

令和 元年 6月 3日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14103

研究課題名（和文）高垂直磁気異方性磁界トンネル磁気抵抗素子の開発とそのスピン軌道トルクの研究

研究課題名（英文）Development of magnetic tunnel junctions having high perpendicular anisotropy field and study of its spin orbit torque.

研究代表者

鈴木 和也 (Kazuya, Suzuki)

東北大學・材料科学高等研究所・助教

研究者番号：20734297

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

**研究成果の概要（和文）：**本研究ではテラヘルツ帯域で発振可能な高周波発振/検出デバイスの実現に向けて、10テスラ以上の垂直磁気異方性磁界を有するトンネル磁気抵抗素子の探索的開発、および、その素子構造におけるスピン軌道トルクを用いた発振アシスト方法の適用可能性を検討した。CoGa/MnGa/Mn積層構造およびCoGa/Mn積層構造を見出し、目標値である10テスラ以上の垂直磁気異方性磁界を達成した。また、これらの新積層構造において、CoGa層からのスピン軌道トルクによる磁化反転を観測し、発振アシスト方法として開発素子に適用可能であることを示した。

**研究成果の学術的意義や社会的意義**

本研究により開発された10T以上の垂直磁気異方性磁界を有する超薄膜積層構造は、これまで報告されたことがなく、次世代スピントロニクスデバイスの基盤となる新材料・構造として期待される。そして、これらの超薄膜積層構造において、界面構造に起因した大きな垂直磁気異方性が見出されたが、今後、この起源の解明により界面磁気物理の理解が格段に進歩するため普遍的な学術的価値がある。また、テラヘルツ帯域の電磁波は次世代高速通信やセンシング、気体分子の検出などにおいて工学的価値があるため、本研究で開発されたTMR素子のさらなる高性能化により、高周波応用分野の産業技術への貢献が期待できる。

**研究成果の概要（英文）：**We developed magnetic tunnel junctions using new electrode having high perpendicular magnetic anisotropy field over 10 T in order to realize THz operated spin transfer-torque based oscillator/detector devices. In addition, a spin-orbit-torque assist technique for developed devices was examined in order to reduce driving current. New stacking structure of CoGa/MnGa/Mn and CoGa/Mn with PMA field exceeding 10 T were realized in this study. Furthermore, magnetization reversal of these structure by spin orbit torque were demonstrated using CoGa seed layer. These results suggests that spin orbit torque technique using CoGa seed layer can be promising for an assist technology for newly developed devices.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：垂直磁気異方性 トンネル磁気抵抗効果 マンガン系合金 スピン軌道トルク 電界効果 高周波デバイス テラヘルツ 反強磁性

# 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

極薄の非磁性層を強磁性電極層で挟み込んだ巨大磁気抵抗(GMR)素子やトンネル磁気抵抗(TMR)素子に電流を注入すると、特定の条件下ではスピン移行トルク効果(STT)により強磁性層の磁化が歳差運動する。このときの発振周波数は磁性材料の特性に依存し、垂直磁化電極を用いた場合には垂直磁気異方性磁界( $H_k$ )が大きいほど、発振周波数が大きくなる。しかし、従来のコバルト鉄系垂直磁化材料では、数10 GHz程度が限度である。<sup>[1]</sup> 動作周波数のさらなる増大には大きな垂直磁気異方性磁界を有する磁性材料が必要であり、さらに消費電流の問題から低飽和磁化、小さなダンピング定数、大きなTMR効果といった特性を数ナノメートルの膜厚の超薄膜で達成する必要がある。しかし、そのような特性を達成できる垂直磁化材料は現時点では非常に少ない。また、素子の消費電流は高周波化に伴い増大するため、STT方式以外による発振アシスト方法が必要になると予想される。

## 2. 研究の目的

本研究では、従来の磁性材料では到達不可能なテラヘルツ帯域(300 GHz以上)で動作可能な高周波素子の実現に向けて、10テスラ以上の高垂直磁気異方性磁界新材料トンネル磁気抵抗素子の探索的開発、および、スピン軌道トルクによる発振アシスト方法の適用可能性の検討を目的とした。

