

# 「先端スピントロニクス材料と伝導現象 (ASPIMATT)」

## 平成22年度実施報告書

研究代表者 安藤 康夫

国立大学法人東北大学 教授

### 1. 研究実施の概要

ASPIMATT は共通の目的達成に向けて、二つのプロジェクト領域 (Project Area) および四つの課題 (Task) に分類されている。領域と課題は各々のプロジェクトに対して日独が相補的に組織化されている。以降、ドイツ側のプロジェクトに関しては研究項目のみ記載する。

H22 年度は、キックオフミーティングを 4 月に仙台にて開催する計画であったが、自然災害のためドイツ側の来日が不可能となり、4 月は日本側のみでキックオフミーティングを行ない、10 月に改めて日本・ドイツメンバー全員でのキックオフミーティングを開催した。また、4、10 月ともに学生が企画・運営を行なうワークショップを開催した。

研究については、いずれのグループも順調に進んでおり、論文、学会発表を精力的に行なった。いくつかのグループについては、計画を前倒して研究を実施しており、今後の見通しは良好である。ドイツ側との情報交換は、ビデオ会議、メール、ホームページ等を通じて頻繁に行なっており、議論した内容をもとに共同研究を進めている。今年度実施した共同研究の代表的な成果としては、ハーフメタル特性を有するホイスラー合金薄膜を日本で作製し、超高速時間分解 Kerr 効果測定技術の有するドイツで、パルス光で励起した磁化の超高速ダイナミクスを評価したものが挙げられる。この研究は、まさに、日本・ドイツそれぞれの特徴を生かしたものである。

来年度は、合同ミーティングを 8 月にドイツにて開催し、さらに、学生を含む若手研究者の育成を目的として、ASPIMATT メンバーを含む、世界最先端の研究者を講師としたサマースクールも実施する。また、東北大学から博士課程の学生をドイツに派遣し、共同で実験を実施することも計画している。

## 2. 研究実施体制

グループ名	研究代表者又は 主たる共同研究者氏名	所属機関・部署・役職名	研究題目
1.1-A	永沼博 手束展規	東北大学大学院工学研究科・助教 東北大学大学院工学研究科・准教授	新規高スピン分極材料の探索
1.4-B	白井正文	東北大学電気通信研究所・教授	ハーフメタルホイスラー合金を用いたヘテロ構造におけるスピン依存伝導現象に関する理論
2.1-A	水上成美 宮崎照宣	東北大学原子分子材料科学高等研究機構・助教 東北大学原子分子材料科学高等研究機構・教授	高垂直磁気異方性を有するハーフメタルホイスラー合金薄膜の作製と評価
2.2-A	桜庭裕弥 高梨弘毅	東北大学金属材料研究所・助教 東北大学金属材料研究所・教授	L1 <sub>0</sub> 規則合金/ハーフメタルホイスラー合金積層薄膜の作製と評価
3.1-A	大兼幹彦 水上成美	東北大学大学院工学研究科・准教授 東北大学原子分子材料科学高等研究機構・助教	ハーフメタルホイスラー合金における磁気緩和
3.3-A	佐久間昭正 土浦宏紀	東北大学大学院工学研究科・教授 東北大学大学院工学研究科・准教授	ハーフメタルホイスラー合金薄膜のギルバート磁気緩和に関する理論
4.1-B	安藤康夫 永沼博 大兼幹彦	東北大学大学院工学研究科・教授 東北大学大学院工学研究科・助教 東北大学大学院工学研究科・准教授	ホイスラー合金薄膜上の新規GMR/MTJナノ接合デバイス
4.3-B	松倉文礼 好田誠	東北大学電気通信研究所・准教授 東北大学大学院工学研究科・准教授	半導体における面内スピン伝導
4.6-B	高梨弘毅 桜庭裕弥	東北大学金属材料研究所・教授 東北大学金属材料研究所・助教	ホイスラー合金系における面内スピン依存伝導特性の研究

