

# AgInZnO スペーサー層を用いたホイスラー合金 CPP-GMR 素子

中谷 友也、佐々木 泰祐、桜庭 裕弥、宝野 和博  
(物質・材料研究機構)

CPP-GMR devices using Heusler alloy and AgInZnO spacer layer  
Tomoya Nakatani, Taisuke Sasaki, Yuya Sakuraba, Kazuhiro Hono  
(National Institute for Materials Science)

## はじめに

ホイスラー合金を強磁性層に用いた面直電流巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子は、低素子抵抗かつ比較的大きな磁気抵抗 (MR) 出力のため、高記録密度ハードディスクドライブの再生ヘッドセンサや、高感度磁気センサへの応用が期待される。非磁性スペーサー層に Ag/InZnO など金属と酸化物の積層膜を用いることで、MR比の増大が報告されており[1]、さらなるMR出力の改善のためにスペーサー層の材料開発が重要である。本研究ではAgInZnOをスペーサー層に用いたCPP-GMR素子を作製し、磁気抵抗特性と微細構造を調査した。

## 実験方法

マグネトロンスパッタリングにより、多結晶擬スピバルブ膜を作製した。積層構造は Cu 電極 / Ta(2)/Ru(2)/CoFe(0.5)/CoFeBTa(1.5)/CMFG(5)/CoFe(0.4)/AgInZnO(1.2)/CoFe(0.4)/CMFG(5)/CoFeBTa(1.5)/Ru(8) (膜厚は nm) であり、成膜後に 280 °C で 3 h の熱処理をおこなった。CMFG は  $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$  ホイスラー合金であり、AgInZnO は Ag と InZnO ( $\text{In}_2\text{O}_3$  10 wt. % - ZnO 90 wt. % の混合体) の同時スパッタリングにより成膜した。AgInZnO 中の Ag の公称濃度は 20-36 at. % である。比較のため、Ag<sub>90</sub>Sn<sub>10</sub>(3.5 nm) スペーサー、Ag(0.4 nm)/InZnO(1.3-1.75 nm) スペーサーを用いた CPP-GMR 素子を作製した。

## 実験結果

図1にCPP-GMR素子の室温における素子抵抗×面積 (RA) と MR 比 ( $\Delta R/R$ ) を示す。AgInZnO スペーサーを用いた素子では、AgInZnO 中の Ag 濃度の増加とともに  $\Delta R/R$  と RA が減少し、Ag<sub>90</sub>Sn<sub>10</sub> スペーサーを用いた全金属 CPP-GMR 素子の値 ( $RA = 0.03 \Omega \mu\text{m}^2$ ,  $\Delta R/R = 18\%$ ) に漸近する。 $RA > 0.2 \Omega \mu\text{m}^2$  の領域で  $\Delta R/R \sim 60\%$ ,  $RA = 0.08 \Omega \mu\text{m}^2$  において  $\Delta R/R \sim 50\%$  という高い MR 比が多結晶薄膜を用いて実現される。これは面記録密度 5 Tbit/in<sup>2</sup> に要求される RA と  $\Delta R/R$  の値[2]を満足しており、次世代の再生ヘッドセンサとして有望である。一方、Ag/InZnO 2層スペーサーを用いた場合では、MR 比が最大で 35% と AgInZnO スペーサーに比べ低い値しか得られない。

図2に走査透過電子顕微鏡でのエネルギー分散型 X 線分析法による、CPP-GMR 膜内の元素分布を示す。元来 Mn は CMFG 層にしか存在しないはずであるが、スペーサー内に高濃度の Mn と O が見られた。電子回折図形からこれは岩塩構造の MnO であることがわかった。一方、In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は還元され、AgIn 合金を形成している。AgIn は部分的に上下の CMFG 間をつなぐパスを形成しており、電流が狭窄して流れるために大きな MR 比が得られるのであると考えられる。

**参考文献** [1] Nakatani *et al.* IEEE Trans. Magn. 54, 3300211 (2018). [2] Takagishi *et al.* IEEE Trans. Magn. 46, 2086 (2010).

