

自発磁化を示す Al 添加 Cr₂O₃ 薄膜の異常ホール効果

飯野伊音, 櫻井皓基, 多田龍生, 豊木研太郎, 中谷亮一, 白土 優

(大阪大)

Anomalous Hall effect in Al-doped Cr₂O₃ thin films exhibiting spontaneous magnetization

I. Iino, H. Sakurai, T. Tada, K. Toyoki, R. Nakatani and Y. Shiratsuchi

(Osaka Univ.)

はじめに 反強磁性体は、超高密度磁気記録やテラヘルツ素子等の新規スピントロニクスデバイスの基盤材料として期待されている。しかしながら、反強磁性体は自発磁化を生じないため、磁気モーメント（ネールベクトル）をどのように制御し、検出するかが課題となっている。我々は、反強磁性体として Cr₂O₃ を用いることで、電気磁気効果[1]や、非磁性元素 (Al) の添加により生成する自発磁化[2]を用いたネールベクトルの制御とともに、Pt/Cr₂O₃ 界面で生じる異常ホール効果を用いたネールベクトルの検出[3]を進めている。一方、Pt/Cr₂O₃ 系では自発磁化が生じないため、異常ホール効果の起源が必ずしも明らかになっていない。本研究では、自発磁化を有する Al 添加 Cr₂O₃ 薄膜に対して、異常ホール効果の測定を行うことで、本系での異常ホール効果の起源について検討した。

実験方法 試料として、Pt(2 nm)/(Al_xCr_{1-x})₂O₃(200 nm)/α-Al₂O₃(0001)subs. (x = 0–0.255) を用いた。試料作製には、マグネトロンスパッタリング法を用いた。製膜時において、Cr に対する投入電力を固定し、Al に対する投入電力を変えることにより Al 組成を変化させた。構造評価には、X 線回折法、反射高速電子線回折法を用いた。Al 組成は、蛍光 X 線分析法により評価した。ホール効果測定のために、作製した薄膜をフォトリソグラフィ法、Ar イオンミリング法を用いて、ホール素子に微細加工を行った。磁化測定には、超伝導量子干渉磁束計を用いた。

実験結果 Fig. 1(a)に、200 K で測定した磁化曲線と異常ホール効果曲線を示す。Al 濃度は 4.04at.% とした。いずれも角型比が約 1 のヒステリシスを示し、保磁力も一致した。ここから、異常ホール伝導度 ($\sigma_{xy} = \rho_{xy}/\rho_{xx}^2$) と磁化は、磁場依存性に関して類似性を持つことがわかった。(b)に、同一試料に対する残留磁化と異常ホール伝導度の温度依存性を示す。自発磁化は、温度の上昇とともに単調に低下することに対して、 σ_{xy} は、温度の上昇により一度、上昇した後、ピークを取り、再度低下する。低温領域での σ_{xy} の上昇の原因は、明らかになっていないが、Pt/Cr₂O₃ 界面で予測されるキラルスピン構造[4]の存在を示唆する。磁化が 0 となる温度をキュリー温度とすると、 σ_{xy} が消失する温度は概ねキュリー温度に一致した。

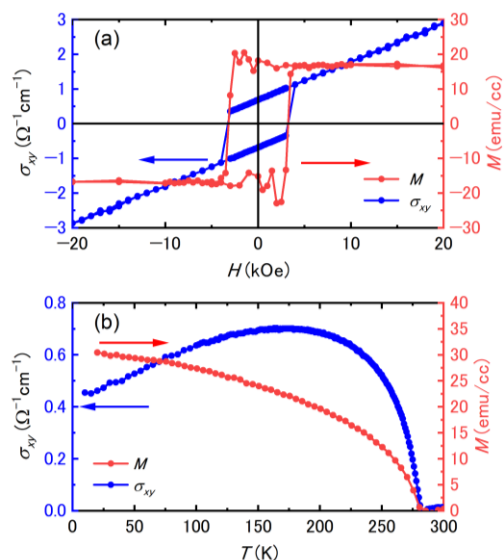


Fig. 1(a) 200 K で測定した磁化曲線 (右軸) と異常ホール効果曲線 (左軸). (b) 異常ホール伝導度と磁化の温度依存性.

