

平成 30 年 5 月 16 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14244

研究課題名(和文) テラヘルツ波帯域に迫るスピン注入発振の実証

研究課題名(英文) Demonstration of spin-torque oscillation at near THz wave frequency

研究代表者

水上 成美 (Mizukami, Shigemi)

東北大学・材料科学高等研究所・教授

研究者番号：00339269

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)： ナノスケールの磁気抵抗素子に電流を流すと、スピン注入効果により磁性体の磁化の自励歳差運動が生じる。これをスピン注入発振と呼ぶ。本研究では、テラヘルツ波帯域の磁化歳差周波数に加え小さい磁気の摩擦を示す独自のマンガン系磁性体、ならびにその極薄膜形成技術を素子に応用することで、テラヘルツ波帯域に迫る0.1 THzのスピン注入発振を実証することを目指した。

テラヘルツ波帯域に迫る、70 GHzを越える帯域における整流効果(いわゆるスピントルクダイオード効果)を示す素子の実証に世界に先駆けて成功した。さらに発振素子実現へ向けた素子作製とそのナノスケール微細加工を行い、目的達成への知見を得た。

研究成果の概要(英文)： Spin-torque oscillation is one of the auto-oscillation phenomena in spintronics which is observed in nano-scale magnetoresistive devices biased by electric current. The aim of this study is to demonstrate the spin-torque oscillation at near THz wave frequency, 0.1 THz, using our unique Mn-based alloys exhibiting spin precession at THz frequency and small damping as well as unique ultra-thin film growth techniques.

We observed, for the first time, the spin-torque-diode effect originating from the spin-torque working at the frequency over 70 GHz, near the THz wave range. In addition we obtained an insight into giant magnetoresistive devices and its nano-fabrication for realizing the spin-torque oscillator based on Mn-based alloys for future sub-THz oscillators.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス テラヘルツ波 スピントルクダイオード スピントルク発振素子 マンガン合金

1. 研究開始当初の背景

金属磁性体と非磁性体の層構造から成る巨大磁気抵抗(GMR)素子や磁気トンネル接合(MTJ)素子をナノスケールに加工し電流を流すと、スピン注入効果により磁性体の磁化の自動歳差運動が生じる。この現象はスピン注入発振と呼ばれる。スピン注入発振は、その特徴として、ナノスケールで動作、発振のQ値が大きい、バイアス電流による周波数可変等の特徴を有している。そのため、磁気記録や磁気センサへの応用を目指し、スピン注入発振のQ値や出力を高めるための研究プロジェクトが国内外で進んでいる。他方、高周波化を狙う研究はまだ多くはないものの、この新発振素子がどこまで高周波化できるか?という問いは学術的に興味深く、かつ新しい超高周波発振子として産業界からの期待も大きい。様々な基礎・応用研究が行われているものの、その発振周波数は最大でも45 GHz程度である。

スピン注入発振の周波数は素子を構成する磁性体発振層の強磁性共鳴周波数に等しく、発振にいたる臨界電流は発振層の磁気摩擦定数(ダンピング定数)で決まる。申請者は磁気メモリの研究の過程で、2011年に L_{10} 構造を有するMnGa合金薄膜[図1(a)]が0.1 THzを超える共鳴周波数と低磁気摩擦定数を示すことを世界で初めて見出した[1-4]。その後、MnGaをベースとする垂直磁化MTJ素子の研究を進め、2014年に室温で最大60%のトンネル磁気抵抗(TMR)比を得た[5]。また、ごく最近には1-5 nm厚の良質の L_{10} MnGaエピタキシャル薄膜の成長[6]とその3 nmのMTJ素子の作製に初めて成功した[7]。その際、MnGaを用いた素子が、従来のテラヘルツ波帯発振素子とは異なる原理で動作する新機能発振素子となり得ることを着想し研究を行った。

2. 研究の目的

本研究では、独自の材料であるマンガン系合金のテラヘルツ波帯域の磁化歳差周波数と小さい磁気の摩擦を示す特性を素子に応用することで、テラヘルツ波帯域に迫るスピントルクダイオード特性、そして最終的にはテラヘルツ波帯域に迫る0.1 THzのスピン注入発振を実証する。

