

Cu/Ni₈₀Fe₂₀/N(N=Cu,Cu/Pt) 薄膜における FMR 線幅とスピン拡散長FMR spectrum-linewidth and spin diffusion length in Cu/Ni₈₀Fe₂₀/N(N=Cu,Cu/Pt)

家形諭・安藤康夫・水上成美*・宮崎照宣

東北大学大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05 (〒 980-8579)

* 日本大学工学部, 郡山市田村町徳定字中河原 1 番地 (〒 963-1165)

S. Yakata, Y. Ando, S. Mizukami*, and T. Miyazaki

Graduate School of Engineering, Tohoku Univ., Aoba-yama 6-6-05, Sendai 980-8579, Japan

*College of Engineering, Nihon Univ., 1 Nakagawara, Tokkusada, Tamura-machi, Koriyama 963-1165, Japan

We have investigated the magnetic damping in two types of multilayer films, Cu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(d_{Cu}) and Cu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(d_{Cu})/Pt(2 nm). Temperature dependence of the damping parameter and FMR linewidth with various Cu thickness d_{Cu} were measured. Spin diffusion length increased with decreasing temperature. We also measured the temperature dependence of FMR linewidth for the Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})/Pt films with $d_{Cu} = 400$ nm, 800 nm. The increase of FMR linewidth with decreasing temperature suggested that the damping increased by spin diffusion in Cu layer.

Key words: damping, spin diffusion length, FMR, linewidth

1. はじめに

近年、ユニバーサルメモリーとして注目されている不揮発性磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) は磁化の方向によって情報の書き込みを行っている。従って MRAM の動作は磁化反転速度に大きく依存している。磁化反転速度に影響する要素としてメモリ素子サイズ、形状などが考えられるが、より根本的要素として磁性体の固有の定数と考えられている磁気緩和がある。これはスピンの運動に対して働く摩擦のような力であり、磁化反転に至る時間及び反転後の才差運動の振る舞いに大きく影響する。最近、我々のグループは、この物質に対して固有であると考えられていた磁気緩和が人工格子や多層膜構造において磁性体に隣接する非磁性体の種類および素子構造に大きく変化することを報告した^{1,2)}。しかしながら、非磁性体中における磁気緩和のメカニズムに関しては不明な点が多く、高速なスピンドバイスの実現に当たっては、磁気緩和の理解、およびその制御が必要である。

本研究は、強磁性共鳴 (Ferromagnetic Resonance: FMR) を用いてさまざまな構造の素子における磁気緩和を系統的に調べ、多層膜構造における磁気緩和のメカニズムを解明することを目標としている。ここではスピンの拡散による磁気緩和効果を考える。これは伝導電子との相互作用によって生じる磁気緩和メカニズムであり、これまでに実験²⁾、理論³⁾の両面から報告されている。Fig.1 にその概要を

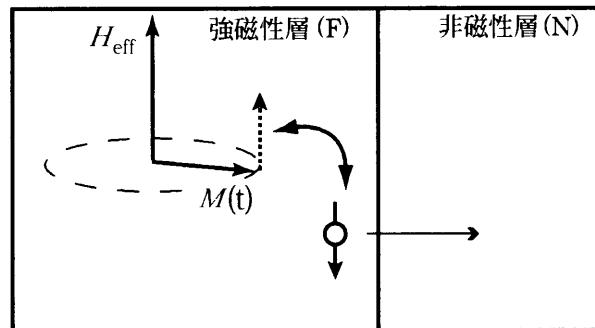


Fig. 1 Schematic view of the conduction electron spin diffusing from ferromagnet F to normal metal N.

示す。簡単のため非磁性層 (N) に隣接した強磁性層 (F) における磁気モーメント $M(t)$ が有効磁場 H_{eff} と垂直な面を歳差運動している場合を考える。歳差運動している磁気モーメントは磁気緩和をうけ、その反作用として伝導電子スピンが非磁性層へ拡散する。非磁性層内で伝導電子スピンがうける緩和が大きければ拡散するスピンは増え、結果として F における磁気緩和が大きくなる。従って F における磁気緩和を調べることにより、スピンがうける緩和を議論することができる。本論文では伝導電子スピンの拡散による磁気緩和効果の温度依存性について報告する。