## 3. 研究の方法

最近、代表者は、スパッタリング法を用いて、コバルトガリウム(CoGa)シード層上にL1<sub>0</sub>-MnGa超薄膜が室温成長することが見出され、1ナノメートルの膜厚においても垂直磁気異方性が維持されることを報告してきた。<sup>[2,3]</sup> 本研究では、この成果を元に、MnGa超薄膜の表面終端構造に着目した新しい積層構造の探索とそれを用いたTMR素子の作製し、磁気特性とTMR特性から垂直磁気異方性を調べた。また、発振アシスト技術として、スピン軌道トルクに着目し、ホールバー形状に加工し、積層膜面内電流による積層構造の磁化反転を試みた。

## 4. 研究成果

### (1) 表面終端構造制御によるMnGa超薄膜の垂直磁気異方性の増大

膜厚が1ナノメートルであるL1<sub>0</sub>構造MnGa電極とトンネル障壁層である酸化マグネシウム(MgO)層の間に1ナノメートル以下のマンガン(Mn)層を挿入したCoGa/MnGa/Mn積層構造下部電極を有するTMR素子を作製した。その結果、Mn層の有無により、TMR抗比が3%から20%程度まで増大し、 $H_k$ は1テスラから11テスラまで増大し、垂直磁気異方性定数が0.3 MJ/m<sup>3</sup>から1.2 MJ/m<sup>3</sup>程度まで増大することを見出し、研究の目標値を達成した。(図1) そして、透過型電子顕微鏡による素子断面構造の解析から、下部電極層はMnGa/Mn構造となっていることを明らかにし、第一原理計算から巨大なTMR効果が発現する可能性が示された。高周波素子応用に向けて、MnGa/Mn/MgO界面構造の最適化などにより、TMR比を向上させることが今後の課題である。

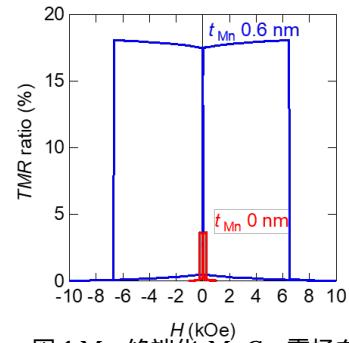


図1 Mn 終端化 MnGa 電極を有する TMR 素子の TMR 効果

### (2) マンガン超薄膜の垂直磁気異方性

MnGa/Mn積層構造の垂直磁気異方性の増大効果の起源を調べる過程で、CoGaシード層上に数原子層程度の厚みのMn層を形成したCoGa/Mn積層構造において、Mn層が25 kA/mという非常に小さな飽和磁化と、研究目標値を遥かに上回る30 Tに迫る巨大な $H_k$ を示す垂直磁化膜となることを見出した。さらにその電極構造を用いたTMR素子において、室温で明瞭なTMR効果と電圧による垂直磁気異方性の変調を観測した。(図2) Mnは反強磁性または常磁性を示すことが知られているが、CoGaおよびMgOにより形成された非対称な界面構造の効果によりフェリ磁性体へと変化したことが起源と推測している。以上の特性はテラヘルツ帯域で動作する高周波素子応用において理想的かつ魅力的な特性と考えられる。今後の課題として、積層構造・成膜プロセスの改良によるTMR比の向上と垂直磁気異方性発現機構の解明が必要である。

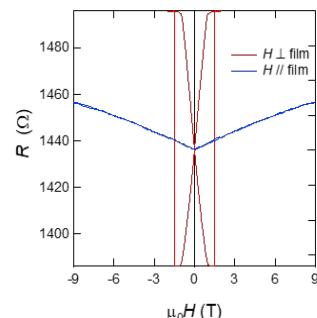


図2 CoGa/Mn(0.7 nm)/MgO 積層電極を用いた TMR 素子の TMR 効果

(3) CoGa シード層を用いた Mn 系垂直磁化超薄膜の磁化反転  
CoGa を用いてスピン軌道トルクによる MnGa 超薄膜の磁化反転を試みた。その結果、CoGa/MnGa/MgO 構造において、垂直磁化層となる MnGa 層の磁化反転に成功した。(図 3) CoGa のスピンホール角は、重元素を含んでいないのにもかかわらず Pt と同等の値を示し、Ga に起因することが示唆された。また、MnGa/Mn 積層構造および CoGa/Mn 積層構造においてもスピン軌道トルクによる磁化反転が可能であることを確認した。本研究において、磁化反転に成功した積層構造は、TMR 素子の主要構造と共通のため、STT に加えて、スピン軌道トルクによる発振アシスト方法が適用可能であることを示唆している。今後の課題として、磁化反転電流の低減化に向けて CoGa シード層の改良が考えられる。

