

令和元年5月29日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2018～2018

課題番号：18H05948

研究課題名(和文) Mn系超低飽和磁化ホイスラー合金を用いた磁気トンネル接合の研究

研究課題名(英文) Tunnel magnetoresistance effect of Mn-based Heusler alloy with ultra low magnetization

研究代表者

土屋 朋生 (Tsuchiya, Tomoki)

東北大学・スピントロニクス学術連携研究教育センター・学術研究員

研究者番号：00827272

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では低磁化材料で高TMR効果発現を目指し、組成比を変更することで結晶構造や高スピン分極率を維持しつつ磁化の値を変化可能なハーフメタルフェリ磁性ホイスラー合金のMn-Co-V-Al薄膜を作製し、そのTMR効果を測定した。作製したMn-Co-V-Al薄膜は組成によって磁化の値が変化し、磁化が補償した試料の作製に成功した。さらにX線回折法の結果において、規則化を示す超格子回折線が明瞭に観察された。Mn₂VAlやMn₂CoAlではそれぞれのスピン分極率に基づく符号のTMR効果が観測された。磁化補償組成では上部電極のCoFeの磁化過程にのみ依存していると考えられる抵抗変化が観測された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究はトータルの磁化がゼロとなるフェリ磁性体を磁気トンネル接合素子の電極に応用した研究である。本研究で注目したMn-Co-V-Al合金は磁化がゼロとなる補償温度が室温付近であり、薄膜でも作製可能であることが本研究で実証されたことで、近年盛んに研究が行われている反強磁性スピントロニクス分野の候補材料としての応用展開が期待できる。また、現状ではまだ抵抗変化量が小さいものの、抵抗変化量が大きくなれば、不揮発性メモリのMRAMの高速動作や高集積度などの効果が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Mn₂(Co-V)Al system is one of candidate for a fully compensated ferrimagnet. The Curie temperature was estimated to be 695 K, which was higher than room temperature. The half-metallicity of Mn₂(Co-V)Al system was demonstrated by first principles calculation. In this research, we fabricated the Mn₂(Co-V)Al films and measured the magnetic properties and the tunnel magnetoresistance effect to prove its half-metallicity. The XRD measurements indicated that Mn₂Co_{0.5}V_{0.5}Al sample showed a (111) super-lattice peak, which corresponding to the L2₁ or XA ordering. The magnetization for Mn-Co-V-Al films were smaller than the bulk value, however, it changed depending the composition like the trend of bulk experiments. The compensation of magnetization was confirmed for Mn₂Co_{0.5}V_{0.5}Al and the TMR effects were observed for Mn₂Co_{0.5}V_{0.5}Al, which depending only CoFe magnetization.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：ホイスラー合金 TMR効果 フェリ磁性

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

インターネットやクラウドコンピューティング、ビッグデータ等の普及によって、世界で生み出される情報量は爆発的な勢いで増加しており、メモリデバイスの高性能化が求められている。そのような社会要請を満たすために、低消費電力かつ高速の次世代不揮発性メモリとして磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)が注目を集めている。MRAMは強磁性体/絶縁体/強磁性体の3層構造からなるトンネル磁気抵抗素子(MTJ)で主に構成されており、絶縁体を挟む2つの強磁性体の磁化の相対角度に応じて素子の電気抵抗が変化するトンネル磁気抵抗(TMR)効果を応用している。

MRAMの高性能化に向けた課題として、①高出力のための高TMR比の発現、②書き込みを行うための電力低下、③漏れ磁場の低下などが挙げられる。TMR比は強磁性体のスピン分極率 P が大きいほど高いとされており、 $TMR \text{ 比} = P_1 P_2 / (1 - P_1 P_2)$ というJulliereの式で表される。スピン分極率とは、Fermi面におけるアップスピンとダウンスピンの状態密度の比であり、ハーフメタルと呼ばれる材料はスピンが完全に分極していると理論予測されており、その開発が盛んに行われている。また、MRAMの書き込み方式として、スピン注入磁化反転を用いるのが主流となっている。スピン注入磁化反転とは、スピン分極した電流を強磁性体に流すことによって、強磁性層の磁化にトルクを与えて磁化の向きを反転させる現象であり、この時の電流密度の大きさは飽和磁化の大きさの2乗に比例するとされている。したがって、低飽和材料は書き込み電流の低減が可能で、書き込みのスピードも向上するので、さらなる高速化の実現も期待できる。また、飽和磁化が小さい材料は漏れ磁場が少ないので、素子を集積化した時の干渉を抑えられる。以上の理由から、MRAMの更なる高性能化に向けて、高いスピン分極率を有する低飽和磁化材料の開発が必要である。

2. 研究の目的

本研究では、低飽和磁化材料のMTJへの応用の指針を得るために、フェリ磁性Mn系ホイスラー合金Mn-Co-V-Al合金に注目して強磁性体電極材料の磁化の大きさとTMR効果の大きさの関係を明らかにすることが目的である。加えて、同様にフェリ磁性ホイスラー合金であるCoFeCrAl合金について、ダンピング定数の測定を行なった。

3. 研究の方法

Mn-Co-V-Al合金はCoとVの組成比を変更することで結晶構造やスピン分極率を維持しつつ磁化の大きさを調整できる材料であることが理論的にも実験的にも報告がされており、磁化の大きさとTMR効果の大きさを議論することに対して適している材料であると考えられる。薄膜試料は超高真空マグネトロンスパッタリング法で作製を用いて、 Mn_2VAl と格子不整合が小さいMgO(100)単結晶基板の上にエピタキシャル成長させた。単膜評価用の試料の構造はMgO(001)基板/Mn-Co-V-Al(30)/MgO(2)/Ru(2) (単位:nm)とした。薄膜の組成はco-sputtering法を用いて調整を行ったが、ここで示す組成は設計値である。Mn-Co-V-Alの成膜時の基板温度は700°Cとした。MTJ試料の構造はMgO(001)基板/Mn-Co-V-Al(30)/Mg(0.4)/MgO(2)/CoFe(5)/IrMn(10)/Ta(3)/Ru(7) (単位:nm)とした。試料の構造評価には、X線回折法(XRD)により結晶構造および規則状態を同定した。磁化測定には振動試料型磁力計(VSM)を用いた。TMR効果の評価は、微細加工を施した素子に4端針法を用いて測定を行った。

CoFeCrAl合金の試料構造はMgO(001)基板/Cr(40)/CoFeCrAl(30)/Ta(3) (単位:nm)で、全層について室温で成膜した。Cr成膜後はin-situで700°Cの熱処理を行い、CoFeCrAl成膜後に400-800°Cの熱処理を行なった。CoFeCrAl薄膜は合金ターゲットを用いて作製し、組成はICP法により化学量論組成に近い組成であることを確認した。試料の構造評価にはXRD、磁化測定にはVSMを用い、ダンピング定数は強磁性共鳴(FMR)によって測定した。

4. 研究成果

(1)単膜の構造評価と磁気特性評価

XRD測定の結果から、 Mn_2VAl および $Mn_2Co_{0.5}V_{0.5}Al$ の組成で、(002)面及び(111)面の超格子回折線が観測された。したがって、これらの試料では $L2_1$ 構造もしくはXA構造に規則化していると考えられる。一方で、 Mn_2CoAl の組成では、(002)面の超格子回折線は観測されたものの、(111)面の超格子回折線が観測されなかったためB2構造の規則度を有する試料であることが示唆された。図1に飽和磁化の組成依存性の結果を示す。 Mn_2VAl および Mn_2CoAl の飽和磁化はバルク値の $2\mu_B$ よりも小さい値となったが、飽和磁化の組成依存性はバルクの先行研究と同様の傾向を示し、 $Mn_2Co_{0.5}V_{0.5}Al$ の組成では磁化が補償する薄膜試料が得られた。

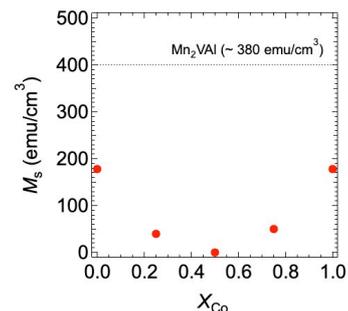


図1: 飽和磁化の組成依存性

(2) TMR 効果

図 2 に Mn_2VAl , Mn_2CoAl , $\text{Mn}_2\text{Co}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{Al}$ 薄膜を用いた TMR カーブの測定結果を示す。図 2(a)では Mn_2VAl の負のスピンの極率に対応して負の TMR 効果が観測された。図 2(b)では、 Mn_2CoAl は正のスピンの極率に対応して正の TMR 効果が観測された。図 2(c)の $\text{Mn}_2\text{Co}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{Al}$ では上部電極の CoFe の磁化過程のみに依存していると考えられる TMR 効果が観測された。これは、 $\text{Mn}_2\text{Co}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{Al}$ の磁化が補償しており、外部磁場の方向によらず常に一定の方向を向いているためであると考えられる。一方で、全ての試料で TMR 効果の値は 1%以下と小さい値を示した。印加磁場が不十分で飽和しない領域での測定になっていることや薄膜試料の規則度が十分でないことが考えられる。さらに、本研究の試料ではバッファ層を導入していないため、 $\text{Mn}_2(\text{Co-V})\text{Al}$ 薄膜の表面が粗く MgO バリア層の質が低いことも考えられる。磁化の大きさと TMR 効果の大きさの関係を議論するためには、今後は適切なバッファ層を導入し、表面が平坦かつ高規則度の試料が作製できる条件を探し、TMR 効果の値を大きくする必要がある。

