

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289102

研究課題名(和文) 反強磁性NiO層を介したスピン制御によるGMR磁気センサの高機能化

研究課題名(英文) High performance GMR sensors using spin-control by anti-ferromagnetic NiO layer

研究代表者

岩田 聡 (Iwata, Satoshi)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

研究者番号：60151742

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：NiO層をサンドウィッチした強磁性三層膜を磁化自由層をもつ巨大磁気抵抗素子の開発と磁気センサへの応用の検討を行なった。CoFe/NiO/CoFeB三層膜において、NiO層の層厚を3nmまで薄膜化することで、2つの磁性層が磁氣的に結合することが分かり、これを磁化自由層とするスピバルブ膜を作製したところ、約1.5%の磁気抵抗変化が得られた。また、FeSiB/CoFeB二層膜を磁化自由層とするスピバルブ膜をカバーガラス上に成膜して、ガラス基板を歪ませたときの信号出力を観察したところ、引っ張り歪みから圧縮歪みへの変化に伴って、出力信号の増大が観察された。

研究成果の概要(英文)：Giant Magnetoresistance (GMR) films with a magnetic free layer of NiO sandwiched tri-layer was developed and its application to magnetic sensors was investigated. It is found that an exchange coupled CoFe/NiO/CoFeB tri-layers were obtained by using NiO thickness with 3 nm. A spin valve film with this tri-layer as magnetic free layer shows the magnetoresistance effect with 1.5% MR-ratio. A spin valve film with a magnetic free layer of FeSiB/FeCoB was deposited on a cover glass and was applied to strain sensors. Output signals was increased with changing the strain from tensile strain to compressive strain.

研究分野：スピンエレクトロニクス

キーワード：NiO反強磁性層 歪みセンサ 巨大磁気抵抗効果 スピバルブ膜 一方向異方性 触覚センサ

### 1. 研究開始当初の背景

外部磁界を加えると薄膜の電気抵抗が変化する磁気抵抗素子は、基本的に2端子のデバイスであるため、構造がシンプルであり、低コストで製造可能である。そのため、方位センサ、位置センサ、角度センサなど、様々な分野のセンシングに応用されている。特に1988年に発見された巨大磁気抵抗効果(GMR)は、大きな磁気抵抗変が得られるため、応用範囲が広い。近年、生体情報を扱う電子デバイスの開発が盛んに行われるようになってきているが、磁気センサには、人体に対して非侵入で生体情報をセンシングできるという長所がある。すでに心臓からの心磁界や脳磁界を超伝導量子干渉磁束計(SQUID)などの超高感度の計測器で測定する研究も進められているが、ウェアラブルな小型デバイスの開発には至っていない。GMR磁気センサは、ミクロンサイズへの小型化が可能という点では、生体磁気センサとしてのポテンシャルが高いが、生体磁気を検出するためには、感度が不足している。GMR素子の感度は、磁気抵抗比、磁化自由層の磁気異方性の強さ、磁気異方性の分散など、いろいろな要因に左右されるが、磁気異方性などを十分制御したとしても、磁化自由層に対する熱揺らぎによる雑音が残留する。熱揺らぎによる影響は、磁化自由層の体積に逆比例するため、体積を増すことで、雑音を減らすことができるが、磁化自由層を厚くすると、センス電流の分流効果によって、磁気抵抗変化が低下して、感度を下げることになる。したがって、熱揺らぎによる雑音の低減と、大きな磁気抵抗効果の発現を同時に満たす磁気センサ素子の実現が求められる。

### 2. 研究の目的

上記のように熱揺らぎによる雑音を減らすためには、磁化自由層を厚くする必要があるが、磁気抵抗効果が低下しないように膜全体にセンス電流が流れないようにする工夫が求められる。そのためには、磁化自由層を絶縁層を挟んだサンドウィッチ構造として、一方の磁性金属層のみにセンス電流を流し、他方の金属層には電流が流れないようにすればよい。しかし、3層構造全体は、磁気的には結合して一体として磁化変化する必要があるため、絶縁層には、2つの強磁性層を磁気的に結合させる磁性材料を用いなければならない。フェライトなどの強磁性酸化物は、その有力な候補ではあるが、生成に300°C以上の熱処理を必要とするため、スピバルブ膜中に導入するのは容易ではない。一方、反強磁性のNiO膜は、室温におけるスパッタ成膜で用意に反強磁性の特性を示すことが知られており、申請者らは、過去に強磁性金属/NiO/強磁性金属の3層膜の磁気的結合に関する研究の経験があった。そのため、本研究では、磁化自由層をNiO層をサンドウィッ

