

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04588

研究課題名（和文）ホイスラー合金巨大磁気抵抗センサにおける低磁歪・低磁気ノイズの実現

研究課題名（英文）Realization of low-magnetostriction and low-magnetic noise in Heusler alloy based giant magnetoresistive sensors

研究代表者

中谷 友也（NAKATANI, Tomoya）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：60782646

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：ハードディスクの再生ヘッドや超微弱な磁場検出用途など、極限的な磁気センサの実現のため、磁歪と磁気ノイズの小さな強磁性材料の開発をおこなった。再生ヘッド用途では、Co₂(Mn,Fe)Geホイスラー合金における磁歪と磁気ダンピング、磁気抵抗の点から合金組成を最適化し、磁気センサの用途では、軟磁気特性と低ノイズを両立したアモルファス強磁性薄膜とセンサ素子を開発し、1/fノイズ抑制のための交流磁場変調の効果を詳細に調査した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高性能な磁気センサは磁気記録、車載・産業用途から、医療・健康に関わるさまざまな分野に必要である。本研究では、磁気記録用再生ヘッドと、生体磁気計測を目指した超高感度磁気センサを出口にターゲットとして、磁気抵抗素子の出力・感度の増大とノイズの低減を実現するための強磁性薄膜材料を開発した。またノイズ低減法として期待される交流磁界変調法の、センサのノイズ特性に与える効果を解明し、今後の磁気センサ研究の方向性を与えた。

研究成果の概要（英文）：We have developed ferromagnetic thin film materials for the realization of read heads for hard disk drives and magnetic sensors for ultra-small magnetic field detection. For the read head application, we obtained the optimal composition of Co₂(Mn,Fe)Ge Heusler alloy thin film in terms of magnetostriction, magnetic damping and magnetoresistance. For ultra-sensitive magnetic sensor application, we developed tunnel magnetoresistive sensors with soft magnetic and low noise characteristics. We also conducted thorough investigations on the effect of AC magnetic field modulation on the 1/f noise in the tunnel magnetoresistive sensors.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：磁気センサ 磁気抵抗 磁性材料 ノイズ

1. 研究開始当初の背景

磁場の大きさや方向を測定するセンサである磁気センサは、地磁気測定(コンパス)や機械の位置・回転検出、磁気記録などさまざまな用途がある。その中でも、磁気記録の再生ヘッドセンサや、生体磁場など超微弱な磁場検出用センサにおいて、高い出力と低いノイズの両立は中心的課題である。再生ヘッド用途では、現在用いられているトンネル磁気抵抗(TMR)センサに代わり、将来のハードディスクには面直電流巨大磁気抵抗(CPP-GMR)が有望である。大きな磁気抵抗比(MR比)を得るためには、スピン分極率の大きいコバルト基ホイスラー合金が有効であることが過去の研究から知られている。しかしながら、コバルト基ホイスラー合金は磁歪(じわい)定数が大きく、10 nm 程度のスケールである再生ヘッドセンサでは、周囲からの応力によって磁気異性が誘起(逆磁歪効果)されるため、センサの動作が不安定になることが最大のネックである。加えて、ノイズの観点では、強磁性層の熱ゆらぎによるノイズが支配的であるため、磁気ダンピング定数を低減することが重要である。

