GdFeCoフェリ磁性合金薄膜における 異常ホール電圧の機械的変形による可逆応答

藤井優樹¹,小林祐希¹,吉川大貴²,笠谷雄一²,塚本新² (¹日本大学大学院理工学研究科,²日本大学理工学部) Reversible response of anomalous Hall voltage in mechanical deformed GdFeCo ferrimagnetic alloy thin film Yuki Fujii¹, Yuki Kobayashi¹, Hiroki Yoshikawa², Yuichi Kasatani², Arata Tsukamoto² (¹Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ., ²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに フレキシブルエレクトロニクスでは、薄膜素子の形状変化に伴う電気伝導特性が重要とされる. 一方、材料に磁性体を用いることで磁化状態と結びついた電気応答特性である異常ホール効果により高機能 化や新機能の発現が期待される.そこで単結晶の半導体材料に比べ靭性に富む金属材料かつ、磁気特性を制 御可能^[1]な希土類遷移金属合金薄膜である GdFe 系合金薄膜を用いることで、薄膜に加えられた機械的変形を 異常ホール効果により電気的に検出することが可能になると考えられる.本報告では、フレキシブル基板上 GdFeCo フェリ磁性合金薄膜における異常ホール電圧の機械的変形に対する応答特性につき検討した.

<u>実験方法</u> マグネトロンスパッタリング法により SiN (5 nm) / Gd_{28.0}Fe_{63.0}Co_{9.0} (20 nm) / SiN (5 nm) / A:Kapton or B:Si sub.を作製した. これら試料に対して膜面垂直方向 (z) に ±5 kOe の外部磁場を掃引し, 膜面内方向 (x) に印加した直流電流 0.1 mA に対して膜面内で直交する方向 (y) の電圧 (V_y) を四端子計測により異常ホール 電圧を測定した.また,カプトン基板上の試料 A を高さ 1.5 mm の樹脂製半楕円柱土台を用いた湾曲保持形 状 (Bend),土台を用いない扁平保持形状 (Flat) の2形状を Flat 0→Bend 1st→Flat 1st→Bend 2nd→Flat 2nd の 順に機械的変形を行い,各保持形状における異常ホール電圧の外部磁場応答の遷移を計測・評価した.

実験結果 Fig.1 に両基板における異常ホール電圧の外 部磁場依存性を示す. Flat 0 にて Si 基板上試料 B と同 様の膜面垂直磁化膜が示す異常ホール電圧の外部磁場 依存性が得られ, Kapton 基板上に良好な膜面垂直磁化 膜が製膜されたことを確認した.次に Fig.2 に機械的変 形に対する異常ホール電圧の外部磁場依存性の推移を 示す. まず Bend (1st, 2nd) 形状において Flat 形状とは異 なる異常ホール電圧の外部磁場応答が得られ, Flat 形状 に比べ符号反転は緩やかになり、零磁場における Vy は 約70%減少した.一方,変形を経験した Flat (1st, 2nd) 形状において飽和領域の V, は 0.7 mV を示し, Flat 0 形 状と同等のホール電圧特性に回復し,よって機械的変形 を加えても異常ホール電圧の外部磁場依存性は可逆的 に応答しうることが確かめられた.本外部磁場依存性か ら,機械的変形により垂直磁気異方性が変化したためで あると考えられる.以上より,機械的変形を異常ホール 効果により可逆的に大きな電圧変化を伴う検出が可能 であることを示した.

<u>参考文献</u>

[1] H. Hachisuka *et al.*, 第 42 回日本磁気学会学術講演 会, 14aC-1 (2018)







Noise Characterization of STT-based Magnetic Tunnel Junction Sensor

K. Komuro¹, H. Nicolas², B. Dieny³, D. Oshima¹, T. Kato¹, R. C. Sousa³ ¹ Nagoya University, Japan ² Université de Strasbourg, France ³ SPINTEC, Grenoble Alpes Univ., CEA, CNRS Grenoble, France

