

氏名	ふくざわ ひであき
授与学位	福澤 英明 博士(工学)
学位授与年月日	平成16年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)電子工学専攻
学位論文題目	ナノオキサイドレイヤーを用いた 高感度スペキュラースピンバルブ薄膜に関する研究
指導教官	東北大学教授 高橋 研
論文審査委員	主査 東北大学教授 高橋 研 東北大学教授 佐橋 政司 東北大学教授 大野 英男 東北大学助教授 角田 匡清

論文内容要旨

近年、HDD は情報家電における動画記録や 1.8 インチ以下の小型で大容量のモバイル用へと用途が拡がりつつあり、高密度磁気記録を実現する磁気再生ヘッドが望まれている。磁気再生ヘッドで要となるのが、微弱な媒体磁界を検知する高感度スピバルブ薄膜である。現状のスピバルブ薄膜においては、磁気抵抗変化率が小さいため感度が足りず、より高感度なスピバルブ薄膜が求められている。著者は、ナノオキサイドレイヤー (NOL: Nano-Oxide-Layer) と呼ぶ極薄酸化層をスピバルブ薄膜に挿入することで、電子の平均自由行程を伸ばすことに成功し磁気抵抗変化率の増大を実現した。さらに、高感度化のために必須となる CoFe 層の軟磁性化の重要技術である極薄 CoFe 層の磁歪挙動を詳細に調べ、ゼロ磁歪の実現に成功した。本論文は、これらの研究成果をまとめたもので、全文 7 章よりなる。

第 1 章は序論であり、スピバルブ薄膜の高感度化の指針について述べている。スピバルブ薄膜において高磁気抵抗変化率を得るための指針として、総膜厚が薄いスピバルブ薄膜においてスペキュラー効果を取り入れて、電子の平均自由行程を伸ばすことが非常に有効な手法であることを述べている。また、高磁気抵抗変化率が期待される CoFe 層を磁界検知層 (フリー層) として用いるための課題について示し、極薄 CoFe 層における磁歪挙動を明確にし、低磁歪を実現することが重要であることを述べている。

第 2 章は実験方法である。数ナノメートルと極薄の金属積層膜から形成されるスピバルブ薄膜を形成するために必要な薄膜作成方法、ならびに磁気特性評価方法、膜構造解析方法について述べている。また、測定が困難な極薄膜の磁歪を調べるための磁歪測定方法についても述べている。

第 3 章では、フリー層が極薄の場合における、実用的なスピバルブ薄膜について述べている。極薄フリー層に Cu 層を挿入することで、平均自由行程の増大による磁気抵抗変化率の増大を実現し、さら

に Cu 層挿入によるフリー層に印加されるセンス電流磁界の低減効果を両立することで、良好なバイアスポイントを実現している。このようなスピニフィルタースピニバルブ薄膜と呼ぶ膜構造を提案している。フリー層が、従来の NiFe/Co フリー層と CoFe フリー層の場合において、平均自由行程の増大効果（スピニフィルター効果）を比較検討し、その効果が CoFe 層の場合には従来の NiFe/Co 層の場合よりも 2 倍程度大きいことを見出した。その原因として、Cu 層との界面における電子の透過率が CoFe 層の場合には 2 倍以上良好であることを、半古典的な Camley・Barnaś のモデルを用いた解析によって明らかにした。つまり、Cu 層の界面のミキシング層の形成による電子の透過率の減少が磁気抵抗変化率に大きな影響を与えることを示した。

第 4 章では、CoFe 層を自然酸化したナノオキシドレイヤーをスピニバルブ薄膜中に挿入することで、電子のスペキュラー効果による平均自由行程の増大を用いた、磁気抵抗変化率の上昇を実現し、このスピニバルブ薄膜をナノオキシドレイヤー (NOL: Nano-Oxide-Layer) スペキュラースピニバルブ薄膜と命名した。NOL を用いることで、良好な磁化固着能力をもつ金属反強磁性膜を用いながら、極薄酸化物によるスペキュラー効果を得ることに成功し、磁気抵抗変化率が 13 % から 17 % に上昇することを実験実証した。

第 5 章では、NOL の高性能化を行った。低いエネルギーをもつイオンビームによるアシスト効果を用いた、イオンアシスト酸化法 (IAO: Ion-Assisted Oxidation) と呼ぶ新しい酸化プロセスを開発した。これによって、熱的に安定な酸化物の形成を実現し、より急峻な界面をもつ酸化物形成によるスペキュラー効果の上昇によって、自然酸化の場合のコンダクタンス変化量 $\Delta G_s = 6.5 \text{ mS}$ から、 $\Delta G_s = 8.1 \text{ mS}$ まで高めることに成功した。さらに、FeCo 系磁性結晶 NOL を形成することによって、 $\Delta G_s = 7.6 \text{ mS}$ と高いスペキュラー効果を維持したまま、 $H_{\text{sat}} = 500 \text{ Oe}$ という NOL を介した磁気結合を改善することに成功した。これは従来の磁性をほとんど持たない NOL では実現不可能な、磁性 NOL によって初めて実現し得た特性である。さらに、FeCo を高酸素暴露量下で IAO 法によって形成した NOL においては、NOL を介した上下磁性層の磁気結合が 60~90 度ねじれ、90 度磁気結合のときには一軸異方性へと状態変化するという物理現象を新たに見出した。