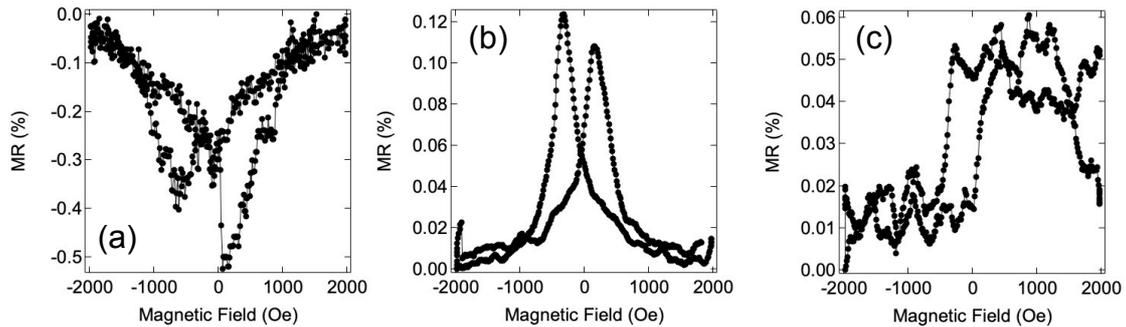


図 2 : (a) Mn_2VAl , (b) Mn_2CoAl , (c) $\text{Mn}_2\text{Co}_{0.5}\text{V}_{0.5}\text{Al}$ の組成における TMR カーブ

(3) CoFeCrAl のダンピング定数

XRD 測定の結果 CoFeCrAl 薄膜は $400\text{-}800^\circ\text{C}$ のアニール温度の範囲内では B2 構造の規則度を有する薄膜が得られたことが示唆された。図 3(a)に飽和磁化、図 3(b)にダンピング定数のアニール温度依存性を示す。飽和磁化はアニール温度が $500\text{-}600^\circ\text{C}$ の時に最大値を取り、バルク値に近い 380 emu/cm^3 を示した。 700°C 以上で磁化が減少したが、これはバッファ層の Cr との相互拡散の影響であると考えられる。ダンピング定数はアニール温度 700°C の時に最低値を取り、 0.005 と低磁化材料では比較的小さい値を示した。

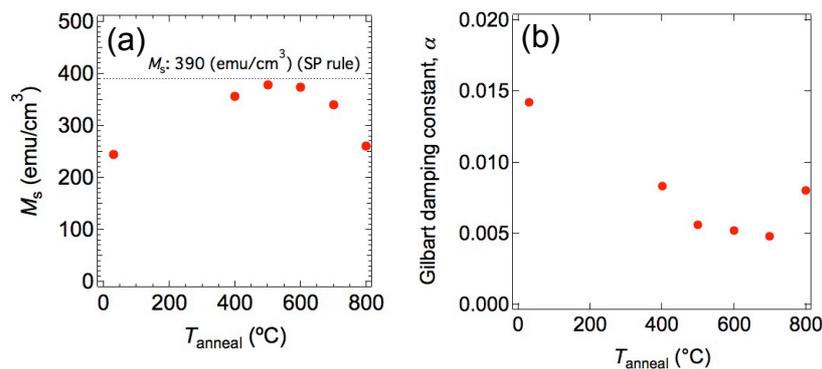


図 3 : (a) 飽和磁化, (b)ダンピング定数の組成依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 0 件）

〔学会発表〕（計 1 件）

(1) Tomoki Tsuchiya, Tufan Roy, Kelvin Elphick, Lakhani Bainsla, Masahito Tsujikawa, Masafumi Shirai, Atsufumi Hirohata, and Shigemi Mizukami, "Magnetization dynamics for the equiatomic Heusler CoFeCrAl alloy epitaxial films and spin-dependent transport in their magnetic tunnel junctions", 2019 JOINT MMM-INTERMAG(国際学会), 2019年

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

なし

※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。