

〈一般研究課題〉 アモルファス磁性体を用いた
スピン注入磁気メモリの研究
助成研究者 名古屋大学 加藤 剛志



アモルファス磁性体を用いたスピン注入磁気メモリの研究

加藤 剛志
(名古屋大学)

Study on Current Induced Magnetization Switching of Amorphous Magnetic Films

Takeshi Kato
(Nagoya University)

Abstract :

Giant magneto-resistance (GMR) devices with ferrimagnetic amorphous GdFeCo memory layers were prepared by magnetron sputtering and subsequent micro-fabrications by EB- and photolithography. The magnetic properties and magneto-resistance measurements show that GdFeCo memory layers with various Gd contents have sufficiently large perpendicular magnetic anisotropy. The resistance vs current loops indicate the GdFeCo memory layer can be fully reversed by a pulse current due to spin transfer torque switching. A relatively low current density of $J_c = 1.6 \times 10^7$ A/cm² while high thermal stability factor $\Delta = 210$ was obtained for the sample with Gd_{21.4}(FeCo)_{78.6} memory layer. The critical current density was found to increase with increasing Gd content, mainly due to the increase of the effective perpendicular anisotropy of the memory layer. The present results show that the J_c is clearly reduced by the reduction of effective perpendicular anisotropy, and in the case of GdFeCo memory layer, the effective anisotropy is easily reduced by a moderate temperature increase. Thus, the amorphous GdFeCo is considered to be a promising candidate for the memory layer of the thermally assisted magnetic random access memories.

1. はじめに

電子のスピン角運動量の授受によって生じたスピントルクを利用して磁化の向きを回転させるスピン注入磁化反転は、微小な強磁性体の磁化反転法として注目されている[1, 2]。このスピン注入磁化反転は、電流の作る磁界により磁化反転を行う既存MRAM (magnetic random access memory) では困難なGbit級の大容量MRAMの実現を可能とする技術である。100 nm程度の寸法の微小セル領域においては、スピン注入磁化反転による書き込み方式は、磁界による書き込み方式に比べて書き込み電流を大幅に低減できると考えられる[3]。しかし、スピン注入MRAMの実現のためには反転電流密度 J_c の低減とともに高い熱安定性の両立という課題がある。 J_c の値を $10^5 \sim 10^6$ A/cm²程度にすると同時に、熱安定性を示す $\Delta = KV/k_B T$ の値として60以上を確保することが求められている。ここで、 K は一軸磁気異方性、 V は体積、 k_B はボルツマン定数、 T は絶対温度をそれぞれ表す。スピン注入磁化反転は伝導電子スピンの局在電子スピンのトルクを与え、局在電子スピンのエネルギー障壁 KV を超えるトルクが与えられると磁化反転を起こすというものであるため、臨界電流密度は KV に比例する。すなわち、低 J_c と高 KV の両立は困難であることが分かる。このトレードオフを解決する手法として本研究では熱アシストスピン注入磁化反転を提案する。熱アシスト方式では記録時のみに素子に熱を印加し、エネルギー障壁 Δ を下げ、低 J_c で記録を行うものであり、上述のトレードオフを解決できる可能性がある。これを実現する記録層材料として、本研究では希土類-遷移金属(RE-TM)アモルファス合金を用いる。RE-TM膜では容易に垂直磁気異方性を誘導でき、従来のCoFe系の材料より高い熱安定性を得ることができると考えられる。また、垂直磁化膜を利用することで従来の面内磁化膜に比べ低い J_c で磁化反転が可能であると考えられる。スピン注入に伴う磁化反転時に磁化は歳差運動を行うが、面内磁化膜ではこの歳差運動中に磁化が膜面内から立ち上がって大きな反磁界を感じるため、磁化反転が困難になる。一方、垂直磁化膜ではこのような影響を受けず歳差運動を行うため、低 J_c 化が期待され、実際に数MA/cm²の反転電流密度と $KuV/k_B T = 107$ の両立が可能であることがTbCoFe / CoFeB膜を用いた素子で報告されている[4]。我々がRE-TM膜に着目した理由は、垂直磁化膜であるという点に加え、磁化ダイナミクスを広範囲にできる可能性があるためである[5]。これはREとTMの磁化が反平行に結合するとともに、REとTMの磁化回転比(g 係数)が異なるため、有限磁化での角運動量補償(g 係数の発散)や、磁化補償点での歳差運動の停止($g = 0$)などの現象が予測されているためである[6, 7]。しかし、磁化ダイナミクスと反転電流密度との相関については系統的に理解されておらず、これらの現象がスピン注入磁化反転の反転電流密度の低減につながる可能性がある。本研究論文では、フリー層に様々な組成のGdFeCo垂直磁化膜を用いた巨大磁気抵抗(GMR)素子について、スピン注入による磁化反転を行った結果について報告する。

