

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：19048006

研究課題名（和文） 金属系多層膜におけるスピンの流と磁気緩和の光学的検出

研究課題名（英文） Optical detection of spin current and magnetization relaxation in metallic multilayers

研究代表者

安藤 康夫 (ANDO YASUO)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60250726

研究成果の概要（和文）：

強磁性金属に対しパルスレーザー光を照射した際にサブピコ秒領域で発生する減磁現象について、ホイスラー合金を中心に調べた。Mn-Ga 合金並びに Co 系垂直磁化膜の超高速減磁時間 τ は励起レーザー強度 P に対し増大する傾向を示し、微視的な理論と傾向が一致した。他方、Ag や Cr 下地上に積層した Co_2MnSi ホイスラー合金の τ は P に対し減少する傾向を示した。

研究成果の概要（英文）：

We investigated ultrafast demagnetization for epitaxial Heusler films using an all-optical pump-probe technique. Values of demagnetization τ_M increased with the laser power P for Mn-Ga alloys and perpendicular magnetized Co-alloys, this is consistent with microscopic theory. On the other hand, τ_M decreased with P for Co_2MnSi Heusler alloys on Ag and Cr buffer layers.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,600,000	0	9,600,000
2008年度	9,600,000	0	9,600,000
2009年度	10,500,000	0	10,500,000
2010年度	9,600,000	0	9,600,000
年度			
総計	39,300,000	0	39,300,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：スピン流、スピン注入、スピン侵入長、強磁性共鳴、トンネル接合、ダンピング定数、スピンドイナミクス、磁気緩和

1. 研究開始当初の背景

スピンを利用した現象は磁性研究者のみならず、半導体分野をも包含したスピントロニクスという学問分野を形成して、スピンを利用した新しい原理に基づく現象の発見およびスピン能動素子創製に向けて日々努力が行われている。スピン能動素子などの創製にはスピンの動的振る舞い、すなわちスピンドイナミクスの理解が不可欠である。特に固体中におけるスピンの緩和現象は、

スピン素子の動作速度と密接に関わるため、近年俄に注目を集め、多くの研究者によって研究が行われ始めてきている。

本研究は金属系におけるピコセカンド時間領域のスピンドイナミクスをポンププローブ分光法により調べる。ピコセカンド領域のスピンドイナミクスは、半導体スピントロニクスの分野においては比較的研究が盛んに行われてきている。金属系においてもいくつかの先駆的な研究があるものの緩和のメ

カニズムに踏み込んで議論されてなく、実験、理論いずれにおいても検討は十分とは言えない。

申請者のグループでは、スピン流創出のために不可欠であるスピン源として期待されているホイスラー合金における高スピン偏極状態および低磁気緩和定数の実現を目指して研究を行ってきている。低温においてはほぼスピン偏極率が 100%である材料の創製に成功しているが、その温度依存性が大きく、室温では 70%程度にとどまる。また、比較的小さな磁気緩和定数が実験的に得られ、材料のスピン軌道相互作用の大きさが関わっていると予想しているがその詳細は明らかになっていない。

2. 研究の目的

本研究は、金属系薄膜においてレーザーで励起した電子がスピン系に緩和する際に誘起するスピンのダイナミクス観測を行う。これにより金属強磁性体、特にホイスラー合金におけるスピン緩和のメカニズムを明らかにすることを旨とする。

3. 研究の方法

(1) 高品位薄膜およびトンネル接合の作製

3d 遷移金属薄膜およびホイスラー合金薄膜を測定の対象とする。ホイスラー合金は原理的にハーフメタルであり片方のスピンのみ励起することが可能であるため、理想的なスピン源となりうる。

(2) ポンププローブ法によるスピンドイナミクス検出

ポンププローブ法を用いて、ピコセカンド領域のスピンドイナミクス検出の測定手段を確立する。基本的なレーザーシステムは申請者がこれまで行ってきた研究で使用したものを用い、本研究用に改造して所望の仕様を満たしているかを検証する。また、試料のスピン分極率、磁気緩和定数を比較して、ピコセカンド領域の緩和過程における関連性を調べる。

