

# Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)(Si, Al)ホイスラー合金の磁気抵抗効果

## Magnetoresistances Effects in Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)(Si, Al) Heusler Alloys

矢子 ひとみ、窪田 崇秀、高梨 弘毅

(東北大金研)

H. Yako, T. Kubota, and K. Takanashi

(Institute for Materials Research, Tohoku Univ.)

### はじめに

電子の持つ電荷とスピンの2つの自由度を応用して新機能を創製するスピントロニクス分野は急速な発展を見せており、デバイスの高性能化を実現するために高いスピン分極率を有する材料の開発が進められている。特に、ハーフメタルホイスラー合金は高いスピン分極率を有していることから注目を集めている。最近、桜庭等により異方性磁気抵抗効果(AMR)における抵抗変化率とその符号が、ハーフメタル性と相関を示すことが報告された<sup>1)</sup>。本研究では、5元系ホイスラー合金 Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)(Si, Al)について、AMR効果の合金組成、試料作製条件ならびに測定温度依存性について報告を行い、ハーフメタル性との関係について議論する。

### 実験方法

MgO (100) 基板を 650°C でフラッシングした後、基板加熱を行いながら Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.5</sub>Mn<sub>0.5</sub>(Si<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>) (CFMSA) を 50 nm 成膜した。基板加熱温度は、300°C, 400°C, 500°C, 600°C とした。x = 0, 1 の 4 元ホイスラー合金については合金ターゲットを用い、5 元ホイスラー合金の成膜時には Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)Si (CFMS) および Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)Al (CFMA) ターゲットからの同時スパッタにより成膜した。ホイスラー合金成膜後は、酸化防止のためにキャップ層として Au を 2 nm 成膜した。試料の抵抗値は直流 4 端子法により 100 μA の電流を試料に流して測定した。

AMR 効果は、2 kOe の磁場を磁化容易軸方向に印加することで磁化を飽和させ、試料を薄膜面内方向で回転させることで評価した。結晶構造は X 線回折 (XRD) 装置、また、磁化を試料振動型磁力計 (VSM) によりそれぞれ評価した。

### 実験結果

作製した全試料は、XRD 測定の結果エピタキシャル成長していることを確認した。また、基板加熱温度 500°C で作製した CFMA、CFMSA、CFMS についてはいずれも L<sub>21</sub> 規則構造に起因する超格子反射を確認した。VSM 測定の結果、L<sub>21</sub> 構造が得られた試料の飽和磁化はバルク値程度の値であった。Fig. 1 に CFMA、CFMSA、CFMS 薄膜の室温における AMR 曲線を示す。横軸の角度は、電流と磁化(磁場)が直行する場合を 0° と定義した。全ての試料において負の AMR 効果が観測された。また、AMR 比の絶対値は CFMSA 薄膜において 0.3% と最大となることが分かった。講演では、AMR 比の試料作製条件(基板加熱温度)依存性ならびに面直通電型の巨大磁気抵抗素子の磁気抵抗変化率との関係についても議論する予定である。

### 謝辞

本研究の一部は、日本学術振興会 科研費 基盤研究 (S) (No. 25220910) 並びに、情報ストレージ推進機構 (SRC) による支援を受けて行われた。

### 参考文献

1) Y. Sakuraba et al., Appl. Phys. Lett., **104**, 172407 (2014).

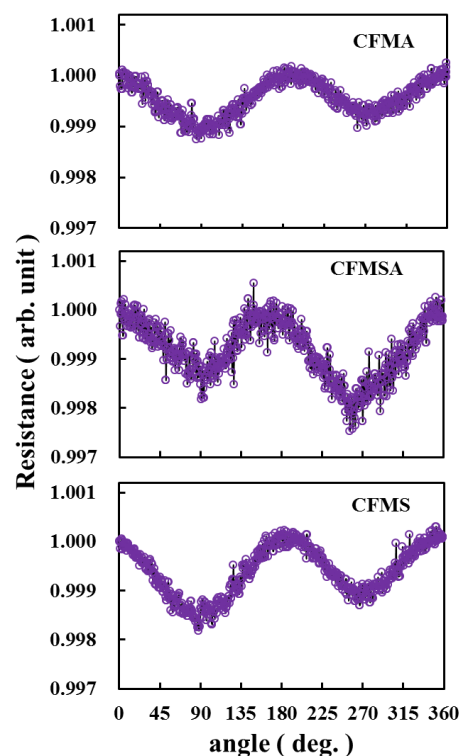


Fig. 1 Angular dependence of electrical resistance in CFMA, CFMSA and CFMS films at room temperature.