2. 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化膜付きシリコン基板上にsubstrate / Ta (10 nm) / Cu₆₂Al₃₈ (150 nm) / [Pd (1.6 nm) / Co (0.4 nm)]₆ / CoFeB (0.5 nm) / Cu (3 nm) / Gd_x(Fe₉₀Co₁₀)_{100-x} (10 nm) / Cu (5 nm) / Ta (5 nm)を成膜した。GdFeCo層はスピン注入磁化反転のフリー層として5 nmとした。超高真空スパッタ装置の成膜前の到達真空度は 1×10^{-7} Pa以下である。Pd/Co多層膜はリファレンス層(スピン注入磁化反転時に磁化方向が固定されている層)であ

り、GdFeCo層と同様、垂直磁気異方性を示す。Gd_x(Fe₉₀Co₁₀)_{100-x}層はGdとFe₉₀Co₁₀ターゲットの同時放電により作成し、Gd組成xはGdターゲットに印加する電力を調整することで制御した。微細加工前の積層膜の磁化曲線は交番磁界勾配型磁力計(AGM)、トルク磁力計により測定した。

GMR素子の微細加工には、フォトリソグラフィ、電子ビームリソグラフィおよび電子サイクロトロン共鳴(ECR)プラズマを用いたAr⁺イオンエッチングを用い、接合面積が120 × 180 nm²のCurrent Perpendicular to Plane (CPP)-GMR接合を作製した。素子の磁気抵抗(MR)特性は直流4端子法により評価した。適当な外部磁界の下で、パルス幅100 msecのパルス電流を印加した後、0.5 mAの読み出し電流で接合抵抗を測定することで、スピン注入磁化反転を観察した。ここで、電流の正の向きは電子がPd/Co多層膜層からGdFeCo層へ流れる向きとする。

3. 実験結果および考察

Gd組成 $x = 21.4, 26.5$ のGdFeCo層を有するGMR積層膜の膜法線方向の磁化曲線を図1 (a) に示す。Pd/Co多層膜の保磁力は両膜ともに2 kOe程度である。GdFeCo層も膜法線方向で急峻な磁化変化を示し、垂直磁気異方性を示していることが分かる。GdFeCo層の反転磁界はGd組成 x とPd/Co多層膜の磁化方向に依存している。これは、Cu層を介し、Pd/Co多層膜の磁化とFeCo層の磁化が平行に交換結合しているためである。GdとFeCoの磁気モーメントは反平行に結合し、 $x = 21.4$ ではGdFeCoの正味の磁化とFeCoの磁化方向が平行(TM-richと呼ぶ。)であるが、 $x = 26.5$ では正味の磁化とFeCoの磁化方向は反平行(RE-richと呼ぶ)である。FeCoと[Pd/Co]の磁化は平行に結合するため、 $x = 26.5$ ではGdFeCo層と[Pd/Co]層の磁化が反平行に結合した状態が安定となり、その状態が零磁場で実現されている。図1 (b)は10 nm厚のGd_{22.0}(FeCo)_{78.0}単層膜の膜面内、および膜法線方向の磁化曲線である。この2つの磁化曲線で囲まれる面積が実効垂直磁気異方性定数 K_{eff} となり、図から、 $K_{\text{eff}} = 6 \times 10^4$ erg/ccと見積もられる。垂直磁気異方性定数 K_u は実効垂直磁気異方性と形状異方性の和で与えられ、

