

機関番号：11301

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2010

課題番号：19048002

研究課題名（和文） 高効率スピン源の理論設計

研究課題名（英文） Theoretical Design of Efficient Spin Sources

研究代表者

白井 正文 (SHIRAI MASAFUMI)

東北大学・電気通信研究所・教授

研究者番号：70221306

研究成果の概要（和文）：

高スピン偏極材料（ハーフメタル）や垂直磁気材料を用いた磁気抵抗素子の出力向上ならびに半導体へのスピン注入効率の改善を目的とし、第一原理計算に基づいて高効率スピン源を理論設計した。界面に至るまで高スピン偏極が保持されるハーフメタルと非磁性材料のヘテロ接合を提案することに成功し、界面での原子配列不規則化やスピン配列の熱揺らぎが、スピン依存伝導特性に及ぼす影響を解明した。外部電界による磁気異方性変調についても理論検討した。

研究成果の概要（英文）：

We carried out theoretical design of efficient spin sources on the basis of first-principles calculations in order to improve the output of magnetoresistive devices with use of highly spin-polarized materials (half metals) or perpendicularly magnetized materials and to improve the efficiency of spin injection into semiconductors. We successfully proposed the hetero-junctions which preserve high spin polarization even at the interfaces between half metals and non-magnetic materials. We elucidated the effects of atomic disorder or thermal fluctuation of spin configurations on spin-dependent transport properties. We also investigated the modulation of magnetic anisotropy by external electric field.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	3,500,000	0	3,500,000
2008年度	4,400,000	0	4,400,000
2009年度	4,400,000	0	4,400,000
2010年度	3,500,000	0	3,500,000
総計	15,800,000	0	15,800,000

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：スピントロニクス、スピン流、第一原理計算、ハーフメタル、垂直磁気材料

## 1. 研究開始当初の背景

次世代超高密度磁気ディスク装置の読出ヘッドや不揮発性スピンメモリの基幹要素であるトンネル磁気抵抗素子は、電気伝導に寄与する電子スピンの偏極したスピン流を

活用したエレクトロニクス素子の典型例である。スピントロニクス研究の持続的な進展を期するためには、高効率にスピン流を創出するスピン源の探索が不可欠である。研究代表者は、これまでに多くの高スピン偏極材料

(ハーフメタル) の理論設計に成功している。例えば、新材料の閃亜鉛型 CrAs を実験に先駆けて提案することに成功し、ホイスラー合金における原子配列不規則性や半導体とのヘテロ接合形成がスピン偏極率に及ぼす影響を理論的に解明する成果を挙げてきた。

## 2. 研究の目的

ハーフメタルや垂直磁気材料を利用したトンネル磁気抵抗素子や巨大磁気抵抗素子の出力向上、ならびにスピトランジスタ実現に不可欠な要素技術である半導体へのスピン注入効率の改善を最終目標とし、所望の機能を発現する素子構造を、電子状態の第一原理計算に基づいて理論設計する。それにより、本特定領域に参加している実験グループにスピン源の探索・創製の指針を与え、領域の研究目標達成を促進することが期待できる。また、理論設計に立脚した新材料創成・機能創出は、新しい時代の新しい「ものづくり」を象徴する里程碑として意義がある。

## 3. 研究の方法

バルクにおいてハーフメタル特性を示すホイスラー合金と非磁性金属・半導体・酸化物を接合した系の電子状態を第一原理計算して、接合界面に至るまで高スピン偏極率を保持するヘテロ接合を理論設計した。また、設計されたヘテロ接合の界面付近における原子配列不規則性やスピン配列の熱揺らぎが、スピン源としての性能に及ぼす影響を、理論的に評価するとともに、これを回避する方策を検討・提案した。さらに、素子の微細化に伴う熱揺らぎ耐性の向上のために、外部電界で磁気異方性を制御することができるナノ構造を理論設計した。

高スピン偏極ホイスラー合金を利用した高効率スピン源の理論設計は、研究代表者と中心とした東北大学の研究グループが担当した。外部電界による磁気異方性制御の理論検討は、金沢大学の研究グループが実施し、高エネルギー分光を用いた実験検証は、広島大学の研究グループが担当した。