In this study, we examined the signal-to-noise ratio (SNR) of magnetic field sensors based on spin transfer torque (STT) tunnel junctions (MTJs), comonly used as random-access memories (MRAMs). In MRAM technology, STT is used to set magnetization direction of the memory layer. By applying a bias voltage to the MTJ, the magnetization of the memory layer can be switched through the spin torque of spin-polarized electrons tunneling from the reference layer. The switching voltage is dependent on the applied field perpendicular to the surface of the MTJ. The STT-based MTJ sensor detects the applied field by measuring the switching voltage. The basic properties of the STT-based MTJ sensor have been demonstrated in Ref. [1], and reported a noise level of $21.8 \,\mu T/Hz^{1/2}$. To understand the origin of noise in the STT-based MTJ sensor, we have analyzed the STT switching behavior of the thermally activated memory layer under applied pulse or continuous bias voltage and an external field. We investigated certain MTJ characteristics that affect the sensor's SNR by examining the bias voltage dependence of the STT switching probability and evaluated the findings using the following methods. First, MTJ samples were fabricated with the perpendicular anisotropy stack, having a SAF reference layer and a FeCoB 1/W 0.2/FeCoB 0.75nm free layer, structured to pillar diameters of 50-100 nm with lithography techniques. The voltage dependence of the switching probability of MTJs with different pillar diameters was determined from at least 1000 pulse switching trials under varying external fields. The duration of the applied voltage pulses was 1 μ s. The observed switching probabilities were modeled using the following equation:

$$\epsilon_r = 1 - \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_0} \exp\left(-\Delta\left(1 - \frac{V}{V_c(H)}\right)\right)\right)$$

which represents the switching probability at room temperature, with each parameter in the equation obtained by fitting the experimental data. V_c and Δ stand for the critical voltage at 0 K and the energy barrier of the switching, respectively. The SNR of the STT-based MTJ sensors was defined as the square of the voltage-signal at a 50% switching probability, normalized by its variance. Solid circles in Fig. 1 show the experimental SNR obtained from different samples as a function of Δ where no external field was applied. It is important to note that MTJs have a finite switching voltage even in the absence of an external field, resulting in a finite SNR at zero external field. According to the data, the SNR increases

monotonously for higher Δ increases increases, which can be qualitatively described as follows. As Δ increases, a higher switching voltage is needed, and the stochastic magnetization reversal is reduced because the thermal activation energy becomes relatively insignificant compared to Δ . Thus, by adjusting Δ of the STT-MTJ sensor, it is possible to simultaneously achieve signal enhancement and reduction of stochastic noise. The dashed line in Fig. 1 shows the theoretical SNR for arbitrary values of Δ , defining the noise as $d\epsilon_r/dV$. The theoretical results agree well with the experimental data and the SNR is confirmed to be proportional to Δ^2 .

<u>Reference</u>

 H. Nicolas *et al.*, IEEE Sensors Journal, 23, pp. 5670-5680 (2023).

This work was partially supported by the European Research Council via grant reference ERC-2022-PoC2 (NANOSENSE No. 101100599).



Fig. 1. SNR of STT-based MTJ sensors under zero applied field. The dashed line illustrates the theoretical dependence proportional to Δ^2 .

ノンコリニア層間交換結合を利用したトンネル磁気抵抗センサ

Prabhanjan D. Kulkarni, 中谷 友也 (物質・材料研究機構)

Tunnel magnetoresistive sensors using noncollinear interlayer exchange coupling Prabhanjan D. Kulkarni, and Tomoya Nakatani (National Institute for Materials Science)

<u>背景</u>

トンネル磁気抵抗(TMR) センサは、自由層に磁気異方性を与え、その困難軸方向に測定対象磁場が印加 されるように設計される.これを実現するために、磁場中熱処理による一軸磁気異方性や、IrMn等反強磁性 体の交換バイアス(一方向磁気異方性)を用いる方法が知られている.これらの方法には以下の課題がある. 一軸磁気異方性のみをもつ自由層は、無磁場下では多磁区状態となり、磁壁の移動による磁化挙動を示す. そのため、抵抗--磁界(*R*-*H*)曲線はヒステリシスを示し、磁気センサの誤差やノイズとなる[1].また、一方 向磁気異方性をもつ自由層は単磁区となるため、ヒステリシスを低減できるものの、ブロッキング温度の異 なる反強磁性体層が2層必要であり、2度の磁場中熱処理が必要となることが実用上の課題である.

