送特性に及ぼす役割を、磁気分極との相関の観点から明らかにすることが目標となる。

**実験:** XMCD 測定は SPring-8, BL25SU の電磁石 MCD 装置を用いて行った。SiN メンブレン上に、Ta<sub>5.0</sub>/Ru<sub>5.0</sub>/(Fe<sub>70</sub>Co<sub>30.5</sub>/X<sub>0.2</sub>)x30/Fe<sub>70</sub>Co<sub>30.5</sub>/Ru<sub>1.0</sub>/Ta<sub>1.0</sub> (X= Ti, V, Cr, Mn, Cu, Mo, Ru, Pd, Ag,

数字は nm) なる構成の多層膜を積層し、透過法にて XAS と 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。

非磁性体 (Cu, Pd, Mn) についてはピンド層とフリー層の強磁性体中に挿入し CPP-GMR 素子を作成し、面積抵抗 ( $RA$ : Resistance Area Product) と MR 変化分に相当する  $\Delta RA$  の評価を行った。

**結果および考察:** Fig.1 に代表例として Pd, Cu, Mn, Ru を  $Fe_{70}Co_{30}$  中に挿入した試料の XAS, XMCD 測定結果 (一部) を示す。Cu, Mn は  $L_3$  吸収端、Pd, Ru は  $M_3$  吸収端の XAS 強度を元に MCD を算出した結果 (XAS の合計ピーク高さに対する偏光による差分) を Table に表す。MCD は Mn について最も大きく、順に Pd, Cu, Ru となる。Ru においては分極が全く観測されなかった。

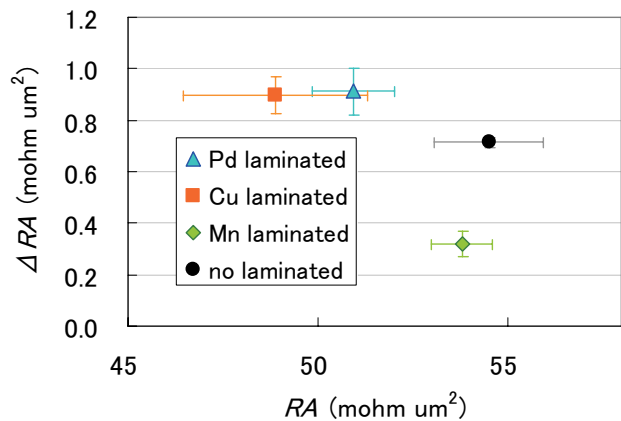


**Fig.1** XAS and XMCD spectra of  $Fe_{70}Co_{30}$  with laminated non-magnetic materials (Pd, Cu, Mn, Ru)

**Table** Polarization of  $Fe_{70}Co_{30}$  with laminated non-magnetic materials (Pd, Cu, Mn, Ru)

Ti	4.9	Mn	15.0	Ru	0
V	7.6	Cu	7.9	Pd	11.0
Cr	3.1	Mo	0	Ag	0

この得られた分極情報と MR 効果を比較するため、Pd, Cu, Mn 挿入 CPP-GMR 素子についての  $RA$ - $\Delta RA$  測定結果を示す (Fig.2)。Cu, Pd が高い挿入効果を示すのに対し、最も大きな分極値が XMCD 測定により示された Mn については、挿入により逆に  $\Delta RA$  の低減が確認された。つまり強磁性層中に挿入した非磁性体の分極と MR エンハンスメントには線形の相関が認められない結果となった。



**Fig.2**  $\Delta RA$  vs.  $RA$  plots of CPP elements with laminated non-magnetic materials (Pd, Cu, Mn)

Fig.3 に Cu, Fe, Mn におけるフェルミエネルギー ( $E_F$ ) 近傍の DOS (Density of States) を示す。なお薄く挿入した層の結晶構造は母強磁性層の構造と一致すると考えられるため、Cu と Mn は bcc であると仮定した上での計算結果であり、Cu, Fe, Mn の格子定数はそれぞれ 2.87, 2.83, 2.83 Å として計算した。

Cu の DOS に着目すると、 $d$  電子状態は  $E_F$  よりエネルギー的に深い位置に局在化している事が理解される。Fe と隣接させる事により、down spin 電子 ( $e_{\downarrow}$ ) については Fe の  $3d$  軌道と Cu の  $4s$  軌道が混成し、 $E_F$  近傍の状態密度が増す。up spin 電子 ( $e_{\uparrow}$ ) については混成が弱く (Fe の  $e_{\uparrow}$  のエネルギーが低い事による)、 $E_F$  近傍の状態密度は依然低いままである。

一方 Mn の DOS は Fe のものと大差無いため、混成による状態密度の変化は小さく  $e_{\uparrow}$  の状態が若干低エネルギー側に移行するのみであると考えられる。以上の推測より、Fe rich FeCo 中に Cu, Mn を挿入した際の Cu, Mn の予測 DOS を図に表したものが Fig.4 となる。

Cu の場合は上述したように、 $4s$  軌道の  $e_{\downarrow}$  がより強く混成による影響を受けることから、 $e_{\uparrow}$  の抵抗率 ( $\rho_{\uparrow}$ ) と  $e_{\downarrow}$  の抵抗率 ( $\rho_{\downarrow}$ ) より計算されるパラメータ  $\alpha$  は、 $\alpha = \rho_{\downarrow} / \rho_{\uparrow} > 1$  となる。FeCo の  $\alpha$  も  $\alpha > 1$  である事から、Cu の挿入に