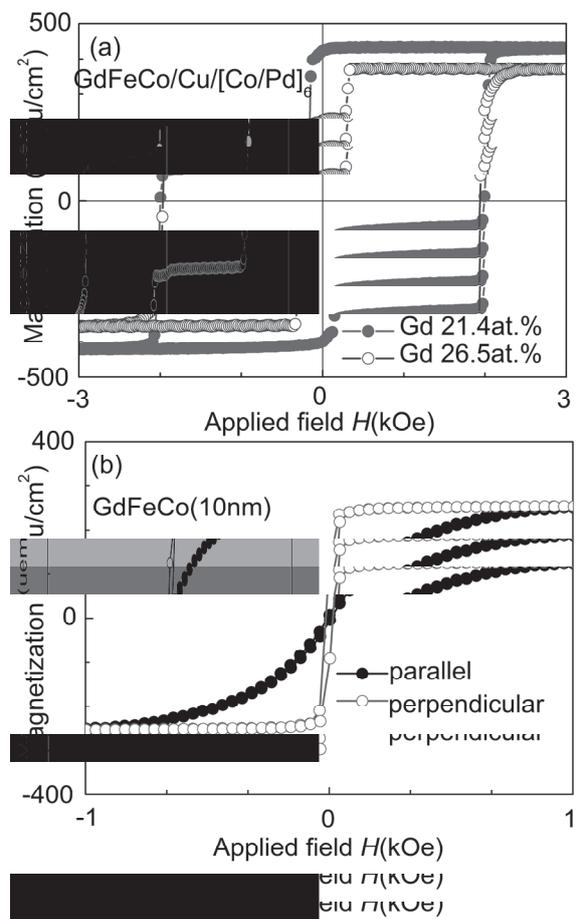


図1 (a) Hysteresis loops of GMR films with Gd_{21.4}(Fe₉₀Co₁₀)_{78.6} (closed circles) and Gd_{26.5}(Fe₉₀Co₁₀)_{73.5} (open circles) memory layers measured applying a magnetic field perpendicular to the film; (b) Hysteresis loops of 10-nm thick single Gd_{22.0}(FeCo)_{78.0} film measured applying a magnetic field parallel (closed circles) and perpendicular (open circles) to the film plane.

$$K_u = K_{\text{eff}} + 2\pi M_s^2 \quad (1)$$

と表される。図1 (b)で得られる磁化 M_s の値から、 $K_u = 4.5 \times 10^5$ erg/ccと見積もられる。

Gd組成 $x = 21.4, 22.3, 24.1$ の GdFeCo層を有するCPP-GMR素子のMR曲線をそれぞれ図2 (a), (c), (e)に示す。図(b), (d), (f)はそれぞれ図(a), (c), (e)のマイナーループ(最大印加磁場 3 kOe)である。MR曲線の測定は磁界を膜法線方向に印加して行った。得られたMR比は最大で0.24 %程度であり、Co/Ni多層膜などを用いた過去の報告[8]に比べ小さい。GdFeCo層のスピンの分極率はFeCoにより決まり、それほど低くないものと考えられる[9]。このため、低MR比の原因はGdFeCoはアモルファス構造であり比抵抗が高いためであると考えている。MR曲線から見積もられるGdFeCo層の保磁力は未加工膜のそれに比べて大きくなっており、

微細加工により膜の形状異方性が変化したことを反映している。CPP-GMR素子のGdFeCo層の保磁力はGd組成を増加することで上昇しているが、これはこの組成範囲(TM-richの組成範囲)ではGd組成の増大によりGdFeCo層の磁化が減少することによると考えることができる。この狭い組成範囲ではGdFeCo膜の K_u が変わらないと仮定すると、(1)式から M_s の変化は K_{eff} の変化につながる。 K_{eff} の変化が保磁力の変化をもたらすものと考えられる。

