

平成 22 年 5 月 7 日現在

研究種目：若手研究（A）
研究期間：2008～2009
課題番号：20681016
研究課題名（和文） ハーフメタルスピンスイッチの開発と論理回路への応用
研究課題名（英文） Development of the half-metal spin switch and its application to the logic circuit
研究代表者 大兼 幹彦（OOGANE MIKIHICO） 東北大学・大学院工学研究科・助教 研究者番号：50396454

研究成果の概要（和文）：

Co₂MnSi 組成ベースのハーフメタルホイスラー合金電極と酸化マグネシウムを用いたトンネル接合素子において、低温において 1275%、室温において 350%の磁気抵抗比を得ることに成功した。この磁気抵抗比はハーフメタル電極を用いたトンネル接合で世界最高であり、論理回路に応用可能なスイッチ素子が作製できた。開発した素子を微細加工によって直列接続した回路において、電圧を印加することで磁気抵抗比を大きく変化させることに成功した。このことによって、開発した素子が論理回路に応用できる可能性を示した。

研究成果の概要（英文）：

Magnetic tunnel junctions (MTJs) with Co₂MnSi based half-metallic Heusler alloy electrodes and an MgO barrier showed very large tunnel magneto resistance (TMR) ratio of 1275% at low temperature and 350% at room temperature. This TMR ratio is the highest among the MTJs with Heusler alloy electrodes. The large TMR effect is desirable for application to the spin-switch device. In addition, the TMR ratio was successfully controlled by the voltage in the device that two MTJs were connected in series. This result indicates that the fabricated device can be used as the logic circuit.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	6,500,000	1,950,000	8,450,000
2009 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
年度			
総計	9,000,000	2,700,000	11,700,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・マイクロ・ナノデバイス

キーワード：スピニエレクトロニクス、ハーフメタル、ホイスラー合金、トンネル接合、ホイスラー合金、スピン注入磁化反転

1. 研究開始当初の背景

電子のスピン自由度を利用するスピントロニクスは、国内外においてハードディスクや不揮発性磁気メモリに代表される情報記憶素子の産業化と結びつき、急速な進展を遂げている。研究代表者は、さらに産業を活性化し、新市場を創出するためには、ハーフメタル材料とそれを用いた新しいデバイスの創製が必要であると考えていた。ハーフメタル材料は、完全にスピン分極した電流を創製可能な材料として非常に大きな注目と期待を集めているが、提案するスピンスイッチ素子のようにバンドギャップの内外における電子状態の違いを積極的に利用するような着眼点で研究は行なわれていなかった。提案するスピンスイッチ素子を用いて不揮発論理回路を世界に先駆けて試作し、動作確認を行ない、その有用性、優位性および課題を明らかにすることは非常に重要であると考えられる。

2. 研究の目的

ハーフメタルを電極とした強磁性トンネル接合において、電極の磁化状態によってスイッチング特性が劇的に変化する、全く新しい概念に基づいたハーフメタルスピンスイッチを開発し、再構成可能な不揮発論理回路へ応用することが提案研究の目的である。ハーフメタル材料とは、フェルミ面において一方の電子スピンのみが存在し、少数スピンドメインにはエネルギーギャップが存在する材料である。考案したスピンスイッチ素子は、このエネルギーギャップを利用したものである。磁化平行状態ではほぼ線形な電気伝導特性を示すが、反平行状態では、ある閾値電圧以上で急激に電流が増大するスイッチ特性を示す。さらに、この素子を直列に接続することで、磁化状態の組み合わせによって、閾値電圧の異なるスイッチが設計可能である。本研究では、まずスピンスイッチ動作のために、ハーフメタルであることが実験的に示されているホイスラー合金の材料組成の探索、作製条件の最適化およびトンネル接合素子の低抵抗化を行ない、0.2~0.3V程度の電圧で数100 μ Aの電流を駆動可能なスピンスイッチを開発する。磁化反平行状態において、動作電圧ON/OFF時の電流比は200倍以上を目標とする。さらに、開発したスピンスイッチを10素子程度で組み合わせ、小規模な不揮発論理回路を試作し、回路動作をデモンストレーションする。また、将来的には電流により磁化反転可能なスイッチであることが望ましいことから、ハーフメタルトン

ネル接合素子においてスピン注入磁化反転を実現する。

3. 研究の方法

誘導結合プラズママグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(001)単結晶基板上にCr(40 nm)/Co₂FeMnSi or Co₂MnAlSi or Mn₂VAl(30 nm)/X(d nm)/MgO (0.7 ~ 2 nm)/Co₂MnSi(10 nm) or CoFe(5 nm)/Ta(5 nm)という構成の強磁性トンネル接合を成膜した。良質なホイスラー合金電極トンネル接合を形成するためには、平坦かつ規則化したエピタキシャル下部電極を作製する必要がある。そこで、まずMgO基板上にCrを室温で成膜した後、600°Cで1時間ポストアニールを行なうことで高い表面平坦性を持つエピタキシャルCr(001)下地層を形成した。次にこのCr(001)下地層上にホイスラー合金薄膜を室温で成膜し、450~500°Cで20分間ポストアニールを行なうことで、平坦かつ規則化したエピタキシャル下部電極を形成した。MgO層はMgOターゲットを用いてスパッタ法により作製する方法と、電子線蒸着を用いて作製する方法の二通りで行なった。スピン注入磁化反転を行なうためには、トンネル接合の抵抗を小さくする必要があるが、MgO絶縁層の成膜レートを落として作製することで、1 nm以下の非常に薄い領域の膜厚を制御した。MgO障壁層上のCo₂MnSi上部電極層は、成膜後450°Cで20分間ポストアニールを行なって作製した。