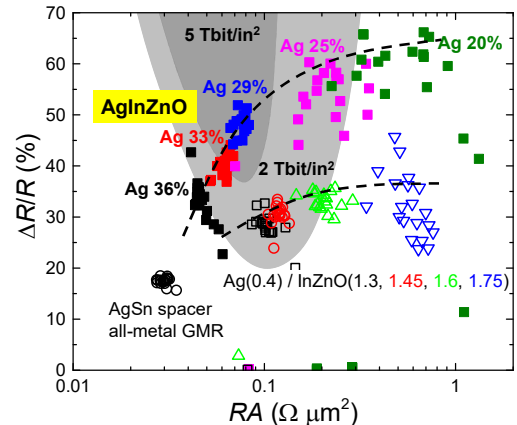


図1 CPP-GMR素子のRAとMR比の分布。再生ヘッド要求値は文献[2]より引用。

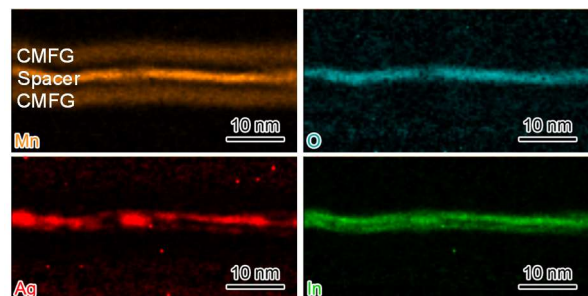


図2 AgInZnO スペーサーを用いた CPP-GMR 膜中における Mn, O, Ag および In の分布。

## CPP-GMR devices using $C1_b$ -type half Heusler alloys

Zhenchao Wen<sup>1,2</sup>, Takahide Kubota<sup>1,2</sup>, and Koki Takanashi<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

<sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices are promising as read heads for hard disk drives (HDDs) for achieving ultrahigh density magnetic recording of more than 5 Tbit/inch<sup>2</sup>. Half-metallic Heusler alloys have shown great potential for enhancing CPP-GMR effect due to their high spin polarization. Half-metallic Heusler alloys are classified into full- and half-Heusler compounds with the chemical formula of  $X_2YZ$  in the  $L2_1$  structure and  $XYZ$  in the  $C1_b$  structure ( $X$  and  $Y$ : transition metals;  $Z$ : non-magnetic element). For half-Heusler alloys, the bandgap of minority spin originates from  $d$ -band hybridization of elements  $X$  and  $Y$ , which can form a larger bandgap compared to that in full-Heusler alloys. From the origin of the bandgap, half-Heusler alloys are beneficial for the development of high-performance CPP-GMR devices owing to the suppression of thermal activations on the bandgap. In this work, we fabricated half-Heusler alloy films (NiMnSb,<sup>1,2</sup> PtMnSb, and NiMnSb with doping Ti) and investigated the CPP-GMR effect in the nanojunctions using the half-Heusler alloys.