(3) 強磁性共鳴によるスピン流の生成と磁気緩和

強磁性共鳴を用いて強磁性からスピン流を生成し、非磁性体内を伝搬した後にもう一方の強磁性内で緩和する過程を調べる。強磁性の膜厚を 0-20 nm の範囲で変化させて、強磁性共鳴の共鳴線幅の変化を解析して、スピン拡散長を見積もる。

4. 研究成果

(1) 高品位薄膜およびトンネル接合の作製

規則構造である $L2_1$ 構造を有する Co_2MnSi 薄膜、およびこれを電極とし MgO を絶縁層としたエピタキシャル成長トンネル接合を作製した。スパッタ条件、基板温度、

熱処理温度を系統的に検討した結果、低温で 753%、室温で 217%の磁気抵抗比を得た。また、ハーフメタルホイスラー合金を電極に用いた強磁性トンネル接合において、室温で高い磁気抵抗効果を得るために、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ 界面に Co_2MnAl 、 CoFe 、 CoFeB の極薄膜を挿入し、界面電子状態の制御を試みた。これらのうち、0.5 nm の CoFe を界面挿入した場合において、2 K で 947%、室温で 350% の磁気抵抗比を得た。さらに、 $\text{CMS}/\text{CoFe}(0.5)/\text{MgO}/\text{CoFe}(0.5)/\text{CMS}$ 接合において、室温で 245%、2 K で 1275% の磁気抵抗比を得た。磁気抵抗比の温度依存性は CoFe を界面挿入しない場合と比較して若干改善された。また、温度依存性改善の要因を調べるためにトンネル伝導特性を評価し、界面における非弾性散乱の減少が要因の一つであることを明らかにした。理論的に CMS/MgO 界面準位を消失させると期待される Co_2MnAl を挿入したところ、トンネルコンダクタンス特性において、ゼロバイアスアノマリーが減少し、界面準位が減少したことが明らかとなった。

(2) ポンププローブ法によるスピンドイナミクス検出装置の構築

ポンププローブ法を用いて、ピコセカンド領域のスピンドイナミクスを検出するための光学系を構築した。基本的なレーザーシステムは申請者がこれまで行ってきた研究で使用したものを用い、本研究用に光路の改良、検出装置の改良を行った。これらの結果、ピコセカンド領域においてレーザー照射後の磁化の減少に伴うカー効果信号の急激な減少、および磁化の回復に伴うスピンの才差運動の検出に成功した。次に $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ ホイスラー合金薄膜の緩和過程を詳細に調べた。ダンピング定数は $x=0.2-0.4$ 付近で 0.006 程度の低い値を得た。この結果は強磁性共鳴による結果と一致した。一方、パルスレーザー光を照射した際にサブピコ秒領域で発生する減磁現象について、ホイスラー合金を中心に調べた。 Mn-Ga 合金並びに Co 系垂直磁化膜の超高速減磁時間 τ は励起レーザー強度 P に対し増大する傾向を示し、微視的な理論と傾向が一致した。他方、 Ag や Cr 下地上に積層した Co_2MnSi ホイスラー合金の τ は P に対し減少する傾向を示した。これらの結果は、 Co_2MnSi の高いスピン分極率との相関を示唆する結果であり、今後、ハーフメタル性を考慮した微視的な理論を確立した上で、実験と詳細に比較していく必要がある。