2. 実験方法

試料は 1737 glass 基板上の Cu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(d_{Cu}) および Cu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(d_{Cu})/Pt(2 nm) の 2 種類であり、Cu 膜厚 d_{Cu} を変化させて作製した。ここで Pt は拡散したスピンを検出するための緩和の大きい材料である。成膜は RF マグネットロンスパッタ法で行い、このときの到達真空度は 9.0×10^{-6} Pa 以下、Ar ガス圧は 0.07 Pa とし、基板温度は室温とした。試料サイズは 3 mm × 4 mm である。

強磁性共鳴 (FMR) は、マイクロ波周波数 9.0 GHz、TE011 キャビティを用いて、変調磁場約 0.1 mT で測定した。磁気緩和定数 α は FMR スペクトル線幅を印加磁場の膜面直方向からの角度 θ_H 依存性を測定し、LLG 方程式に

基づく式でフィッティングすることにより求めた。また、FMR線幅の温度依存性を4.5~300 Kの範囲で行った。なお、このとき磁場は膜面内に印加した。

3. 実験結果

3.1 FMRスペクトルの印加磁場角度依存性

Fig.2にCu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(400 nm)/Pt(2 nm)膜における(a)共鳴磁場および(b)FMRスペクトル線幅の角度依存性の測定例を示す。ここで、 $\theta_H = 0^\circ$ は膜面直方向に磁場を印加した場合、 $\theta_H = 90^\circ$ は膜面内に磁場を印加した場合である。この共鳴磁場およびFMRスペクトル線幅の角度依存性に対して、強磁性共鳴の共鳴条件および下記の共鳴線幅に満たす式³⁾を用いてフィッティングを行った。

$$\Delta H_{pp} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left\{ \left| \frac{d\omega}{dH_{res}} \right|^{-1} \Delta\omega + \left| \frac{dH_{res}}{d4\pi M_{eff}} \right| \Delta 4\pi M_{eff} + \left| \frac{dH_{res}}{d\theta_H} \right| \Delta\theta_H \right\} \quad (1)$$

ω は共鳴周波数、 H_{res} は共鳴磁場、 $4\pi M_{eff}$ は磁気異方性を考慮した有効反磁界である。また右辺は本質的な磁気緩和による項、磁気モーメントおよび角度 θ_H のばらつきによる項の三つの項から成る。フィッティングの結果を図中に実線で併せて示す。またFig.2(b)中の点線、一点鎖線、破線はそれぞれ(1)式の右辺三項に対応している。共鳴磁場 H_{res} 、スペクトル線幅 ΔH_{pp} とともに良好なフィッティングが得られた。またフィッティングパラメータである $M_{eff} = M_s$ についても、従来報告されている値と一致した。他の試料についても同様の測定を行い、フィッティングにより磁気緩和定数を算出した。

3.2 磁気緩和のCu膜厚依存性

Fig.3にCu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})およびCu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})/Pt積層膜における(a)300 K、(b)200 K、(c)100 K、(d)4.5 Kにおいて測定したFMRスペクトルより算出した磁気緩和定数のCu膜厚依存性を示す。ここで、図中の実線は理論³⁾にもとづいてフィッティングにより算出した磁気緩和のCu膜厚依存性を示す。いずれの温度においてもCu膜厚が十分薄い領域では両積層膜間の磁気緩和は異なった値を示し、Cuの膜厚を厚くするに従い両者の差は減少する。これはスピンの拡散効果によって磁気緩和が変化していることによる。すなわちCu膜厚が薄い場合、Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})/Pt積層膜ではNi₈₀Fe₂₀から拡散した伝導電子スピンはCu/Pt界面に到達して緩和するため、Ni₈₀Fe₂₀の磁気緩和自身も増大する。一方、Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})積層膜では、拡散した伝導電子スピンはCu層の表面で大きな緩和を受けない。そのためPt層がある場合と対照的にNi₈₀Fe₂₀の磁気緩和の増大は見られない。Cu膜厚が厚い場合は、拡散した伝導電子スピンはPt層あるいはCu層表面へ到達しないため、両者においてNi₈₀Fe₂₀の磁気緩和の大きさに違いがみられなくなる。このようなメカニズムを考えることにより、伝導電子スピンがCu内を拡散する距離 λ_{SD} を見積もることができる。すなわち、Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})/Pt積層膜において上部Cu膜厚 d_{Cu} を厚くした場合、ある臨界の膜厚においてPtによる磁気緩和の増大効果が消失する。このときの膜厚がCu内のスピン拡散長 λ_{SD} とみなすことができる。今回の実験結果に対して報告されている理論式³⁾に従ってフィッティングを行い、各温度におけるスピン拡散長 λ_{SD} を求めた。その結果をFig.4に示す。スピン拡散長 λ_{SD} は高温から低温へ向かうに従い大きくなり、室温で376 nm、低温で955 nmに達する。図中には他の方法で測定されている報告値を併せて示している。図に見るように、今回の測定結果と過去報告値は良く一致している。本実験は、スピンの拡散距離を直接的に測定して得た結果である点を考慮すると、これまでの中で最も信頼できる値であると考えられる。