Half-Heusler NiMnSb and PtMnSb alloy films were optimized with varying deposition temperatures on Cr/Ag-buffered MgO(001) substrates by investigating structural and magnetic properties. Fully (001)-oriented NiMnSb epitaxial films with flat surface and high magnetization were achieved at the substrate temperature of 300 °C. In the case of PtMnSb films, epitaxial growth was achieved at 200 °C while high magnetization was observed at 500 °C. Further, anisotropic magnetoresistance (AMR) effect was measured in the half-Heusler alloy films since negative AMR effect was reported to be a fingerprint for half-metallic band structure.<sup>3</sup> A modest AMR value with negative sign was found in the NiMnSb films while a remarkably negative AMR effect was observed in the PtMnSb films. Epitaxial CPP-GMR devices using both the NiMnSb and the PtMnSb films were fabricated, and room-temperature (RT) CPP-GMR ratios for the half-Heusler alloys were determined for the first time. A CPP-GMR ratio of 8% (21%) at RT (4.2 K) was observed in the fully epitaxial NiMnSb/Ag/NiMnSb structures and a very low CPP-GMR ratio of 0.7% was shown in PtMnSb/Ag/PtMnSb nanojunctions at RT. In addition, TEM observation was carried out in order to examine the degree of  $C1_b$  order in the NiMnSb film. It is found that  $L2_1$  like structure is dominant in the NiMnSb alloy film while  $C1_b$  order is rarely observed. This indicates a poor half metallicity for the NiMnSb film, which is consistent with the results of AMR and CPP-GMR. Nevertheless, the inconsistency between CPP-GMR and AMR effects was found in the PtMnSb material system, which could be due to high spin-orbit interaction in the PtMnSb films owing to Pt. Furthermore, in order to improve the  $C1_b$  order in half-Heusler alloys, the element of Ti was doped into NiMnSb films. The epitaxial structure of the NiMn(Ti)Sb films was achieved at a post annealing temperature of 500 °C on Cr/Ag-buffered MgO(001) substrates. However, the NiMn(Ti)Sb based multilayers showed much weaker AMR effect and reduced CPP-GMR ratios compared to pure NiMnSb based samples. The result reveals the ordering structure was degraded by doping Ti at the current deposition condition. Table 1 summarizes the values of both AMR and CPP-GMR in half-Heusler based multilayers with NiMnSb, PtMnSb, and NiMn(Ti)Sb at RT. Reference data<sup>4</sup> for  $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Si}$  were also shown. This study indicates that it is still challenging to improve the  $C1_b$  ordering structure in half Heusler alloys for CPP-GMR applications at the current stage.

This work was partially supported by JSPS, ASRC, and CRDAM-IMR, Tohoku University. The authors also thank Mr. I. Narita of CRDAM, Tohoku University for his technical support.

### Reference

- 1) Z. Wen *et al.*, *Sci. Rep.*, **5** (2015) 18387.
- 2) Z. Wen *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **108** (2016) 232406.
- 3) F. J. Yang *et al.*, *Phys. Rev. B (R)* **86** (2012) 020409.
- 4) Y. Sakuraba *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38** (2014) 45.

Table 1, AMR and CPP-GMR in half-Heusler based multilayers with NiMnSb, PtMnSb, and NiMn(Ti)Sb at RT.

	NiMnSb	PtMnSb	NiMn(Ti)Sb	Ref. <sup>4</sup> : $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Si}$
AMR	-0.1%	-0.17%	-0.07%	-0.2%
CPP-GMR	8%	0.7%	1.5%	55%

# ホイスラー合金 CPP-GMR 素子における界面挿入効果

窪田 崇秀<sup>1,2</sup>, 温 振超<sup>1,2</sup>, 高梨 弘毅<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>2</sup> 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター)

Interface layer effects for Heusler alloy based CPP-GMR junctions

T. Kubota<sup>1,2</sup>, Z. Wen<sup>1,2</sup>, and K. Takanashi<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> Institute for Materials Research, Tohoku Univ., <sup>2</sup> Center for Spintronics Research Network, Tohoku Univ.)

## はじめに

ハーフメタルホイスラー合金を用いた膜面垂直通電型巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) 素子は、低抵抗領域 (面積抵抗値、 $RA < 0.1 \Omega \mu\text{m}^2$ ) において比較的大きな磁気抵抗変化率 (MR 比) が得られる点で注目されている。我々のグループでは最近  $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$  (CFMS) ホイスラー合金と  $L1_2$  型  $\text{Ag}_3\text{Mg}$  規則合金中間層を組み合わせることで、室温で 60% を超える MR 比を報告したが<sup>1)</sup>、応用の観点では出力特性の更なる向上が望まれる。Mn を含むホイスラー合金は、界面における交換スティフネスの低下<sup>2)</sup>や Mn 元素の拡散<sup>3)</sup>などが更なる高 MR 化のための課題として議論されており、その対応策としてホイスラー合金層と中間層との界面への極薄挿入層の導入が提案されている<sup>4)</sup>。そこで本研究では CFMS/ $\text{Ag}_3\text{Mg}$ /CFMS 素子における界面挿入の効果について検討した<sup>5)</sup>。