## bcc 型 Cu 基合金をスペーサー層に用いた CPPGMR

古林孝夫、高橋有紀子、宝野和博

物質・材料研究機構

CPPGMR using Cu-based bcc alloys for a spacer layer

T. Furubayashi, Y.K. Takahashi, K.Hono

National Institute for Materials Science

### はじめに

これまで CPPGMR 素子のスペーサー層としては fcc 金属である Cu あるいは Ag が多く用いられており、Co 基ホイスラー合金磁性層との組み合わせにより大きな MR 値が得られている。スペーサー層としてホイスラー合金と同じ bcc 構造の材料を用いることにより、界面で良好なバンド整合性が得られ MR が改善されるという予想から、これまで L2<sub>1</sub> 型 Cu<sub>2</sub>RhSn [1] や B2 型 NiAl [2] が試みられてきたが顕著な効果は得られていない。これらの合金ではスピン拡散の効果が大きいため MR が本来の値に比べ減少しているのではないかと考えられる。そこで本研究では、同様の結晶構造を持ちスピン拡散の効果が小さいと考えられる材料として、原子番号が比較的小さくまた磁性元素を含まない B2 型 CuZn 合金及び D0<sub>3</sub> 型 Cu<sub>3</sub>Al 合金をスペーサー層に用いることを試みた。Cu<sub>3</sub>Al は高温相であるがスパッタ膜としては作成できる可能性がある。

### 実験

磁性層としてはホイスラー合金 Co<sub>2</sub>Fe(Ga<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>) (CFGG)を用いた。擬スピンバルブ型 CPPGMR 素子作製のため、MgO(001)単結晶基板に sub/Cr(10)/Ag(100)/CFGG(10)/CuZn or Cu<sub>3</sub>Al(5)/CFGG(10)/Ag(5)Ru(8)、括弧内は膜厚(nm)、の積層構造でマグネトロンスパッタにより成膜した。製膜後にアニールを行い、微細加工により CPP 型素子を作成した。

### 結果

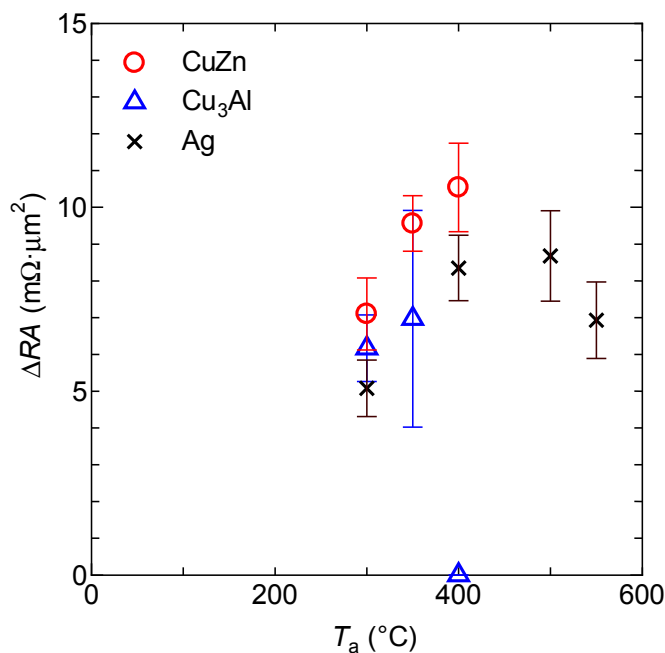
X線回折の結果、MR測定用試料と同様の基板と下地層を用いて CFGG 上に作成した 20nm 厚の CuZn は(001) 方位にエピタキシャル成長した B2 構造をとることがわかった。Cu<sub>3</sub>Al は(001)方位のエピタキシャル成長が確認されたが、D0<sub>3</sub>規則構造を示す回折線は見られず、A2 不規則構造であると考えられる。

