

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：82108

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2016～2017

課題番号：16H07436

研究課題名(和文)ホイスラー合金膜を用いた実用スピントロニクス素子の開発

研究課題名(英文)Development of practical spintronic devices using Heusler alloy films

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) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：磁気センサの感度特性を改善することのできる、高スピン分極ホイスラー合金を開発した。工業プロセスに適合した多結晶薄膜において、高い化学規則度を示す合金組成を選択し、下地材料やスペーサー材料の改善を組み合わせ、従来では20%程度であった巨大磁気抵抗比(磁気センサの出力に対応)を50%まで改善し、ハードディスクの高容量化や高感度磁気センサへの応用が期待される成果を得た。

研究成果の概要(英文)：We developed Heusler alloy thin films with high spin polarization, which improve the sensitivity of magnetic field sensor. By increasing the chemical order of Heusler alloy and combining with suitable underlayer and spacer layer materials, we improved giant magnetoresistance ratio up to 50% from the previous record of ~20% using conventional materials. This achievement is promising for the applications to read sensors for hard disk drive and high-sensitive magnetic field sensors.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：巨大磁気抵抗 磁気センサ ホイスラー合金

1. 研究開始当初の背景

Co 基ホイスラー合金は高スピン分極電流源としてトンネル磁気抵抗、巨大磁気抵抗素子への有用性が実証されているが、ほとんどの報告は高価な単結晶基板上に作製されたエピタキシャル素子であり、実用材料とは言えない。ホイスラー合金を用いた磁気抵抗素子を磁気センサなどの工業応用に発展させるためには、熱酸化 Si やセラミックス基板上に作製した多結晶薄膜に対し、量産プロセスに適應する低温 (300 程度) での熱処理温度で高い磁気抵抗出力を実現する必要がある、そのための材料開発が求められる。

2. 研究の目的

高スピン分極磁性材料であるホイスラー合金の多結晶薄膜を低温で成長させるプロセス技術を開発し、工業的に実用性のある微小な磁気抵抗 (MR) 素子を作製し、そのセンサ特性を評価して、ハードディスク再生ヘッドセンサ他、磁場センサとしての適合性を実証する。比較的低温でのアニールにおいても高い規則構造が得られる合金組成を見出し、下地材料の選択と製膜・熱処理プロセスの改善により、スピンバルブ素子において室温 MR 比 30%以上を実現する。

3. 研究の方法

- (1) 多結晶体かつ低温でのアニール条件の制約のもとで、高い構造規則度をもつホイスラー合金薄膜を実現するための、材料設計指針および薄膜プロセスを明らかにする。
- (2) 一般に下地層の選択はその上の薄膜の構造と特性に影響を及ぼすことから、ホイスラー合金層に適した下地層材料を開発する。下地層 / ホイスラー合金層 / スペース層のトータルの薄膜材料系としての開発を行う。
- (3) 開発した材料とプロセスを用い、CPP-GMR スピンバルブデバイスを作製し、再生ヘッドセンサーおよびその他の磁場センサーとしての特性評価を行う。

4. 研究成果

2016 年度は $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ ホイスラー合金の多結晶薄膜に対し、CoFeB や CoFeBTa というアモルファス下地層を用いることで、 $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ の B2 規則度が増大し、CPP-GMR 比が大きく改善されることを解明した(図 1、論文(1))。得られた CPP-GMR 比は 25%であり、実用熱処理温度である 300 において、単結晶素子を上回る特性を多結晶素子で得た。 $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ は他のホイスラー合金に比べ、低温での化学規則化が顕著であり、これは融点の低さとバルクにおける規則不規則変態の欠如 (金属間化合物) から説明される。