## 4. 研究成果

(1) 高スピン偏極ホイスラー合金を電極に用いたトンネル磁気抵抗素子における温度上昇に伴う磁気抵抗比の低下の原因を明らかにするため、ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  の価電子バンド構造を硬 X 線光電子分光により観測した。その結果、図 1 に示すように、室温と低温におけるバンド構造に顕著な変化はなかった。この結果は動的平均場近似に基づく理論計算の結果と対照的であり、温度上昇に伴うトンネル磁気抵抗特性の劣化は、スピンの熱揺らぎに伴うバルクの電子構造の変化では解釈できないことを明確に示した。

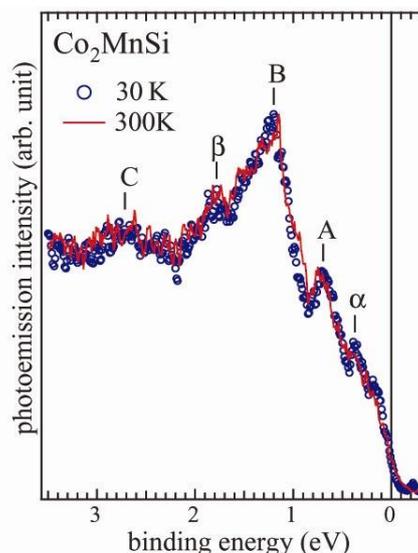


図 1 高スピン偏極ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  の価電子バンド光電子スペクトルの温度変化 (発表論文⑧)。

(2) 高スピン偏極ホイスラー合金を電極に用いたトンネル磁気抵抗素子における温度上昇に伴う磁気抵抗比の低下の一つの要因が、電極と酸化物障壁の接合界面に形成される局在電子状態を介したスピン反転トンネル過程にあると考え、接合界面に至るまで高スピン偏極率が保持される磁気トンネル接合を第一原理計算に基づいて理論設計した。その結果、図 2 に示すように  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}(100)$  接合に挿入することにより、高スピン偏極界面が実現されることを初めて見出した。界面における Cr 原子の磁気モーメントの著しい増大が、その要因であることを解明した。

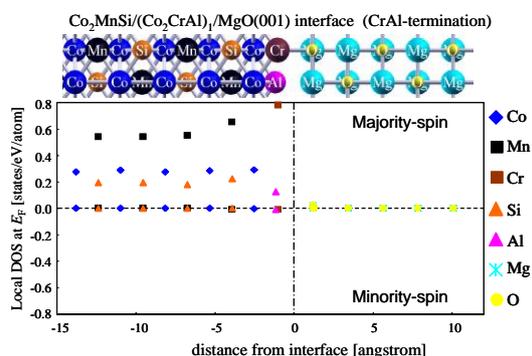


図 2 高スピン偏極ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Co}_2\text{CrAl}/\text{MgO}(100)$  界面の局所状態密度 (発表論文⑩)。

(3) 高スピン偏極ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  と  $\text{MgO}$  の接合界面は、その終端面が  $\text{Co}$  終端か  $\text{MnSi}$  終端かによって、界面におけるスピン偏極率が異なる。そこで  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$  接合において実現している終端面が、いずれの構造であるかを、X線吸収磁気円二色性測定により決定した。その結果、図3に示すように、 $\text{Fe}/\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$  (100) 積層構造における  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  膜厚の減少に伴って、 $\text{Co}$  スピン磁気モーメントが増大することを見出した。第一原理計算の結果と比較することにより、このスピン磁気モーメントの  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  膜厚依存性は、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$  接合界面が  $\text{MnSi}$  終端であることの証拠であることを解明した。

