

数 Tbit/inch² 磁気記録密度実現のためのオールホイスラー合金磁気抵抗素子の開発 (092102006)

Development of magneto-resistive devices using Heusler alloys for realization of the hard-disk-drive with areal density of several Tbit/inch²

研究代表者

大兼 幹彦 東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻

Mikihiiko Oogane Department of Applied Physics, Tohoku University

研究期間 平成 21 年度～平成 22 年度

概要

高度 IT 社会を支える情報記録技術は益々重要性を増しており、ハードディスクは、今後 10 年間はその主役となるデバイスである。本研究の最終目標は、2~3 Tbit/inch² 容量のハードディスクドライブを実現するための、再生磁気ヘッド用新型磁気抵抗素子を開発することである。そのためには、低抵抗かつ高磁気抵抗(MR)比の磁気抵抗素子が必要であるが、低抵抗を実現可能な従来の面直通電型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子では、MR 比が小さい問題があった。本研究では、ハーフメタルホイスラー合金を用いた新型 CPP-GMR 素子を試作し、70%を超える MR 比の実現を目指して研究を実施し、その目標を達成することに成功した。

Abstract

The importance of information storage technology to support high IT society is increasing more and more, and a hard disk drive (HDD) will be a key device for the next ten years. The final goal of this study is to develop novel magneto-resistive (MR) devices for the magnetic read heads to realize a HDD with 2-3 Tbit/inch² areal density. In order to achieve the goal, a MR device with low resistance and high MR ratio is necessary. However, the conventional current-perpendicular-to-plane (CPP)-MR devices with a suitable resistance exhibited a small MR ratio. In this project, a novel CPP-GMR device using the half metallic Heusler alloys has been developed and a very large MR ratio over 70% has been successfully achieved.

1. まえがき

ハードディスクの記録密度を増加させるためには、記録ビットの微細化と、微細化したビット情報を読み出すための高感度な再生ヘッドが必要である。再生ヘッドには、磁場の変化を電気信号で取り出すために磁気抵抗素子が用いられるが、この磁気抵抗 (MR) 比が大きいほど感度が高い。また、広帯域、低ノイズを実現するためには、素子抵抗をある程度小さく抑える必要がある。最新のヘッドには、MgO 絶縁層を中間層としたトンネル磁気抵抗素子が用いられているが、高 MR 比を実現できる反面、絶縁体を用いることで素子抵抗値の低減が原理的に困難である。また、素子抵抗値を小さく抑えるために、磁気抵抗素子の中間層を Cu などの金属とした面直通電 (CPP) 型の巨大磁気抵抗 (GMR) 素子の開発も行なわれているが、現状 MR 比が小さく、オール金属であるために素子抵抗値(出力電圧)が小さすぎる。上記のいずれの素子についても、高性能化が日進月歩で進んでいるが、1Tbit/inch² の記憶容量の壁を越えるにはブレイクスルーが必要である。

この大きなブレイクスルーを実現するためには、画期的な材料開発が必要不可欠である。着眼したのは、ホイスラー合金である。ホイスラー合金の一部の組成は、伝導電子が完全にスピノン分極した、理想的なスピノン注入材料である、ハーフメタルとなる。本研究では、このハーフメタルホイスラー合金を電極に用いた CPP-GMR 素子において、従来の MR 比を圧倒的に凌ぐ 70%を実現することを目的として研究を実施した。

2. 研究内容及び成果

試作した CPP-GMR 素子の電極には、Co₂MnSi、Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si、Co₂FeSi の 3 種類のホイスラー合金組成を用いた。MgO (001) 単結晶基板のフラッシング後、Cr、Ag、下部ホイスラー合金層を成膜後、真空中で熱処

理を 500°Cで行なった。冷却後、中間層の Ag、上部ホイスラー合金を成膜後、ホイスラー合金層の結晶性、原子規則度を向上させるために熱処理を行なった。熱処理温度(T_a)は 300~550°Cで変化させた。