## 実験方法

積層膜試料は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO(100)単結晶基板上に作製した。膜構成は MgO 基板/Cr 20 nm/Ag 40 nm/CFMS 20 nm/界面層  $t$ /Ag<sub>3</sub>Mg 5 nm/界面層  $t$ /CFMS 7 nm/Ag 2 nm/Au 5 nm である。界面層は Fe 又は Mg を用い、いずれも膜厚 ( $t$ ) をゼロから 0.6 nm までの範囲で変化させた。積層膜は電子線リソグラフィ、イオンミリング法によりピラーに加工した。CPP-GMR は直流 4 端子法で測定し、低バイアス (電流密度、 $J \sim 10^5 \text{A/cm}^2$ ) に加えて、バイアス依存性による出力電圧 ( $\Delta V$ ) の評価を室温で行った。また、低バイアスにおける MR 比の測定温度依存性を 10 - 300 K の範囲で評価した。

## 実験結果

室温、低バイアス電流密度において、Fe、Mg いずれの挿入層の場合も MR 比は挿入層膜厚の増大に伴い低下した。一方、バイアス依存性の評価の結果、高バイアス ( $J > 10^7 \text{A/cm}^2$ ) 領域における  $\Delta V$  は挿入層膜厚に依存せず 4 mV 程度の値が得られた。加えて、 $\Delta V$  が最大値を示すバイアス電流密度が、挿入層を導入することで増加することを確認した。この結果は、挿入層の導入によりスピントランスファートルクによる磁化の揺動が抑制され、高バイアス領域で大きな出力電圧を維持しやすくなったためと考えられる。測定温度依存性においては、Fe 挿入の素子では MR 比が 50 ~ 250 K の範囲で最大値を示し、MR 比が最大となる温度が挿入層膜厚に依存することを確認した。一方、Mg 挿入の素子では、挿入層が無い素子と同様に測定温度の低下に伴い MR 比は増加した。講演では、挿入層材料に依存した測定温度依存性の違いの起源について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学研究費補助金 (基盤研究 S、25220910)、情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) の支援を受けた。

## 参考文献

- 1) T. Kubota *et al.*, Phys. Rev. Materials **1**, 044402 (2017).
- 2) Y. Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 252408 (2012).
- 3) Y. Sakuraba *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 064009 (2011); T. Kubota *et al.*, *ibid.* **59**, 014004 (2017).
- 4) J. W. Jung, *et al.*, IEEE Trans. Magn. **52**, 4400404 (2016).
- 5) T. Kubota *et al.*, Materials **11**, 219 (2018).

## CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Pt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 三層膜のスピホール磁気抵抗効果

山本匠<sup>1</sup> 野土翔登<sup>1</sup> 柳瀬隆<sup>2</sup> 島田敏宏<sup>2</sup> ○長浜太郎<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>北大総化院 <sup>2</sup>北大院工)

Spin Hall Magnetoresistance effect in CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Pt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> trilayers  
T. Yamamoto, S. Nodo, T. Yanase, T. Shimada, and T. Nagahama  
(Hokkaido Univ.)

### はじめに

近年スピ流研究が盛んに行われており、中でもスピ軌道相互作用を利用したスピ流生成に関する研究が精力的に進められている。とくに2013年に報告されたスピホール磁気抵抗効果は、YIG/Ptなどの二層膜を用いた簡便な直流抵抗測定により観測されることもあり、発見以後多くの研究が進められた。また、Chenらの理論式と比較することにより、スピ拡散長やミキシングコンダクタンスなどスピ流伝導に関連するパラメーターを決定することができる。本研究ではCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Pt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>三層膜を作製し、そのSMRについて調べた。三層膜のSMRに関する実験的な報告はなされていないが、理論的にはChenらによって調べられており、スピ拡散長依存性について二層膜と異なる振る舞いをする可能性が示されている。