図に室温で測定した抵抗変化×素子面積 ( $\Delta RA$ ) をアニール温度  $T_a$  に対して示した。比較のため Ag スペーサーを用いた同じ強磁性層、膜厚の素子の結果 [3] も示しているが、比較的低い  $T_a$  で Cu 基合金を用いた方が明らかに高い  $\Delta RA$  が得られている。Ag スペーサーの場合に比べ界面散乱のスピン非対称性が增强されることにより MR が増大していると考えられる。

本研究は JSPJ 科研費 2224609、25249087 の助成を受けたものである。

### 参考文献

- [1] K. Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 222501 (2009).  
 [2] N. Hase *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 440 (2011).  
 [3] H.S. Goripati *et al.* J. Appl.Phys. **113**, 043901 (2013).



# Crystal orientation dependence of band matching in CPP-GMR pseudo spin-valves with $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ge}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})$ Heusler alloy and NiAl spacer

Jiamin CHEN<sup>1,2</sup>, T. Furubayashi<sup>2</sup>, Y. K. Takahashi<sup>2</sup>, and K. Hono<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup>University of Tsukuba, <sup>2</sup>National Institute for Materials Science

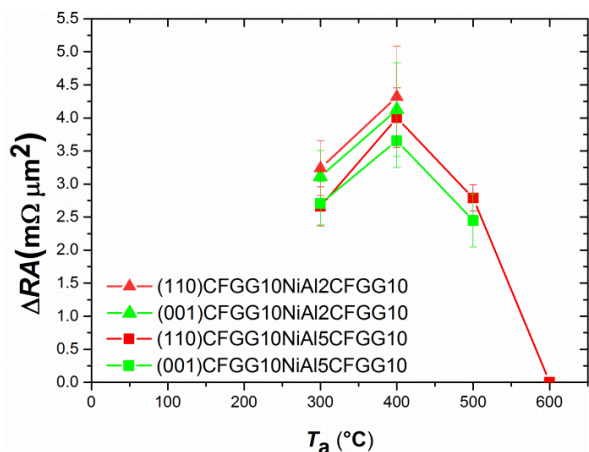
According to the Valet–Fert model<sup>1</sup>, the MR ratio depends not only upon the bulk spin polarization and the resistivity of ferromagnetic (FM) layers, but also upon the interfacial spin asymmetry that is a function of the lattice and band matching at the FM/non-magnetic metal (NM) interfaces<sup>2</sup>. It is highly relevant, therefore, to study whether or not the crystal orientation relationship between the Heusler layers and a spacer layer affects the interfacial spin scattering asymmetries or MR outputs. In our previous study of (001) and (110) epitaxial CPP-GMR devices, we found the change of crystal orientation in  $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ (CFGG)/Ag system had introduced a different lattice mismatch at CFGG/Ag interface resulting in various MR outputs. The influence of lattice matching on the interfacial spin scattering asymmetry is considered to be the main reason for the  $\Delta RA$  value difference<sup>3</sup>. However, how the band matching changes according to different crystal orientation is still unclear to us, because both lattice matching and band matching change when we alter the crystal orientation in CFGG/Ag system. To focus only on the band matching influence, we prepared CPP-GMR PSVs consisting of CFGG and B2 NiAl alloy for a spacer<sup>4</sup>. This combination is free of lattice matching influence depending on the crystal orientation because both alloys have the same bcc structure. The effects of the crystal orientation on band matching were examined by comparing with the devices' MR output in (001) and (110) orientations.

Pseudo spin valves (PSVs) in (110) orientation with the layer structure of sapphire/Ta(20)/W(100)/NiAl(10)/CFGG(10)/NiAl(2,5)/CFGG(10)/NiAl(5)/Ru(8) and (001) orientation with structure of MgO(001)/Cr10/Ag(100)/NiAl(10)/CFGG(10)/NiAl(2,5)/CFGG(10)/NiAl(5)/Ru(8) (unit: nm) were fabricated using an ultrahigh vacuum magnetron sputtering machine. The films were annealed at temperatures ranging from 300 to 600 °C after the deposition. The microstructure was characterized by XRD, HADDF-STEM and EDS mapping.