Co₂MnSi を電極に用いた素子に於いては、 $T_a = 350^\circ\text{C}$ の時に最大で 31.6%の MR 比が得られた。これは熱処理により、上部ホイスラー合金層の原子規則化が促進することで、スピノン分極率が増大し、MR 比が向上したためである。その一方で、Co₂MnSi 単層膜の XRD に於いては、L₂₁ 構造の規則線である、(111)ピークが明瞭に観測される、 $T_a \geq 500^\circ\text{C}$ では逆に MR 比が減少した。この理由として、原子拡散しやすい Co₂MnSi 中の Mn が Ag へ原子拡散したことが考えられる。Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si を電極に用いた素子に於いては、 $T_a = 450^\circ\text{C}$ の時に最大で 37.1%の MR 比が得られた。熱処理温度依存性の原因是、Co₂MnSi 電極の場合と同様と考えられる。Co₂FeSi を電極に用いた素子に於いては、 $T_a = 550^\circ\text{C}$ の時に最大で 36.2%の MR 比が得られた。Co₂FeSi 電極の場合も、熱処理による原子規則化とともに MR 比が向上したと考えられる。また、Co₂FeSi の規則化には高い熱処理温度が必要なため、高い磁気抵抗比を得るために、Co₂MnSi や Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si に比べ、高い熱処理温度を必要としたと考えられる。また、高いアニール温度に於いても原子拡散の影響を受けづらい、Mn を含まない組成であるために、 $T_a = 550^\circ\text{C}$ に於いて磁気抵抗比が最大となったと考えられる。いずれにしても、本研究によって、Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si ホイスラー合金が、大きな MR 比を得るために最も有利な組成であることが明らかとなった。

図 1 に大きな磁気抵抗比が得られた、Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si 電極、 $T_a = 450^\circ\text{C}$ の CPP-GMR 素子における、STEM 像を示す。STEM 像は、原子番号の大きさによって強度が

変化するので、原子配列の状態まで明瞭に観察することができる。上部、下部の $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ 電極とともに、Co 層と(Fe/Mn)Si 層が交互に成長しており、L2₁ 規則構造を有していることが分かる。このことが、高い磁気抵抗比が得られた大きな原因の一つである。また、 $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}/\text{Ag}$ 界面の様子を見ると、非常に平坦かつシャープな界面であることが分かる。さらに、Ag 層は Co 層と終端していることが分かる。このような高品位な界面構造を得られたことも、高い MR 比が得られた要因と考えられる。

さらに、ホイスラー合金の電極膜厚も磁気抵抗比に大きな影響を及ぼすことが考えられるため、上部ホイスラー合金電極の膜厚依存性を調査した。熱処理温度依存性の実験において、最も良好な磁気抵抗特性が得られた $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ を電極に用い、その膜厚を 2 ~ 10 nm で変化させた。図 2 に、本研究で最も大きな磁気抵抗比が得られた、上部電極膜厚が 10 nm の素子の磁気抵抗曲線を示す。得られた室温における磁気抵抗比は 74% であり、最終目標としていた 70% を上回る非常に大きなものであった。また、この値は 3 層構造の CPP-GMR 素子の中で、2011 年現在、世界で最も大きな磁気抵抗比である。さらに、上部電極の膜厚が 3 nm の場合にも、50 % を超える大きな磁気抵抗比を観測することに成功した。大容量 HDD 用の磁気ヘッド素子では、素子の薄膜化が必要不可欠であり、今回 3 nm の素子においても大きな磁気抵抗比が得られたことは、応用に向けて非常に重要な成果である。

3. むすび

本研究では、数あるハーフメタルホイスラー合金の中でも、特に性能の優れた組成である $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ を見出すことができた。このことが、室温で 74% という巨大な MR 比を得た第一の要因である。得られた MR 比、および、素子抵抗値は、5 Tbit/inch² 容量のハードディスクヘッドの性能ターゲットに入っている。MR 比は CPP-GMR 素子の中では断トツ最高であることから、本研究の目標は十分に達成したといえる。また、ホイスラー合金電極が 3 nm という、非常に薄い状態でも大きな MR 比が得られたことで、大容量の HDD ヘッドにも応用可能であることを示した。また、HDD ヘッド応用以外にも、磁性発振素子、スピル波伝搬素子などの新しいスピントロニクスデバイスへの応用可能性が見えてきた。ホイスラー合金は、磁気緩和（磁化の運動に対する摩擦）が小さいことで知られており、低電流でスピル注入磁化反転や歳差運動を誘起することが可能である。このことから、本研究で開発した、ホイスラー合金材料を用いた CPP-GMR 素子は、今後のスピントロニクス分野の中で重要な役割を果たす可能性が高く、本研究のもたらす波及効果は極めて大きなものと考えられる。