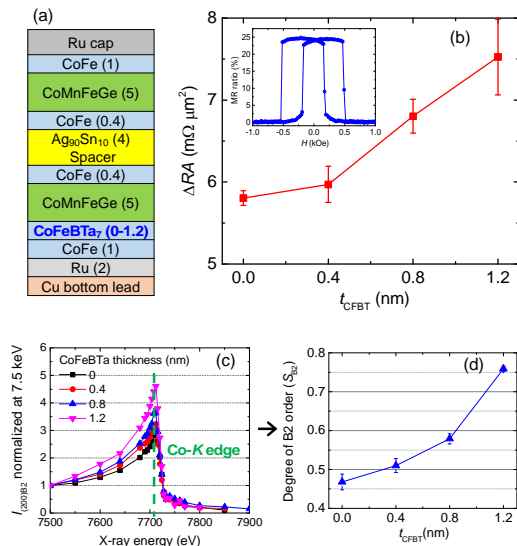


図 1 (a)CPP-GMR 素子構造と(b)磁気抵抗変化量 (RA)の CoFeBTa アモルファス下地層厚さ依存性。(c)SPRING-8 での異常分散 XRD 測定による $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ 薄膜の(200) B2 規則回折線強度の X 線エネルギー依存性と、(d)そこから求めた B2 規則度。

2017 年度は、非磁性スペーサー層の材料開発に注力した。研究代表者の今までの研究により、スペーサー層に導電酸化物と薄い Ag の積層構造を用いることで CPP-GMR 比の飛躍的増大が得られることがわかっており、Ag/InZnO スペーサー層の改善から着手した、実用センサ素子であるスピンバルブにおいて 30%の CPP-GMR 比を達成した(図 2、論文(2))。磁気センサとしての出力電圧は従来素子の 7 倍の値が得られた。微細構造解析から、Ag が InZnO マトリックス中に不均一分散していることが明らかとなり、スペーサー層中の電流の不均一分布による磁気抵抗増大であると考えられる。

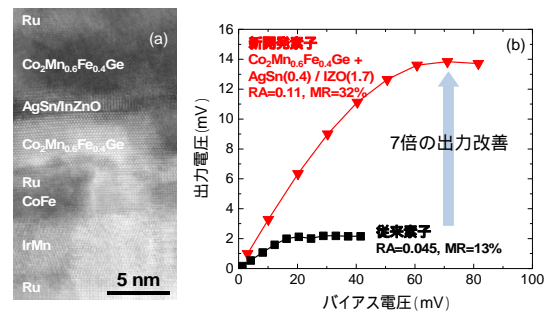


図 2 (a) $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ ホイスラー合金強磁性層と AgSn/InZnO をスペーサーに用いた多結晶スピンバルブ素子の HAADF-STEM 像。(b) 素子のバイアス電圧と出力電圧特性。比較として、従来のスペーサー材料(AgSn)を用いた素子の結果を示す。

その後、Ag と InZnO を積層するのではなく、同時スパッタすることにより CPP-GMR 比が増大し、抵抗面積 (RA) 値 = 0.08 μm^2 において、

CPP-GMR 比=50%が得られた。(図 3、論文未発表、特許出願済み)これは研究開始前の達成目標値 30%を大幅に上回る値であり、ハードディスクドライブの面記録密度 5 テラビット/平方インチ (現行の 4 倍超) に要求される特性を満たしている

本研究の成果により、ホイスラー合金は基礎研究の対象のみならず、実用材料に近いといえるレベルまで達した。今後、再生ヘッドセンサや磁気センサとしての実用化を達成するためには、さらなる特性改善のほか、産業界との密接な連携が重要であると考えられる。

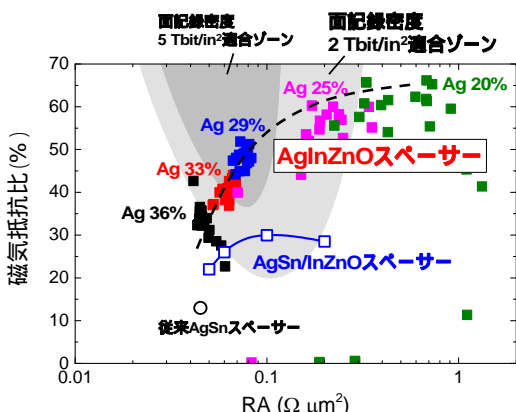


図 3 新開発 AgInZnO スペースャを用いた CPP-GMR 素子の RA と MR 比の分布。5 テラビット/平方インチの要求スペックを満足している。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

(1) T. Nakatani, Z. Gao, K. Hono, “Read sensor technology for ultrahigh density magnetic recording”

MRS Bulletin 43, 106 (2018) 査読有り

10.1557/mrs.2018.3

(2) T. Nakatani, S. Li, Y. Sakuraba, T. Furubayashi, K. Hono, “Advanced CPP-GMR Spin-Valve Sensors for Narrow Reader Applications”