その様子の模式図を図 1 に示す。これは磁性をもつナノオキシドレイヤーを介した磁気結合が、強磁性磁気結合と反強磁性結合の競合によって生じるという Slonczewski の磁性スペーサモデルで説明できることを示した。これは、ナノ磁性酸化物の基礎物理現象を理解するための重要な成果である。

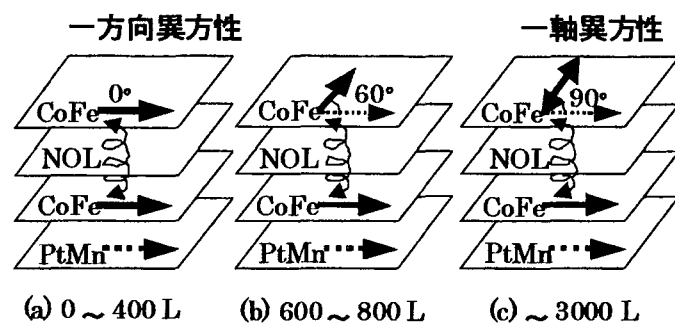


図 1 IAO法により形成された FeCo-NOL を介した上下磁性層の磁気結合の酸素暴露量依存性

第6章では、極薄 CoFe 層の磁歪挙動メカニズムについて明らかにした。Ru/Cu 二層下地上の 2 nm の CoFe 層において、磁歪の下地膜厚依存性が Ru の場合と Cu の場合では挙動が全く逆であることを見出した。その結果を図2に示す。この結果は結晶配向性の変化では全く説明ができず、格子歪みによる磁歪変動が原因であることを明らかにした。格子歪み量の最適化によって CoFe 層のゼロ磁歪の実現に成功した。さらに磁歪の下地 Cu 膜厚 t 依存性が、 $\lambda = at^{-\alpha} + b$ で表されることを見出し、磁歪の格子歪み感性を表す指標として α パラメータ

を導入した。その結果を図3に示す。図からわかるように、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ では $\alpha = -0.72$ であったのが、 $\text{Co}_{92}\text{Fe}_8$ では $\alpha = 0.90$ 、 $\text{Co}_{94}\text{Fe}_6$ では $\alpha = 0.99$ と、Co リッチになるほど α が負に増大することを見出した。これは従来報告されていた Co リッチ組成領域ほど格子歪み感性が増すことを意味し、それに対し $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ では $\alpha = 0.02$ と非常に小さい値であった。これはこれまで報告されてきたゼロ磁歪ラインが、Co リッチ組成の領域では文献によって大きく異なっていた理由の一つであることを示唆する、重要な成果である。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は、高感度スピバルブ薄膜を実現するために、イオンアシスト酸化法によって形成したナノオキシドレイヤーを磁性層に挿入した電子伝導特性と磁気結合、および CoFe 軟磁性の磁歪挙動について明らかにしたもので、磁性材料工学の発展に寄与するところ少なくない。

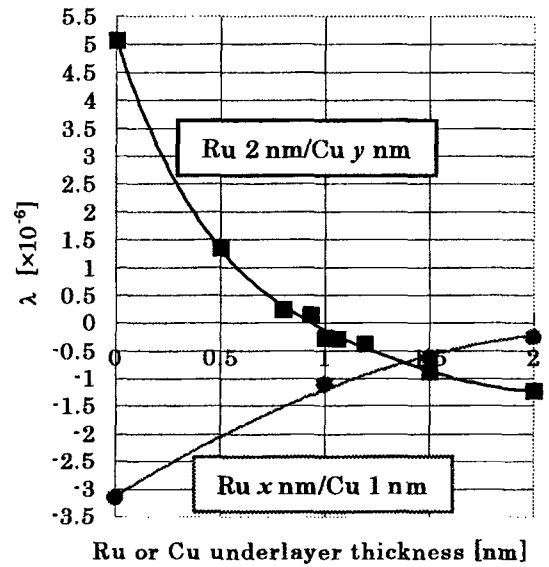


図2 Ru/Cu下地上の $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ フリー層磁歪の下地膜厚依存性。