3.3 FMR線幅の温度依存性

前節の結果においては、 d_{Cu} を変化させたときの磁気緩和の変化、およびスピン拡散長の温度依存性を調べた。し

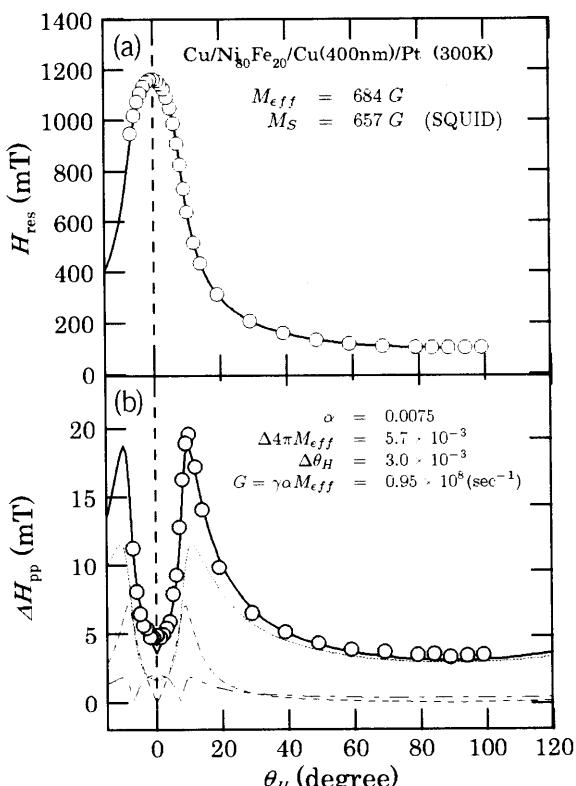


Fig. 2 (a)Angular dependence of resonance field H_{res} and (b)FMR linewidth ΔH_{pp} . Open circles represent the measurement results. Solid line is the calculated results and is fitted to the experimental data. Dotted, broken and dash-dotted lines are the three components of the calculated results of intrinsic damping, fluctuations of $\Delta\theta_H$ and $\Delta 4\pi M_{eff}$, respectively.