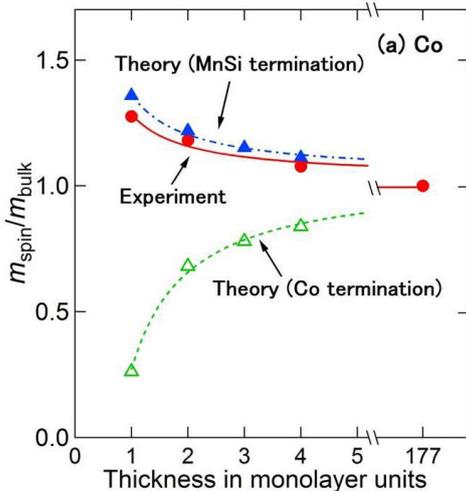


図3  $\text{Fe}/\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ (100) 積層構造における  $\text{Co}$  スピン磁気モーメントの  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  膜厚依存性 (発表論文⑤)。

(4) 高スピン偏極ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  と  $\text{MgO}$  の界面でのスピンの熱揺らぎがトンネル磁気抵抗特性に及ぼす影響を理論的に検討した。接合界面付近の各原子層のスピン磁気モーメントを傾けた際の磁気的エネルギーの変化を計算した。その結果、界面付近の  $\text{Co}$  原子のスピン磁気モーメントが温度上昇に伴って揺らぎ易いことを確認した。この局在磁気モーメントの熱揺らぎがトンネル電子のスピン反転を促進して、室温における磁気抵抗比の顕著な低下の要因になっていることを明確に示した。

(5) 高スピン偏極ホイスラー合金を用いた膜面垂直電流型巨大磁気抵抗素子における磁気抵抗比を向上させるために、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/$ 非磁性金属/ $\text{Co}_2\text{MnSi}$  三層構造の電気伝導特性を第一原理計算した。非磁性金属スペーサとして  $\text{Ag}$  を用いた場合、多数スピン電子の電気伝導は、 $\text{Cr}$  スペーサの場合より大きくなる。この傾向は実験結果とよい一致を示してい

る。両者の電気伝導特性の違いは、ホイスラー合金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いることを解明した。

(6) 半導体への高効率スピン注入を実現するため、高スピン偏極ホイスラー合金と IV 族半導体のヘテロ接合の電子構造を第一原理計算し、界面においても高スピン偏極率が保持されるヘテロ接合を探索した。その結果、ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  と  $\text{Si}$  の(110)界面において、高スピン偏極率が保持されることを初めて見出した。この(110)界面には対称性の異なる IV 族原子位置が存在することが、その要因である。ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  は高い強磁性転移温度を示し、 $\text{Si}$  熱酸化膜上に規則合金として形成可能であるので、 $\text{Si}$  への高効率スピン注入源として有望である。

(7) トンネル磁気抵抗素子の微細化に伴う磁化の熱ゆらぎ耐性の向上のため、垂直磁気異方性を示す強磁性材料を電極に用いた  $\text{FePt}/\text{MgO}/\text{FePt}$ (100) 接合における界面への  $\text{Fe}$  原子層挿入によるトンネル磁気抵抗比の向上の可能性について、第一原理計算に基づいて理論的に検討した。膜厚の異なる  $\text{Fe}$  原子層を  $\text{MgO}$  障壁の両側界面に挿入した場合のスピン依存伝導を計算した。その結果、図4に示すように、3~4 原子層の  $\text{Fe}$  原子層挿入により、 $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$  (100) 接合と同程度の1000%を超える巨大な磁気抵抗比が得られることを理論的に検証した。

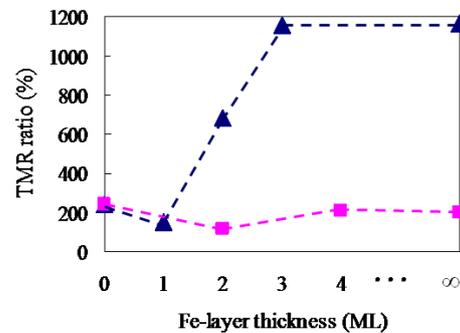


図4  $\text{FePt}/\text{MgO}/\text{FePt}$ (100) 接合界面に挿入された  $\text{Fe}$  原子層数とトンネル磁気抵抗比の関係。▲は  $\text{Fe}$  原子層を  $\text{MgO}$  障壁の両側に、■は片側に挿入した場合。