3. 研究の方法

素子のスピン注入発振に要する電流密度は発振周波数に比例する。その比例係数は、発振層の厚み、磁気摩擦定数(ダンピング定数)、飽和磁化、の積に等しい[8]。したがって磁気摩擦定数と飽和磁化の小さいマンガン系材料は、他の材料と比較して圧倒的に高周波化に有利である。本研究では、最近良質の極薄膜を作製することに成功した L_{10} 構造のMnGaに集中する。これを発振層として用いた場合、厚みが1-3 nmのMnGaの極薄膜を用いることで、従来の実験報告

[9-12]と同程度の電流密度($\sim 10^8$ A/cm²)で0.1 THzの発振が観測できることが理論的に示唆されている。

発振の駆動力となるスピントルクスファートルクは多くの磁性材料で調べられているものの、本材料系ではこれまで全く調べられたことがない。また、そもそも発振以前に、弱いスピントルクスファートルクによって駆動されるスピントルクダイオード効果(整流効果)ですら、本材料系での報告はない。したがって本研究では、まずMnGaを用いたMTJ素子のスピントルクダイオード効果を研究した。その結果をもとに、さらにMnGaを用いたGMR素子の作製を試み、最終的にアプローチすることとした。

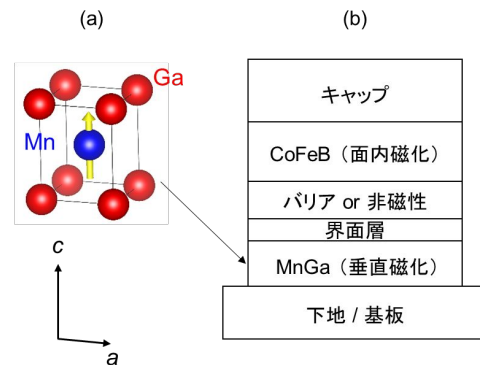


図1 (a)規則合金マンガンガリウムの結晶構造, (b)研究した磁気トンネル接合(MTJ)あるいは巨大磁気抵抗(GMR)素子多層膜の膜構成の模式図。

4. 研究成果

(1)テラヘルツ波帯域に迫る整流素子

ナノスケールMTJ素子の作製に先立って、MnGaの厚みとアニール温度の最適化を目的とし、それらを系統的に変化した素子の作製

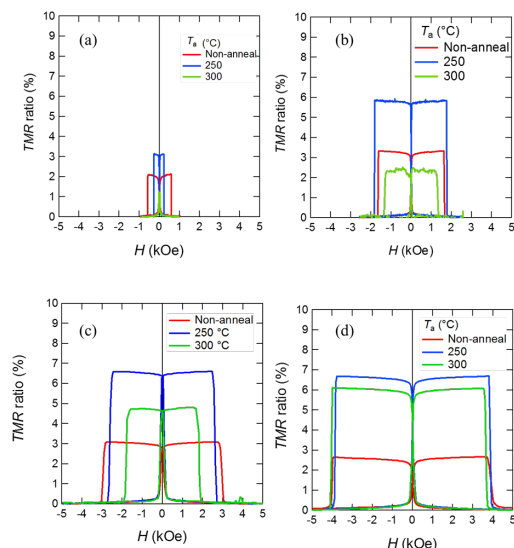


図2 様々な膜厚のMnGa層を有する垂直磁化磁気トンネル接合のトンネル磁気抵抗効果の熱処理依存性。(a) 1 nm, (b) 2 nm, (c) 3 nm, (d) 5 nm [13]。

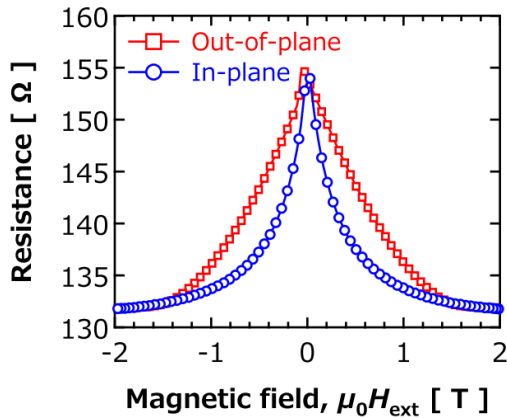


図3 界面層に極薄の Fe/FeB 層を用いたスピントルクダイオード測定用のナノスケール MTJ 素子の磁気抵抗曲線．磁場を面内 () および面直 () に印加して測定している [14] .