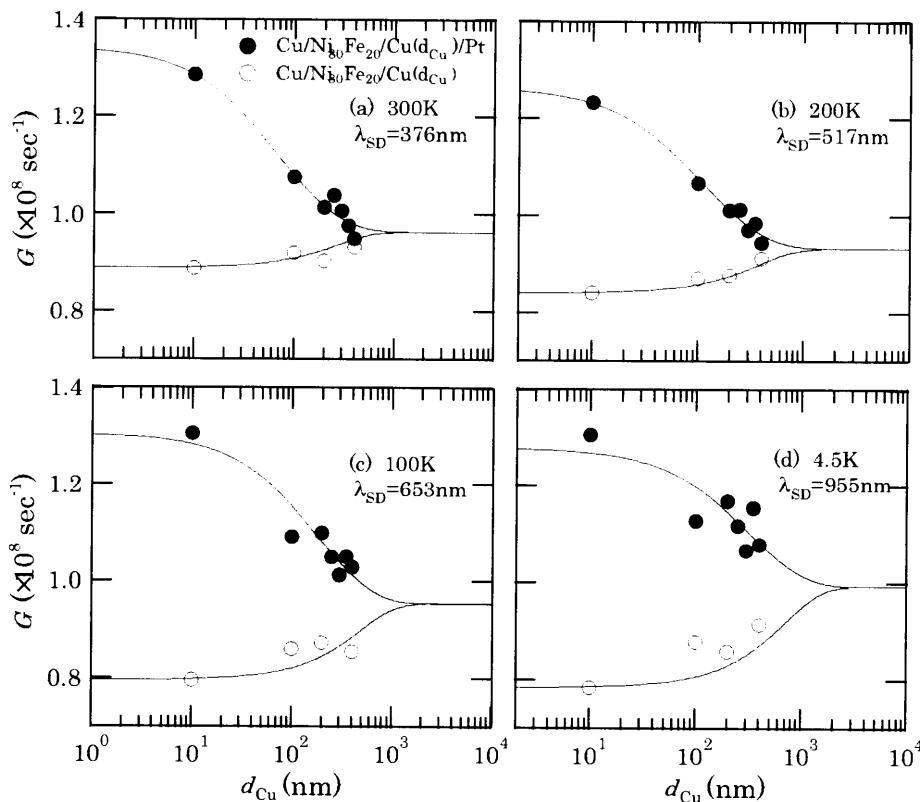


Fig. 3 Dependence of the damping parameter on the Cu thickness at (a) 300 K, (b) 200 K, (c) 100 K, (d) 4.5 K. Circles are the measurements of the Gilbert damping in $\text{Cu}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}$ and $\text{Cu}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{Pt}$ multilayers. Solid lines are calculated results based on the theory of Tserkovnyak et al.³.

かしながら、磁気緩和は素子界面の構造に大きく影響するため、ある程度のバラツキを避けることができない。そこでスピン拡散長の温度依存性を詳しくみるために、 d_{Cu} を固定し、 $\theta_H = 90^\circ$ における FMR 線幅の温度依存性を測定した。 $\theta_H = 90^\circ$ における FMR 線幅は以下の式で表すことができる³⁾。

$$\Delta H_{pp} = \frac{1}{\sqrt{3}} \left\{ \frac{2\alpha}{\sqrt{1+\alpha}} \sqrt{H_{res}(H_{res} + 4\pi M_{eff})} + \frac{H_{res}}{2H_{res} + 4\pi M_{eff}} \Delta 4\pi M_{eff} \right\} \quad (2)$$

第一項は磁気緩和の FMR 線幅に対する寄与を表し、第二項は磁気的不均一性のスペクトル線幅に対する寄与を表している。Fig.2 に示したように $\theta_H = 90^\circ$ における FMR 線幅は磁気緩和による効果が支配的であるため上式の第二項はほとんど無視することができる。そのため FMR 線幅と磁気緩和はほぼ比例関係にあると見なすことができる。Fig.5 に (a) $d_{\text{Cu}} = 400 \text{ nm}$, (b) $d_{\text{Cu}} = 800 \text{ nm}$ の積層膜における FMR 線幅の温度依存性を示す。図中のドットで示すものが測定結果である。 $\text{Cu}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}(d_{\text{Cu}})$ 積層膜では d_{Cu} が 400 nm, 800 nm のいずれにおいても温度の減少とともに FMR 線幅は減少する。これに対して、 $\text{Cu}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}(d_{\text{Cu}})/\text{Pt}$ 積層膜では $\text{Cu}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}(d_{\text{Cu}})$ 積層膜と同様に、

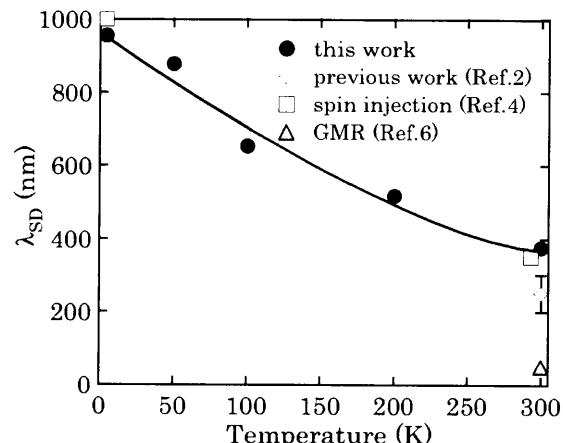


Fig. 4 Temperature dependence of spin diffusion length λ_{SD} . Data reported by other groups are also shown.