### 実験

SMR研究はYIG/Pt二層膜で行われることが多いが、YIGは気相成長で作製することが難しく、三層膜作製には適していない。そこで、反応性蒸着法やスパッタでの作製が報告されているCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>を磁性絶縁体層として用いた。金属層としてはPtを用いた。製膜温度はCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>:300°C、Pt:100°Cである。CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>は10<sup>-4</sup>Paの酸素ラジカル中で製膜した。また二層膜についてはCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/PtとPt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の積層順の異なる試料を作製して、結晶構造や界面状態、SMRについて調べた。

### 結果

図にCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)/Pt(4nm)/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)の角度依存磁気抵抗効果(ADMR)を示す。それぞれの角度 $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ は図中に示す通りである。 $\alpha$ 、 $\beta$ 方向では三角関数的な抵抗変化が観測され、 $\gamma$ 方向では位相の異なる相対的に小さな抵抗変化が観測された。 $\alpha$ 、 $\beta$ 方向は通常のSMR、 $\gamma$ 方向についてはPtの近接効果に起因するAMR効果であると考えられる。三層膜と二層膜を比較すると、三層膜は二層膜の3倍程度のSMRを示しており、大幅な増大が観測された。また、Pt膜厚依存性に関しては、Pt膜厚が薄い領域のSMRの振る舞いに違いがあることがわかった。

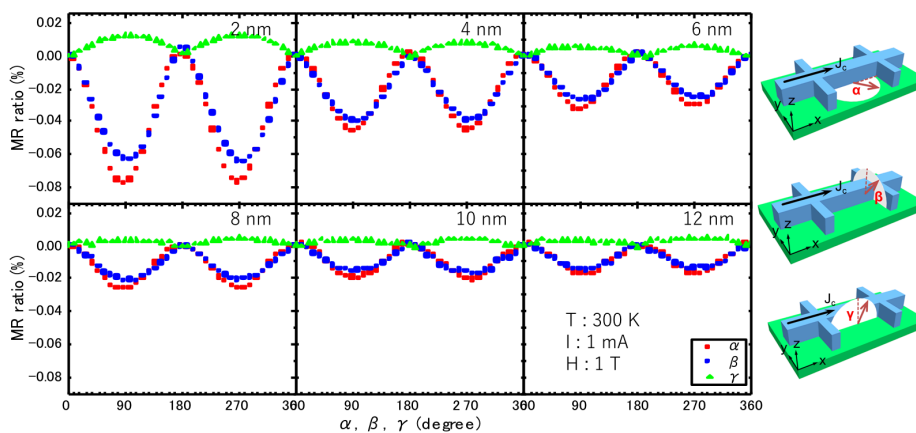


図1 CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)/Pt(4nm)/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)の角度依存磁気抵抗効果。測定温度室温、測定磁場1 T。



# Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜を用いた電流面直型スピバルブ素子における 双二次層間交換結合の起源

谷本哲盛<sup>1</sup>, 犬伏和海<sup>2</sup>, 毛利大樹<sup>1</sup>, 井上将希<sup>1</sup>, 中田勝之<sup>2</sup>, 山本眞史<sup>1</sup>, 植村哲也<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>北海道大学, <sup>2</sup>TDK 株式会社)

Origin of bi-quadratic interlayer exchange coupling in Co<sub>2</sub>MnSi-based  
current-perpendicular-to-plane spin valves

Tessei Tanimoto<sup>1</sup>, Kazuumi Inubushi<sup>2</sup>, Daiki Mouri<sup>1</sup>, Masaki Inoue<sup>1</sup>,  
Katsuyuki Nakada<sup>2</sup>, Masafumi Yamamoto<sup>1</sup>, and Tetsuya Uemura<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Hokkaido University, <sup>2</sup>TDK Corporation)