Figure 1 summarizes  $\Delta RA$  against the annealing temperature  $T_a$ . At the  $T_a$  of 300 and 600 °C, Both (110) orientation and (001) orientation devices show similar  $\Delta RA$  values. When the spacer thickness reduces from 5nm to 2nm, the MR outputs improve slightly. These results suggest that there is no or very small orientation dependence of band matching on MR output.

Figure 2 shows the plot of the saturation magnetization/unit film area ( $M_s/A$ ) value as a function of  $t_F$ . The intercept of the  $t_F$  vs.  $M_s/A$  plot represents the thickness of the magnetic dead layer at CFGG/NiAl interface. Both films in two different orientations show negligibly small dead layer thickness, which indicates a good lattice matching between the CFGG and NiAl layers. This result proves that the films are comparable and free of lattice matching influence on MR output.

This work was partly supported by JSPS Grant-in-Aid for Scientific Research (A) 22246091 and (A) 25249087.



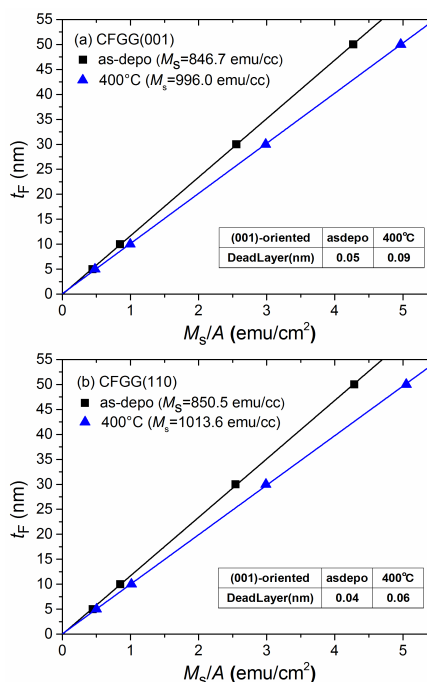
**Fig.1** Annealing temperature dependence of  $\Delta RA$  of the film stack in (110) and (100) orientation with NiAl spacer.

[1] Valet and A. Fert, Phys. Rev. B **48**, 7099 (1993).

[2] K. Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 222501 (2009).

[3] J. Chen *et al.*, J. Appl. Phys. in press.

[4] N. Hase *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 440 (2011).



**Fig.2** Plots of  $M_s/A$  versus CFGG layer thickness ( $t_F$ ) (a) in a (001)-oriented CFGG film and (b) in a (110)-oriented CFGG film.

## CPP-GMR pseudo spin-valves using ferromagnetic Heusler layer $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$ and nonmagnetic Heusler spacer $\text{Cu}_2\text{CrAl}$

Y. Du<sup>1,2</sup>, T. Furubayashi<sup>2</sup>, Y. K. Takahashi<sup>2</sup>, Y. Sakuraba<sup>2</sup>, K. Hono<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

<sup>2</sup>National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

The current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices utilizing Co-based full Heusler alloys in the past few years have drawn much attention due to their potential application in the read sensors of ultrahigh density hard disk drives. Recent studies by Li *et al* and Sakuraba *et al* have demonstrated large MR ratio of over 50% and resistance change-area ( $\Delta RA$ ) product of  $\sim 12 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  by depositing epitaxial CPP-GMR film stacks on MgO (001) single-crystalline substrates. In these works, Ag was adopted as the spacer layer. On the other hand, other spacer materials have been proposed theoretically and experimentally. Nikolaev *et al* realized the all-Heusler CPP-GMR devices with ferromagnetic  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  (CMG) and nonmagnetic  $\text{Rh}_2\text{CuSn}$  (RCS) Heusler films. Desirable band matching for the majority spins of CMG and RCS was proved by band calculations and finally the  $\Delta RA$  of  $4 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  was achieved. Another work by Ko *et al* demonstrated the possible usage of Heusler spacer  $\text{Cu}_2\text{CrAl}$  (CCA) for the CPP-GMR devices, yet no experimental work was done. In this work we investigated the CPP-GMR properties of pseudo spin-valves using ferromagnetic Heusler layer  $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$  (CFGG) and nonmagnetic Heusler spacer CCA.