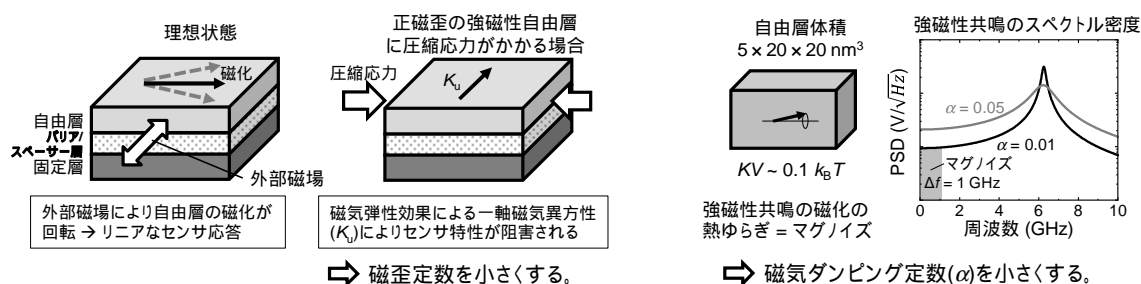


図1 本研究の課題

2. 研究の目的

コバルト基ホイスラー合金の磁歪定数と磁気ダンピング定数に対する、合金組成の依存性を系統的に調査し、これらを低減するための合金設計指針を見出す。それにより、高い磁気抵抗出力、軟磁気特性の外部応力に対する不感応性、低磁気ゆらぎノイズ、の全てを満たした面直電流巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子や、高感度なトンネル磁気抵抗素子開発し、ハードディスクの再生ヘッドや微弱磁場検出用磁気センサへ向けた課題を克服する。スパッタ薄膜・センサ素子の作製から、磁気特性やノイズ評価を一貫しておこない、磁気センサとしての実用展開を目指した総合的な材料開発を実施することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) ホイスラー合金薄膜の磁歪定数とダンピング定数測定

マグネトロンスパッタリングにより、 $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Ge}$ ホイスラー合金薄膜を作製した。Mn と Fe の組成を変化させるため、CoMn, CoFe, Ge の3種類のターゲットから同時スパッタした。本研究では多結晶薄膜のみを対象とした。その理由は、再生ヘッド応用では多結晶薄膜を用いることが絶対条件であることに加え、光てこ方を用いた磁歪定数測定では、薄膜の磁歪によって変形(反る)基板(ここでは0.3 mm厚のSi基板を使用した)を使用する必要があり、そのようなMgO単結晶基板の使用は困難であるためである。磁気ダンピング定数は強磁性共鳴によって測定した。

(2) TMR センサにおける低周波ノイズ測定

CoFeB/MgO/CoFeB 強磁性トンネル接合をベースとした TMR センサを作製した。自由層の軟磁気特性を改善するため、CoFeBTa などアモルファス合金薄膜を用いた。数 10 kHz 以下の周波数帯域でのノイズ測定には、市販の超低ノイズプリアンプと 24bit AD コンバーターを用いたデジタイザーを用いた。商用周波数の電磁ノイズの混入を防ぐために、センサのバイアス電圧は乾電池とバラスト抵抗を用いた。測定試料は磁気シールドボックス中に配置し、外部からの電磁ノイズの混入を低減した。

4. 研究成果

(1) $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Ge}$ 合金系の磁歪定数と磁気ダンピング定数

図 2(a) の積層構造をもつ $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Ge}$ (CMFG) 合金薄膜を作製した。 Co_2MnGe 合金 ($\text{Fe}/(\text{Mn}+\text{Fe}) = 0$) の場合、保磁力 (H_c) が 200 Oe と大きく、磁歪測定に支障があるため、CoFe (0.2 nm) を挿入することで H_c を低減した。図 2(b) に Fe 組成依存性を示す。Fe 組成の増大とともに磁歪定数は増加する傾向を示した。そのため、磁歪の観点からは Fe 組成の小さい CMFG が望ましい。図 2(c) に磁気ダンピング定数(α)の Fe 組成依存性を示す。Fe/(Mn+Fe) = 0.3-0.4 で α は最小値 0.002 を示した。この値は、CoFe や NiFe に比べて小さく、磁化揺らぎノイズの点

で CMFG の優位性を示している。また、CPP-GMR 比は $Fe/(Mn+Fe) = 0.4$ において最大値 18% を示した。そのため、磁歪、磁気ダンピング、CPP-GMR の点から $Fe/(Mn+Fe) = 0.4$ が CMFG の最適組成と結論された。

