

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔研究進捗評価用〕

平成24年度採択分
平成27年3月2日現在

規則合金系ヘテロ接合における多彩な物理現象とスピndeバイス創製

Variety of physical properties of hetero-junction
with ordered alloys and the spin devices

課題番号：24226001

安藤 康夫 (ANDO YASUO)

東北大学・大学院工学研究科・教授



研究の概要

規則合金の高品位化を行うとともに、積層界面において合金の本来有する理想的な物性発現のための新材料の探索、薄膜作製条件、積層構造の確立を行う。規則合金薄膜の積層化により 10^7 erg/cc 以上の高磁気異方性、90%以上の高スピン分極率、0.01以下の低磁気緩和定数の全てを同時に有するヘテロ構造を実現し、デバイスへの応用を探索する。

研究分野：応用物性

キーワード：スピントロニクス、規則合金、スピndeバイス

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクス研究領域において近年の成膜技術、微細加工技術などの急速な発展によりデバイス開発が加速化してきている。最近の強磁性トンネル接合はフルエピタキシャル強磁性/絶縁体/強磁性接合の作製が可能となってきている。これにより、これまで複雑なデバイス構造においてあまり使用されてこなかった規則合金系材料を比較的容易に積層でき、多彩な物性を示す薄膜および多機能のデバイス作製が可能となってきた。

2. 研究の目的

規則合金の高品位化を行うとともに、積層界面において合金の本来有する理想的な物性発現のための新材料の探索、薄膜作製条件、積層構造の確立を行う。規則合金を含むヘテロ接合においては多くの組み合わせ、新規機能の発現の可能性がある。本研究は規則合金薄膜の積層化による 10^7 erg/cc 以上の高磁気異方性、90%以上の高スピン分極率、0.01以下の低磁気緩和定数の全てを同時に有するヘテロ構造の実現を目標とする。

3. 研究の方法

本研究では、 $L2_1$ および $L1_0$ 規則合金を中心として、高磁気異方性、低磁気緩和、高スピン分極率を実現する強磁性体材料の探索および薄膜作製条件、積層構造の最適化を図る。単膜、界面層の制御、デバイスの作製の流れで研究を進める。研究分担者がそれぞれ $L2_1$ 規則合金系の Heusler 合金材料、 $L1_0$ 規則合金系の FeFd を検討し、薄膜のダイナミクス測定は連携研究員が担当した。また、材料設計などを海外研究協力者がサポートした。

4. これまでの成果

① $L2_1$ -ホイスラー規則合金薄膜、CPP-GMR および MTJ 素子の作製

高いハーフメタル性を示すことが知られている、 $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ ホイスラー合金エピタキシャル薄膜を作製した。熱処理温度を系統的に変化させた結果、最適条件下において 0.003 という非常に小さい磁気緩和定数が得られた。この高いハーフメタル性を示す $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ ホイスラー合金を電極とした CPP-GMR 素子を作製した。実験結果を解析し、電極抵抗等の寄与を除いた本質的な磁気抵抗比は 90% であり、バルクおよび $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}/\text{Ag}$ 界面におけるスピンの非対称性はいずれも約 90% と非常に高かった。

② MnGa 系合金を中心とした薄膜および MTJ 素子の作製

10^7 Merg/cc を超える高い磁気異方性エネルギーと 0.01 以下の低磁気緩和を有する DO_{22} -および $L1_0$ -MnGa 規則合金薄膜を電極に用いた MTJ 素子の作製を行った。極薄の Fe、Co、CoFe を MnGa/MgO 界面に挿入することで大きな磁気抵抗効果 (CoFe 合金を界面に挿入した垂直磁化型 MTJ 素子において、室温で 60% の磁気抵抗比) を観測することに成功した。

③ DO_{22} -MnGa/ $L2_1$ -Heusler 積層構造の作製

上記の結果をもとに、高磁気異方性と高スピン分極率が期待される DO_{22} -MnGa/ $L2_1$ -Heusler 積層構造を作製した。Heusler 合金として、 Co_2MnAl 、 Co_2MnSi 、 Co_2FeAl 、 Co_2FeSi の 4 種類を検討し、1 nm の Co_2MnSi を MnGa 上に積層した場合に、良好な垂直磁気特性を得ることに成功した。

④ $L1_0$ -FePd 規則合金薄膜、MTJ 素子の作製

MgO および SrTiO₃ 単結晶基板上に FePd 薄膜をエピタキシャル成長させた。基板および熱処理温度の最適化により、 $L1_0$ 規則構造を有する薄膜が得られた。最適化した試料において、10 Merg/cc を超える異方性エネルギーと、0.007 という目標を上回る低磁気緩和定数が得られた。FePd を電極とした MTJ 素子を作製した結果、室温で約 80% の磁気抵抗比が得られた。また、電子線リソグラフィにより、約 120 nm の微小な MTJ 素子を作製し、ミリ波を電気的に検出することに成功した。