【参加国際標準会議リスト】

- [1] ICM2009、Karlsruhe、2009 年 7 月 27 日
- [2] 11th Joint MMM-Intermag Conference、Washington、2010 年 1 月 20 日
- [3] ISAMMA2010、Sendai、2010 年 6 月 13 日

【誌上発表リスト】

- [1] T. Kubota, K. Kodama, T. Nakamura, Y. Sakuraba, M. Oogane, K. Takanashi, and Y. Ando, "Ferrimagnetism in epitaxially grown Mn₂VAL Heusler alloy investigated by means of soft x-ray magnetic circular dichroism", Appl. Phys. Lett., Vol.95 pp222503-1-3 (2009 年 12 月 2 日)

[2] T. Kubota, J. Hamrle, Y. Sakuraba, O. Gaier, M. Oogane, A. Sakuma, B. Hillebrands, K. Takanashi, and Y. Ando, "Structure, exchange stiffness, and magnetic anisotropy of $\text{Co}_2\text{MnAl}_{x}\text{Si}_{1-x}$ Heusler compounds", J. Appl. Phys., Vol.106 pp113907-1-4 (2009 年 12 月 2 日)

[3] M. Oogane, T. Kubota, Y. Kota, S. Mizukami, H. Naganuma, A. Sakuma, and Y. Ando, "Gilbert magnetic damping constant of epitaxially grown Co-based Heusler alloy thin films", Appl. Phys. Lett. 96, 252501-1-3 (2010 年 6 月 21 日)

【申請特許リスト】

- [1] 大兼幹彦、佐藤丈、窪田崇秀、永沼博、安藤康夫、ホイスラー合金材料、磁気抵抗素子および磁気デバイス、日本、2009 年 3 月 26 日
- [2] 大兼幹彦、佐藤丈、永沼博、安藤康夫、ホイスラー合金電極磁気抵抗素子、日本、2011 年 3 月 9 日

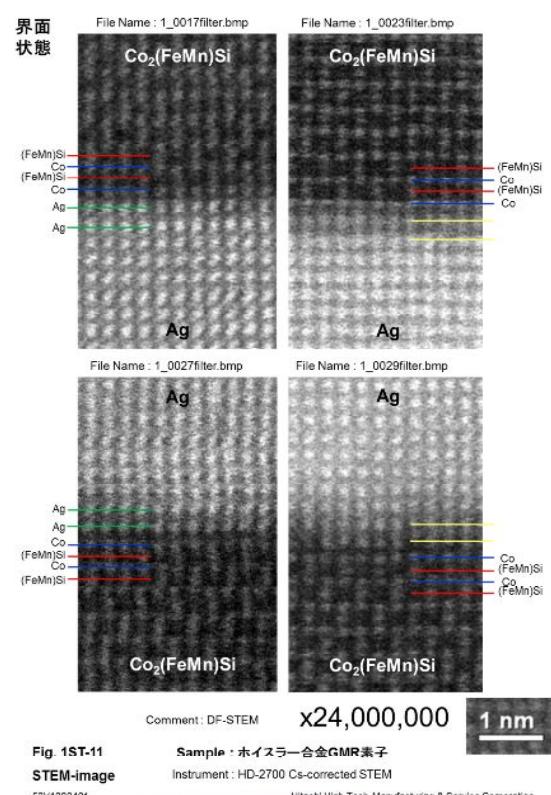


図 1 開発した $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}/\text{Ag}/\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ CPP-GMR 素子の Ag 界面の STEM 像。

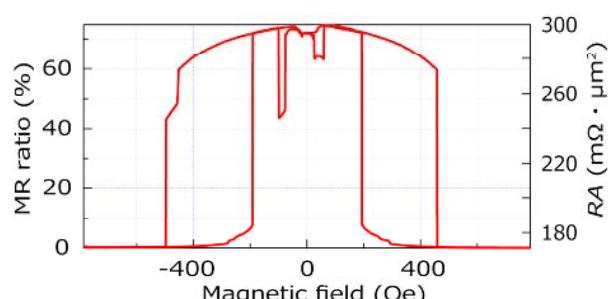


図 2 最大の MR 比を示した $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}/\text{Ag}/\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ CPP-GMR 素子の磁気抵抗曲線。