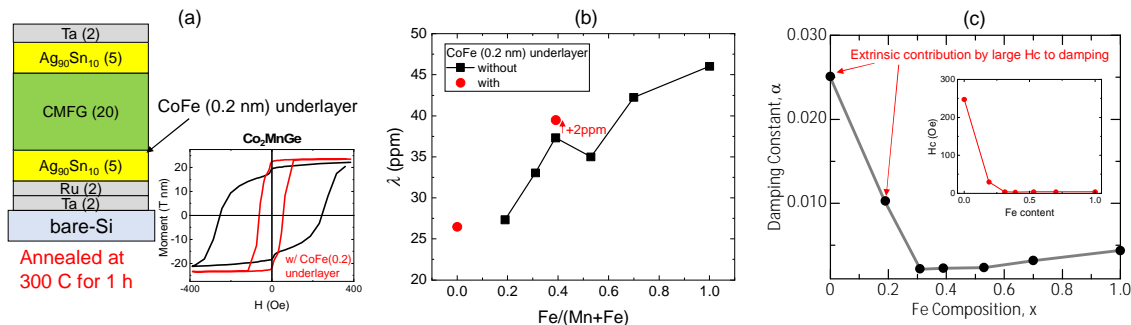


図 2 CMFG 合金薄膜の磁歪と磁気ダンピング定数

(2) 負磁歪材料の積層による自由層磁歪の低減

以上の結果から、CMFG ホイスラー合金薄膜は数 10ppm の正の磁歪定数をもつことがわかった。この値は再生ヘッド应用には大きすぎる。そこで、図 3(a)のように、負の磁歪定数をもつ材料の積層により、自由層トータルとしての磁歪定数を低減することを試みた。ここで、スパッタ薄膜において -30 ppm という大きな負磁歪をもつ Ni を積層した (図 3(b))。図 3(c)に示すように、Ni の積層によって自由層の磁歪は効果的に低減できる。しかしながら、CMFG 上に Ni を直接積層することで、CPP-GMR 比が 1/3 に低下した。これは Ni の拡散によると考えられる。そこで CoFeBTa (CBFT) (1 nm)層を挿入したところ、磁歪の低減効果はそのままに CPP-GMR 比の低下が軽減された。さらに CFBT と Ni の間に Ta (0.3 nm)を挿入したところ、CPP-GMR 比の低下が全くなく、効果的に自由層の磁歪が低減できることがわかった。

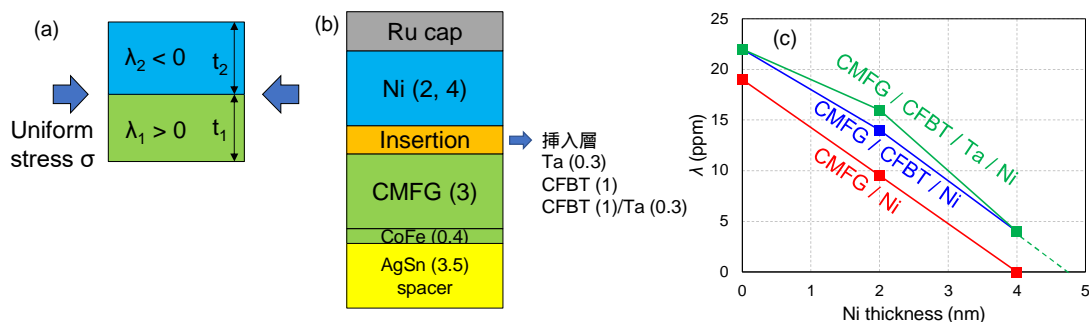


図 3 Ni 積層による自由層の磁歪の低減

(3) アモルファス CoFeBTa を用いたトンネル磁気抵抗センサ

当初の研究計画では、ホイスラー合金をもちいた CPP-GMR 素子における磁歪と磁気ダンピングの低減による低ノイズのみを計画していたが、磁化ゆらぎノイズという観点では、高感度な TMR センサにおけるノイズが、実用上も基礎的にも重要課題であるため、TMR センサにおける低周波 $1/f$ ノイズの評価と低減に研究を展開した。TMR センサにおいてはホイスラー合金ではなく、CoFeB/MgO を使う必要があり、磁化自由層の軟磁気特性が良好であり、磁気異方性が小さいことが重要である。そこで、本研究では、図 4(a)のように、自由層としてアモルファス $Co_{36.5}Fe_{36.5}B_{18}Ta_9$ と $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ (組成は at. %, 以下ではそれぞれ CoFeBTa, CoFeB と呼ぶ) の積層構造を用いた。CoFeBTa は 350 °C のアニール後もアモルファスであり、自由層の軟磁性を担う。一方、CoFeB はアニールによって bcc-CoFe に結晶化し、MgO トンネルバリアとの TMR を実現する。