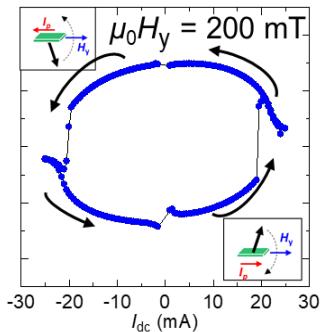


図 3 CoGa/MnGa/MgO 積層構造膜のスピン軌道トルクによる磁化反転。

#### 引用文献

- [1] H. Maehara, et al., Appl. Phys. Exp. 7, 023003(2014)
- [2] K. Z. Suzuki et al., Japanese Journal of Applied Physics (RP) 55, 10305 (2016).
- [3] K. Z. Suzuki et al., Scientific Reports 6, 30249 (2016).

#### 5. 主な発表論文等

##### 〔雑誌論文〕(計 6 件)

K. Kunitatsu, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, Pseudomorphic deposition of L10 MnGa nanolayers at room temperature, Journal of Crystal Growth, 514, 2019, 8-12, DOI:10.1016/j.jcrysgr.2019.02.052

Kazuya Z. Suzuki, Shojiro Kimura, Hitoshi Kubota, Shigemi Mizukami, Magnetic Tunnel Junctions with a Nearly Zero Moment Manganese Nanolayer with Perpendicular Magnetic Anisotropy, ACS Applied Materials & Interfaces, 10, 2018, 43305-43310, DOI:10.1021/acsami.8b15606

K. Z. Suzuki, Y. Miura, R. Ranjbar, A. Sugihara, S. Mizukami, Tunnel magnetoresistance in ultrathin L10 MnGa/MgO perpendicular magnetic tunnel junctions, 51, 2018, 235001, DOI:10.1088/1361-6463/aac00d

K. Z. Suzuki, Y. Miura, R. Ranjbar, L. Bainsla, A. Ono, Y. Sasaki, S. Mizukami, Perpendicular magnetic tunnel junctions with Mn-modified ultrathin MnGa layer, Applied Physics Letters, 112, 2018, 062402, DOI:10.1063/1.5002616

Masahiro Takikawa, Kazuya Z. Suzuki, Reza Ranjbar, Shigemi Mizukami, In-plane current-induced magnetization switching in CoGa/MnGa/MgO films, 10, 2017, 073004, DOI:10.7567/APEX.10.073004

Kazuya Z. Suzuki, Atsuo Ono, Reza Ranjbar, Atsushi Sugihara, Shigemi Mizukami, Effect of Buffer Layer Annealing on the Growth of (001)-Textured MnGa Ultrathin Films With Perpendicular Magnetic Anisotropy, IEEE Transactions on Magnetics, 53, 2017, 1-4, DOI:10.1109/TMAG.2017.2700494

##### 〔学会発表〕(計 18 件)

K. Z. Suzuki, S. Kimura, H. Kubota, S. Mizukami, Perpendicular magnetic anisotropy and tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a Mn nano-layer electrode, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 2019

K. Z. Suzuki, S. Kimura, H. Kubota, S. Mizukami, Tunnel magnetoresistance and electric field effect on large perpendicular magnetic anisotropy observed in magnetic tunnel junctions with a nearly-zero moment Mn nano-layer electrode, 2019 Joint MMM-Intermag - Washington DC (国際学会), 2019

Kazuya Suzuki , Shigemi Mizukami, Development of Mn based nano layer films toward spintronic applications, NIMS 学術シンポジウム, 2018

K. Kanimatsu, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, Lattice distortion of L10-MnGa ultrathin films grown on CoGa templates, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 2018

K. Z. Suzuki and S. Mizukami, Perpendicular magnetic tunnel junction with strained Mn-based synthetic ferrimagnets, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 2018

K. Z. Suzuki, Y. Miura, R. Ranjbar, L. Bainsla, A. Ono, Sasaki, and S. Mizukami, Perpendicular magnetic tunnel junctions using the ultrathin electrode of D022 or L10 MnGa and the effect of the Mn modifications, International Conference on Magnetism 2018 Sanfrancisco (国際学会), 2018