温度の減少とともに FMR 線幅は減少するが、ある温度以下において FMR 線幅は急に増大し始める。この違いは Cu 内を拡散するスピンの拡散長が低温において増大していることで説明できる。高温においてスピン拡散長 λ_{SD} が Cu 膜厚より短い場合、拡散した伝導電子スピンは Pt 層へ到達しない。そのため、積層膜上部に Pt 層がある無しに関わらず、FMR 線幅すなわち磁気緩和に違いはみられない。

低温においてスピン拡散長 λ_{SD} が増大すると, Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu})/Pt 積層膜においては拡散した伝導電子スピンは Pt 層へ到達し, 緩和を受けることにより FMR 線幅の増大, すなわち Ni₈₀Fe₂₀ の磁気緩和の増大が生じる. なお, Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(d_{Cu}) 積層膜においても極低温において FMR 線幅がわずかに増加傾向にあるように見える. これは, 拡散した伝導電子スピンが試料表面へ到達し緩和をうけるためであると考えられる.

4. 考察

FMR 線幅の温度依存性を説明するために, Tserkovnyak ら³⁾によって提案された以下に示す damping α の理論式に, 磁化ならびに電気伝導度の温度依存性を測定した結果を代入することにより FMR 線幅の計算を行った.

$$\alpha = \alpha_0 + \left[1 + C_1 \frac{g^{11}}{\sqrt{\varepsilon}} \frac{1 + \tanh(LC_2\sqrt{\varepsilon}/\sigma) C_1 g/\sqrt{\varepsilon}}{\tanh(LC_2\sqrt{\varepsilon}/\sigma) + C_1 g/\sqrt{\varepsilon}} \right]^{-1} \times \frac{g^{11} g_L \mu_B}{4\pi d M_S} \quad (3)$$

α_0 はバルクのダンピングパラメータ, $C_1 = \sqrt{3}\pi/2k_F^2$, $C_2 = \sqrt{3}nc^2/mv_F$, k_F , n , v_F , m はそれぞれ自由電子モデルにおける Cu 内電子の波数, 密度, 速度, 質量である. L は Cu 膜厚, d は Ni₈₀Fe₂₀ 膜厚, M_S は飽和磁化, g_L は Ni₈₀Fe₂₀ の g 因子, μ_B はボア磁子, σ は電気伝導度, ε はスピンリップ確率であり, 電子スピンの緩和時間 τ_{sf} および平均自由行程時間 τ_{el} を用いて $\varepsilon = \tau_{el}/\tau_{sf}$ で定義される. 平均自由行程時間 τ_{el} は自由電子モデルから電気伝導度より算出した. また, スピン緩和時間 τ_{sf} , Ni₈₀Fe₂₀/Cu, Cu/Pt 界面におけるコンダクタンス g^{11} , g はフィッティングパラメータとした. フィッティングの結果を Fig.5 に実線で示す. また, 参考のため, Fig. 5(b) に他の τ_{sf} を用いた時の計算結果を併せて示す. 温度の減少とともに両積層膜の FMR 線幅に開きが出てくる点, またその開きが始まる温度が d_{Cu} の増加とともに低温側にシフトする点など, このスピンの拡散に基づくモデルは FMR 線幅の温度依存性を定性的に説明できる. (a) $d_{Cu}=400$ nm, (b) $d_{Cu}=800$ nm それぞれにおいてフィッティング結果が異なるのは計算に用いた Cu の膜厚 L の値が異なる点が寄与している. その他今回のフィッティングに用いたコンダクタンス g^{11} , g はそれぞれ $3.5 \times 10^{15} \text{ cm}^2$, $1.0 \times 10^{15} \text{ cm}^2$ であり, 他の報告³⁾と比べても適当な値である. また最適フィッティングが得られるスピン緩和時間 τ_{sf} は $1.0 \times 10^{-11} \text{ s}$ である. Table.1 に本論文の実験結果および他の方法で報告されている Cu 内のスピン緩和時間 τ_{sf} を示す. 観測手法により差があるものの, オーダー的に良い一致を示している. しかしながら, 今回の計算結果では温度の減少とともに FMR 線幅が減少する点を説明できていない. この点に関しては, スピン緩和時間 τ_{sf} が温度に依存することを考慮

することにより説明できると考えられる. 例えばスピン緩和時間 τ_{sf} はスピン軌道相互作用やフォノンによる散乱⁷⁾を考慮すれば, τ_{sf} は温度の減少と共に増大することが予想されるため, FMR 線幅の減少を定性的には説明できる. この定量的な計算は今後の課題である.