IEEE Trans. Magn. 54, 3300221 (2018) 査読有り

10.1109/TMAG.2017.2753221

(3) S. Li, T. Nakatani, K. Masuda, Y. Sakuraba, X.D. Xu, T.T. Sasaki, H. Tajiri, Y. Miura, T. Furubayashi, K. Hono,

“Enhancement of current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistive outputs by improving B2-order in polycrystalline $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ Heusler alloy with the insertion of amorphous CoFeBTa underlayer”

Acta Mater. 142, 49 (2018) 査読有り

<https://doi.org/10.1016/j.actamat.2017.09.046>

〔学会発表〕(計 10 件)

(1) Tomoya Nakatani, T. Sasaki, Y. Sakuraba, K. Hono

“Large magnetoresistive outputs in Heusler alloy-based CPP-GMR sensors using with AgInZnO spacers”

Intermag 2018

2018 年 4 月 23-27 日

(2) 中谷友也, M. Al-Mahdawi, 佐々木泰祐, 桜庭裕弥, 宝野和博

「CPP-GMR spin-valves with AgSn/InZnO spacers」

応用物理学会春季学術講演会

2018 年 3 月 19-20 日

(3) 中谷友也, 佐々木泰祐, Songtian Li, 桜庭裕弥, 古林孝夫, 宝野和博

「Ag/InZnO/Zn スペースャ層をもつ CPP-GMR スピンバルブの微細構造と磁気抵抗特性」

日本磁気学会学術講演会

2017 年 9 月 19-22 日

(4) 中谷友也, Songtian Li, 増田啓介, 桜庭裕弥, 徐先東, 佐々木泰祐, 田尻寛男, 三浦良雄, 古林孝夫, 宝野和博

「多結晶ホイスラー合金薄膜の化学規則度と CPP-GMR 特性」

日本金属学会秋季公演大会

2017 年 9 月 6-8 日

(5) Tomoya Nakatani, S. Li, Y. Sakuraba, T. Sasaki, X. Xu, H. Tajiri, T. Furubayashi, K. Hono

“Microscopic origins of enhanced output of Heusler alloy CPP-GMR readers by amorphous underlayer and conductive oxide spacer”(招待講演)

TMRC 2017

2017 年 8 月 2-4 日

(6) S. Li, Tomoya Nakatani, K. Masuda, X. Xu, T. Sasaki, Y. Sakuraba, H. Tajiri, Y. Miura, T. Furubayashi, K. Hono

“Enhanced CPP-GMR effect by improved B2-order of $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$ Heusler layer deposited on CoFeBTa amorphous underlayer”

Intermag 2017

2017 年 4 月 24-28 日

(7) Tomoya Nakatani, T. Sasaki, S. Li, Y. Sakuraba, T. Furubayashi, K. Hono

“Layer thickness effects and microstructure of CPP-GMR spin-valves with Ag/InZnO/Zn conductive oxide-based spacer layers”

Intermag 2017

2017 年 4 月 24-28 日

(8) 中谷友也、桜庭裕弥、宝野和博
「ホイスラー合金 CPP-GMR 再生ヘッドセン
サーの開発」(招待講演)
応用物理学会春季学術講演会
2017年3月14-17日

(9) 中谷友也、佐々木泰祐、Songtian Li、桜庭
裕弥、古林孝夫、宝野和博
「Effects of layer thickness and microstructure
of CPP-GMR with Ag/InZnO/Zn spacer」
応用物理学会春季学術講演会
2017年3月14-17日

(10) 中谷友也、李 松田、桜庭 裕弥、古林 孝
夫、宝野 和博
「多結晶ホイスラー合金薄膜 CPP-GMR 素子
の作製」
日本磁気学会学術講演会
2016年9月5-8日

〔産業財産権〕

出願状況(計 1件)

名称：面直電流巨大磁気抵抗素子、その前駆
体、及びその製造方法
発明者：中谷友也、佐々木泰祐、古林孝夫、
宝野和博
権利者：国立研究開発法人物質・材料研究機
構
種類：特許出願
番号：特願 2018-072048
出願年月日：平成 30 年 4 月 4 日
国内外の別： 国内

6. 研究組織

(1)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

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：

(4)研究協力者

佐々木 泰祐 (Taisuke Sasaki)

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： 30615993