## 3. 研究実施内容

## 課題 1 スピンフィルター効果と垂直方向伝導のための新材料

## 1.1-A 新規高スピン分極材料の探索 (永沼, 手束)

高いスピン分極電流の制御を新規強磁性酸化物および新規ホイスラー合金を用いて行うことが目的である。平成 22 年度は、新規強磁性酸化物として室温でハーフメタルである $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、およびマルチフェロイック材料である $\text{Bi}(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ を選択した。スパッタ時のガス圧、製膜温度など種々の条件を最適化した結果、 $\text{MgO}(100)$ 基板上に $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 膜を、 $\text{SrTiO}_3(100)$ 基板上に $\text{Bi}(\text{Fe},\text{Co})\text{O}_3$ をそれぞれエピタキシャル成長させることに成功した[1]。また、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 膜については、トンネル磁気抵抗(MTJ)素子を作製できる程度の表面平坦性を有していた。そこで、次年度以降の研究計画を前倒しにして、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ をもちいたMTJ素子を試作し、磁気抵抗(MR)特性について評価したところ、磁気抵抗(MR)比=-20%@室温(-38%@150 K)を得ることができた。一方、高スピン分極材料のホイスラー合金については、ホイスラー合金のなかでは規則度を高くし易く、かつ磁気転移温度が高い

Co<sub>2</sub>Ti<sub>0.5</sub>Mn<sub>0.5</sub>Al(CTMA) およびCo<sub>2</sub>Ti<sub>0.5</sub>Mn<sub>0.5</sub>Si(CTMS)を選択した。CTMAおよびCTMS はMgO(100)基板/Cr(40 nm)上に比較的低い温度で規則相をエピタキシャル成長させることに成功した。また、表面は非常に平坦であるため、CTMAおよびCTMS を電極としたMTJ素子を作製してMR特性について評価した。まだ試作段階であるが、CTMA電極をもちいたMTJ素子で 66%、CTMS電極をもちいたMTJ素子では 13%の磁気抵抗比が室温で得られた[2]。H23 年度は界面など素子構造の最適化によりさらにMR比を増加させ、高いスピン分極電流を創出する計画である。

#### 1.2-A 次世代スピントロニクス材料の電子構造、磁気および分光特性の理論計算 (ドイツ)

#### 1.3-A 高エネルギー光電子放出法による界面および各層の電子構造解析 (ドイツ)

#### 1.4-B ハーフメタルホイスラー合金を用いたヘテロ構造におけるスピン依存伝導現象に関する理論 (白井)

ハーフメタルホイスラー合金と非磁性金属からなる膜面垂直電流型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子における磁気抵抗比向上の指針を提案するために、密度汎関数理論に基づいた第一原理計算手法を用いてスピン依存伝導現象を理論的に研究した。ホイスラー合金Co<sub>2</sub>MnSi電極の間にスペーサとしてCrまたはAgを挿入したCPP-GMR構造に対して、磁化平行配置における電気伝導を計算した結果、Agスペーサを用いた場合の界面電気抵抗の方が著しく小さくなった。この結果はAgスペーサの方が大きな磁気抵抗比を得るために有利であることを示しており、実験結果とよく対応している[3, 4]。スペーサによる電気伝導特性の違いは、ホイスラー合金Co<sub>2</sub>MnSiと非磁性金属のフェルミ面形状の整合性の違いに起因しており、磁気抵抗比を向上させるためには、フェルミ面の形状がホイスラー合金と整合性のよい非磁性金属を選択することが肝要であると結論づけられる。(実験グループ 2.2-Aとの共同研究)

垂直磁気異方性を示すD<sub>022</sub>型規則合金Mn<sub>3</sub>Gaを電極に用いたトンネル磁気抵抗(TMR)素子におけるスピン依存伝導を第一原理計算した。まず、Mn<sub>3</sub>Gaのバンド構造を計算したところ、MgO障壁を優先的にトンネルするΔ<sub>1</sub>対称性をもつバンドが、多数スピン側だけでなく少数スピン側でもフェルミ準位を横切っていることが明らかになった。しかし、Mn<sub>3</sub>Ga/MgO/Mn<sub>3</sub>Gaトンネル接合に対して平行磁化配置における電気伝導を計算すると、多数スピン電子のトンネル透過率は、少数スピン電子よりも二桁程度大きな値を示した。この顕著なスピン依存伝導の起源は、Δ<sub>1</sub>バンドの主要成分が、多数スピンではGa 4p(d)軌道であるのに対して、少数スピンでは局在性の強いMn 3d(3z<sup>2</sup>-r<sup>2</sup>)軌道であることによる[5]。