## 1. はじめに

Co 基ホイスラー合金を用いた電流面直型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子は、ホイスラー合金のハーフメタル性に起因する高い磁気抵抗(MR)比が期待されることから、これまで盛んに研究がなされている<sup>1-3</sup>。最近、我々は Co<sub>2</sub>MnSi(CMS)を用いた CPP-GMR 素子において、その MR 比が Mn 組成とともに増加することを見出し、強磁性磁気結合(MTJ)同様、Mn-rich CMS の有用性を GMR 素子においても実証した<sup>1</sup>。しかしながら、MR 比の温度依存性において異常な振る舞いが見られ、Mn 組成の増加につれ、低温における MR 比の顕著な減少が見られた。同様の低温における MR 比の減少は以前にも CMS あるいは Co<sub>2</sub>(Mn,Fe)Si を用いた GMR 素子に対して報告されており<sup>2,3</sup>、その起源の解明は Co 基ホイスラー合金の優れたハーフメタル性をフル活用する上で重要な課題である。これまで、低温における MR 比の減少がスピン移行トルク(STT)により緩和されることが見出されており、このことから、強磁性層間の bi-quadratic interlayer exchange coupling(90° coupling)の影響が指摘されている<sup>3</sup>。また、この 90° coupling の強さが温度に大きく依存することから loose spin model<sup>4</sup> との関連が指摘されているが、その詳細な機構に関しては明らかになっていない。本研究の目的は、CMS 系 GMR 素子における 90° coupling の起源と loose spin model との関連を明らかにすることである。

## 2. 実験方法

MgO(001)単結晶基板上に(下部側から)Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>(CoFe)/Ag/CoFe 下地層を介して、CMS/Ag/CMS 三層構造を有する保磁力差型 CPP pseudo spin valve(PSV)素子(series-A)の層構造と、CMS と Ag の界面に厚さ 1.8 nm の極薄 CoFe 層を挿入した CPP-PSV 素子(series-B)の 2 通りの層構造を作製した。各シリーズにおいて、CMS 電極(Co<sub>2</sub>Mn<sub>α</sub>Si<sub>0.82</sub>)電極の Mn 組成  $\alpha$  を Mn deficient の  $\alpha = 0.62$  から Mn rich な  $\alpha = 1.40$  まで系統的に変化させた。CMS 電極の結晶性向上のため、上部 CMS 電極を室温にて堆積後、in-situ で 550°C のアニールを行った。上記の層構造に対して、微細加工により CPP-PSV 素子を作製し、それらの MR 特性および STT 特性を直流 4 端子法により測定した。

## 3. 結果および考察

図 1 に series-A の CPP-PSV 素子の、室温における MR 特性と STT 特性の比較を示す。磁場掃引による反平行(AP)状態の抵抗  $R_{AP}^{(MAG)}$  に比べ STT による AP 状態の抵抗  $R_{AP}^{(STT)}$  が大きくなり、磁場掃引では完全な AP 状態が形成されていないと考えられる。このことより 90° coupling の存在が示され、この結合の強さは、(1)Mn 組成増加とともに強くなること、(2)CMS と Ag スペーサの界面に CoFe 層を挿入することで弱くなること、(3)低温で顕著に増大すること、が分かった。以上の結果は、CMS 層から Ag スペーサ層に拡散した Mn 原子が loose spin として振舞うという機構で説明できる。

### 参考文献

- 1) Y. Sakuraba et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 064009 (2011).
- 2) M. Inoue et al., Appl. Phys. Lett. **111**, 082403 (2017).
- 3) H. S. Goripati et al., J. Appl. Phys. **110**, 123914 (2011).
- 4) J.C. Slonczewski, J. Appl. Phys. **73**, 5957 (1993).

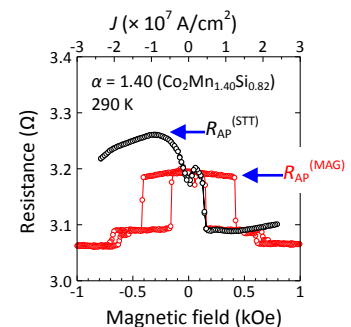


Fig. 1. Comparison between an MR curve and an STT curve at 290 K for a series-A PSV (w/o CoFe insertion) with a Mn composition of  $\alpha = 1.40$  (Co<sub>2</sub>Mn<sub>1.40</sub>Si<sub>0.82</sub>). The red and black curves indicate the MR curve and STT