ここでは、2 段階アニール法によって、MgO トンネルバリアを挟んだ自由層と参照層の磁化が、無磁場下で直交するようにしている。すなわち、まず y 方向 (紙面奥向き) に数 kOe の外部磁場を印加し、350 °C で 1 h でアニールする。これによって、自由層は y 方向に誘導磁気異方性 (H_{ky}) を獲得する。次に、x 方向 (紙面横向き) に外部磁場を印加し、200 °C 以上でアニールする。これによって、1 回目のアニール (350 °C) により固定層に誘起された交換バイアスは消失し、固定層および参照層の磁化は x 方向に互いに逆向きにピンされる。図 4(b)は、x 方向に磁場を印加したときの TMR 曲線である。2 回目のアニール温度 (T_{2nd}) が 200 °C の場合、線形で磁気ヒステリシスの小さい TMR 曲線が得られ、磁気センサとして好適な特性を示す。一方、 $T_{2nd} = 250, 280$ °C では TMR 曲線は顕著なヒステリシスを示す。この挙動は、2 回目のアニールによって、自由層に元来望ましくない x 方向の磁気異方性 (H_{kx}) が誘導されることで説明される。図 4(c)は単磁区を仮定した Stoner-Wohlfarth モデルによる TMR 曲線の計算結果を示す。 H_{kx}

を導入することで、TMR 曲線はヒステリシスを示す。

図 4(d)は $T_{2nd} = 200\text{ }^\circ\text{C}$ の場合の TMR 曲線と、感度 ($dR/dH/R_{min}$) 曲線である。 $\mu_0 H_x = 1\text{ mT}$ 付近で感度は最大値 $70\%/mT$ を示す。図 4(e)は $f = 10\text{ Hz}$ における detectivity (D) の H_x 依存性である。detectivity とは(ノイズ)/(感度 \times バイアス電圧)で定義され、センサのノイズを磁場に換算したものである。このセンサにおいて、最小の D は $2\text{ nT}/\text{Hz}^{0.5}$ であり、先行文献における NiFe (パーマロイ) を自由層に用いた TMR センサの $16\text{ nT}/\text{Hz}^{0.5}$ に比べ、1 桁小さい (良好な) 値である。この結果から、アモルファス軟磁性体を自由層に用いることにより、磁気的な $1/f$ ノイズを低減できることがわかった。[Rasly, Nakatani et al. J. Phys. D. 54, 095002 (2021).]