#### 1.5-B 新規ホイスラーสปินデバイスにおけるスピン注入効率およびダイナミクス測定 (ドイツ)

### 課題 2 高垂直磁気異方性を有するホイスラー合金

#### 2.1-A 高垂直磁気異方性を有するハーフメタルホイスラー合金薄膜の作製と評価 (水上, 宮崎)

Pt下地上に垂直磁化Mn<sub>3-x</sub>Ga<sub>x</sub>エピタキシャル薄膜を作製し、構造と磁気特性をいくつかの組成(x=0-1.2)について調べた。組成がストイキオメトリックに近づくにつれて飽和磁化が減少し、x=0付近では~ 50 emu/cc程度になることがわかった。この組成に対する変化はバルクで見られる傾向に近いが、Mn<sub>3-x</sub>Ga<sub>x</sub>膜の(004) X線回折強度も同時に減少していることから、ストイキオメトリックに近づくにつれて構造の乱れが生じ、磁気特性の劣化が生じていると考えられ、現在より詳細な組成依存性の研究を進めている[6]。また、いくつかの組成のMn<sub>3-x</sub>Ga<sub>x</sub>薄膜において、フェムト秒レーザーによるダ

イナミックスの計測を行い、高速の才差運動を観測することに成功した。理論グループ 3.3-Aと共同で、実験的に得られたダンピング定数の電子構造に基づく考察を進めている [7]。また、理論グループ 1.4-Bと共同で $Mn_{2.5}Ga$ を用いた $MgO$ 障壁トンネル接合の磁気抵抗比の考察を進めている [5]。

## 2.2-A L<sub>10</sub>規則合金/ハーフメタルホイスラー合金積層薄膜の作製と評価 (桜庭, 高梨)

L<sub>10</sub>規則合金/ハーフメタルホイスラー合金のエピタキシャル積層膜を作製し、高スピン偏極源であるホイスラー合金に大きな磁気異方性を付加することが本研究の第一目標である。本年度はホイスラー薄膜とL<sub>10</sub>規則合金を真空一環で成膜するための装置の整備を行ったため、積層構造膜を作ることはできなかった。その代わりに、本研究の第二の目標である磁気伝導素子作製の予備実験としてホイスラー合金電極のみを用いて $Co_2MnSi/Ag/Co_2MnSi$ 構造のCPP-GMR素子を作製し、磁気伝導特性を評価した。その結果、ホイスラー合金電極のアニール温度を最適化することにより室温で 36.4%もの大きな磁気抵抗比を観測することができた[3]。また抵抗変化・面積積( $\Delta RA$ )の $Co_2MnSi$ 層の膜厚依存性を評価し、電子スピンに依存する 2 流体モデルで界面及びバルクの電子散乱のスピン非対称性係数( $\gamma, \beta$ )の定量的な解析を行った。その結果、 $Co_2MnSi/Ag$ 界面では大きなスピン非対称性が得られることが分かった。一方、 $\Delta RA$ の温度依存性についても調査し、低温領域ではAg中に拡散したMnの磁気モーメントの磁気秩序が $\Delta RA$ を低減させていることを見出した[8]。