スピン注入磁化反転を観測するために測定した $R-I$ 曲線を図3に示す。ここで、図1において述べた交換結合をキャンセルするために膜法線方向に適宜磁界を印加した。全ての組成のGdFeCo層を持つCPP-GMR素子において、抵抗が急峻に変化する電流値がある。この抵抗変化はMR曲線に見られる抵抗変化の値と同程度であり、スピン注入によりGdFeCo層の磁化が反転したことが分かる。Gd_{21.4}(FeCo)_{78.6}のGMR素子において測定したスピン注入磁化反転の臨界電流密度 J_c の外部磁界 H_{ext} 依存性を図3 (d)に示す。P to APはGdFeCoの磁化と[Pd/Co]の磁化が平行状態から反平行へ遷移する場合、AP to Pは反平行から平行へ遷移する場合の J_c の値である。両者の J_c は外部磁界に依存するがその差分は H_{ext} にほとんど依存しないことも確認した。図3 (d)の臨界電流密度(AP to PとP to APの平均値)は 1.6×10^7 A/cm²であり、この値は10 %程度の大きなMR比を示す磁気トンネル接合(MTJ)[10]の場合と同程度である。さらにこのMTJ素子ではメモリ層厚は2 nm程度である

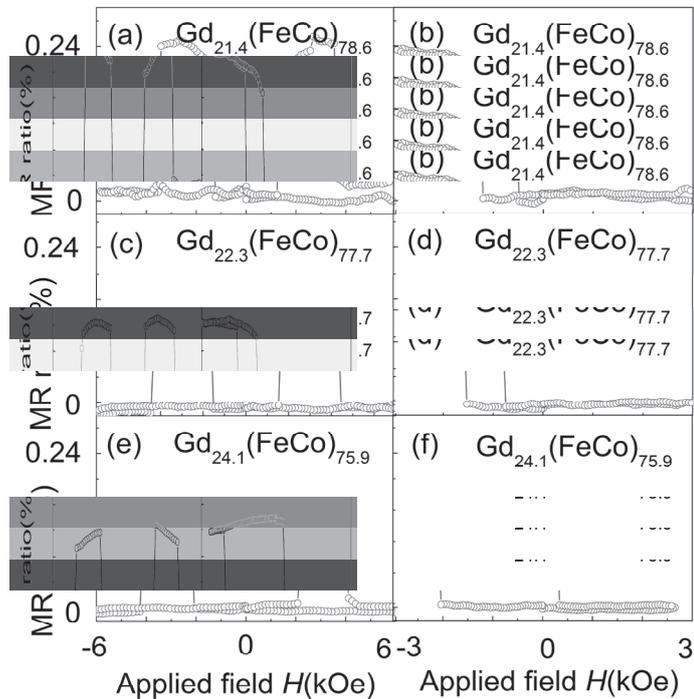


図2 (a), (c), (e) major and (b), (d), (f) minor magneto-resistance (MR) loops measured for GMR devices with GdFeCo memory layers. (a) and (b) are for Gd_{21.4}(Fe₉₀Co₁₀)_{78.6}, (c) and (d) for Gd_{22.3}(Fe₉₀Co₁₀)_{77.7}, (e) and (f) for Gd_{24.1}(Fe₉₀Co₁₀)_{75.9}.

ことを考えると今回のGdFeCo (10 nm)のメモリ層で得られた値は過去の報告例と比べても非常に小さな J_c であることが分かる。

図4 (a)は臨界電流密度 J_c のGd組成依存性を示している。図から J_c はGd組成の増大とともに上昇している。なお、 J_c は印加電流パルス幅に依存するため、パルス幅1 nsecの場合の J_{c0} を用いる方が一般的である。 J_c と J_{c0} は以下の式で表される[11]。

$$J_c = J_{c0} \left[1 - \frac{1}{\Delta} \ln \left(\frac{\tau}{\tau_0} \right) \right] \quad (2)$$