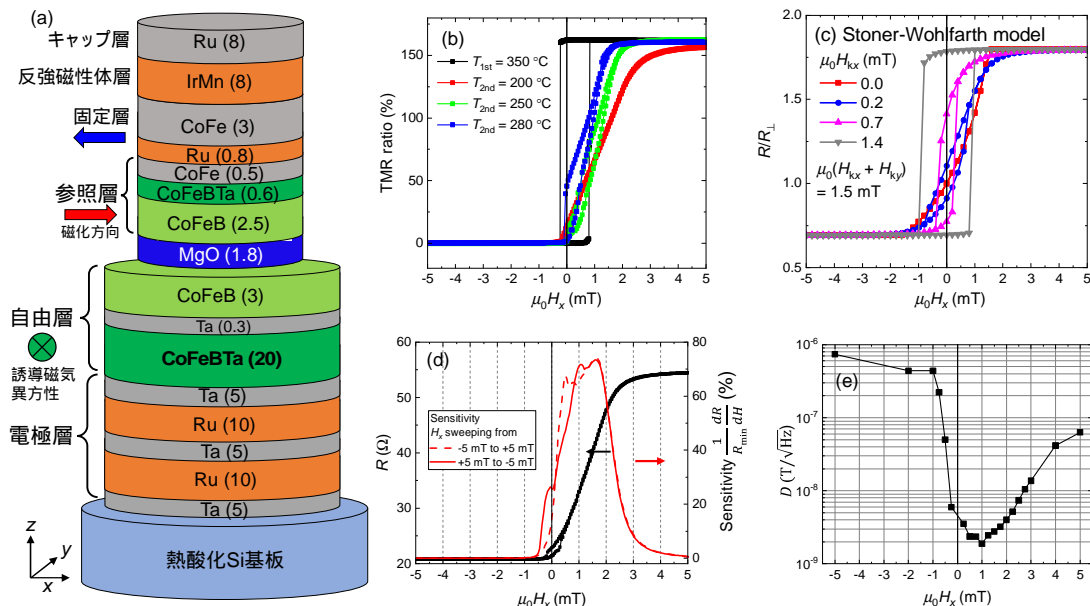


図 4 アモルファス CoFeBTa を自由層に用いた TMR センサの磁気特性と低周波ノイズ特性

(4) 交流変調による $1/f$ ノイズの低減策の検討

上記の研究から、TMR センサにおける低周波帯域のノイズは $1/f$ ノイズ、特に磁化の熱ゆらぎに起因する $1/f$ ノイズが支配的であり、これを抑制することが、高感度な磁気センサの実現に不可欠である。 $1/f$ ノイズを低減するための方法として、kHz 程度の交流外部磁場を用いた交流変調が提案されている。本研究では、この交流磁場変調を TMR センサに適用し、そのノイズ特性の変化を調査した。

まず、交流磁場変調には、外部磁場(H)の正負に対して抵抗(R)が対称に変化する、いわゆる偶関数 R-H 曲線が必要であるため、まずそのような TMR センサを開発した。その積層構造を図 5(a)に示す。自由層は図 4(a)と同じく、CoFeBTa (20 nm)/Ta (0.3 nm)/CoFeB (3 nm)の積層構造からなるが、その下に AgSn スペース層を介して、CoFe 固定層を設けている。自由層と CoFe 固定層の間には、AgSn スペースのラフネスに起因する微弱な強磁性結合 (orange-peel coupling) があり、これによって自由層の磁化は CoFeB 固定層の磁化と同方向に微弱な一方向磁気異方性をもつ。この状況において、自由層の困難軸 (y 方向) に外部磁場を印加したときの R-H 曲線を図 5(b)に示すが、偶関数曲線を示し、磁場の掃引方向に対してほとんどヒステリシスを示さず、磁気センサとして好ましい特性を示す。[特開 2022-134693]

この TMR センサに対して交流磁場変調をおこなった。図 5(c)に 10 kHz 変調磁場の有無によるノイズスペクトラムの変化を示す。変調磁場下では、2 つの特徴をもつノイズスペクトラムの変化を示した。一つ目はノイズのベースが上がるもので、フラットなスペクトラムを示すことから便宜上 "flat noise" と呼ぶ。二つ目は変調磁場のピーク (f_{ac}) の裾野である。これは $1/f$ 的な周波数依存性を持ち、便宜上 "noise skirt" と呼ぶ。考察の結果、flat noise は変調磁場によって自由層中に発生・消滅する磁区によるランダムテレグラフノイズであると考えられ、noise skirt は磁化の熱ゆらぎに由来する $1/f$ ノイズが変調されるためであることがわかった。すなわち、外部磁場による交流変調では磁気的な $1/f$ ノイズを回避できないことがわかった。[Nakatani et al. Appl. Phys. Lett. 121, 192406 (2022)]その一方で、MgO トンネルバリア中や界面における結晶欠陥に由来する電気的な $1/f$ ノイズは交流変調によって効果的に除去できることがわかった。[論文執筆中]