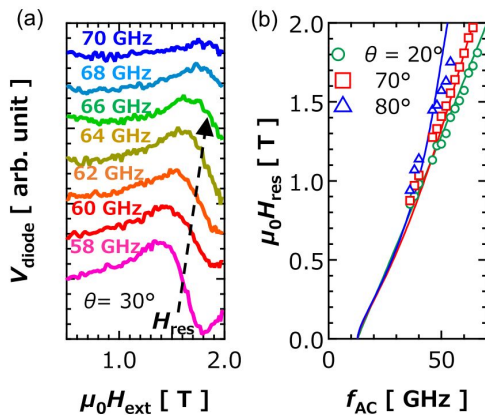


図4 スピントルクダイオード測定の結果．(a) 整流された出力電圧の外部印加磁場依存性．様々な周波数のミリ波信号を入力した結果についてプロットしている．(b) 磁化歳差運動の共鳴磁場と入力しているミリ波周波数の関係．外部磁場角度を変えたデータをプロットしている [14] .

と評価を進めた．図2に示すように MnGa の厚みが 1 nm になると TMR 比が急激に低下することが分かった．この結果から，2 nm の厚みの MnGa の MTJ 素子を 250 °C でアニールした素子が目的達成に最適であることが分かった [13] .

次に，スピントランスファートルク効果とスピントルクダイオード効果の評価のため，Fe 系の界面層の材料と厚み，また MgO バリアの厚みを系統的に変えた試料を作製し，その最適化を行った．最終的に，低抵抗で TMR 比が 20% 程度の素子を得た．作製した素子のスピントルクダイオード効果を評価するため，微細加工を行い，ナノスケール MTJ 素子の作製を進めた．ナノ加工条件を最適化し，加工後も安定な TMR 効果を発現する素子作製を達成した (図3) [14] .

その素子におけるスピントルクダイオ-

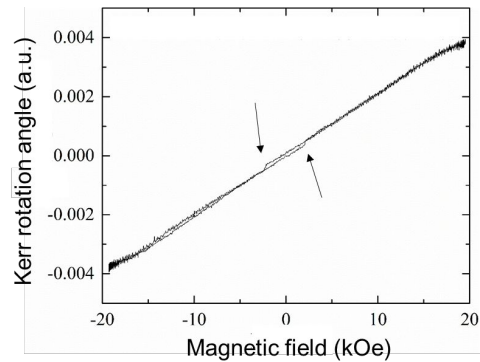


図5 MTJ 素子と同様の構成で，MgO バリアを 5 nm の厚みの Cu 層にした GMR 素子における磁気光学カー回転角の面直磁場依存性．矢印の磁場で MnGa 層の磁化反転に起因するカー回転角のステップが観測されていることから，素子内の MnGa 層は垂直磁化を示している．

ド効果測定の一例を図4に示す．素子に最大で 70 GHz までのミリ波帯の高周波信号を入力し，外部磁場を掃引すると磁化の歳差運動と入力した高周波信号のミキシングによるいわゆるホモダイン DC 出力信号の発生が観測されている．その際の周波数と磁場の関係から，この DC 信号がスピントルクダイオード効果によるものであることが明らかとなった [14] . 0.1 THz に迫る，70 GHz 帯域のスピントルクダイオード効果はこれまで報告がなく，本研究課題で達成された大きな成果である [14] .

