

戦略的国際科学技術協力推進事業（日本－ドイツ研究交流）

1. 研究課題名：「ホイスラー合金電極を用いたスピントロニクス素子の界面構造・組成」
2. 研究期間：平成 21 年 8 月～平成 25 年 3 月
3. 支援額： 総額 15,000,000 円
4. 主な参加研究者名：

日本側（研究代表者を含め 6 名までを記載）

	氏名	所属	役職
研究代表者	宝野和博	物質・材料研究機構 磁性材料ユニット	ユニット長
研究者	大久保忠勝	物質・材料研究機構 磁性材料ユニット	グループリーダー
研究者	古林孝夫	物質・材料研究機構 磁性材料ユニット	主席研究員
研究者	高橋有紀子	物質・材料研究機構 磁性材料ユニット	主幹研究員
研究者	中谷友也	筑波大大学院 数理物質科学研究科	学生（D3）
研究者	長谷直基	筑波大大学院 数理物質科学研究科	学生（D2）
参加研究者 のべ 7名			

相手側（研究代表者を含め 6 名までを記載）

	氏名	所属	役職
研究代表者	Guido Schmitz	WWU , Inst. of Material Physics	Prof.
研究者	Dietmar Baither	WWU , Inst. of Material Physics	Dr.
研究者	Patrick Stender Christian	WWU , Inst. of Material Physics	
研究者	Ralf Schlesiger	WWU , Inst. of Material Physics	
研究者	Gerd Greiwe	WWU , Inst. of Material Physics	
研究者	Frank Spaleck	WWU , Inst. of Material Physics	
参加研究者 のべ 15名			

5. 研究・交流の目的

本研究交流は、ハーフメタルスピントロニクス素子実現に必要な界面構造・組成をアトムプローブならびに電子顕微鏡を相補的に用いて原子レベルで解析し、その情報を用いてホイスラー合金を用いたスピントロニクス素子、特に巨大磁気抵抗素子の高性能化に寄与することを目的とした。具体的には、日本側のナノ構造制御による垂直通電型巨大磁気抵抗効果(CPP-GMR)素子開発技術と、ドイツ側のトンネル磁気抵抗（TMR）素子開発技術とを組み合わせる。さらに、両国のレーザー 3 次元アトムプローブ法および高分解能電子顕微鏡法（HRTEM）による解析技術を組み合わせ、これらの素子の伝導特性と界面の構造・組成の因果関係を解明することを目指した。両国の研究チームが本研究交流を通じて相互補完的に取り組むことで、省電力型素子の開発を実現し、ハーフメタル電極を用いた

種々のスピントロニクス素子開発の指針を与えることを期待した。

6. 研究・交流の成果

6-1 研究の成果

平成 21 年 12 月にリーダー 3 名が Bielefeld 大学に集まり、現在までの各グループでの研究状況を報告したあと、本共同研究に向けての分担内容と試料の共有について討論した。それに基づき、NIMS, Bielefeld グループから Muenster 大学における 3DAP 解析用試料を提供し、Muenster 大学において解析を開始した。NIMS グループにおいても、MTJ 素子の 3DAP 用試料作製法の確立と、その 3DAP 分析を開始したが、電界応力による試料破壊の問題により予定通りの進捗が得られなかった。NIMS グループではホイスラー合金探索を行い、Co₂Mn(Ga,Ge), Co₂Fe(Ge,Si)などで、高いスピン分極率が達成されることを確認し、現在それを電極とした CPP-GMR を作製、伝導特性の評価を行っている。最も最適化された試料を Muenster 大学に提供し、アトムプローブ解析を共同で行う予定。