Thin film of Cr(10)/Ag(100)/CFGG(15)/CCA(20)/Ag(5)/Ru(8) was sputter-deposited on MgO(001) substrates and annealed from 300°C to 400°C. The CCA films with different compositions were investigated by using different sputtering targets. The structural properties were examined by XRD, HAADF-STEM and EDS mapping. For the CPP-GMR properties, film stack of Cr(10)/Ag(100)/CFGG(5)/CCA( $t_N$ )/CFGG(5)/Ag(5)/Ru(8) was deposited and annealed at 300°C before the microfabrication. Four-probe measurement was performed for transport properties.

For CCA thin films with the composition of  $\text{Cu}_2\text{Cr}_{0.72}\text{Al}$ , as shown in Figure 1, CCA (002) peak that indicates B2 ordering appears when annealed above 300°C. Better  $L2_1$  ordering is observed when performing the Phi scan for the films. CPP-GMR devices with 10 nm CFGG and 5 nm CCA demonstrated MR ratio of 4-5%. On the other hand, when increasing the Cr content in the  $\text{Cu}_2\text{Cr}_x\text{Al}$  films from  $x=0.72$  to  $x=1$ , the MR ratio decreases dramatically, and this indicates that excess Cr is detrimental to improve the MR output. Finally, in Figure 2 we summarized the MR ratio as a function of the CCA thickness ( $t_N$  varies from 2.8-5.0 nm), possible interlayer exchange coupling in the elliptical CPP-GMR devices may explain the MR oscillation.

### Reference

- 1) Li *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 042405
- 2) Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101** (2012) 252408
- 3) Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94** (2009) 222501
- 4) Ko *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95** (2009) 202502

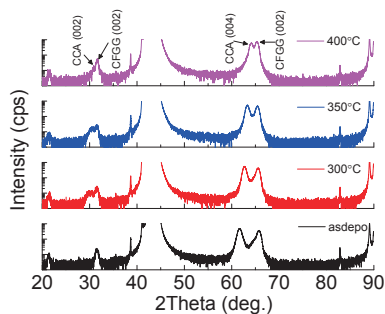


Figure 1 XRD profiles for film stack of MgO/Cr10/Ag100/CFGG15/CCA20/Ag5/Ru8. (units in nm)

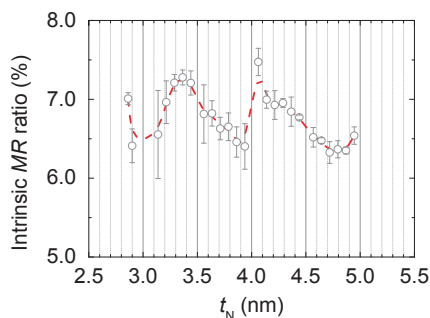


Figure 2 MR ratio as a function of CCA spacer thickness.

## Co<sub>2</sub>(Fe,Mn)Si 合金を用いた高出力スピントルク発振素子

関剛斎、桜庭裕弥<sup>†</sup>、荒井礼子\*、今村裕志\*、高梨弘毅  
(東北大金研、\*産総研ナノスピントロニクス、<sup>†</sup>現: 物材機構)

High power spin torque oscillator using a Co<sub>2</sub>(Fe,Mn)Si alloy

T. Seki, Y. Sakuraba<sup>†</sup>, H. Arai\*, H. Imamura\* and K. Takanashi  
(IMR, Tohoku Univ., \*AIST, <sup>†</sup>Present affiliation: NIMS)