[1] Y. Shiratsuchi *et al.*, JPCM 33, 243001 (2021). [2] 多田龍生他 日本金属学会第 169 回講演大会.

[3] X. Wang *et al.*, AIP Adv. 12, 035216 (2022). [4] T. Moriyama *et al.*, PRAppl. 13, 034052 (2020).

導電性コバルトフェライト電極上に作製した垂直磁化 コバルトフェライト薄膜によるトンネル型スピフィルター効果

田中雅章、古田元春、森下雅也、市川知幸、洪鈺珉*、本多周太**、小野輝男*、壬生攻
(名工大工、*京大化研、**関西大シス理)

Spin-filtering tunnel effect of perpendicularly magnetized insulative cobalt ferrite layers grown on
conductive cobalt ferrite electrodes

M. A. Tanaka, M. Furuta, M. Morishita, T. Ichikawa, Y.-M. Hung*, S. Honda**, T. Ono*, and K. Mibu
(Nagoya Inst. Tech., *ICR, Kyoto Univ., ** Kansai Univ.)

はじめに

強磁性絶縁体薄膜を用いたトンネル接合では、障壁の高さが電子のスピンにより異なるため、トンネル電子のスピンに依存した透過率の差が生じ、スピン偏極した電流を生成することができる。この現象はトンネル型スピフィルター効果と呼ばれ、新しいスピン注入源として期待できる。一方で、[001]配向した強磁性絶縁体コバルトフェライト薄膜は、面内方向の引張歪みにより垂直磁気異方性を示すことが知られている。キュリー温度が高いコバルトフェライトの垂直磁化薄膜は実用的な垂直磁化型のトンネル型スピフィルター層として期待できる。本研究では Fe^{2+} と Fe^{3+} が存在するため導電性を示すコバルトフェライト $\text{Co}_y\text{Fe}_{3-y}\text{O}_{4+c}$ (C-CFO) 電極層上に Fe^{2+} がほとんど存在しないため絶縁性を示すコバルトフェライト $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_{4+\delta}$ (I-CFO) 薄膜を製膜し、垂直磁化のコバルトフェライト層を障壁層とする磁気トンネル接合(MTJ)素子を作製した。この MTJ 素子に対してトンネル磁気抵抗効果の測定を行い、コバルトフェライト薄膜のスピンフィルター効率の評価を行った。

実験方法

YAG 2 倍波レーザーを用いたパルスレーザー堆積法で、MgO(001)基板上にバッファ層 I-CFO(20 nm)、下部電極用の C-CFO (20 nm)、スピフィルター層 I-CFO ($t=0, 0.8, 1.5, 3.0$ nm)、上下の強磁性層の磁気結合切断層 MgO (2.0 nm)の順番で製膜した。その上にスピン検出用強磁性層として $\text{Co}(1.0 \text{ nm})/\{\text{Tb}(0.45 \text{ nm})/\text{Co}(0.56 \text{ nm})\}_{15}/\text{Co}(2.0 \text{ nm})$ を電子ビーム蒸着法で製膜して MTJ 素子用の多層膜を用意した。X 線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価を行い、SQUID 磁束計を用いて磁化測定を行った。またフォトリソグラフィと Ar イオンミリングを用いて直径が数 μm の MTJ 素子を作製し、膜面垂直方向に外部磁場を印加して磁気抵抗測定を行い I-CFO 薄膜のスピンフィルター効率の評価を試みた。