ここで、 τ_0 は1nsecであり、 $\Delta = K_{\text{eff}} V / k_B T$ は熱安定性指数である。 J_{c0} を見積もるために Δ が必要となるがこれは単層膜の K_{eff} (図4 (b)に示す)を用いて算出した。(2)式から見積もられる J_{c0} のGd組成依存性を図4 (a)に示す。例えば、Gd_{21.4}(FeCo)_{78.6}であるGMR素子では、 $K_{\text{eff}} = 6.0 \times 10^4$ erg/ccから熱安定性指数 $\Delta = 210$ と見積もられ、 $J_{c0} = 1.7 \times 10^7$ A/cm²となる。図4 (a)に示すように J_{c0} は J_c とほとんど変わらず、これはGdFeCo層の Δ が非常に大きいことを意味する。 J_{c0} は以下の式で表されることが知られている[12]。

$$J_{c0} = \alpha \frac{\gamma e}{\mu_B \eta} K_{\text{eff}} \quad (3)$$

ここで、 α はGilbertのダンピング定数、 γ はジャイロ磁気定数、 e は素電荷、 μ_B はボーア磁子、 η はスピン注入磁化反転の効率である。この式にあるように J_{c0} は K_{eff} に比例するが、図4 (a), (b)を比較すると J_{c0} と K_{eff} はGd組成増加によりともに増大し、両者に対応関係があることが分かる。式(3)は J_{c0} は α や γ といった磁化ダイナミクスを支配するパラメータにも敏感であることを意味している。GdFeCoの α や γ はGd組成により変化することが知られており[5]、Gd組成増加に伴う J_{c0} の上昇はこの組成領域でGd組成増加により α や γ が増加することも関係している可能性がある。Gd組成を更に増加することで α や γ は大きく変化することが期待され[5]、更なる系統的な研究が必要であると考えられる。

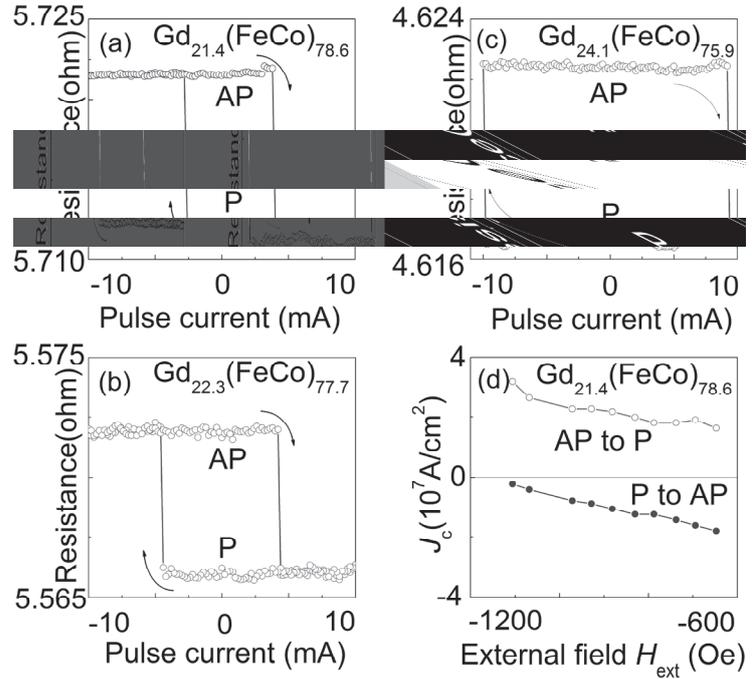


図3 (a) R-I loops measured for GMR devices with (a) Gd_{21.4}(Fe₉₀Co₁₀)_{78.6}, (b) Gd_{22.3}(Fe₉₀Co₁₀)_{77.7}, and (c) Gd_{24.1}(Fe₉₀Co₁₀)_{75.9} memory layers. Figure (d) shows the H_{ext} dependence of critical current density J_c for the GMR device with Gd_{21.4}(FeCo)_{78.6} memory layer.