(8) 垂直磁気異方性を示す  $\text{Pt}/\text{Fe}/\text{Pt}$ (001) および  $\text{MgO}/\text{Pt}/\text{Fe}/\text{Pt}$ (001) 薄膜における磁気異方性の電界依存性を第一原理計算した。 $\text{MgO}$  を接合することにより、磁気異方性の電界依存性は、 $\text{MgO}$  の比誘電率に比例して増大することを理論的に初めて見出した。

## 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 2 2 件)

- ① Y. Miura, K. Abe, M. Shirai, Effects of interfacial noncollinear magnetic structures on spin-dependent conductance in  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}/\text{Co}_2\text{MnSi}$  magnetic tunnel junctions: A first-principles study, *Physical Review B*, 掲載決定, 査読有.
- ② M. Tsujikawa, S. Haraguchi, T. Oda, Y. Miura, M. Shirai, A comparative *ab initio* study on electric-field dependence of magnetic anisotropy in  $\text{MgO}/\text{Fe}/\text{Pt}$  and  $\text{MgO}/\text{Fe}/\text{Au}$  films, *Journal of Applied Physics*, Vol. 109, Article No. 07C107, pp. 1-3, 2011, 査読有.
- ③ Y. Sakuraba, K. Izumi, T. Iwase, S. Bosu, K. Saito, K. Takanashi, Y. Miura, K. Futatsukawa, K. Abe, M. Shirai, Mechanism of large magnetoresistance in  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Ag}/\text{Co}_2\text{MnSi}$  devices with current perpendicular to the plane, *Physical Review B*, Vol. 82, Article No. 094444, pp. 1-5, 2010, 査読有.
- ④ M. Ye, A. Kimura, Y. Miura, M. Shirai, Y. Cui, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, S. Ueda, K. Kobayashi, R. Kainuma, T. Shishido, K. Fukushima, T. Kanomata, Role of electronic structure on martensitic phase transition of  $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Sn}_{1-x}$  studied by hard-x-ray photoelectron spectroscopy and *ab initio* calculation, *Physical Review Letters*, Vol. 104, Article No. 176401, pp. 1-4, 2010, 査読有.
- ⑤ T. Saito, T. Katayama, T. Ishikawa, M. Yamamoto, D. Asakura, T. Koide, Y. Miura, M. Shirai, Interface structure of half-metallic Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  thin films facing an  $\text{MgO}$  tunnel barrier determined by x-ray magnetic circular dichroism, *Physical Review B*, Vol. 81, Article No. 144417, pp. 1-6, 2010, 査読有.
- ⑥ M. Tsujikawa and T. Oda, Finite electric field effects in the large perpendicular magnetic anisotropy surface  $\text{Pt}/\text{Fe}/\text{Pt}$  (001): A first-principles study, *Physical Review Letters*, Vol. 102, Article No. 247203, pp. 1-4, 2009, 査読有.
- ⑦ S. Mizukami, D. Watanabe, M. Oogane, Y. Ando, Y. Miura, M. Shirai, T. Miyazaki, Low damping constant for  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  Heusler alloy films and its correlation with density of states, *Journal of Applied Physics*, Vol. 105, Article No. 07D306, pp. 1-3, 2009, 査読有.
- ⑧ K. Miyamoto, A. Kimura, Y. Miura, M. Shirai, M. Ye, Y. Cui, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, Y. Takeda, Y. Saitoh, E. Ikenaga, S. Ueda, K. Kobayashi, T. Kanomata, Absence of temperature dependence of the valence-band spectrum of  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ , *Physical Review B*, Vol. 79, Article No. 100405 (R), pp. 1-4, 2009, 査読有.
- ⑨ K. Abe, Y. Miura, Y. Shiozawa, and M. Shirai, Half-metallic interface between a Heusler alloy and Si, *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol. 21, Article No. 064244, pp. 1-5, 2009, 査読有.
- ⑩ Y. Taniguchi, Y. Miura, K. Abe, M. Shirai, Theoretical studies on spin-dependent conductance in  $\text{FePt}/\text{MgO}/\text{FePt}$  (001) magnetic tunnel junctions, *IEEE Transactions on Magnetics*, Vol. 44, pp. 2585-2588, 2008, 査読有.
- ⑪ Y. Miura, H. Uchida, Y. Oba, K. Abe, and M. Shirai, Half-metallic interface and coherent tunneling in  $\text{Co}_2\text{YZ}/\text{MgO}/\text{Co}_2\text{YZ}$  (YZ = MnSi, CrAl) magnetic tunnel junctions: A first-principles study, *Physical Review B*, Vol. 78, Article No. 064416, pp. 1-9, 2008, 査読有.
- ⑫ M. Tsujikawa, A. Hosokawa, T. Oda, Magnetic anisotropy of  $\text{Fe}/\text{Pt}$  (001) and  $\text{Pt}/\text{Fe}/\text{Pt}$  (001) using a first-principles approach, *Physical Review B*, Vol. 77, Article No. 054413, pp. 1-10, 2008, 査読有.