実験結果

MgO(001)基板上では I-CFO 薄膜および C-CFO 薄膜は(001)方向にエピタキシャル成長することがわかった。また I-CFO 薄膜および C-CFO 薄膜の膜面垂直方向の格子定数はそれぞれ 8.32\AA と 8.37\AA であり、面内方向の格子定数はどちらも 8.42\AA であることから、面内方向の引張歪みが存在することがわかった。磁化測定から MTJ 素子用の多層膜は垂直磁化を示し、面内方向の引張歪みや層間の磁気結合により I-CFO 薄膜と C-CFO 薄膜は垂直磁気異方性が誘起されていることがわかった。MTJ 素子の電流電圧測定ではトンネル伝導を示す三次曲線が得られ、I-CFO 薄膜は良好なトンネル特性を示すことがわかった。また $t=0, 0.8, 1.5, 3.0$ nm のすべての MTJ 素子の磁気抵抗測定で強磁性層の磁化反転に伴う負の TMR 効果が観測された。第一原理計算から I-CFO の障壁高さはマイノリティスピンの方が低いため、負の TMR 効果は妥当である。TMR 比は $t=3.0$ nm の MTJ 素子において、100 K で -20% であり、I-CFO 薄膜のスピン注入効率は 18% 程度であった。TMR 比のバイアス電圧依存性の評価から、低バイアス電圧では TMR 比の絶対値が小さく、バイアス電圧を大きくすると TMR 比の絶対値が大きくなることがわかった。また $t=3.0$ nm の MTJ 素子では 150 K の場合 ± 0.25 V で TMR 比の絶対値が極大となり、それ以上のバイアス電圧では TMR 比の絶対値が低下することがわかった。この現象は I-CFO 薄膜における Fowler-Nordheim トンネル現象を用いて説明することができる。以上のように、本研究では I-CFO 薄膜による垂直磁化方式のトンネル型スピフィルター現象の観測に成功した。

FeCoNi/Cu 多層膜 GMR における NiFeCr 下地層組成の効果

Prabhanjan D. Kulkarni, 中谷友也, Zehao Li, 佐々木泰祐, 桜庭裕弥
(物質・材料研究機構)

The effects of the composition of NiFeCr seed layer on GMR in FeCoNi/Cu multilayer
Prabhanjan D. Kulkarni, Tomoya Nakatani, Zehao Li, Taisuke Sasaki, Yuya Sakuraba
(National Institute for Materials Science)

はじめに

反強磁性的に層間結合した強磁性/非磁性多層膜系における巨大磁気抵抗 (GMR) は、低コスト・量産性・耐久性の観点からエンコーダ等の磁気センサとして重要であり、軟磁気特性と高 GMR 比の両立は重要な課題である。高 GMR 比を得るためには、Co/Cu や Fe/Cr といった界面散乱のスピンの非対称性が大きい材料系の選択に加え、界面ラフネスなどに起因する 90°層間交換結合を低減し、反平行磁化を実現することが重要である。過去の研究から、NiFeCr などの下地層が、GMR 比に大きく影響することが知られているが[1, 2]、その組成依存性や GMR 増大のメカニズムについての理解は十分でない。本研究では、FeCoNi/Cu 多層膜の GMR、磁化特性、微細構造に対する NiFeCr 下地層組成の効果を調査した。

実験方法

スパッタリングによって熱酸化 Si 基板上に NiFeCr (5 nm)/[FeCoNi (3 nm)/Cu (1.1 nm)]₅/FeCoNi (3 nm)/Ru (5 nm) を室温成膜した。NiFeCr 下地層は Ni, Fe, Cr ターゲットから同時スパッタリングすることで、単体および 2 元合金を含めた 72 種類の組成について作製した。FeCoNi の組成は Fe₁₆Co₆₆Ni₁₈ (at. %) であり、軟磁性かつ低磁歪の組成を選択した。未熱処理の試料に対し、GMR、磁化特性、結晶・微細構造を評価した。