(3) 強磁性共鳴によるスピン流の生成と磁気緩和

強磁性共鳴を用いて強磁性からスピン流を生成し、非磁性体内を伝搬した後にもう一方の強磁性内で緩和する過程を調べた。強磁

性の膜厚を 0-20nm の範囲で変化させて、強磁性共鳴の共鳴線幅の変化を解析した。強磁性共鳴からのスピン流は磁化の方向に対する横成分が主であることから、強磁性体内の横スピン侵入長を見積もることに成功した。CoFeB、Co、CoFe、FeNi におけるスピン侵入長は 12nm、1.7nm、2.5nm、3.7nm であることがわかった。次に、強磁性体/非磁性体/強磁性体 (F1/Cu/F2) の積層構造試料において、F1 および F2 の材料を Ni₈₀Fe₂₀、Co、Co₇₅Fe₂₅、Co₉₀Fe₁₀、Co₄₀Fe₄₀B₂₀ と変化させ、種々の組み合わせで横スピン侵入長の測定をおこなった。非磁性体/強磁性体界面の状態、特にミキシングコンダクタンスの値が侵入長に影響を及ぼすことが実験的に示唆された。また、F1 として MgO 単結晶基板を用いた Ni₈₀Fe₂₀ エピタキシャル合金とした、Ni₈₀Fe₂₀/Cu/Co₄₀Fe₄₀B₂₀ 多層膜の構成において、Co₄₀Fe₄₀B₂₀ の横スピン侵入長が 12 nm 程度と見積もられ、多結晶で同じ構成の積層膜のそれ (3.2 nm) と比較して増大した。以上の結果は、非磁性(N)/強磁性(F2)界面状態が侵入長に影響を及ぼしていることを示唆するものであると結論した。

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 59 件)

1. Ultrafast Demagnetization for Ni₈₀Fe₂₀ and Half-metallic Co₂MnSi Heusler Alloy Films, S. Mizukami, S. Tsunegi, T. Kubota, M. Oogane, D. Watanabe, H. Naganuma, Y. Ando and T. Miyazaki, Journal of Physics: Conference Series, 200 (2010) 042017-1-4, 査読有.
2. Co-concentration dependence of half-metallic properties in Co–Mn–Si epitaxial films, Y. Sakuraba, N. Hirose, M. Oogane, T. Nakamura, Y. Ando, and K. Takanashi, Appl. Phys. Lett., 96 (2010) 092511-1-3, 査読有.
3. Structural and Magnetic Properties of Perpendicular Magnetized Mn_{2.5}Ga Epitaxial Films, F. Wu, S. Mizukami, D. Watanabe, E. P. Sajitha, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, IEEE Trans. Magn., 46 (2010) 1863-1865, 査読有.
4. Gilbert magnetic damping constant of epitaxially grown Co-based Heusler alloy thin films, M. Oogane, T. Kubota, Y. Kota, S. Mizukami, H. Naganuma, A. Sakuma, and Y. Ando, Appl. Phys. Lett., 96 (2010) 252501-1-3, 査読有.
5. Tunnel magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions using epitaxial Co₂FeSi Heusler alloy electrode, Mikihiko Oogane, Masatsugu Shinano, Yuya Sakuraba, and Yasuo Ando, J. Appl. Phys., 105 (2009) 07C903-1-3, 査読有.
6. Low damping constant for Co₂FeAl Heusler alloy films and its correlation with density of states, S. Mizukami, D. Watanabe, M. Oogane, Y. Ando, Y. Miura, M. Shirai, and T. Miyazaki, J. Appl. Phys., 105 (2009) 07D306-1-3, 査読有.
7. Half-metallicity and Gilbert damping constant in Co₂Fe_xMn_{1-x}Si Heusler alloys depending on the film composition, Takahide Kubota, Sumito Tsunegi, Mikihiko Oogane, Shigemi Mizukami, Terunobu Miyazaki, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, Appl. Phys. Lett., 94 (2009) 122504-1-3, 査読有.
8. Enhancement in tunnel magnetoresistance effect by inserting CoFeB to the tunneling barrier interface in Co₂MnSi/MgO/CoFe magnetic tunnel junctions, S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, H. Naganuma, K. Takanashi, and Y. Ando, Appl. Phys. Lett., 94 (2009) 252503-1-3, 査読有.
9. Direct Observation of Atomic Ordering and Interface Structure in Co₂MnSi/MgO/Co₂MnSi Magnetic Tunnel Junctions by High-Angle Annular Dark-Field Scanning Transmission Electron Microscopy, T. Miyajima, M. Oogane, Y. Kotaka, T. Yamazaki, M. Tsukada, Y. Kataoka, H. Naganuma, and Y. Ando, Appl. Phys. Exp., 2 (2009) 093001-1-3, 査読有.
10. Tunnel magnetoresistance in epitaxially grown magnetic tunnel junctions using Heusler alloy electrode and MgO barrier, S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, N. D. Telling, L. R. Shelford, E. Arenholz, G. van der Laan, R. J. Hicken, K. Takanashi and Y. Ando, J. Phys. D: Appl. Phys. 42 (2009) 195004-1-6, 査読有.
11. Study of Structure, Magnetic and Electrical Properties of Co₂MnSi Heusler Alloy Thin Films Onto n-Si Substrates, M. A. I. Nahid, Mikihiko Oogane, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 45 (2009) 4030-4032, 査読有.
12. Structure, exchange stiffness, and magnetic anisotropy of Co₂MnAl_xSi_{1-x} Heusler compounds, Takahide Kubota, Jaroslav Hamrle, Yuya Sakuraba, Oksana Gaier, Mikihiko Oogane, Akimasa Sakuma, Burkard Hillebrands, Koki