### はじめに

ナノサイズの巨大磁気抵抗(GMR)素子あるいは磁気トンネル接合(MTJ)素子では、直流電流( $I_{dc}$ )と外部磁場( $H$ )を調整することでスピントルクとダンピングトルクが拮抗した状態を実現でき、磁化が定常的な歳差運動を示す。この現象はスピントルク発振と呼ばれ、歳差運動に起因して素子抵抗が時間的に振動するため、素子端に高周波電圧( $V_{rf}$ )が発生する。スピントルク発振素子は、ナノ素子単体で構成され、発振周波数が磁場や電流によって可変であるという特徴から、チップ間通信用素子、レーダー、あるいは小型マイクロ波発生源などへの応用が検討されている。しかしながら、応用に向けて解決すべき課題があり、発振出力の増大と発振純度(Q 値)の向上が重要な課題である。発振出力は磁気抵抗(MR)比の 2 乗に比例するため、大きな MR 比が得られる MTJ 素子をベースとしたスピントルク発振素子が研究開発の主流となっている[1]。しかしながら、MTJ 素子は高電圧印加によるトンネルバリアにおける絶縁破壊が懸念され、加えて GMR 素子と比較して Q 値の向上が難しい。

そこで、我々は GMR 素子をベースとしたスピントルク発振素子において、発振出力の向上などの特性改善を試みてきた。ホイスラー合金の一部は 100%のスピン分極率が理論予測されるハーフメタルと呼ばれる物質群であり、大きな GMR 効果を期待できる。これまでに、Co<sub>2</sub>MnSi (CMS)ホイスラー合金を GMR 素子の強磁性層に用いることにより、室温で 36.4%の MR 比を報告し[2]、GMR 素子においても高い発振出力を得ることに成功した[3,4]。本研究では、出力の更なる増大を目指し、CMS よりも大きな GMR 効果を示す Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si (CFMS)ホイスラー合金[5]を用いて、様々な外部磁場方位においてスピントルク発振特性を系統的に評価した。

### 実験

超高真空対応マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(100)単結晶基板の上に薄膜試料を作製した。薄膜の積層構造は、MgO 基板 || Cr (20 nm) | Ag (40 nm) | CFMS (20 nm) | Ag (5 nm) | CFMS (3 nm) | Ag (2 nm) | Au (5 nm)であり、CFMS 層は室温で成膜後 500 °C でアニールすることにより L<sub>21</sub>構造への規則化を促進した。作製した薄膜を、100 nm × 170 nm サイズのピラーへと微細加工した。2 端子法により MR 曲線を測定したところ、30 %の MR 比が得られた。さらに、電極抵抗などの寄生抵抗を差し引くと、MR 比は 48%となった。

図 1 に  $I_{dc} = 3$  mA を印加した時の高周波スペクトルを示す。 $H = 3$  kOe を素子の面垂直方向に印加した場合、9.5 GHz に線幅の狭い発振ピークが観測された。面内磁場における測定結果と比較すると、発振出力および Q 値を向上の観点から、垂直磁場が有効であることが確認された。さらに測定条件の最適化により、出力が 23.7 nW、Q 値が 1124 の発振が観測された。講演時にはマイクロマグネティクスの計算結果をもとに、励起されている発振モードについても議論する。

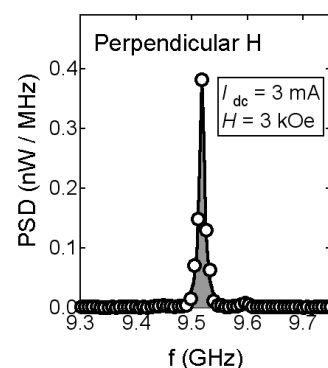


Fig. 1 Power spectral density (PSD) for the device with the GMR stack of CFMS / Ag / CFMS.

本研究の一部は、「先端スピントロニクス材料と伝導現象(ASPIMATT)」の支援を受けて遂行された。また、植田正輝氏、大倉遼氏にはサンプル作製および測定に関してご協力頂いた。

### 参考文献

- [1] H. Maehara *et al.*, *Appl. Phys. Exp.*, **6**, 113005 (2013). [2] Y. Sakuraba *et al.*, *Phys. Rev. B*, **82**, 094444 (2010). [3] R. Okura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 052510 (2011). [4] T. Seki *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **113**, 033907 (2013). [5] Y. Sakuraba *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 252408 (2012).