結果

図(a)に NiFeCr 組成に対する GMR 比 ($\Delta R/R$) の等高線図を示す。 $\Delta R/R$ は明確な NiFeCr 組成依存性を示し、(Ni_{0.55}Cr_{0.45})_{100-y}Fe_y (0 ≤ y ≤ 47 at. %) の組成の下地に対して、高い $\Delta R/R$ が得られる。図(a)中のクロスシンボルは代表的な試料 1-4 を示し、それらの GMR 曲線を図(b)に示す。図(c)に残留磁化の飽和磁化に対する比 (M_r/M_s) および $\Delta R/R$ の、反強磁性結合エネルギーの 90°結合エネルギーに対する比 (J_1/J_2) の依存性を示す。 J_1 と J_2 は磁化曲線から独立に求めることができる。層間交換結合の現象論モデルから導かれる通り、 $M_r/M_s = \sqrt{2 - J_1/J_2}/2$ に従い、 $\Delta R/R$ は J_1/J_2 に比例する。 $J_1/J_2 \geq 2$ であれば、 $M_r/M_s = 0$ すなわち完全な反平行磁化状態が実現され、 $\Delta R/R$ は 41.4% となることが予想されるが、実験における J_1/J_2 の最大値は 1.58 ($M_r/M_s = 0.33$) であり、反平行磁化状態は不完全である。

また、試料 1 と 3 は下地層の組成は近いものの、 $\Delta R/R$ は大きく異なる。X 線回折および走査透過電子顕微鏡による構造解析の結果、試料 3 は 1 に比べて、結晶粒が小さく、[111]結晶配向性が低く、界面ラフネスが大きいことがわかった。また、試料 2 は 3 に比べて、[111]配向性は低いものの、界面ラフネスが小さいために、比較的大きな $\Delta R/R$ を示すことが説明される。

文献 [1] Vas'ko *et al.* J. Appl. Phys. 93, 8409 (2003). [2] Bannikova *et al.* Phys. Met. Metallogr 116, 987 (2015).

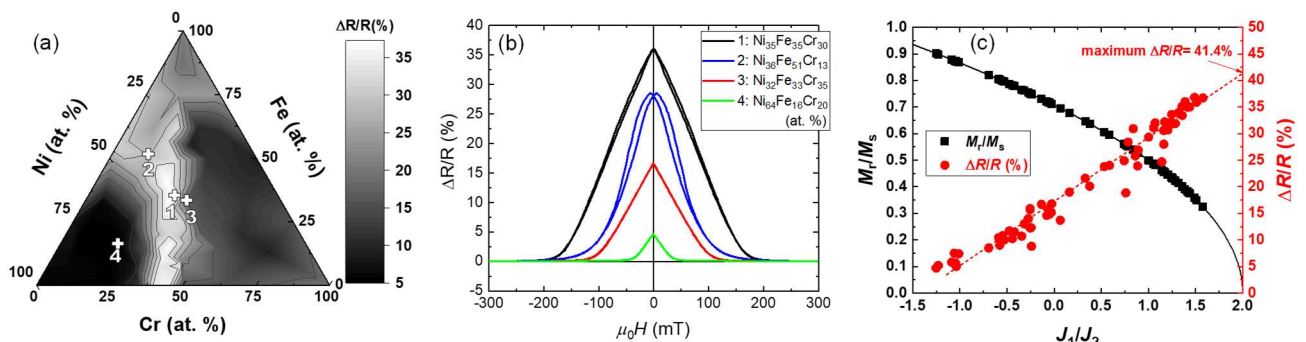


図 (a) $\Delta R/R$ の NiFeCr 組成依存性, (b) GMR 曲線, (c) M_r/M_s および $\Delta R/R$ の J_1/J_2 依存性。

異常ホール効果を用いた HDD 用リードセンサの検討

中谷友也, Prabhanjan D. Kulkarni, 岩崎仁志, 首藤浩文, 桜庭裕弥
(物質・材料研究機構)

Study of HDD read sensors using anomalous Hall effect

Tomoya Nakatani, Prabhanjan D. Kulkarni, Hitoshi Iwasaki, Hirofumi Suto, Yuya Sakuraba
(National Institute for Materials Science)

はじめに

近年、次世代の HDD 用書き込み技術であるエネルギーアシスト記録の進展によって、HDD の記録密度が増大しており、 3 Tbit/in^2 を超す面記録密度が実証されている[1]。高記録密度化に伴う記録パターンの縮小にあわせて、読み出し素子（リーダー）の寸法も縮小する必要がある。4 Tbit/in^2 ではシールド間ギャップ G は 17 nm, 幅 W は 9 nm 程度となることが予想されている[2]。図 1(a) に示す現行のスピバルブ型トンネル磁気抵抗 (TMR) リーダーでは、膜厚の観点から、4 Tbit/in^2 に対応した微小なリーダーの実現は難しい。そこで我々は、単一の強磁性体膜から構成される、異常ホール効果 (AHE) を用いたリーダーの可能性を検討した。