⑤ $L1_0$ -MnAl 規則合金薄膜、MTJ 素子の作製

MgO 基板上に超高真空マグネトロンスパッタ法にて MnAl 薄膜を作製した。用いるターゲット材料および作製条件の最適化を行い、(001)配向かつ $L1_0$ 規則構造を有する MnAl 薄膜が得られた。磁気異方性エネルギーは約 10 Merg/cc であり、磁気緩和定数は 0.006 と非常に小さかった。また、最適化した MnAl 薄膜を用い、MnAl と MgO 絶縁層の界面に極薄の CoFe または CoFeB を界面に挿入した MTJ 素子を作製し、磁気抵抗効果を観測することに成功した。

⑥ Bi フェライト障壁と合金ヘテロ接合作製と評価

規則合金系薄膜の電極材料の高性能化と並行してこれらとマッチする単結晶障壁材料の研究を推進した。障壁材料としてはマルチフェロイック Bi フェライト (BiFeO₃) 材料を用いた。BiFeO₃ をトンネル障壁としたマルチフェロイック接合 (MFTJ) では、磁場、電場、光、熱など多彩な物理現象を創出する事が期待される。これまでに、エピタキシャル成長を最適化させた MFTJ 素子において、世界最高値の電気抵抗変化率 (10⁷%) を実現することに成功し世の中の注目を集めている。

⑦ 垂直 CoFeB 合金ヘテロ接合作製と評価

典型的な規則合金系材料の開発と並行して、CoFeB 系の垂直材料の評価および高性能化に関する検討を行った。CoFeB 膜における磁気緩和定数のキャップ層および膜厚依存性をポンププローブ法により系統的に調べた。CoFeB の磁気緩和はキャップ層材料に敏感であり、また薄膜中の磁氣的不均一性に大きく影響されることが分かった。従って、低磁気緩和を実現するためには、多層膜構造および膜の不均一性抑制が不可欠である。また、CoFeB 層に N = Al, Ti, Cr, Nb, Ru を 5~20% 添加した薄膜を作製し、界面磁気異方性および磁気緩和定数を系統的に評価した。その結果、Al, Ru を添加した試料では界面磁気異方性の減少が小さいことが分かった。この結果をもとに、CoFeBAl を電極とした垂直磁化 MTJ 素子を作製し、高ダイナミックレンジの磁場センサ素子に应用可能であることを見出した。

5. 今後の計画

①~⑤ $L2_1$ -ホイスラー規則合金薄膜、MnGa 系合金薄膜、D₀2₂-MnGa/ $L2_1$ -Heusler 積層構造薄膜、 $L1_0$ -FePd 規則合金薄膜、 $L1_0$ -MnAl 規則合金薄膜、などから最適な組み合わせを検討し、高 TMR 比の実現を目指す。また、高磁気異方性、低磁気緩和との両立した素子の実現を目指す。また、新しいデバイスへの応用に向けて、試作を行う。⑥ Bi フェライトを障壁層とした MTJ 素子の高性能化を図り、物理的なメカニズムを解明する。⑦ CoFeB 系材料のダイナミクス評価、垂直 CoFeB と面内強磁性層の組み合わせによる、新しいタイプの磁場センサ素子の創成を目指す。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- 1) Hiroshi Naganuma, G. Kim, Yuki Kawada, Nobuhito Inami, Kenzo Hatakeyama, Satoshi Iihama, Khan Mohammed Nazrul Islam, Mikihiro Oogane, Shigemi Mizukami, and Yasuo Ando, "Electrical Detection of Millimeter-Waves by Magnetic Tunnel Junctions Using Perpendicular Magnetized $L1_0$ -FePd Free Layer", Nano Letters, 15, 623-628, 2015
- 2) In-Tae Bae and Hiroshi Naganuma, "Evidence of rhombohedral structure within BiFeO₃ thin film grown on SrTiO₃", Applied Physics Express, 8, 031501_1-4, 2015
- 3) Q. L. Ma, S. Mizukami, T. Kubota, X. M. Zhang, Y. Ando, T. Miyazaki, "Abrupt Transition from Ferromagnetic to Antiferromagnetic of Interfacial Exchange in Perpendicularly Magnetized $L1_0$ -MnGa/FeCo Tuned by Fermi Level Position", Phys. Rev. Lett, 112, 157202_1-5, 2014
- 4) S. Iihama, A. Sakuma, H. Naganuma, M. Oogane, T. Miyazaki, S. Mizukami, and Y. Ando, "Low precessional damping observed for $L1_0$ -ordered FePd epitaxial thin films with large perpendicular magnetic anisotropy", Appl. Phys. Lett, 105, 142403_1-4, 2014
- 5) Q. L. Ma, T. Kubota, S. Mizukami, X. M. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, T. Miyazaki, "Interface tailoring effect on magnetic properties and their utilization in MnGa-based perpendicular magnetic tunnel junctions", Physical Review B, 87, 184426_1-8, 2013

ホームページ

<http://www.apph.tohoku.ac.jp/spin/>