K. Z. Suzuki, A. Ono, and S. Mizukami, Perpendicular magnetic tunnel junctions using ultrathin  $Mn_xGa_{1-x}$  electrode with different compositions, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018

K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, J. Okabayashi, Y. Miura, A. Sugihara, H. Tsuchiura, and S. Mizukami, Magnetic tunnel junctions using strained L10-ordered MnGa electrodes, Kick-off Symposium for World Leading Research Centers, 2018

Siham Ouardi, Kazuya Z. Suzuki, and Shigemi Mizukami, High perpendicular magnetic anisotropy in D022 MnGa-based Heusler ultrathin films, MMM conference, Pittsburg, US (国際学会) , 2017

M. Takikawa ,K. Z. Suzuki ,R. Ranjbar ,S. Mizukami, Current-induced switching of perpendicularly magnetized CoGa / L10 MnGa / MgO structures, MMM conference, Pittsburg, US (国際学会), 2017

Kazuya Z. Suzuki ,Reza Ranjbar ,Lakhan Bainsla, Atsuo Ono, Yuta Sasaki ,Jun Okabayashi ,Yoshio Miura, and Shigemi Mizukami, Enhancement of tunnel magnetoresistance and perpendicular magnetic anisotropy in magnetic tunnel junctions with Mn-modified MnGa electrodes, MMM conference, Pittsburg, US (国際学会) ,2017

Kazuya Z. Suzuki ,Reza Ranjbar ,Lakhan Bainsla, Atsuo Ono, Yuta Sasaki ,Yoshio Miura, and Shigemi Mizukami, Perpendicular magnetic tunnel junctions using ultra-thin Mn-based electrodes, International Symposium on Spintronic Memory, Circuit and Storage (国際学会) , 2017

M. Takikawa ,K. Z. Suzuki ,R. Ranjbar ,S. Mizukami, Current induced magnetization switching of perpendicularly magnetized ultrathin L10-MnGa films, 第 78 回応用物理学学会秋季学術講演会, 2017

K. Z. Suzuki ,R. Ranjbar ,Lakhan Bainsla, Atsuo Ono, Yuta Sasaki ,J. Okabayashi ,Y. Miura, and S. Mizukami, Enhancement of spin-dependent transport in magnetic tunnel junctions with Mn-modified ultrathin MnGa electrodes, 第 78 回応用物理学学会秋季学術講演会,

Masahiro Takikawa, Kazuya Z. Suzuki, Reza Ranjbar, and Shigemi Mizukami, Current-induced switching in paramagnetic-CoGa buffer / L10 MnGa / MgO structure with a perpendicular magnetic anisotropy, SSDM 2017, Sendai (国際学会), 2017

Kazuya Suzuki, Reza Ranjbar, Shigemi Mizukami, Perpendicular magnetic tunnel junctions using ultrathin MnGa electrodes, TMRC 2017, Tsukuba (国際学会) , 2017

K. Z. Suzuki ,R. Ranjbar ,A. Sugihara and S. Mizukami, Thickness and annealing temperature dependence of magnetic tunnel junctions using ultra-thin MnGa electrode, Intermag 2017 Dublin (国際学会) , 2017

Atsuo Ono, Kazuya Z. Suzuki, Reza Ranjbar, Atsushi Sugihara, and Shigemi Mizukami, Highly (001)-textured Mn-Ga polycrystalline ultrathin films with a perpendicular magnetic anisotropy, Intermag 2017 Dublin (国際学会) , 2017

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 2 件)

名称：磁気素子、磁気記憶装置及び発振装置

発明者：鈴木和也、水上成美

権利者：鈴木和也、水上成美

種類：特許

番号：2017-90428

出願年：2017

国内外の別：国内

名称：磁気素子、磁気記憶装置及び発振装置

発明者：鈴木和也、水上成美

権利者：鈴木和也、水上成美

種類：特許

番号：2017 - 101198

出願年：2017

国内外の別：国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

[https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami\\_lab/](https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami_lab/)

6. 研究組織

(1)研究分担者 該当なし

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：滝川 真弘

ローマ字氏名：Masahiro Takikawa

研究協力者氏名：國松 和眞

ローマ字氏名：Kazuma Kunimatsu

研究協力者氏名：今藤 由紀夫

ローマ字氏名：Yukio Kondo

研究協力者氏名：Siham Ouardi

ローマ字氏名：Siham Ouardi

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。