AHE リーダーの構造

図 1(b) は記録媒体対向面から見た AHE リーダーの模式図である。センサ層（スピバルブにおける自由層に相当）は AHE の大きな強磁性体からなり、その磁化はサイドシールドからの漏洩磁界によって横向きにバイアスされる。サイドシールドとセンサ層は、それらの間に挿入された導電性の非磁性層によって磁気的に分離されており、サイドシールドをリード電極として、センサ層にバイアス電流が通電される。上下シールドとサイドシールドは絶縁されており、リーダーの出力であるホール電圧 (ΔV) は上下シールドを電極として取り出され、その大きさはホールクロスとの類推から、 $\Delta V = 2\rho_{xy}J_xG\eta$ で表される。ここで、 ρ_{xy} は異常ホール抵抗率、 J_x はバイアス電流密度、 η は磁界回転範囲の利用率である。

信号雑音比の見積もり

超低抵抗 TMR センサ[3]と比較して、AHE リーダーの信号雑音比(SNR)を計算した。AHE リーダーのセンサ層には、現在知られている最も大きい AHE を示す材料の一つである Co_2MnGa 単結晶膜の値 ($\rho_{xy} = 20 \mu\Omega \text{ cm}$, 抵抗率 $\rho_{xx} = 220 \mu\Omega \text{ cm}$) を用いた[4]。リーダーやアンプの特性値は文献[2]に記載の値を用いた。

図 2 に SNR と記録密度の関係を示す。AHE リーダーは 2.4 Tbit/in^2 以上の記録密度にわたって、TMR リーダーより優れた SNR を示す。これは、 Co_2MnGa の大きな AHE（通常の 3d 金属・合金では $\rho_{xy} < 1 \mu\Omega \text{ cm}$ ）に加え、AHE リーダーではシールド間ギャップのほぼすべての空間をセンサ層で占めることができ、磁化の熱擾乱によるマグノイズが低減できるためである。この結果から、AHE リーダーは将来のリーダー技術としての可能性を有する。講演では、有限要素法シミュレーションによって見出された課題についても議論する。

文献 [1] Seagate Technology [2] Albuquerque *et al.* IEEE Trans. Magn. 58, 3100410 (2022). [3] Park *et al.* presented at TMRC 2019, D4 [4] Sumida *et al.* Commun Mater 1, 89 (2020).

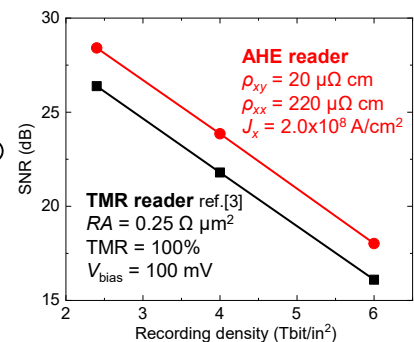
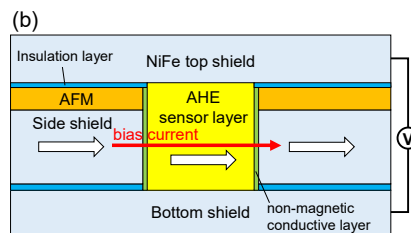
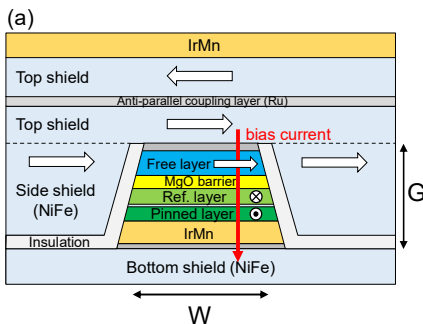


図 1 (a) スピバルブ TMR リーダーと, (b) AHE リーダー。

図 2 SNR の計算値。