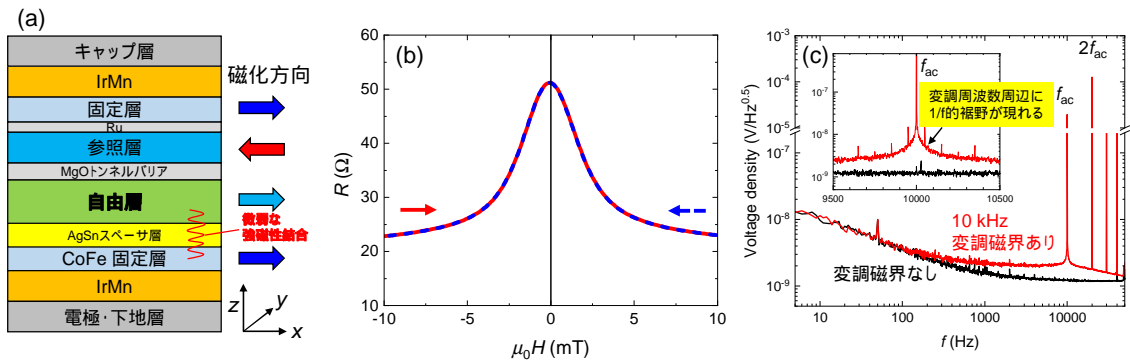


図 5 偶関数抵抗-磁場特性を示す TMR センサと交流変調磁場のノイズ特性への影響

(5) 対称性の高い偶関数 R-H 特性を示す TMR センサの開発

派生的な成果として、図 6(a)に示すような、MgO トンネルバリアの両側が自由層である TMR センサを開発した。図 6(b)は自由層の困難軸に対する R-H 曲線であり、200%以上の TMR 比を示す。このセンサは自由層が 2 つあることから、外部磁場の印加方向が困難軸からずれた場合でも、R-H 曲線は高い対称性を維持することが特徴である。偶関数 R-H 特性は図 6(c)のような位置、回転数、角度のセンサであるエンコーダに好適であり、本センサの R-H 曲線の高い対称性は、センサ実装時のミスアライメントに対する寛容性を示す。[特願 2022-127029, Nakatani, Iwasaki, J. Appl. Phys. 132, 223904 (2022)]

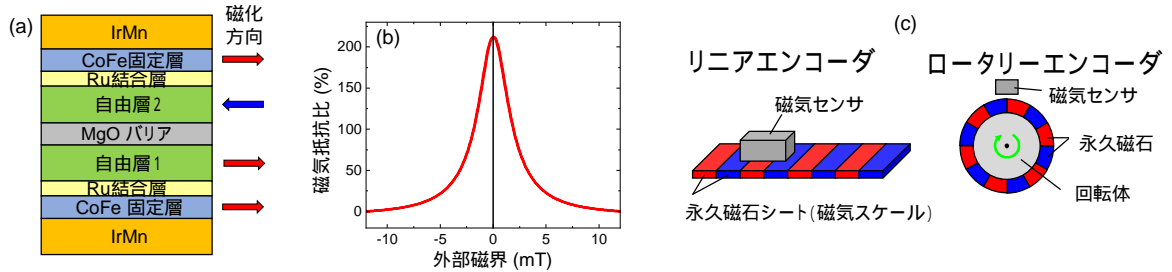


図 6 自由層を 2 枚もつ TMR センサとエンコーダ応用

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Kulkarni Prabhanjan D., Nakatani Tomoya, Sasaki Taisuke, Sakuraba Yuya | 4. 巻 129 |
| 2. 論文標題 Effects of (Ni _{0.8} Fe _{0.2}) _{100-x} Cr _x seed layer on microstructure, magnetic properties, and giant magnetoresistance of [FeCoNi/Cu] multilayer films | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 213901 ~ 213901 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0054264 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Nakatani Tomoya, Narayananellore Sai Krishna, Kumara Loku Singgappulige Rosantha, Tajiri Hiroo, Sakuraba Yuya, Hono Kazuhiro | 4. 巻 189 |
| 2. 論文標題 Thickness dependence of degree of B2 order of polycrystalline Co ₂ (Mn _{0.6} Fe _{0.4})Ge Heusler alloy films measured by anomalous X-ray diffraction and its impacts on current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance properties | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Scripta Materialia | 6. 最初と最後の頁 63 ~ 66 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scriptamat.2020.08.002 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Kulkarni Prabhanjan D., Nakatani Tomoya, Li Zehao, Sasaki Taisuke, Sakuraba Yuya | 4. 巻 560 |
| 2. 論文標題 The effect of NiFeCr seed layer composition on the giant magnetoresistance properties of [FeCoNi/Cu] multilayers | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials | 6. 最初と最後の頁 169562 ~ 169562 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jmmm.2022.169562 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Nakatani Tomoya, Suto Hirofumi, Kulkarni Prabhanjan D., Iwasaki Hitoshi, Sakuraba Yuya | 4. 巻 121 |
| 2. 論文標題 Tunnel magnetoresistance sensors with symmetric resistance-field response and noise properties under AC magnetic field modulation | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 192406 ~ 192406 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0119677 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Nakatani Tomoya, Iwasaki Hitoshi | 4. 巻 132 |
| 2. 論文標題 Tunnel magnetoresistance sensors with dual soft-pinned free layers exhibiting highly symmetric resistance-field response curves | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 223904 ~ 223904 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0132173 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