平成 22 年 7 月 5-8 日にシドニーで開催された 52nd International Field Emission Symposium の際に NIMS 研究者、宝野、大久保、先方研究者 G. Schmitz, P. Stender で実験打ち合わせをおこない、それに基づき NIMS より Co₂Fe(Al,Si)を強磁性層として用いた CPP-GMR 素子を Muenster 大学に送付し、アトムプローブ分析を依頼。さらに NIMS では Bielefeld 大学よりホイスラー合金を用いた磁気トンネル接合素子を受け取り、TEM の断面観察に取り組んだ。

平成 23 年 9 月 8 日に NIMS 研究者、大久保が Muenster 大学を訪問し、先方研究者 G. Schmitz, P. Stender と研究打ち合わせをおこない、試料破壊の問題を低減するための情報の共有を図った。平成 24 年 2 月には Muenster 大と NIMS の研究代表者が Orlando の TMS でミーティングを行い、実デバイスのレーザーアトムプローブ解析の問題点を議論。そのため、FeCoB/MgO/FeCoB 磁気抵抗素子における元素分配の問題を基礎的な観点から理解するためのモデル実験を提案した。すなわち、Ta/CoFeB 界面ならびに MgO/CoFeB 界面をタングステン針に形成し、これをアトムプローブ分析することにより FeCoB/MgO/FeCoB トンネル接合における元素分配の基礎的知見を得ることとした。また、平成 24 年 3 月に P. Stender が NIMS を訪問し、3次元データ再構築法についての議論を行った。

平成 24 年度は、NIMS において高磁気抵抗効果を示すことが明らかになった Co₂Mn(Ge,Ga)ならびに Co₂Fe(Ge,Ga)ホイスラー合金を用いた CPP-GMR 素子を作製し、その磁気伝導特性を評価し、Muenster 大学で界面解析のために試料を提供した。しかし、いずれの磁気抵抗素子もレーザーアトムプローブ解析における電界応力による試料破壊の問題の解決に至らなかった。そのため、FeCoB/MgO/FeCoB 磁気抵抗素子における元素分配の問題を基礎的な観点から理解するためのモデル実験を実施し、これらの素子における微細構造形成についての基礎的な知見を得た。

本研究交流によって得られた磁気抵抗素子についての成果 ((00)配向したホイスラー合金 CPP-GMR で通常の(011)配向膜よりも高い磁気抵抗出力が得られることを見出した。)は、今後特許を出願する予定である。

6-2 人的交流の成果

- H21 年 12 月にリーダー 3 名が Bielefeld 大学に集まり、現在までの各グループでの研究状況を報告したあと、本共同研究に向けての分担内容と試料の共有について討論した。それに基づき、NIMS, Bielefeld グループから Muenster 大学における 3DAP 解析用試料を提供し、Muenster 大学において解析を開始した。NIMS グループにおいても、MTJ 素子の 3DAP 用試料作製法の確立と、その 3DAP 分析を開始したが、電界応力による試料破壊の問題により予定通りの進捗が得られなかったが、MTJ 素子解析については NIMS グループで HRTEM により CoFeB/MgO/CoFeB の伝導特性と各層と相界面組成変

化の因果関係を解明し、CoFeB の外側に成膜されるバッファ層の役割についての基礎的な知見を得た。また、NIMS グループではホイスラー合金探索を行い、Co₂Mn(Ga,Ge), Co₂Fe(Ge,Si)などで、高いスピン分極率が達成されることを確認し、それを電極とした CPP-GMR を作製、伝導特性の評価を始めた。この研究で最も最適化された試料を Muenster 大学に提供し、アトムプローブ解析を共同で行う予定を立てた。