チした構造とすることで、従来より高感度・高機能な磁気センサを開発することを目的とした。

### 3. 研究の方法

GMR多層膜は、4元マグネトロンスパッタ(3インチターゲット)と8元マグネトロンスパッタ(2インチターゲット)で作製した。NiO/強磁性層の交換結合膜は、より大きな一方向異方性が得られた4元スパッタで、GMR構造は、8元スパッタで成膜した。まず、NiOと強磁性層との交換結合を調べるため、NiO/FeCo、NiO/FeCoB、NiO/NiFeなどの二層膜を作製して、保磁力や一方向異方性を調べた。次いで、CoFe/NiO/CoFeBなどの三層膜を作製して、2つの磁性層のNiO層を介した交換結合の特性を評価した。さらに、2つの磁性層が磁気的に結合していることが確認された膜構成を磁化自由層としたスピバルブ膜(磁化自由層/Cu/FeCo/MnIr/Ta)を作製し、磁気特性および磁気抵抗特性を評価した。

一方、GMR素子の1つの新しい応用として歪みセンサの開発も行なった。これは、厚さ0.15mm厚のカバーガラス上にFeSiB(10nm)/CoFeB(3nm)/Cu(2.3nm)/FeCo(3nm)/MnIr(10nm)の構成の膜をスパッタ成膜し、幅100μm、長さ1200μmの細線に微細加工したものである。この試料を図1のように片持ちに固定して自由端に力を加えてガラス基板を歪ませたとき、その磁気抵抗変化を測定した。

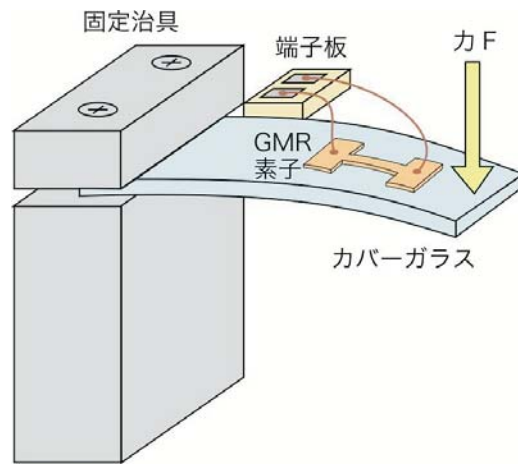


図1. 歪みセンサの特性の評価方法

### 4. 研究成果

図2は、Si基板/Ta(10nm)/NiO(20nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub>(5nm)/Ta(10nm)及び、Si基板/Ta(10nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub>(5nm)/NiO(20nm)/Ta(10nm)膜の磁化曲線を示している。測定磁界は、成膜中に印加した静磁界と

同じ方向（容易軸方向）に加えている。いずれの場合も、一方向異方性が認められるが、NiO層が下の方が保磁力が大きく、交換異方性の値も大きいことが分かる。一般的にアモルファス材料の上にNiO層を積層した場合、交換結合が弱くなる傾向が見られたため、NiOの下部層を結晶質のCoFe、NiO層の上部層をCoFeBとした三層膜、Si基板/Ta(5nm)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(5nm)/NiO(5nm)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>/92B<sub>8</sub>(5nm)/Ta(5nm)膜を作製した。図3(a)は、その容易軸方向の磁化曲線を示しているが、2段のループとなり、NiOを挟んだ2つの磁性層の磁気的な結合が不十分で、それぞれ独立に磁化反転していることが分かる。そこで、2つの磁性層間の結合を強めるために、NiO層を3nmと薄くした同じ構成の三層膜を作製したところ、図3(b)に示すように、磁化曲線は1段のループとなり、2つの磁性層が反強磁性NiO層を介して、磁気的に結合していることを示している。保磁力が、少々大きくなっているのは、NiO層の磁気異方性のためと考えられるが、これが、磁気センサとしての動作にどのように影響するかは今のところ不明である。