[学会発表] 計6件(うち招待講演 2件/うち国際学会 4件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Nakatani, M. Rasly, J. Li, H. Sepehri-Amin, H. Sukegawa, Y. Sakuraba |
| 2. 発表標題 Tunnel magnetoresistance sensors with CoFeBTa amorphous soft-magnetic sensing layer |
| 3. 学会等名 Intermag 2021 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 中谷友也, Prabhanjan D. Kulkarni, 岩崎仁志, 桜庭裕弥 |
| 2. 発表標題 偶関数型抵抗-磁界特性を示すトンネル磁気抵抗素子の作製 |
| 3. 学会等名 第45回日本磁気学会学術講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 P. D. Kulkarni, T. Nakatani, Y. Sakuraba |
| 2. 発表標題 The compositional dependence of NiFeCr seed layer on giant magnetoresistance of [FeCoNi/Cu] multilayers |
| 3. 学会等名 15th Joint MMM-Intermag Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 中谷友也 |
| 2. 発表標題 HDD再生ヘッド技術の将来展望 |
| 3. 学会等名 日本磁気学会 第8回岩崎コンファレンス(招待講演) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Nakatani, H. Suto, P. D. Kulkarni, H. Iwasaki, Y. Sakuraba |
| 2. 発表標題 AC magnetic field modulation on tunnel magnetoresistance sensors with even-function resistance-field response |
| 3. 学会等名 Intermag 2023(国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Tomoya Nakatani |
| 2. 発表標題 unnel magnetoresistance sensors with even-function resistance-magnetic field response |
| 3. 学会等名 SPIE Spintronics XVI(招待講演)(国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計4件

| | | |
|---------------------------------|--|--------------------------------------|
| 産業財産権の名称 磁気センサ及び検査装置 | 発明者 岩崎仁志、白鳥聡 志、喜々津哲、東祥 弘、中谷友也 | 権利者 株式会社東芝、 国立研究開発法 人物質・材料研 |
| 産業財産権の種類、番号 特許、特開2022-134693 | 出願年 2021年 | 国内・外国の別 国内 |

| | | |
|---------------------------------|---|----------------------------------|
| 産業財産権の名称 磁気センサ | 発明者 クルカルニ プラバ ンジャン ディリ プ、岩崎仁志、中谷 | 権利者 国立研究開発法 人物質・材料研 究機構 |
| 産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-065484 | 出願年 2022年 | 国内・外国の別 国内 |

| | | |
|--|------------------|----------------------------------|
| 産業財産権の名称 磁気接合、TMR素子、TMR素子アレイ、及びこれらを用いた磁気センサ、並びにこれらを用いたリニアエンコーダ用磁気センサ又は磁気式ロータリーエンコーダ | 発明者 中谷友也、岩崎仁志 | 権利者 国立研究開発法 人物質・材料研 究機構 |
| 産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-127029 | 出願年 2022年 | 国内・外国の別 国内 |

| | | |
|--|------------------|--------------------------|
| 産業財産権の名称 TMR素子を用いた磁気センサ、並びにこれを用いたリニアエンコーダ用 磁気センサ又は磁気式ロータリーエンコーダ | 発明者 岩崎仁志、中谷友也 | 権利者 国立研究開発法人物質・材料研究機構 |
| 産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-204231 | 出願年 2022年 | 国内・外国の別 国内 |

〔取得〕 計0件

〔その他〕

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|--|------------------------------|----|
| 研究分担者 | 遠藤 恭 (ENDO Yasushi) (50335379) | 東北大学・工学研究科・教授 (11301) | |

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|---------------------------|-----------------------|----|
| 研究協力者 | 首藤 浩文 (SUTO Hirofumi) | | |
| 研究協力者 | 桜庭 裕弥 (SAKURABA Yuya) | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |