

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600070

研究課題名(和文)三端子スピン素子創出のための半金属ハーフメタル新材料の探求

研究課題名(英文)Exploring of new semimetallic half-metals for three terminal devices

研究代表者

水上 成美(Mizukami, Shigemi)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・教授

研究者番号：00339269

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：半金属性とハーフメタル性を有する新材料を探索する目的で、マンガン・コバルト・ガリウム(Mn-Co-Ga)について研究した。スパッタ法でMn-Co-Ga単結晶薄膜を作製した。電気抵抗は室温で大きな値を示し、金属的な温度依存性を示した。ホール係数は組成によって符号が変化するものの、半金属に特有の大きなホール係数は観測されなかった。Mn-Co-Ga単結晶薄膜を用いたトンネル磁気抵抗素子は、低温で磁気抵抗比が急激に増大する傾向を示し、その接合抵抗はCoを含まないMn-Ga電極と比較して約1桁程度大きいことが分かった。これらの実験結果は、Mn-Co-Gaの特異な電子状態を反映しているものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Mn-Co-Ga alloys have been studied for exploring of new materials having both half-metallic and semi-metallic properties. Single phase Mn-Co-Ga epitaxial films with cubic structure have been successfully grown on MgO single crystalline substrate. The films showed large electrical resistivity and metallic temperature dependence of resistivity. The Hall coefficient for the films changed the sign depending on Co concentration while their absolute values were not large, as expected in semimetal. On the other hand, magnetic tunnel junctions with Mn-Co-Ga electrode showed the enhanced magnetoresistance at low temperature and the junction resistance larger by a factor of ten than that of the junction with Co non-doped Mn-Ga. These results indicated that Mn-Co-Ga had unique electronic states.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：ハーフメタル 磁気抵抗素子 半金属 ホイスラー合金 エピタキシャル

1. 研究開始当初の背景

アップあるいはダウンスピン電子のバンド構造のフェルミ準位近傍にバンドギャップを有し、スピンの完全分極した Co_2MnSi に代表されるホイスラー合金を中心としたいわゆるハーフメタル材料は、十年ほど前から国内外で精力的な研究が行われ、トンネル磁気抵抗素子やスピン注入を利用した素子の特性を飛躍的に向上させることに成功した。一方ごく最近、非常に薄い Fe や Co 超薄膜の界面垂直に電圧を印加することでその磁気的特性を可逆に変調できることが報告され、新しい現象として脚光を浴びている。しかしながら、その印加電圧による変化は大きくなくその高効率化が応用上重要となっている。ごく最近、Mn-Co-Al や Mn-Co-Ga の三元合金が半金属性のハーフメタルになり得る可能性が示唆された[1]。スピンは完全分極している上、伝導を担うスピンバンドのフェルミ準位における状態数が少なく半金属的になっており、キャリア密度が金属と比較して小さい。したがって、Mn-Co-Al や Mn-Co-Ga においては、電子状態が半導体同様電界によって容易に変調できる可能性があり、電界効果やそれを用いた三端子素子に用いることができる可能性がある。

2. 研究の目的

上に述べたような高スピン分極率を有する半金属、いわゆる半金属的なハーフメタル材料を探索し、さらに、その材料をベース電極に用いたゲート電極を有するプレーナ三端子素子を作製し、ゲート電圧印加によるスピン輸送特性のチューニングを目指す。

3. 研究の方法

(1) 期待される材料

L_2 型ないし D_0_3 結晶構造を有するホイスラー合金は X_2YZ の元素組成を有する合金・化合物であり、X, Y, Z に入る元素の種類によって強磁性金属、ハーフメタル、非磁性半金属になることが知られている。(MnCo)MnAl (X=Mn-Co, Y=Mn, Z=Al, Ga) の場合には逆ホイスラーと呼ばれる構造をとりアップスピンがギャップレスの半金属的状态、ダウンスピンはバンドギャップを有する絶縁体的状態を有することが理論的に示されている。代表者はこれまで MnGa 系の研究を行っており、これをベースとして本計画では Mn_2CoGa 逆ホイスラー合金を中心とした半金属ハーフメタルを探索した。

(2) 試料の作製

超高真空マグネトロンスパッタ法を用いた二元ならびに三元系の合金・化合物薄膜を作製した。その際、コスパッタ法も併用した。主に酸化マグネシウム (MgO) 単結晶基板を用い、成長温度・アニール温度を最適化することで良質のエピタキシャル薄膜の形成を行った。

(3) 評価方法

試料の結晶構造を薄膜 X 線構造解析、表面については原子間力顕微鏡を用いて評価した。磁気特性の評価には、振動試料型磁力計と強磁性共鳴を用いた。半金属性の評価のために、電気伝導やホール効果など輸送特性を標準的な四端子法で測定した。また、試料のハーフメタル性の知見を得るために、フォトリソグラフィとイオンミリングを用いてミクロンサイズのトンネル磁気抵抗素子を作製し評価した。