- H22 年 7 月 5-8 日にシドニーで開催された 52nd International Field Emission Symposium の際に NIMS 研究者、宝野、大久保、先方研究者 G. Schmitz, P. Stender で実験打ち合わせをおこない、それに基づき NIMS より Co₂Fe(Al,Si)を強磁性層として用いた CPP-GMR 素子を Muenster 大学に送付し、アトムプローブ分析を依頼した。多層膜構造のレーザーアトムプローブ解析は、当時 NIMS でも取り組み始めたが、各層の電界蒸発強度が大きく異なることから、アトムプローブ分析中に試料の曲率半径が大きく変化し、このため試料破壊が頻発して測定に成功していなかった。一方、Muenster 大学のグループでもレーザーアトムプローブを開発し、多層膜における相互拡散研究への応用に取り組んでおり、多層膜解析の豊富なノウハウを有していた。これらのノウハウの相補的な活用により、「多層膜構造のアトムプローブ分析に風穴を開けようと努力したが、多層膜試料から FIB により作製された試料の分析、特に MTJ の解析は極めて困難であった。さらに NIMS では Bielefeld 大学よりホイスラー合金を用いた磁気トンネル接合素子を受け取り、TEM の断面観察に取り組んだ。
- H23 年 9 月 8 日に NIMS 研究者、大久保が Muenster 大学を訪問し、先方研究者 G. Schmitz, P. Stender と研究打ち合わせをおこない、試料破壊の問題を低減するための情報の共有を図った。また、平成 24 年 3 月に P. Stender が NIMS を訪問し、多層膜の 3 次元データ再構築法についての議論を行った。
- H24 年度は、NIMS において高磁気抵抗効果を示すことが明らかになった Co₂MnGeGa ならびに Co₂FeGeGa ホイスラー合金を用いた CPP-GMR 素子を作製し、その磁気伝導特性を評価し、Muenster 大学で界面解析のために試料を提供した。しかし、いずれの磁気抵抗素子もレーザーアトムプローブ解析における電界応力による試料破壊の問題の解決に至らなかった。そのため、FeCoB/MgO/FeCoB 磁気抵抗素子における元素分配の問題を基礎的な観点から理解するためのモデル実験を提案した。すなわち、タングステン針に MgO/Co を電極とした磁気抵抗素子の NIMS、Muenster 大学双方で、レーザー 3 次元アトムプローブ解析を実施し、これらの素子における微細構造形成についての基礎的な知見を得た。
- 日本側は H24 年度で本共同研究は修了したが、ドイツ側は研究機関が H25 年 12 月までであるので、引き続き共同研究を行い、先方が修了するまでに共著論文を数報公表する予定である。

7. 主な論文発表・特許等（5 件以内）

相手側との共著論文については、その旨を備考欄にご記載ください。

論文 or 特許	・論文の場合： 著者名、タイトル、掲載誌名、巻、号、ページ、発行年 ・特許の場合： 知的財産権の種類、発明等の名称、出願国、出願日、 出願番号、出願人、発明者等	備考
論文	M. Kodzuka, T. Ohkubo and K. Hono, Laser assisted atom probe analysis of thin film on insulating substrate, Ultramicroscopy, Volume111, Issue 6, Pages 557-561, 2011	
論文	Y.K. Takahashi, A. Srinivasan, B. Varaprasad, A. Rajanikanth, N. Hase, T.M. Nakatani, S. Kasai, T. Furubayashi and K. Hono, Large magnetoresistance in current-perpendicular-to-plane pseudo spin valve using a Co ₂ Fe(Ge _{0.5} Ga _{0.5}) Heusler alloy,	

	Applied Physics Letters, Vol. 98, Issue 15, 152501, 2011	
論文	B. S. D. Ch. S. Varaprasad, A. Srinivasan, Y. K. Takahashi, M. Hayashi, A. Rajanikanth, and K. Hono, Spin polarization and Gilbert damping of $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_x\text{Ge}_{1-x})$ Heusler alloys, Acta Materialia, Volume 60, Issue 18, Pages 6257-6265, 2012	
論文	T. M. Nakatani, Ye Du, Y. K. Takahashi, T. Furubayashi, K. Hono, Structure and magnetoresistive properties of current-perpendicular-to-plane pseudo-spin valves using polycrystalline Co_2Fe -based Heusler alloy films, Acta Materialia, 2013, in Press	