以上の検討で、NiO層を介した交換結合三層膜を実現する条件が明らかとなったため、この三層膜を磁化自由層としたスピバルブ型のGMR膜を4元スパッタと8元スパッタを用いて作製した。4元スパッタと8元スパッタは、超高真空のトンネルチャンバで連結されており、真空一貫のプロセスとなっている。膜の構造は、Si基板/Ta(5nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub>(5nm)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(4nm)/NiO(3nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub>(5nm)/Cu(

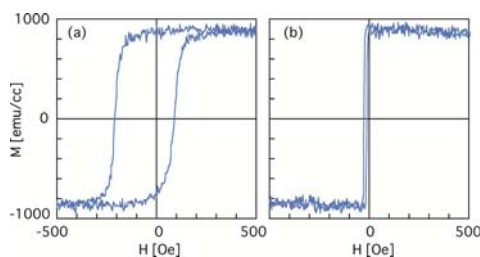


図2. (a)Si基板/Ta/NiO/CoFeB/Ta及び、(b)Si基板/Ta/CoFeB/NiO/Ta膜の磁化曲線

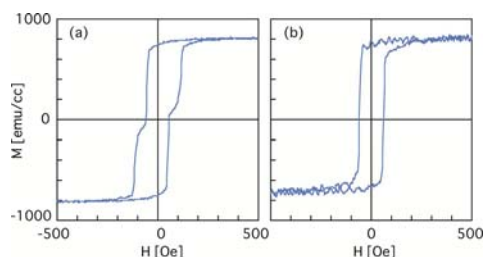


図3. (a)Si/Ta/CoFe(5nm)/NiO(5nm)/CoFeB(5nm)/Ta及び、(b)Si/Ta/CoFe(5nm)/NiO(3nm)/CoFeB(5nm)/Ta膜の磁化曲線

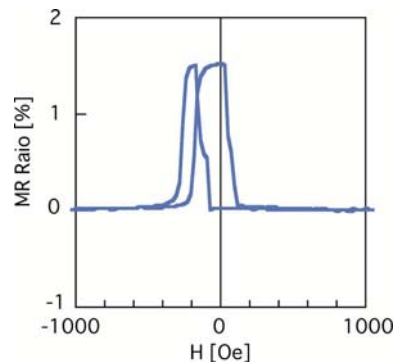


図4. Si基板  
/Ta(5nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub>(5nm)  
/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(4nm)/NiO(3nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub>  
(5nm)/Cu(2.2nm)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(3nm)/MnIr  
(10nm)/Ta(2nm)膜の磁気抵抗曲線

2.2nm)/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>(3nm)/MnIr(10nm)/Ta(2nm)膜であり、磁化自由層の保磁力を低減するためにFeCo層の下にCoFeBアモルファス層を設けた。図4は、このスピバルブ膜の磁気抵抗特性を示しているが、約1.5%の磁気抵抗変化が得られている。この値は、NiO層より下の層を除いた単純なスピバルブ膜のMR比の半分以下の値となっており、NiO層より下の層への電流の分流、Cu層の上下の界面の平坦性の劣化などの理由が考えられる。また、磁化自由層の保磁力が大きくなっているが、これは、図3(b)に示した三層膜の保磁力の大きさに対応したものと考えられ、磁気センサとして応用する場合には、直流バイアス磁界による磁化自由層の制御を工夫する必要がある。しかし、当初、目標としていたNiO層をサンドウィッチした交換結合三層膜を磁化自由層としたスピバルブ膜を作製して、磁気抵抗変化が得ることができた。