## 2.3-A スピントルク応用のための高垂直磁気異方性を有する新規ホイスラー合金 (ドイツ)

### 課題 3 ギルバートダンピング(磁気緩和定数)

#### 3.1-A ハーフメタルホイスラー合金における磁気緩和 (大兼, 水上)

最終目標である、磁気緩和メカニズムの解明、および、低磁気緩和・低飽和磁化・高スピン分極率を兼備するホイスラー合金薄膜を開発するために、H22年度は以下の研究を実施した。(1)  $Co_2Mn_{1-x}Fe_xSi$ 、 $Co_2MnAl_{1-x}Si_x$ 組成のエピタキシャルホイスラー合金薄膜の磁気緩和定数を明らかにした。さらに、3.3-Aの理論グループとの共同研究により、得られた磁気緩和定数の大きさは、フェルミレベルの電子状態に大きく依存することが分かった[9]。(2) 低温において磁気緩和定数を評価可能な、時間分解Kerr効果測定装置の構築を開始した。光学系の構築は既に済んでおり、室温においては測定が可能な状況である。(3)(1)で作製した低磁気緩和組成の $Co_2FeMnSi$ 合金薄膜をドイツ側に提供し、超高速時間分解Kerr効果により、ピコ秒領域の減磁過程を明らかにした[10]。

#### 3.3-A ハーフメタルホイスラー合金薄膜のギルバート磁気緩和に関する理論 (佐久間, 土浦)

ホイスラー合金を中心とするスピントロニクス材料のギルバート緩和の定量評価を行う目的から、局所スピン密度汎関数法のもとで、スピン軌道相互作用と不純物散乱を考慮した電子状態の下で電気伝導度とギルバート緩和定数を求める計算プログラムを作成した。今年度はスピントロニクス分野で広く用いられている $Fe_{1-x}Co_x$ や $Fe_{1-x}Ni_x$ およびホイスラー合金などの材料を取り上げ、第一原理計算によりスピン別の電気伝導度とギルバート緩和定数の定量評価を試みた。得られた電気抵抗率の結果は低温における実験結果と定量的によく一致することが確認された。また、スピン別の電気伝導度からスピン分極率を評価したところ、 $Fe_{50}Co_{50}$ と $Fe_{20}Ni_{80}$ のいずれも 80%以上の値を示し、スピントロニクス材料としての優位性が確認された[11,13]。ギルバート緩和定数については、組成依存性は定性的によく再現され、

定量的にも実測値の半分から同程度の値が得られた。また、磁性多層膜におけるスピンプンピング機構による磁気緩和を調べる目的から、s-d模型を用いて磁性／非磁性界面積層膜における緩和定数の理論計算を行った。その結果、非磁性層の層数とともに緩和定数が増大し、スピンプンピング機構の厚さで一定値に飽和することが確認され、スピンプンピング機構の特徴が明らかとなった[14]。次に、このような不均一系の磁気緩和機構をより一般的な立場から明らかにする目的から、スピンプンが時間的に変化する系のスピンプン流を微視的立場から記述し、ギルバート緩和に係るスピンプン流の導出に成功した[15, 16]。

#### 課題 4 面内スピンプン伝導とスピンプン波デバイス

##### 4.1-B ホイスラー合金薄膜上の新規 GMR/MTJ ナノ接合デバイス (安藤, 永沼, 大兼)

スピンプン波伝搬特性および素子間のスピンプンの歳差運動のモードロック現象を明らかにすることを最終目的として、H22 年度は当初の計画とおり、微細加工技術の構築およびスピンプン波伝搬素子の作製を重点的に行った。試料は超高真空スパッタ装置をもちいて製膜し、微細加工はフォトリソグラフィ、EB リソグラフィ、Ar イオンミリングを組み合わせて行った。特に微細加工については、フォトリソグラフィ3回、EB リソグラフィ3回を重ね合わせ露光により行うため、高度な位置合わせ技術が必要とする。H22 年度は微細加工プロセスを構築できたことが大きな成果の一つとなる。また、スピンプン波伝搬特性の評価系であるが、非常に損失の少ないコプレーナリーガイドを設計することができたため、研究計画を前倒して高周波特性についても試験的に評価をおこなった。その結果、ピラー構造の CPP-GMR 素子において CoFe 下部自由層が不連続および連続の 2 つの場合において明瞭な発振現象を観測することができた[17]。一方、材料開発については、ホイスラー合金をもちいた CPP-GMR 素子において 50%程度の高い GMR 比が得られた。

