

氏名(本籍)	はせ なお き (京都府)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第6038号
学位授与年月日	平成24年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	Development of current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistive devices using highly spin polarized Heusler alloys (高スピン分極ホイスラー合金を用いた CPP-GMR 素子の開発)

主査	筑波大学教授	Ph.D.	宝野和博
副査	筑波大学教授	博士(工学)	三谷誠司
副査	筑波大学教授	工学博士	喜多英治
副査	筑波大学教授	理学博士	黒田眞司

論文の内容の要旨

今日の情報化社会において、日々我々は膨大なデジタルデータを創成し処理している。この膨大なデータの蓄積で中心的な役割を担うのがハードディスクドライブ（以下、HDD）である。HDDは近年急速に記憶密度を増大させており、これに伴い記憶した磁気データの再生ヘッドに関する技術革新が急務となっている。現在、再生ヘッドにはTMR（トンネル磁気抵抗）素子が用いられているが、素子に絶縁体を含むために素子の高抵抗化が避けられず、将来的に記憶密度1～2Tbit/in₂を超えるHDDでは使用不可能とされている。そこで、TMR素子に代わるものとしてCPP-GMR（垂直通電型巨大磁気抵抗）素子が注目されている。この理由はCPP-GMR素子が全て金属膜から構成されるために容易に低抵抗素子が実現できるためである。さらに近年、高スピン分極率が期待されるホイスラー合金を用いたGMR素子で大きな磁気抵抗変化率（以下、MR比）が報告されている。しかしながら、現時点では再生ヘッドとして使えるだけの十分なMR出力を達成していない。

本研究は、本グループで開発した70%を超える大きなスピン分極率を持つホイスラー合金をCPP-GMR素子の強磁性電極として用いることで大きなMR効果を狙うと共に、ホイスラー合金が持つ幾つかの短所（高温アニールに対する素子の低安定性、MR効果の大きな温度依存性、低温アニールでの低いMR出力）改善のための指針を得ることを目的として行われた。また、用いたホイスラー合金はCo₂Mn(Ga_{0.5}Sn_{0.5})（以下、CMGS）とCo₂Mn(Ga_{0.25}Ge_{0.75})（以下、CMGG）の2つで、いずれも4.2Kにおいて70%を越すスピン分極率が報告されている。以下に、研究結果を述べる。

CMGSを用いたCPP-GMRでは、400℃のアニールを行ったCMGS層(B2構造)のときにMR出力が最大(MR比が8.8%、 ΔR_A が4.0 m $\Omega\mu\text{m}^2$)となり、より大きなMRが期待できるL2₁構造を形成する450℃以上のアニールではMRが低下した。これは微細構造観察の結果から高温アニールでGMR多層膜の層構造が崩壊する事が原因だと分かった。そこで、より高温アニールに耐えうる素子を作るためにAgの代わりにNiAlをCMGS層の下地層やスペーサとして用いた。その結果、NiAl下地層を用いたGMR素子はより高い熱処温度理耐性を示し、MRもより大きなものが得られた。NiAlスペーサを用いた場合では、素子の熱処温度理耐性は向上

したがMR自体はAgスペーサに比べて低下した。これは、NiAlのスピンド拡散長がAgに比べて遥かに短いことによる結果と考えられる。これらの結果より、耐熱材料は多層膜構造の安定化を促進することが示された。一方で、耐熱材料選定の際にはスピンド拡散長等の物理的特性を考慮する必要も示された。

次に、ホイスラー合金を用いたGMR素子で最大の課題の1つであるMR効果の大きな温度依存性の改善に取り組んだ。この課題に取り組む際に注目したのが、GMR効果の起源であるホイスラー合金(CMGS)/非磁性スペーサ(本研究では、Ag)の界面で発現するスピンド依存散乱によるMR効果の温度依存性が大きいことである。そこでMRの温度依存性が小さいことで知られる強磁性体CoFeをCMGS/Agの界面に挿入し、MR効果や温度依存性を調べた。結果、1nm以下の極薄CoFe層挿入で、CoFeを挿入しなかった場合の2倍程度のMR効果を室温にて得ることに成功した。しかしながら、MRの温度依存性自体は改善されなかった。これらの結果からMR効果の増大の理由の1つとして、CoFeとCMGSホイスラー合金層が熱処理過程で混ざり、CoFe系のホイスラー合金がAgスペーサ層との界面に形成され、これが界面での大きなスピンド依存散乱をもたらした可能性が考えられる。しかしながら、現時点で明確な理由は分かっていない。

次に、CMGGを用いたCPP-GMRの研究結果を述べる。この研究ではより応用を視野に入れた素子構造の作成とアニール温度の調節を考慮した。具体的には、強磁性層/スペーサ/強磁性層の3層の総膜厚が20nm以下になるようにCMGG層の膜厚を5nmとした。またアニール温度は300℃程度が製造プロセスでの限界だと言われており、実際に企業の文献でも250℃を用いているので、アニール温度を250℃から500℃までの広範囲で変化させ、幅広い温度域でのMR効果を調べた。さらに、熱処理温度の違いによるスピンド依存伝導への影響を解析することで、今後より大きなMR効果を得るための指針やより優れたホイスラー合金材料開発の指針を得ることを目的とした。まず、得られた最大のMR効果は400℃アニールを行った試料で、MR比が40.2%で ΔRA が $6.1 \text{ m}\Omega\mu\text{m}^2$ と大きなMR効果を得ることが出来た。さらに300℃以下のアニールで得られたMR効果は、これまでに報告されている優れたホイスラー合金を用いた場合よりも大きく、低温熱処理でも良好なMR出力が得られることを確認した。また、上記の250℃と400℃熱処理の試料に関してスピンド依存伝導の解析を行った結果、熱処理温度の低下によりCMGGのスピンド分極率を意味するバルクスピンド非対称性定数 β がより大きく低下していた。一方でCMGGの電気抵抗率は熱処理温度の低下に伴い大きく増大していたため、強磁性層自体から発現するMR効果の熱処理温度依存性は比較的抑制されていた。この結果は、ホイスラー合金開発の際に高抵抗材料と高スピンド分極率の両立を目指すことの重要性を示唆するものである。

審査の結果の要旨

本研究ではスピンド分極率の高いとされている $\text{Co}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0.5}\text{Sn}_{0.5})$ と $\text{Co}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0.25}\text{Ge}_{0.75})$ 強磁性ホイスラー合金を強磁性層、Agをスペーサ層とした面直電流巨大磁気(CPP-GMR)抵抗素子を作製し、 $\text{Co}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0.25}\text{Ge}_{0.75})$ を用いた素子で室温MR比が40.2%、 ΔRA が $6.1 \text{ m}\Omega\mu\text{m}^2$ と大きな磁気抵抗比が得ることを報告した。またそれらの素子の伝導特性を詳細に解析することにより、界面とバルクでの電子の散乱のスピンド異方性を評価し、このような高い磁気抵抗比の原因を考察した。またこれらの合金ではL21構造を得るために400℃程度のアニールが必要であることから、耐熱性のあるNiAl下地の効果やホイスラー合金層とスペーサ層の間にFeCoを挿入した効果も研究した。さらに再生ヘッド応用という観点からアニール温度を低減させて高いMR出力を出すという実用的な観点からの支店も加えた。これらの研究は、強磁性ホイスラー合金を用いたCPP-GMRで高いMR出力が得られることを示したという工学的な価値に加え、その起源を詳細な実験に基づいて明らかにした点で学術的価値が高い論文と判断される。

平成24年2月17日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者

に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。