2020年に報告された RuFe スペーサーによるノンコリア(非共線的)層間交換結合(IEC)[2]は、磁気センサ・メモリの設計の自由度を拡張する.本研究では、交換バイアス、ノンコリニア IEC、および強磁性 orangepeel 結合を利用し、比較的単純な構造・プロセスで磁気ヒステリシスの小さい磁気センサ素子を開発した.

<u>実験</u>

図 1(a)の積層構造の TMR 素子を作製した.各強磁性体の磁化 (\mathbf{m}_{00} と表す)の配列を膜面上から見た図を (b)に示す.2枚の固定層 (PL)の磁化 \mathbf{m}_{PL1} および \mathbf{m}_{PL3} は, IrMn の交換バイアスにより, +x 方向にピンされ る.また, RuFe スペーサーを介したノンコリニア IEC により, \mathbf{m}_{PL2} は \mathbf{m}_{PL1} と角度 θ_{ud} の方向にピンされる. θ_{ud} の値は RuFe の組成によって調整できる[2]. \mathbf{m}_{PL2} と自由層磁化 \mathbf{m}_{FL} の間には AgSn スペーサーを介した弱 い orange-peel 強磁性結合がはたらき, \mathbf{m}_{FL} は θ_{ud} 方向に一方向磁気異方性を受け, x 軸方向に印加された外部 磁場によって \mathbf{m}_{FL} が回転することにより, この TMR 素子は磁気センサとして機能する.

図 1(c)に Ru₄₀Fe₆₀ (1 nm)を PL1 と PL2 の間のスペーサーに用いた素子の TMR 曲線と, それを数値微分した 感度曲線(*dR*/*dH*·1/*R*)を示す. この場合, $\theta_{ud} \sim 130^{\circ}$ であった. メジャーループにおいてもヒステリシスは非常 に小さく, ノンコリニア IEC と orange-peel 結合を介した一方向磁気異方性によって, 自由層において単磁区 状態の磁化回転が実現できていると考えられる. 感度はゼロ磁場付近で最大 20 %/mT を示した.

文献 [1] D. Wang, et al., J. Appl. Phys. 99, 08H703 (2006). [2] Z.R. Nunn et al., Sci. Adv. 6, eabd8861 (2020).



図 1(a) TMR センサ構造, (b) 磁化配列, (c)素子の TMR および感度曲線

磁気抵抗効果を利用した水素検出の検討

大島 大輝,加藤 剛志,岩田 聡* (名古屋大学,名古屋産業科学研究所*) Study of hydrogen detection using magnetoresistive effect Daiki Oshima, Takeshi Kato, Satoshi Iwata* (Nagoya Univ., NISRI*)

はじめに

クリーンなエネルギー源として水素が注目されているが,社会実装のためには併せて水素の漏洩検知技術 が求められる.種々の水素センサーが研究されているが¹⁾,一般的にコストは高い.貴金属である Pd は水素 を吸蔵しその際に体積が膨張することが知られており,この Pd の膨張を磁気抵抗素子で検出できれば比較的 低コストで水素センサーを提供できると考えられる.本研究では,逆磁歪効果および巨大磁気抵抗効果(GMR) を利用することで水素検出が可能か検討を行なった.

実験方法

マグネトロンスパッタ法により sub. / NiFe(5) / MnIr(10) / Co₉₀Fe₁₀(3) / Cu(3) / Co₉₀Fe₁₀(1.5) / FeSiB(20) / Ta(2) / Pd(0 or 20)の膜構成で GMR 膜を作製した.ここで,()内の数字は膜厚を示し単位は nm である. 基板には熱酸化膜付き Si 基板および 0.1 mm 厚のポリエチレンナフタレート (PEN)を使用した.水素吸蔵による Pd の変化を磁歪効果で検出することを想定し,GMR 膜の磁化自由層には大きな磁歪効果を持つ FeSiB 層を用いた.フォトリソグラフィおよび Ar イオンミリングを用いて GMR 膜を長さ 400 µm の細線状に加工した.作製した GMR 素子を 0.1 MPa の水素に曝露し,磁気抵抗曲線の測定を行なった.