(2) テラヘルツ波帯域に迫る発振素子

前述の結果は，MnGa 極薄膜へのスピントランスファートルクが有効であること，スピントランスファートルクによるテラヘルツ帯域をにらんだ磁化ダイナミクスの駆動が可能であることを実証するものである．最終目的であるテラヘルツ帯域に迫る発振

のためには， 10^7 - 10^8 A/cm² 程度の直流電流を素子に通ずる必要があるため，比較的壊れにくい GMR 素子を用いた発振素子を研究した．

しかしながら，そもそも MnGa 材料を用いた GMR 素子多層膜の実績・他の報告はないため，ナノスケール GMR 素子の作製に先立ち，GMR 素子多層膜の作製条件最適化を行った．すでにスピントルクダイオード効果で実績のある MTJ 素子と同等の構成で，MgO バリアを Cu 層にした GMR 素子を作製した．

まずマンガン系材料に用いられる下地層の，GMR 比や発振に対する影響を調べるため標準的な磁性材料と当該下地層を用いたスタックを作製した．数%の GMR 比およびスピントルク発振を観測することができた．

次に MnGa 材料を用いた GMR 素子の作製を進めた．非磁性スペーサの材料とマンガン合金層を組み合わせると垂直磁化が劣化することが判明した．これは原子拡散によるもの

と考えられ、当初予想していなかったことである。最終的に垂直磁化 MnGa 極薄膜を有する GMR 素子を作製することに成功した。その磁気特性の一例を図 5 に示す。しかしながら素子層構造や薄膜作製条件の最適化に時間を要した。

GMR 評価ならびに、発振評価を行うため微細加工を進めたが GMR 観測されなかった。微細加工の際に原子拡散が進行していることが考えられ、目標達成のためには、層構造の最適化や GMR 素子の微細加工プロセスの最適化などが今後の課題である。

参考文献

- [1] S. Mizukami et al., Phys. Rev. Lett., 106, 117201 (2011).
- [2] S. Mizukami et al., Phys. Rev. B. 85, 014416 (2012).
- [3] S. Mizukami et al., J. Appl. Phys. 120, 142102 (2016).
- [4] S. Mizukami et al., Scr. Mater. 118, 70 (2016).
- [5] Q. L. Ma et al., Phys. Rev. Lett., 112, 157202 (2014).
- [6] K. Z. Suzuki et al., Jpn. J. Appl. Phys. 55, 010305 (2016).
- [7] K. Z. Suzuki & S. Mizukami et al. Sci. Rep. 6, 30249 (2016).
- [8] T. Taniguchi et al., Appl. Phys. Express 6, 123003 (2013).
- [9] F. Mancoff et al., Appl. Phys. Lett., 88, 112507 (2006).
- [10] S. Boneti et al., Appl. Phys. Lett. 94, 102507 (2009).
- [11] W. H. Rippard et al., Phys. Rev. B 81, 014426 (2010).
- [12] H. Maehara et al., Appl. Phys. Express 7, 023003 (2014).
- [13] K. Z. Suzuki et al., J. Phys. D: Appl. Phys., in-press (2018).
- [14] S. Tsunegi et al., Appl. Phys. Lett., submitted (2018).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 6 件)

- [1] Spin torque diode effect of the magnetic tunnel junction with MnGa free layer, Sumito Tsunegi, Kotaro Mizunuma, Kazuya Z. Suzuki, Hiroshi Imamura, Shingo Tamaru, Masahiro Yoshimura, Masashige Sato, Yasushi Kono, Hiroyuki Wado, Akio Fukushima, Hitoshi Kubota, and Shigemi Mizukami, Appl. Phys. Lett., submitted (2018). (査読有)

- [2] Tunnel magnetoresistance in ultrathin $L1_0$ MnGa/MgO perpendicular magnetic tunnel junctions, K. Z. Suzuki, Y. Miura, R. Ranjbar, A. Sugihara, and S. Mizukami, J. Phys. D Applied Phys. in-press (2018). DOI: 10.1088/1361-6463/aac00d (査読有)
- [3] Current-induced switching in CoGa/ $L1_0$ MnGa/(CoGa)/Pt structure with different thicknesses, R. Ranjbar, K. Z. Suzuki, and S. Mizukami, J. Magn. Mater. 456, 22-30 (2018). DOI: 10.1016/j.jmmm.2018.02.007 (査読有)
- [4] Perpendicular magnetic tunnel junctions with Mn-modified ultrathin MnGa layer, K. Z. Suzuki, Y. Miura, R. Ranjbar, L. Bainsla, A. Ono, Y. Sasaki, and S. Mizukami, Appl. Phys. Lett. 112, 062402 (2018). DOI: 10.1063/1.5002616 (査読有)
- [5] Ultrathin films of polycrystalline MnGa alloy with perpendicular magnetic anisotropy, Atsuo Ono, Kazuya Z. Suzuki, Atsushi Sugihara, and Shigemi Mizukami, Appl. Phys. Express, 10, 023005.1-4 (2017). DOI: 10.7567/APEX.10.023005 (査読有)
- [6] Thickness Dependence of Structure and Magnetic Properties of Cubic and Tetragonal Heusler Alloy Bilayer Films, R. Ranjbar, K. Z. Suzuki, A. Sugihara, Y. Ando, T. Miyazaki, and S. Mizukami, J. Magn. Mater. 433, 195-201 (2017). DOI: 10.1016/j.jmmm.2017.03.018 (査読有)