[学会発表] (計 6 6 件)

- ① Y. Miura, A first-principles study on spin-flip scattering at interfaces of magnetic tunnel junctions with half-metal, International Conference of the Asian Union of Magnetics Society 2010, 2010/12/8, Jeju Island, Korea.
- ② M. Shirai, Computational design of half-metallic ferromagnets: The status quo and outlook, International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials, 2010/6/3, 吹田市.

- ③ 白井正文, ホイスラー合金を用いた高効率スピン源の理論設計, 日本金属学会 2010 年春季(第 146 回)大会, 2010/3/30, つくば市.
- ④ M. Shirai, Computational design of half-metallic ferromagnets, York University-Tohoku University Joint Seminar, 2009/1/19, 仙台市.
- ⑤ M. Shirai, Half-metallic ferromagnets: The status quo and outlook, Hitachi Spintronics Workshop, 2008/11/20, 国分寺市.
- ⑥ M. Shirai, Computational design of highly spin-polarized ferromagnet/semiconductor interfaces, CNSI-RIEC Workshop on Nanoelectronics, Spintronics and Photonics, 2008/10/9, Santa Barbara, USA.
- ⑦ 白井正文, The electronic structure of half-metallic ferromagnet/semiconductor junctions, 第 32 回 日本磁気学会 学術講演会, 2008/9/12, 多賀城市.
- ⑧ 白井正文, 高スピン偏極ホイスラー合金からシリコンへのスピン注入の理論, 2008 年秋季 第 69 回 応用物理学会学術講演会, 2008/9/3, 春日井市.

[図書] (計 2 件)

- ① 白井正文, スピンエレクトロニクスの基礎と材料・応用技術の最前線, 第 15 章 高効率スピン源の理論設計, シーエムシー出版, pp. 173-182, 2009.
- ② M. Shirai, Y. Miura, K. Abe, Epitaxial Ferromagnetic Films and Spintronic Applications, Chap. 8. First-principles calculations of half-metallic Heusler alloys: The effect of atomic disorder and interfaces, Research Signpost, pp. 187-205, 2009.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

白井 正文 (SHIRAI MASAFUMI)  
 東北大学・電気通信研究所・教授  
 研究者番号: 7 0 2 2 1 3 0 6

### (2) 研究分担者 該当なし

### (3) 連携研究者

三浦 良雄 (MIURA YOSHIO)  
 東北大学・電気通信研究所・助教  
 研究者番号: 1 0 3 6 1 1 9 8

阿部 和多加 (ABE KAZUTAKA)  
 東北大学・電気通信研究所・助教  
 研究者番号: 0 0 3 6 1 1 9 7

小田 竜樹 (ODA TATSUKI)  
 金沢大学・理工研究域数物科学系・教授  
 研究者番号: 3 0 2 7 2 9 4 1

木村 昭夫 (KIMURA AKIO)  
 広島大学・大学院理学研究科・准教授  
 研究者番号: 0 0 2 7 2 5 3 4