NiO層を含む三層膜は、歪みセンサへの応用も検討しているが、本研究では、その前段階として、CoFeB磁化自由層を用いた歪みセンサを作製した。しかし、CoFeB薄膜の磁歪定数を測定したところ、 $10^{-6}$ のオーダーで値が低いため、歪みセンサとしても、大きな出力は得られなかった。そこで、磁歪定数が大きいことが知られているFeSiB層を磁化自由層としたスピバルブ膜を作製したが、磁気抵抗変化が大幅に低下してしまったため、FeSiB層とCu層の間にCoFeB層を挿入したスピバルブ膜を作製したところ、図5に示すように2.2%程度のMR変化が得られた。この膜を幅100μm、長さ1200μmの細線に加工し、図6の測定回路に組み込んで、センサ特性を評価した。GMRの素子部には、静磁界によって磁化自由層の磁化方向を回転させ、磁化固定層と角度をなすようにした後、1kHzの

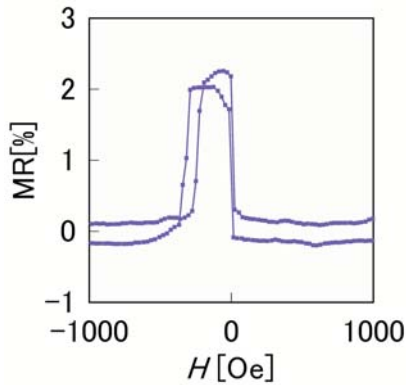


図 5. カバーガラス上の FeSiB(10nm)/CoFeB(3nm)/Cu(2.3nm)/CoFe(3nm)/MnIr(10nm) 膜の磁気抵抗曲線

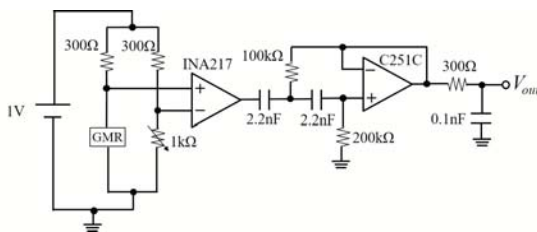


図 6. 歪みセンサの測定回路

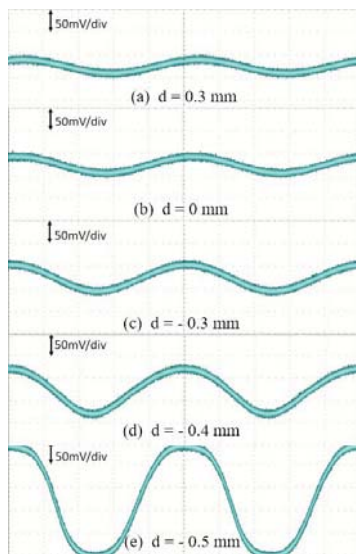


図 7. 歪みセンサの出力波形

交流磁界を容易方向に加えて、磁化自由層の磁化方向を交流的に変化させた。図 1 に示すようにガラス基板に力を加えて歪ませると、磁歪の逆効果によって、磁化自由層の一軸異方性の大きさが変化するため、1kHz の磁化方向の振動振幅が変化する。この 1kHz の信号を計装アンプで増幅して、フィルター回路を通してシンクロスコープで観察したのが、図 7 である。片持ちに保

持した試料の自由端をマイクロメータによって変位させたとき、引っ張り応力（端部の変位量  $d=0.3\text{mm}$ ）から、応力 = 0、圧縮応力 ( $d<0$ ) へと変化させると、信号振幅が、徐々に大きくなるのが分かる。信号の変化は、10mV のオーダーであり、磁気センサとして十分利用可能な出力電圧が得られている。今後は、NiO を含む磁化自由層の導入などにより、出力の増大を図るとともに、アレイ化による触覚センサなどへの応用を検討したい。