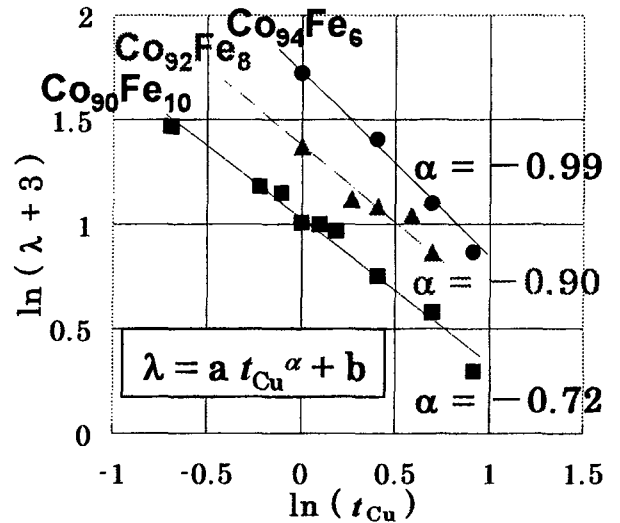


図3 Ru 2nm/Cu下地上のCoFe組成を変えたCoFeフリー層の、磁歪の下地膜厚依存性。

論文審査結果の要旨

近年、ハードディスク装置(HDD)は情報家電における動画記録やモバイル情報機器用ストレージ装置等へとその用途を拡げつつあり、HDDには大容量小型化がますます強く要求されている。超高密度に書き込まれた微小ビットからの信号再生を実現する上で要となるのが、磁気再生ヘッド用スピバルブ薄膜であり、現状に比して、より低磁界で大きな磁気抵抗変化率(MR比)を示す高感度なスピバルブ薄膜の開発が強く求められている。著者は、高導電率材料よりなるスピフィルター層ならびにナノオキサイドレイヤー(NOL)と命名した極薄酸化層をスピバルブ薄膜中に挿入することで、伝導電子の平均自由行程を伸ばしてスピ依存散乱を大きくすることに成功し、MR比の増大を実現した。さらに、低磁界動作のために必須となる、磁界検知層(フリー層)としての $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 層の軟磁性化を薄膜磁歪の制御により実現した。本論文は、これらの研究成果をまとめたもので、全文7章よりなる。

第1章は序論である。

第2章は実験方法である。

第3章では、高導電率のCu層を、極薄のフリー層の外側に挿入することで平均自由行程が増大するスピフィルター効果について検討を行い、フリー層が $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 層の場合には従来のNiFe/Co層の場合よりも平均自由行程が2倍程度になることを明らかにした。これは古典的な二電流モデルによる解析の結果、Cu層との界面における電子の透過率が $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 層の場合にはNiFe/Co層の場合に比して2倍以上良好となることに起因し、界面における異種原子のミキシング層がスピフィルター効果に重要な影響を与えることを明らかにした。

第4章では、従来知られていた酸化層によるスペキュラー(鏡面)反射による伝導電子の平均自由行程の増大効果を実用化すべく、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 層を自然酸化した約2 nm厚のNOLをスピバルブ薄膜中の参照強磁性層(ピン層)内に挿入した。その結果、MR比が13%から17%に上昇することを世界に先駆けて実証した。これは実用上重要な成果である。

第5章では、NOLの高性能化を目指し、低エネルギーイオンビームによるアシスト効果を用いた、イオンアシスト酸化法と呼ぶ新しい酸化プロセスを開発した。これによって、熱的に安定かつより急峻な組成界面をもつ酸化層の形成が実現され、スペキュラー効果の増大によって、コンダクタンス変化量を自然酸化したNOLの場合の6.5 mSに比して、8.1 mSまで高め、MR比を増大させることに成功した。さらに、 $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 磁性結晶NOLを形成することによって、高いスペキュラー効果を維持したまま、NOLを介した層間磁気結合を改善することに成功した。これはNOLの挿入に依るスペキュラー効果を実用化する上で重要な成果である。さらに、高酸素暴露量下で形成した $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 磁性結晶NOLにおいては、NOLを介した上下磁性層の磁化ベクトルが直交結合するという物理現象を新たに見出すと共に、NOLを介した層間磁気結合に、強磁性結合と反強磁性結合の競合を仮定したモデルで本現象が説明可能なことを示した。これは、NOLの基礎物理現象を理解する上での重要な成果である。

第6章では、極薄Co-Fe合金層の磁歪について詳細な検討を行い、従来のNiFe層とは異なり、極薄Co-Fe合金層では格子歪みによる磁歪変動が顕著なことを明らかにした。2 nm厚の $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 層においては、格子歪み状態によって、磁歪が $+5 \times 10^{-6}$ から -3×10^{-6} まで大きく変動することを見出し、格子歪みを制御することによってゼロ磁歪の実現に成功した。さらに極薄Co-Fe合金層の磁歪の格子歪み敏感性が、Co含有量の増大に伴って増大することを見出した。このことは磁気物性研究上の重要な知見である。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は、高感度磁気再生ヘッドを実現するために、高導電率層、およびイオンアシスト酸化法によって形成したNOLを挿入したスピバルブ薄膜の電子のスピ依存伝導特性と磁気結合、ならびに極薄CoFeフリー層の磁歪挙動について明らかにしたもので、磁性材料工学ならびに電子工学の発展に寄与するところ少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。