4. まとめ

本研究では種々の組成のGdFeCoメモリー層を用いたCPP-GMR素子を作成し、スピン注入磁化反転を観測した。GdFeCo層は大きな垂直磁気異方性を示し、十分大きな熱安定性指数 Δ を有している。Gd_{21.4}(FeCo)_{78.6}の場合、 $\Delta = 210$, $J_c = 1.6 \times 10^7$ A/cm²が得られた。この J_c は2 nm厚程度のCo系メモリー層を用いた磁気トンネル接合($\Delta = 40$ 程度)と同程度の値であり、GdFeCo膜が低 J_c , 高 Δ を実現するポテンシャルをもった材料であることを示すことが出来た。 J_c のGd組成依存性からGdFeCoメモリー層の J_c は K_{eff} の減少により低減できることを確認した。今回の検討では、Gd組成を変化させることで K_{eff} を制御したが、GdFeCo膜では300°C程度の温度上昇で K_{eff} をほぼ0まで減少させることが可能であり、GdFeCo膜が熱アシスト型スピン注入磁化反転のメモリー層として有望な材料であることが分かった。

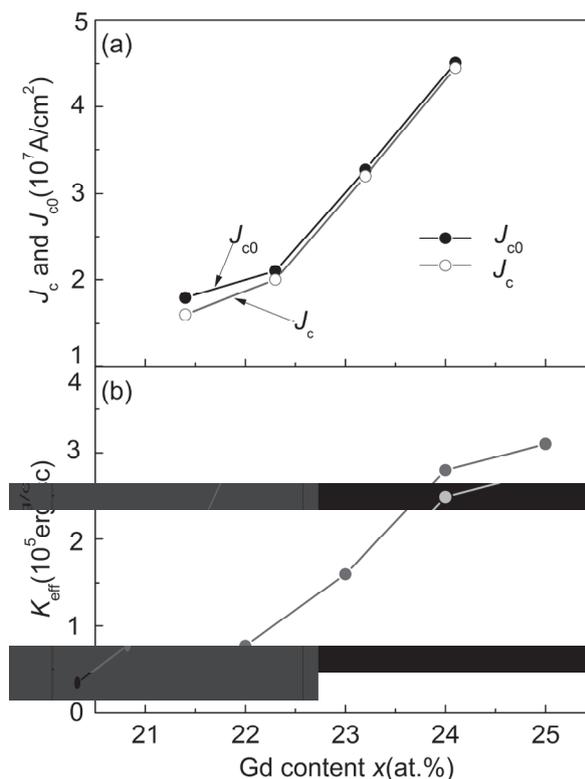


図4 (a) Dependence of critical current density J_c and J_{c0} (estimated from Eq. (2)) on the Gd composition in GMR devices with GdFeCo memory layers. (b) Dependence of effective anisotropy K_{eff} on the Gd composition estimated for 10nm-thick GdFeCo single layer.

参考文献

1. J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater., 159, L1 (1996).
2. L. Berger, Phys. Rev., 54, 9353 (1996).
3. K. Yagami and Y. Suzuki, J. Magn. Soc. Jpn., 28, 937 (2004).
4. M. Nakayama, T. Kai, N. Shimomura, M. Amano, E. Kitagawa, T. Nagase, M. Yoshikawa, T. Kishi, S. Ikegawa, and H. Yoda, J. Appl. Phys., Vol. 103, 07A710 (2008).
5. T. Kato, K. Nakazawa, R. Komiya, N. Nishizawa, S. Tsunashima and S. Iwata, IEEE Trans. Magn., 44, 3380 (2008).
6. R. K. Wangsness, Phys. Rev., 91, 1085 (1953).
7. R. Giles and M. Mansuripur, J. Magn. Soc. Jpn., 15-S1, 299 (1991).
8. S. Mangin, D. Ravelosona, J. A. Katine, M. J. Carey, B. D. Terris, E.E. Fullerton, Natur. Mater., 5, 210 (2006).
9. C. Kaiser, A. F. Panchula, and S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett., 95, 047202 (2005).
10. Y. Huai, F. Albert, P. Nguyen, M. Pakala, and T. Valet, Appl. Phys. Lett., 86, 3118 (2004).
11. R. H. Koch, J. A. Katine, and J. Z. Sun, Phys. Rev. Lett. 92, 088302 (2004).
12. J. Hayakawa, S. Ikeda, Y. M. Lee, R. Sasaki, T. Meguro, F. Matsukura, H. Takahashi, and H. Ohno, Jpn. J. Appl. Phys., 44, L1267, (2005).