##### 4.3-B 半導体における面内スピンプン伝導 (松倉, 好田)

磁性体中の磁壁クリープ運動の起源を解明することは、磁壁を利用したスピントロニクス素子の信頼性を議論する上で重要となる。表面粗さの異なる二種の強磁性半導体(Ga,Mn)As の磁界誘起クリープ運動を調べ、平坦な表面を持つ試料はランダム・フィールド・ディスオーダー、粗い表面を持つ試料はランダム・ボンド・ディスオーダーの異なるユニバーサリティ・クラスに属することを実験的に明らかにした[18]。また、(Ga,Mn)As には歪み誘起のスピンプン軌道相互作用有効磁界があることを利用して、電流による磁化反転を従来と全く異なる機構を用いて実現した[19]。また、半導体細線構造では D'yakonov-Perel'(DP)スピンプン緩和機構が抑止されスピンプン緩和時間が増大することが期待されていることから、細線構造におけるスピンプン輸送評価は重要な基盤技術となる。そこで、InGaAs 2次元電子ガスを用いて異なる幅の量子細線構造を作製しスピンプン軌道相互作用、スピンプン緩和時間のゲート電圧依存性及び結晶方位依存性について評価を行った。その結果、細線幅を 1.2  $\mu\text{m}$  から 0.7  $\mu\text{m}$  まで細くすることにより DP スピンプン緩和機構の抑制が観測され、スピンプン緩和時間が増大することが明らかとなった。また、[1-10] 結晶方向に沿った細線構造の場合、スピンプン緩和時間が[110]及び[100]結晶方向よりも長いことを見出した。

##### 4.5-A 新しいスピンプン伝導デバイス応用のためのホイスラー合金開発 (ドイツ)

##### 4.6-B ホイスラー合金系における面内スピンプン依存伝導特性の研究 (高梨, 桜庭)

ホイスラー合金ハーフメタルを強磁性電極とした面内型スピバルブ素子を作製し、高効率なスピン注入の実現を目指す。H22年度は非磁性金属であるAg, Cu, AuにまずNiFeからスピン注入を試みることによって、面内スピバルブ素子の微細加工法を確立するとともに、測定系の立ち上げを行った。その結果、NiFe/Au等の構造においては、明瞭な非局所シグナルを観測することができ、加工法及び測定法を確立することができた。その後、Co<sub>2</sub>MnSi細線からスピン注入源とし、スピン蓄積効果を非局所的に観測することを目標とし実験を行った。現在までのところ、作製したCo<sub>2</sub>MnSi/Cuの面内型スピバルブ素子において3.5%と比較的大きな磁気抵抗比を観測することができている。この結果はH22年11月の国際会議にて発表した。

#### 4. 原著論文発表

[1] H. A. Begum, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, “Fabrication of multiferroic Co-substituted BiFeO<sub>3</sub> epitaxial films on SrTiO<sub>3</sub> (100) substrates by r.f. magnetron sputtering”, Materials (2011) to be published

[2] A. Sasaki, N. Tezuka, L. Jiang and S. Sugimoto, “Magnetoresistance effect of tunnel junctions using Co<sub>2</sub>(Ti,Mn) Z (Z = Al, Si) Heusler alloys”, J. Appl. Phys (2011), accepted

[3] Y. Sakuraba, K. Izumi, Y. Miura, K. Futatsukawa, T. Iwase, S. Bosu, K. Saito, K. Abe, M. Shirai, and K. Takanashi, “Mechanism of large magnetoresistance in Co<sub>2</sub>MnSi/Ag/Co<sub>2</sub>MnSi devices with current perpendicular to the plane”, Phys. Rev. B, 82, 094444 (2010)

[4] 白井正文, “スピン流創出のための材料設計”, まてりあ, 49, 562 (2010)

[5] T. Kubota, Y. Miura, D. Watanabe, S. Mizukami, F. Wu, H. Naganuma, X. Zhang, M. Oogane, M. Shirai, Y. Ando, T. Miyazaki, “Magnetoresistance effect in tunnel junctions with perpendicularly magnetized D<sub>022</sub>-Mn<sub>3-δ</sub>Ga and MgO barrier”, Appl. Phys. Express, 4, 043002 (2011)

[6] F. Wu, S. Mizukami, D. Watanabe, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, “Influence of composition on structure and magnetic properties of epitaxial Mn-Ga films”, J. Phys. Conf. Series 266, 012112 (2011).