4. 研究成果

(1) Mn-Co-Ga エピタキシャル単結晶薄膜の作製と半金属性の評価

MgO 基板上にコスパッタ法を用いて、厚みが 50-100nm 程度の Mn_2CoGa 単結晶薄膜を作製した。成長温度を最適化することで、(001) 面の配向した、立方晶単相のエピタキシャル薄膜を得ることに成功した。構造解析の結果、規則構造を示す (002) 回折線が明瞭に見られるとともに (図 1 (a))、格子定数はバルクに近い良質な結晶が得られた。試料は弱い磁気異方性を示し、面内磁気異方性を有することが分かった (図 1 (b))。また、飽和磁化は 200-500 emu/cc であり、Co の組成に大きく依存し、バルクの報告値とほぼ一致する結果である。

これらの試料の電気抵抗は室温で大きな値を示し、金属的な温度依存性を示したため、半金属的な性質あるいは電子状態密度に異常があると推測される。また、ホール係数や異常ホール係数は、組成によって符号が変わるものの、半金属性に特有の大きなホール係数は観測されなかった。

(2) Mn-Co-Ga エピタキシャル単結晶薄膜を用いたトンネル磁気抵抗素子の評価とスピン分極率

まず、Mn-Co-Ga エピタキシャル単結晶薄膜を用いたトンネル磁気抵抗素子の磁気抵抗比の Co 組成依存性を調べた。素子形成には平坦な界面が求められるため、下地に Cr を用いその上に Mn-Co-Ga のエピタキシャル単結晶を成長した。トンネル磁気抵抗素子の磁気抵抗比のアニール温度依存性を調べたところ、 Mn_3Ga に近い組成の場合には約 300 度のアニール温度でブロードな極大を示すが、 Mn_2CoGa の組成に近い Mn-Co-Ga を用いた素子では、約 300 度付近まではほぼ一定で、350 度付近から増大する傾向を示した (図 2)。

次に、素子の輸送特性の温度依存性を調べた。 Mn_3Ga に近い組成の場合には磁気抵抗比は低温になるにつれて単調に増大するものの、 Mn_2CoGa の組成に近い Mn-Co-Ga を用いた素子は、低温で磁気抵抗比が急激に増大し約 30% の値であった。この磁気抵抗比の低温における増大は、 Co_2MnSi などハーフメタルホイスラーによく見られる傾向であり、Mn-Co-Ga が比較的大きなスピン分極率を有する可能性を示

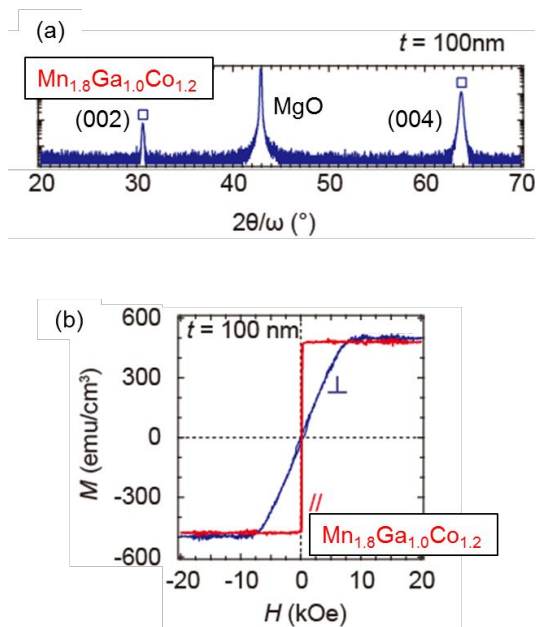


図 1 Mn-Co-Gaエピタキシャル単結晶薄膜のX線回折パターン(a) .薄膜の(002)規則線反射が明瞭に見られる .磁化曲線 (b) の一例 . 磁場が膜面内の場合 (//) と膜面直 (⊥) の場合の測定結果を示している .

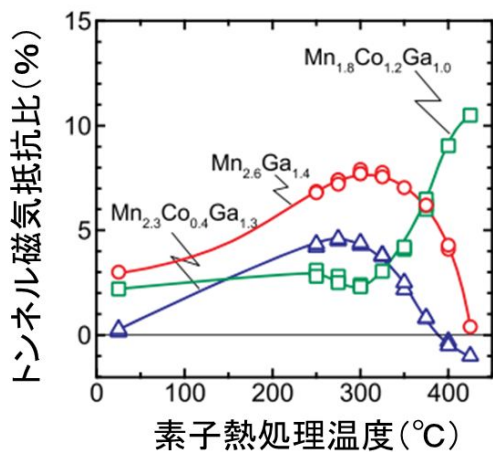


図 2 トンネル磁気抵抗比の熱処理温度依存性 . 三つのことなる組成の電極の結果を示している .