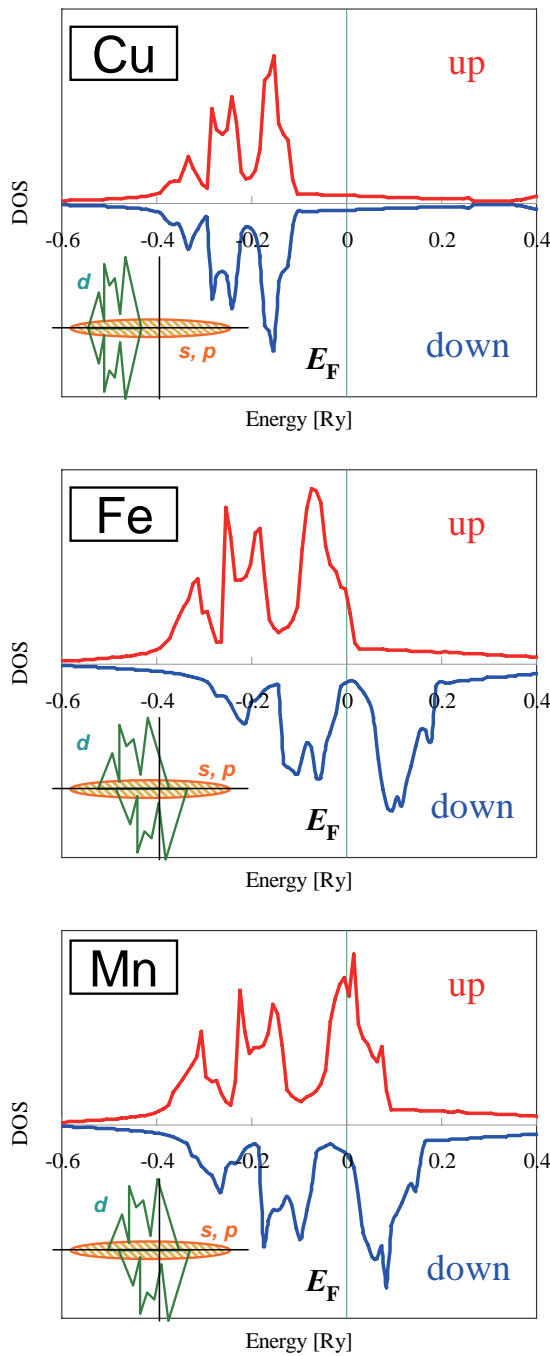


Fig.3 Calculated total DOS of bcc-structured Cu, Fe and Mn.

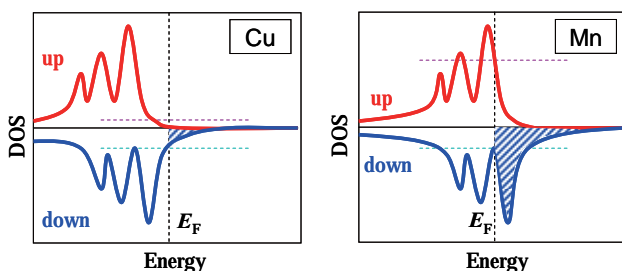


Fig.4 Schematic images of total DOS of bcc-structured Cu and Mn laminated in Fe.

より **FeCo** の分極がエンハンスされる可能性は高い。そして **MR** 比は  $(1-\alpha)^2/(1+\alpha)^2$  で表されることから、高 **MR** 比発現に繋がる。一方 Fig.4 中の  $E_F$  より高エネルギーの非占有軌道は  $e_{\downarrow}$  が **majority** であり (斜線部)、**XMCD** 測定により分極が確認される事が理解できる。このように、**Cu** においては " $MCD \propto MR$  比" の関係が大凡成り立つ事を説明し得る。

**Mn** については **Fe** と隣接させても **DOS** に大きな変化は無いことから、単層の場合と同じく  $\alpha < 1$  である可能性が高い。これは **Fe** への **Mn** 挿入が **FeCo** の  $\alpha$  を 1 に近づける操作に等しい事を意味し、**MR** 比が低下した理由となり得る。Fig.4 に示されているモデルからは内殻電子の励起が  $e_{\downarrow}$  軌道に主に起こる事が予想され (図中斜線部)、**MCD** は高い数値を示す事が予想される。つまり、**Mn** については " $MCD \propto MR$  比" の関係は成り立たないのであろう。

以上の様に、**Cu** 等の非磁性体を強磁性体中に薄く挿入した **CPP-GMR** 素子における **MR** 比の向上は、**XMCD** 測定によって観測される分極の上昇と相関がある事が明らかとなった。これは **CPP-GMR** 素子材料開発をサポートする測定手法として **XMCD** が非常に有効である事を示す。一方で、分極率と **MR** 比を直接関連付けるためには、本報告で示したようにバンド構造を考慮した解析が不可欠である事も明らかとなった。

今後の課題：本課題により、**XMCD** 測定結果とバンド構造の包括的な考察が、磁気抵抗等の効果を考察する上で必要である事が明らかとなった。今後は、強磁性薄膜試料中に添加した不純物元素の磁気分極の大きさを、母強磁性合金の組成ならびに添加元素濃度の関数として計測したい。これらの測定と **MR** 比、バンド構造解析を組み合わせる事により、不純物元素の磁気分極の大きさを決める物理因子ならびにその寄与の明確化が可能になると考えられる。

参考文献：

[1] H Yuasa et al., *J. Magn. Magn. Mat.*, 286, (2005).  
 [2] S. Isogami et al., *ISAMMA2007 proc.*, 267 (2007).