- Takanashi, and Yasuo Ando, *J. Appl. Phys.*, 106 (2009) 113907-1-4, 査読有.
13. Tunnel Magnetoresistance Effect in Magnetic Tunnel Junctions Using a $\text{Co}_2\text{MnSi}(110)$ Electrode, M. Hattori, Y. Sakuraba, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, *Applied Physics Express* 1 (2008) 021301-1-3, 査読有.
 14. Determination of Penetration Depth of Transverse Spin Current in Ferromagnetic Metals by Spin Pumping, T. Taniguchi, S. Yakata, H. Imamura, Y. Ando, *Appl. Phys. Exp.*, 1 (2008) 031302-1-3, 査読有.
 15. Large tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using a Co_2MnSi Heusler alloy electrode and a MgO barrier, S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, K. Takanashi, and Y. Ando, *Appl. Phys. Lett.*, 93 (2008) 112506-1-3, 査読有.
 16. Penetration Depth of Transverse Spin Current in Ferromagnetic Metals, Tomohiro Taniguchi, Satoshi Yakata, Hiroshi Imamura, Yasuo Ando, *IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS*, 44 (2008) 2636-2639, 査読有.
- [学会発表] (計 201 件)
1. S. Mizukami, D. Watanabe, F. Wu, T. Kubota, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, Y. Ando, and, T. Miyazaki, "Magnetization Dynamics and Damping in Magnetic Films with Perpendicular Magnetic Anisotropy", International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS2010), Jeju, Korea, Dec. 7, 2010.
 2. Y. Ando, "Progress of magnetoresistance effect in MTJs with Heusler alloys", 2nd Meeting of Strategic Japanese-German Joint Research Program "ASPIMATT" : Advanced spintronic materials and transport phenomena, Sendai, October 19, 2010.
 3. S. Mizukami, F. Wu, D. Watanabe, T. Kubota, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando and A. Sakuma, "New Heusler alloy films with high-magnetic anisotropy for spintronic devices", International Conference of Nanoscale Magnetism (ICNM2010), September 30, Gebze/Istanbul, 2010.
 4. M. Oogane, S. Mizukami, Y. Kota, T. Kubota, H. Naganuma, A. Sakuma and Y. Ando, "Temperature Dependence of Magnetic Damping in Heusler Alloy Thin Films", SSDM2010, Tokyo, September 24, 2010.
 5. M. Oogane, S. Tsunegi, E. Ozawa, H. Naganuma, and Y. Ando, "Tunnel magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions with very thin insertion layer", International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications, Sendai, Japan, July 13, 2010.
 6. S. Mizukami, "Gilbert Damping Mechanisms in Half-metallic Heusler Alloys (invited)", American Physical Society March Meeting 2010, Portland OR, USA, March 19, 2010.
 7. S. Mizukami, J. Walowski, T. Kubota, M. Oogane, H. Naganuma, Y. Ando, and T. Miyazaki, "Spin dynamics for Heusler alloy films (invited)", 4th International Workshop on Spin Currents & 2nd International Workshop on Spin caloritronics, Sendai Japan, February 10, 2010.
 8. S. Mizukami, M. Oogane, T. Kubota, S. Tsunegi, H. Naganuma, Y. Ando, and T. Miyazaki, "Gilbert damping and its mechanism for Co-based full Heusler alloy thin films (invited)", 11th Joint MMM-Intermag conference, Washington DC, USA, January 21, 2010.
 9. M. Oogane, T. Kubota, S. Tsunegi, J. Sato, H. Naganuma, S. Mizukami, Y. Ando, "Magnetic damping of half-metallic Heusler alloys", International Workshop and Seminar on Magnonics: From Fundamentals to Applications 2009, Dresden, Germany, August 6, 2009. (Magnonics)
 10. S. Mizukami, S. Tsunegi, T. Kubota, M. Oogane, D. Watanabe, H. Naganuma, Y. Ando, and T. Miyazaki, "Ultrafast Demagnetization for $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ and Half-metallic Co_2MnSi Heusler Alloy Films", International Conference on Magnetism 2009, Karlsruhe, Germany, July 28, 2009.
 11. S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, H. Naganuma, N. Inami, K. Takanashi and Y. Ando, "The effect of modifying $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ interface on TMR effect" International Conference on Magnetism 2009, Karlsruhe, Germany, July 27, 2009.
 12. M. Oogane, T. Kubota, S. Tsunegi, J. Sato, H. Naganuma, S. Mizukami, Y.