唆する結果である . さらに , Mn-Co-Ga電極を有するトンネル磁気抵抗素子の素子抵抗は , Coを含まないMn-Ga電極と比較して約1桁程度大きいことが分かった . トンネル抵抗は , フェルミ準位の状態密度に比例する傾向があり , これらの結果は , Mn-Co-Gaの特異な電子状態を反映しているものと考えられる . 結晶性や合金の規則度をより改善することで , 期待される半金属性とハーフメタル性が得られる

可能がある .

< 引用文献 >

Ouardi et al. , arXiv:1210.0148 (2012) .

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 7 件)

Magnetic dichroism study on $Mn_{1.8}Co_{1.2}Ga$ thin film using a combination of x-ray absorption and photoemission spectroscopy, S. Ouardi, G. H. Fecher, T. Kubota, S. Mizukami, E. Ikenaga, T. Nakamura, and C. Felser, J. Phys. D: Appl. Phys. 48, 164007 (2015). 査読有
DOI: 10.1088/0022-3727/48/16/164007

TETRAGONAL HEUSLER-LIKE Mn-Ga ALLOYS BASED PERPENDICULAR MAGNETIC TUNNEL JUNCTIONS, Q. MA, A. SUGIHARA, K. SUZUKI, X. ZHANG, T. MIYAZAKI, and S. MIZUKAMI, SPIN 04, 1440024 (2014). 査読有
DOI: 10.1142/S2010324714400244

Tunnel magnetoresistance effect using perpendicularly magnetized tetragonal and cubic Mn-Co-Ga Heusler alloy electrode, T. Kubota, S. Mizukami, Q. L. Ma, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, J. Appl. Phys. 115, 17C704 (2014). 査読有
DOI: 10.1063/1.4855016

Static and dynamic magnetic properties of cubic Mn-Co-Ga Heusler films, A. S. Demiray, T. Kubota, S. Iihama, S. Mizukami, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, and Y. Ando, J. Appl. Phys. 115, 17D133 (2014). 査読有
DOI: 10.1063/1.4864250

Abrupt Transition from Ferromagnetic to Antiferromagnetic of Interfacial Exchange in Perpendicularly Magnetized $L1_0$ -MnGa/FeCo Tuned by Fermi Level Position, Q. L. Ma, S. Mizukami, T. Kubota, X. M. Zhang, Y. Ando, and T. Miyazaki, Phys. Rev. Lett. 112, 157202 (2014). 査読有
DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.157202

[学会発表] (計 14 件)

The interfacial exchange coupling in cubic Heusler/tetragonal Heusler Mn_3Ga Bilayers, R. Ranjibar, S. Mizukami, Q. Ma, A. Sugihara, K. Suzuki, X. Zhang, Y. Ando, and T. Miyazaki, 59th Magnetism and Magnetic Material Conference(MMM), Hawaii, USA, Nov. 7th, 2014.

Tetragonal Mn-Ga Heusler based hybrids for spintronics applications, Q. L. Ma, S. Mizukami, and T. Miyazaki, 3rd International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (IcAUMS), Hainan, China, Oct. 28th-Nov.1st, 2014. (招待講演)

Tetragonal Mn-based metallic ferrimagnets for spintronics applications, S. Mizukami, A. Sugihara, Q. L. Ma, X. M. Zhang, T. Miyazaki, e-MRS Spring Meeting, Lille, France, May 27, 2014. (招待講演)

Mn系垂直磁化薄膜 - 磁性, 磁気緩和, およびトンネル接合 -, 水上成美, 第58回ナノマグネティクス専門研究会(日本磁気学会), 中央大学, 2014年5月23日。(招待講演)

Magnetoresistance effect of perpendicularly magnetized tetragonal- or cubic- Mn-Co-Ga Heusler alloy electrode Takahide Kubota, Shigemi Mizukami, Hiroshi Naganuma, Mikihiro Oogane, Yasuo Ando, Terunobu Miyazaki, 58th Annual Conference on MMM, Denver, Nov 8, 2013.

Static and dynamic magnetic properties of cubic $Mn_{3-x}Co_xGa$ Heusler thin films, Ahmet S. Demiray, Takehide Kubota, Satoshi Iihama, Shigemi Mizukami, Terunobu Miyazaki, Hiroshi Naganuma, Mikihiro Oogane, Yasuo Ando, 58th Annual Conference on MMM, Denver, Nov 6, 2013.

Mn-Co-Ga 電極を用いた垂直磁化トンネル接合における磁気抵抗効果, 窪田崇秀, 水上成美, 永沼博, 大兼幹彦, 安藤康夫, 宮崎照宣, 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学, 2013年9月18日.

ホイスラー型 Mn-Co-Ga エピタキシャル薄膜の作製とトンネル磁気抵抗効果, 窪田崇秀, Siham Ouardi, 水上成美, G. H. Fecher, C. Felser, 永沼博, 大兼幹彦, 安藤康夫, 宮崎照宣, 第37回日本磁気学会学術講演会, 北海道大学, 2013年9月3日.

〔その他〕

ホームページ等

http://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・原子分子材料科学高等研究機構・教授