[学会発表](計 10 件)

- [1] Nano-layered structure based on TM-Ga (TM = Mn, Co) alloys (Invited talk), Shigemi Mizukami, Tohoku-Purdue Workshop on Novel Spintronics Physics and Materials for Future Information Processing, Sendai, Feb. 18, 2018, Japan.
- [2] 高垂直磁気異方性と低ダンピング定数を示すマンガン合金ナノ薄膜 (招待講演), 水上成美, 科学研究費・基盤研究 (S) 成果報告会; 規則合金スピントロニクス材料の新展開, 仙台, 2018 年 1 月 30 日
- [3] Recent research progress on MnGa alloy nano-layer for spintronics (Invited talk), Shigemi Mizukami and Kazuya

Suzuki, 15th RIEC International Workshop on Spintronics, Sendai, Dec. 13, 2017.

- [4] Observation of Over 70 GHz of Spin Torque Diode Effect Using MnGa/Fe Based Spin Torque Oscillator, K. Mizunuma, S. Tsunegi, M. Yoshimura, M. Sato, K. Suzuki, Y. Kono, H. Wado, S. Tamaru, H. Kubota, A. Fukushima, and S. Mizukami, 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM), Pittsburgh, USA, Nov. 8th, 2017
- [5] Manganese-based Spintronics (Plenary talk), Shigemi Mizukami, International Conference of Frontiers in Materials Science (FMS2017), Greifswald, Germany, Sep. 4, 2017.
- [6] Nano-layer of tetragonal Mn-based alloys for MRAM applications (Invited talk), Shigemi Mizukami and Kazuya Suzuki, IEEE the 28th Magnetic Recording Conference (TMRC2017), Tsukuba, 2017
- [7] 極薄 MnGa 電極を用いた垂直磁化トンネル接合の MnGa 膜厚依存性, 鈴木和也, Reza Ranjbar, 杉原敦, 水上成美, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017 年 3 月 14 日 ~ 2017 年 3 月 17 日, パシフィコ横浜
- [8] MnGa polycrystalline ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy prepared on thermally-oxidized Si substrate, 小野敦夫, 鈴木和也, Reza Ranjbar, 水上成美, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017 年 3 月 14 日 ~ 2017 年 3 月 17 日, パシフィコ横浜
- [9] Sub-THz magnetization precession and damping for manganese alloy ultrathin films (Invited talk), Shigemi Mizukami, 4th JSPS Core-to-Core Workshop on "New-Concept Spintronics Devices", RIEC, Tohoku Univ., Nov. 20, 2016.
- [10] Mn 系垂直磁化薄膜 - スピントロニクスデバイスへの応用と課題 (招待講演), 水上成美, 鈴木和也, 第 208 回研究会/第 56 回化合物新磁性材料専門研究会「スピントロニクスにおける次世代材料開発」, 中央大学, 東京, 2016 年 6 月 9 日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

〔その他〕
ホームページ:
https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp//mizukami_lab/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

水上 成美 (MIZUKAMI, Shigemi)
東北大学・材料科学高等研究所・教授
研究者番号 : 0 0 3 3 9 2 6 9

(2) 研究分担者

鈴木 和也 (SUZUKI, Kazuya)
東北大学・材料科学高等研究所・助教
研究者番号 : 2 0 7 3 4 2 9 7

(3) 連携研究者

久保田 均 (KUBOTA, hitoshi)
産業技術総合研究所・スピントロニクス
研究センター・総括研究主幹
研究者番号 : 3 0 2 6 1 6 0 5

(4) 研究協力者

()