Table. 1 Spin-flip time of this work and measured by various methods⁵⁾.

| methods | tsf(10-11 sec) |
|---------------------------|----------------|
| This work | 1.0 |
| Spin injection | 4.1 |
| CESR | 200-900 |
| GMR | 4.0 |
| AntiWeak localization | 5.0 |
| Energy-level spectroscopy | 20-80 |

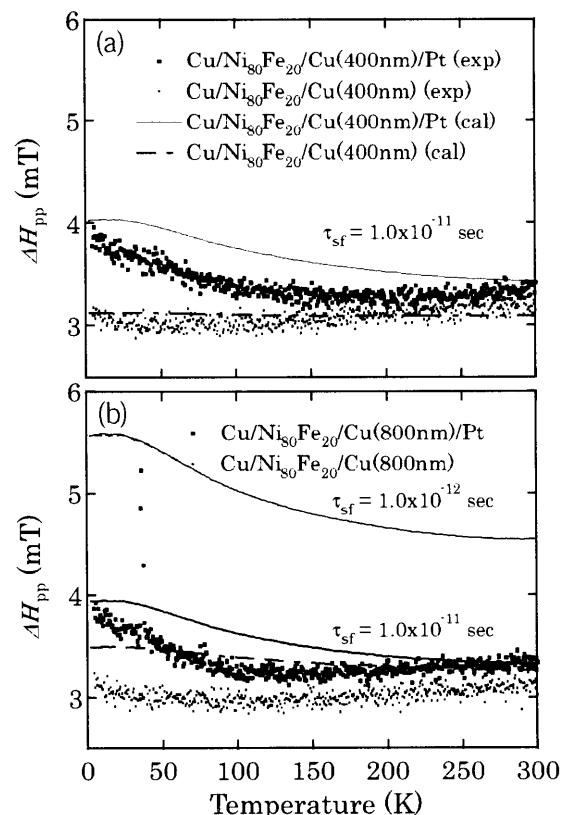


Fig. 5 Temperature dependence of FMR linewidth (a) $d_{Cu}=400$ nm, (b) $d_{Cu}=800$ nm. Dots are the measurements. Lines are calculations based on the modified theory of Tserkovnyak et al.³⁾

5.まとめ

Cu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(d_{Cu}) および Cu(10 nm)/Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/Cu(d_{Cu})/Pt(2 nm) の両積層膜における FMR 線幅の温度依存性を測定し, 温度の減少とともに Cu 内におけるスピン拡散長の増大を観測した. また Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu/Pt 積層膜において, スピンの拡散効果による

と考えられる温度の減少に伴う FMR 線幅の増大を観測した。これらをスピンの拡散効果を考慮したフィッティングを行い、定性的に説明した。

謝辞 本研究は文部科学省科学技術振興費主要 5 分野の研究開発委託事業の IT プログラム「高機能・超低消費電力メモリの開発」、科学研究費補助金、および CREST (科学技術振興機構) の補助金の支援によって行われた。

References

- 1) S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki: *J. Magn. Magn. Mater.*, 226-230, 1640 (2001).
- 2) S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki: *Phys. Rev., B*, 66, 104413 (2002).
- 3) Yaroslav Tserkovnyak and Arne Brataas: *Phys. Rev., B*, 66, 224403 (2002).
- 4) F.J. Jedema, A.T. Filip and B.J. Van Wees: *Nature* 410, 345 (2001).
- 5) F.J. Jedema, M.S. Nijboer, A.T. Filip: *Phys. Rev., B*, 67, 085319 (2003).
- 6) N. Strelkov and A. Vedyayev: *J. Appl. Phys.*, 94, 3278 (2003).
- 7) Albert W. Overhauser: *Phys. Rev.*, 89, 689 (1953).

2004 年 10 月 27 日受理, 2005 年 2 月 8 日採録