## 5. 主な発表論文等 〔雑誌論文〕 (計 13 件)

- (1) N. Roschewsky, T. Matsumura, S. Cheema, F. Hellman, T. Kato, S. Iwata, S. Salahuddin: Spin-orbit torques in ferrimagnetic GdFeCo alloys, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 109, pp112403-1-4 (2016.09.16). 査読有  
10.1063/1.4962812
- (2) K. Makihara, T. Kato, Y. Kabeya, Y. Mitsuyuki, A. Ohta, D. Oshima, S. Iwata, Y. Darma, M. Ikeda, S. Miyazaki: Nano spin-diodes using FePt-NDs with huge on/off current ratio at room temperature, *Scientific Reports*, vol. 6, 33409-1-7 (2016.09.12). 査読有  
10.1038/srep33409
- (3) T. Higashide, B. Dai, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata: Effective Damping Constant and Current Induced Magnetization Switching of GdFeCo / TbFe Exchange-Coupled Bilayer, *IEEE Magn. Lett.*, vol. 7, 3505605-1-5 (2016.09.12). 査読有  
10.1109/LMAG.2016.2595502
- (4) I. P. T. Indrayana, N. Siregar, E. Suharyadi, T. Kato, S. Iwata: The calcination temperature dependence of microstructural, vibrational spectra and magnetic properties of nanocrystalline  $\text{Mn}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ , *J. Phys.: Conference Series*, vol. 776, pp. 012021-1-7 (2016). 査読有  
10.1088/1742-6596/776/1/012021
- (5) . Kodama, S. Tomita, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata, S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, N. Hosoi, H. Yanagi: Ferromagnetic Resonance of a Single Magnetochiral Metamolecule of Permalloy, *Phys. Rev. Appl.*, vol. 6, no. 2, 024016-1-9 (2016.08.24). 査読有  
10.1103/PhysRevApplied.6.024016

- (6) D. Oshima, M. Tanimoto, T. Kato, Y. Fujiwara, T. Nakamura, Y. Kotani, S. Tsunashima, S. Iwata: Ion irradiation induced magnetic transition of MnGa alloy films studied by X-ray magnetic circular dichroism and low-temperature hysteresis loops, IEEE Trans. Magn., vol. 52, no. 7, pp. 3201804-1-4 (2016.07.01). 査読有  
10.1109/TMAG.2016.2527050
- (7) M. Sasaki, G. Lou, Q. Liu, M. Ninomiya, T. Kato, S. Iwata, T. Ishibashi: Nd<sub>0.5</sub>Bi<sub>2.5</sub>Fe<sub>5-y</sub>Ga<sub>O</sub>12 thin films on Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> substrates prepared by metal-organic decomposition, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 55, pp. 055501-1-7 (2016.05.01). 査読有  
10.7567/JJAP.55.055501
- (8) T. Nagata, Y. Tokuoka, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata: Structure and Magnetic Properties of (001) Oriented CoPt-Ag and CoPd-Ag Alloy Films, J. Magn. Soc. Jpn., vol. 40, no. 1, pp. 13-17 (2016.01). 査読有  
10.3379/msjmag.1512R003
- (9) R. Fukuoka, H. Zhang, K. Makihara, Y. Tokuoka, T. Kato, S. Iwata, S. Miyazaki: High Density Formation of FePt Alloy Nanodots Induced by Remote Hydrogen Plasma and Characterization of Their Magnetic Properties, Trans. Mat. Res. Soc. Jpn., vol. 40, pp. 347-350 (2015.12.04). 査読有  
10.14723/tmrj.40.347
- (10) Sh. Yamamoto, M. Taguchi, T. Someya, Y. Kubota, S. Ito, H. Wadati, M. Fujisawa, F. Capotondi, E. Pedersoli, M. Manfredda, L. Raimondi, M. Kiskinova, J. Fujii, P. Moras, T. Tsuyama, T. Nakamura, T. Kato, T. Higashide, S. Iwata, S. Yamamoto, S. Shin, I. Matsuda: Ultrafast spin-switching of a ferrimagnetic alloy at room temperature traced by resonant magneto-optical Kerr effect using a seeded free electron laser, Rev. Sci. Instrum., vol. 86, no. 8, 083901-1-5 (2015.08.01). 査読有  
10.1063/1.4927828
- (11) D. Oshima, M. Tanimoto, T. Kato, Y. Fujiwara, T. Nakamura, Y. Kotani, S. Tsunashima, S. Iwata: Modifications of Structure and Magnetic Properties of L10 MnAl and MnGa Films by Kr<sup>+</sup> Ion Irradiation, IEEE Trans. Magn., vol. 50, no. 12, 3203407-1-7 (2014.12.01). 査読有  
10.1109/TMAG.2014.2332975
- (12) E. Kita, K. Suzuki, Y. Liu, Y. Utsumi, J. Morishita, D. Oshima, T. Kato, T. Niizeki, K. Mibu, H. Yanagihara: Magnetization control for bit pattern formation of spinel ferromagnetic oxides by Kr ion implantation, J. Appl. Phys., vol. 115, 17B907-1-3 (2014.05.07). 査読有  
10.1063/1.4868704
- (13) Y. Tokuoka, Y. Seto, T. Kato, S. Iwata: Effect of Ag addition to L10 FePt and L10 FePd films grown by molecular beam epitaxy, J. Appl. Phys., vol. 115, pp. 17B716-1-3 (2014.05.07). 査読有  
10.1063/1.4864251
- 〔学会発表〕(計 10 件)
- (1) Y. Hashimoto, N. Yamamoto, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata: Magnetic strain sensor using GMR films with magnetostrictive FeSiB free layer, IEEE International Magnetics Conference 2017, Dublin, Ireland, (2017.04.24).
- (2) T. Kato, S. Iwata, Y. Honkura: Fabrication of High Sensitive Magnetic Field Sensor with Amorphous Wire and Fine Pitch Coils, 29th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Kyoto, 9D-2-3 (2016.11.08).
- (3) T. Matsumura, D. Oshima, T. Kato, N. Roschewsky, S. Salahuddin, S. Iwata: Magnetization switching induced by spin-orbit torques in perpendicularly magnetized Ta / GdFeCo bilayers, 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, New Orleans, Louisiana, USA, CP-13 (2016.10.31).
- (4) H. Kano, T. Kato, D. Oshima, S. Takahashi, Y. Sonobe, S. Iwata: Magnetization dynamics and magnetic anisotropy of ion irradiated L10-MnGa films, 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, New Orleans, Louisiana, USA, CQ-08 (2016.10.31).
- (5) 大瀧雄介, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡: Co/Ni 多層膜を用いたスピン波磁界センサのための磁化ダイナミクス計測, 平成 28 年度電気学会東海支部連合大会, 豊田工業高等専門学校, 愛知, L4-6 (2016.09.13).