[7] S. Mizukami, F. Wu, A. Sakuma, J. Walowski, D. Watanabe, T. Kubota, X. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, “Long-lived ultrafast spin precession in manganese alloys films with large-perpendicular magnetic anisotropy”, Phys. Rev. Lett. 106, 117201 (2011).

[8] Y. Sakuraba, K. Izumi, S. Bosu, K. Saito, and K. Takanashi, “Temperature dependence of spin-dependent transport properties of Co<sub>2</sub>MnSi-based current-perpendicular-to-plane magnetoresistive devices”, J. Phys. D: Appl. Phys., 44, 064009 (2011)

[9] 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 (2010)

\*[10] D. Steil, S. Alebrand, T. Roth, M. Krauß, T. Kubota, M. Oogane, Y. Ando, H. C. Schneider, M. Aeschlimann, and M. Cinchetti, “Band-Structure-Dependent Demagnetization in the Heusler Alloy Co<sub>2</sub>Mn<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>Si”, Phys. Rev. Lett., 105, 217202 (2010)

日本・ドイツ共同研究の成果を報告した論文である。ハーフメタル特性を有するホイスラー合金薄膜を日本で作製し、超高速時間分解 Kerr 測定 of 技術を有するドイツで、パルス光で励起した磁化の超高速ダイナミクスを評価した。本研究は、日本・ドイツそれぞれの特徴を生かした独創的なものである。

- [11] Y. Kota, H. Tsuchiura and A. Sakuma, First principles study for the electronic structure and residual resistivity of  $\text{Co}_2\text{MnZ}$  ( $Z = \text{Al, Si}$ ), J. Phys. : Conference Series 200, 052012, (2010)
- [12] R. Y. Umetsu, N. Endo, A. Fujita, R. Kainuma, A. Sakuma, K. Fukamichi and K. Ishida, Electronic specific heat coefficient and magnetic properties of  $\text{L}_{21}$  phase in  $\text{Co}_2\text{YGa}$  ( $Y = \text{Cr, Mn}$  and  $\text{Fe}$ ) Heusler alloys, J. Phys. : Conference Series 200, 062036 (2010)
- [13] Y. Kota and A. Sakuma, First-principles study for the electrical conduction property in Co-based Heusler alloys, J. Phys. : Conference Series, in press
- [14] N. Umetsu, D. Miura and A. Sakuma, Microscopic theory on the Gilbert damping due to spin pumping effects in the magnetic multilayer system, J. Phys. : Conference Series, in press
- [15] D. Miura and A. Sakuma, Spin and Charge Currents in Magnetic Multi-layers in the Presence of Both Electric Field and Spin Dynamics, J. Phys. : Conference Series, in press
- [16] D. Miura and A. Sakuma, Microscopic theory of spin torque induced by spin dynamics in magnetic tunnel junctions, J. Appl. Phys., in press
- [17] Yuki Kawada, Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, Yasuo Ando, "Design of co-planer wave guide of CPP-GMR device with a bottom free layer for direct optical accessing" to be accepted.
- [18] A. Kanda, A. Suzuki, F. Matsukura, and H. Ohno, "Domain wall creep in  $(\text{Ga,Mn})\text{As}$ ", Appl. Phys. Lett., 97, 032504 (2010).
- [19] M. Endo, A. Suzuki, F. Matsukura, and H. Ohno, "Current induced effective magnetic field and magnetization reversal in uniaxial anisotropy  $(\text{Ga,Mn})\text{As}$ ", Appl. Phys. Lett., 97, 222501 (2010).

## 5. 主催したワークショップ等

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2010年4月 19-20日	Kick-Off Meeting of Strategic Japanese-German Joint Research Program	仙台	40名	キックオフミーティング(日本側のみ)および学生企画によるワークショップを実施
2010年10月 18-20日	2nd Meeting of Strategic Japanese-German Joint Research Program	仙台	50名	キックオフミーティングおよび学生企画によるワークショップを実施

以上