Ando, "Magnetic Damping Constants for Half-metallic Heusler Alloy Thin Films", International Conference on Magnetism 2009, Karlsruhe, Germany, July 27, 2009.

13. S. Tsunegi, Y. Sakurabe, M. Oogane, H. Naganuma, N. Inami, K. Takanashi and Y. Ando, "The effect of inserting thin CoFeB layer into Co₂MnSi/MgO interface on TMR effect", 20th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces, Berlin, Germany, July 22, 2009.
14. Y. Ando, S. Tsunegi, T. Kubota, G. Kim, T. Hiratsuka, Y. Sakuraba, M. Oogane, K. Takanashi, S. Mizukami, T. Miyazaki, "Perspective of High Tunnel Magnetoresistance in Magnetic Tunnel Junctions with Heusler Alloy Electrodes and MgO Barrier", Tohoku-York Research Seminar, Sendai, January 20, 2009.
15. M. Oogane, S. Tsunegi, T. Kubota, Y. Sakuraba, K. Takanashi, Y. Ando, "Tunnel Magneto-resistance Effect in Magnetic Tunnel Junctions using Half-metallic Heusler Alloy Electrodes and a MgO Tunneling Barrier", MRS2008, Boston, December 2, 2008.
16. M. Oogane, N. Hirose, Y. Sakuraba, Y. Ando, "Tunnel magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions with Co-Mn-Si Heusler alloy electrode", 53rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Austin, November 10, 2008.
17. S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, K. Takanashi, Y. Ando, "Fabrication and characterization of magnetic tunnel junctions using Co₂MnSi electrode and MgO tunneling barrier", Intermag Conference, Madrid, May 4, 2008.

[図書] (計1件)

1. 安藤康夫, スピントロニクスと磁化ダイナミクス, スピントロニクスの基礎と材料・応用技術の最前線, 第5章 (分担執筆), シーエムシー出版 (2009) 60-74.

[産業財産権]

○出願状況 (計4件)

名称: ホイスラー合金電極磁気抵抗素子
発明者: 大兼幹彦, 永沼博, 安藤康夫, 佐藤丈
権利者: 大兼幹彦, 永沼博, 安藤康夫, 佐藤丈

種類: 特許

番号: 特願 2011-051678

出願年月日: 平成 23 年 3 月 9 日

国内外の別: 国内

○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]

ホームページ等

<http://www.apph.tohoku.ac.jp/spin/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安藤 康夫 (ANDO YASUO)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 60250726

(2) 研究分担者

大兼 幹彦 (OOGANE MIKIHICO)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 50396454

水上 成美 (MIZUKAMI SHIGEMI)

東北大学・原子分子材料科学高等研究

機構・助教

研究者番号: 00339369

永沼 博 (NAGANUMA HIROSHI)

東北大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 60434023

(3) 連携研究者

(なし)