実験結果

PEN 基板上に作製した幅 80 µm の GMR 素子の磁気 抵抗曲線を調べた. Fig.1に(a)水素曝露前および(b)水素 曝露後の困難軸方向の磁気抵抗曲線を示す.水素曝露前 は磁気抵抗曲線の極大値が100 Oe付近に存在するが, 水素曝露後では極大値が 160 Oe 付近に存在することが わかる. この変化は Pd なしの GMR 素子では見られな かったことから、Pd の水素吸蔵が磁気抵抗効果に影響 を与えていることがわかる.また, Pd ありの GMR 素子 でも Si 基板上に作製したものでは変化が見られなかっ たことから、PEN 基板上に作製することが重要である こともわかった.磁気抵抗曲線から異方性磁界を算出す るのが困難であったため、異方性磁界の代わりに磁気抵 抗曲線が極大値を示す磁界 Hm を検証した. Fig.2 に Hm の細線幅依存性を示す.水素曝露前の値に対し、水素曝 露後では必ず Hm が上昇していることがわかる.水素曝 露前後において交換バイアス磁界や層間結合磁界には 変化がなく,Hmの変化はCoFe/FeSiB 層の異方性磁界に よるものであると考えられる.これは磁気抵抗効果で水 素検知できる可能性を示す結果と考えられる.

<u>参考文献</u>

1) Jia et.al., Appl. Sci. vol. 13, p. 6869 (2023).



Fig. 1 Magnetoresistance curves of a 80 μ m wide GMR element (a) before and (b) after H₂ exposure.



Fig. 2 Wire width dependence of $H_{\rm m}$ before and after H₂ exposure.

水素脆化したステンレスの磁気特性

今田正啓、佐藤麻基、高瀬つぎ子、山口克彦 (福島大学) Magnetic Properties of Hydrogen Embrittlement of Stainless Steel M.Konta,A.sato,T.Takase,K.Yamaguchi (Fukushima Univ.)

はじめに

水素脆化とは水素が金属中に侵入することで延性や展性が低下してしまう現象で、部材がたわむ前に破断 してしまう遅れ破壊を引き起こす原因になっている。近年、水素社会の実現に向けて水素エネルギーの導入 が進められている。水素を管理する上で貯蔵するタンクは必須であるが、タンクやそれに連なるバルブは水 素脆化による突発的な破壊というリスクを伴う。従来、バルブなどの金属部品の亀裂など非破壊で検査する 場合、超音波探傷試験法が用いられてきたが、超音波探傷試験法の分解能は3mm程度であり、水素脆化によ る初期劣化を検出することは困難であった。これまで、当研究室ではステンレスなどの応力ひずみわれの初 期過程にともなう局所的な磁化の変化に注目し、マイクロカー効果顕微鏡などを用いて評価・検討を行って きた¹⁾。本研究では、前述の局所的磁化の評価方法を用いて、水素脆化の初期過程をとらえることを試みた。 実際には、水素チャージ試料を作成し、バルクの磁気特性からチャージによる磁性の変化を確認後にカー効 果顕微鏡による磁区観察と局所的磁気特性の測定を通して水素によって発生する欠陥による磁性の変化を測 定することで磁性と水素脆化の関係を検証した。

実験方法・結果

試料は厚さ3mm、長さ85mmのSUS304試験片を用意した。水素チャージは陰極チャージ法を用いる。Fig.1 に実験装置の構成を示す。アクリル製の治具に試料を挟んだクリップを固定し、治具の回りにPt線を巻き付けた。NH4SCN(3g/L)を含む3%のNaCl水溶液中(水温:60℃)でSUS304試料の電気分解(陰極:Pt線, 陰極:試料片、電流:30mA,72時間)を行い、試料表面に水素を発生させることにより水素チャージを実行した。試料のバルクの磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)を用いて測定した。水素チャージ前後のSUS304 試料の磁気特性をFig.2に示す(最大印加磁場 3000 Oe)。水素チャージを行うことにより試料の飽和磁化が増大していることが明らかになった。バルクの磁気特性評価後のSUS304 試料の局所的磁気特性の評価を行うことにより、水素脆性の初期過程に関する新たな知見が得られると考えられる。



Fig.1 Diagram of hydrogen charging device



参考文献 石渡真 鈴木健司 高瀬つぎ子 山口克彦, 第38回日本磁気学会学術講演概要集,251 (2014)