(6) 松村智矢, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡 : 垂直磁化 GdFeCo 膜のスピンホール効果による磁化反転, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 金沢大学, 石川, 6pA-13 (2016.09.06).

(7) 児玉俊之, 富田知志, 加藤剛志, 岩田聡, 細糸信好, 柳久雄 : 単一パーマロイカイラルメタ分子における強磁性共鳴と磁化測定, 日本物理学会第 70 回年次大会, 早稲田大学, 東京, 21pCN-7 (2015.03.21).

(8) 中川大佑, 加藤剛志, 岩田聡 : 磁壁振動方式 GMR 磁界センサーにおける磁区制御, 平成 26 年度電気・電子・情報関係学会東海支部連合大会, 中京大, 愛知, (2014.09.08).

(9) S.Iwata, T. Kato, G. A. Wang: High sensitivity GMR Magnetic Sensors (Invited), Moscow International Symposium on Magnetism 2014, Moscow, Russia, 2RP-A-10 (2014.06.29).

(10) T. Kato, K. Adachi, Y. Kusanagi, S. Okamoto, N. Kikuchi, S. Iwata, O. Kitakami, S. Tsunashima: Variation of Gilbert damping with the layered structure of sputtered Co/Pt and Co/Pd multilayers, IEEE International Magnetism Conference 2014, Dresden, Germany, EE-09 (2014.05.07).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.nuee.nagoya-u.ac.jp/labs/iwatalab/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

岩田 聡 (IWATA SATOSHI)

名古屋大学・

未来材料・システム研究所・教授

研究者番号 : 60151742

### (2) 研究分担者

加藤 剛志 (KATO TAKESHI)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号 : 50303665

### (2) 研究分担者

大島 大輝 (OSHIMA DAIKI)

名古屋大学・

未来材料・システム研究所・助教

研究者番号 : 60736528

### (4) 連携研究者

なし