強磁性トンネル接合素子への微細加工は、電子線リソグラフィとArイオンミリングにより行なった。さらに、論理回路として動作させるために、二つの強磁性トンネル接合を直列接合し、その間に容量結合したゲート電極を作製した。

作製した素子の磁気伝導特性の評価は、室温および6Kにおいて交流ロックイン法を用いて行なった。入力信号の振幅は5~10 mV_{rms}で周波数は333Hzとした。また、ゲート電極に直流電圧を印加し、磁気抵抗効果の変化の検出を試みた。スピン注入磁化反転の計測は種々のパルス幅のパルス電流を印加し、その時の出力電圧をロックインアンプで検出する方法で行なった。

4. 研究成果

本研究では、以下の三つの項目について検討を行なった。

- (1) ハーフメタル合金薄膜の材料探索および作製技術開発
- (2) ハーフメタルトンネル接合素子の低抵

抗化とスピン注入磁化反転の観測
(3) ハーフメタルスイッチの開発と不揮発論理回路への応用

(1)については、強磁性トンネル接合単一素子の高性能化に関するものであり、磁気抵抗(TMR)比を大きくするための、ハーフメタルホイスラー合金材料の探索および開発が主目的である。

(2)については、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、スピン注入磁化反転が可能かどうか検討するための研究である。スピン注入磁化反転に成功すれば、論理回路に応用する上で極めて大きなアドバンテージとなる。

(3)については、本研究のメインテーマであり、(1)または(2)で作製した単一トンネル接合を連結して、スイッチ動作が可能かどうかを検証し、さらには最終目標である200倍の電流 On/Off 比を目指すものである。

以下では、それぞれの研究項目について、その成果の概要を説明する。

(1) ハーフメタル合金薄膜の材料探索および作製技術開発

$\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$, $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$, Mn_2VAI 組成のホイスラー合金薄膜を電極としたトンネル接合を作製し、その磁気抵抗効果を評価した。その結果、 Co_2FeMnSi 組成で高い磁気抵抗比が得られることが分かった。中でも、 $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ 合金電極のトンネル接合で最も高い磁気抵抗比を得た。また、コンダクタンス特性を評価した結果、 $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$ 組成では、 x の増加とともに、ハーフメタルギャップが狭まることが分かった。これはスイッチ素子特性としては望ましくない。一方で、 $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ 組成では、 x が $0\sim 0.6$ の範囲で明瞭なハーフメタルギャップ構造が観測できた。 Mn_2VAI 組成では、良質な薄膜は作製できたが、磁気抵抗効果は観測できなかった。以上から、最適ハーフメタル合金組成は $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ ベースの組成であることが明らかとなった。さらに、磁気抵抗比を向上させるために、 Co_2MnSi 組成のホイスラー合金電極と酸化マグネシウムを用いたトンネル接合素子において、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ 界面に種々の極薄膜を挿入した。その結果、2原子層程度の極薄 CoFe 層を挿入した場合に最も磁気抵抗特性が向上し、低温において 1275%、室温において 350%の磁気抵抗比を得ることに成功した(図 1 にその磁気抵抗曲線を示す)。この磁気抵抗比はハーフメタル電極を用いたトンネル接合において世界最高であり、論理回路応用に対して非常に優れた材料が探索、作製出来たといえる。

(2) ハーフメタルトンネル接合素子の低抵抗化とスピン注入磁化反転の観測

トンネル接合素子の MgO トンネル絶縁層膜厚を $0.7\sim 1.0\text{nm}$ 程度まで薄膜化し、ホイスラー合金電極トンネル接合の低抵抗化とスピン注入磁化反転の観測を行なった。その結果、当初の目標を上回る $100\times 200\text{nm}^2$ のサイズの素子において 150%の TMR 比を観測することに成功した。また、 MgO 膜厚が 0.7nm の試料において、 $5.9\times 10^6\text{ A/cm}^2$ の電流密度でのスピン注入磁化反転に成功した(図 2 にスピン注入磁化反転測定結果の一例を示す)。この電流密度は、比較的小さな値であり、電流で磁化を反転させるスイッチ素子が現実的に実現可能なことを示したものである。

(3) ハーフメタルスイッチの開発と不揮発論理回路への応用

Co_2MnSi ホイスラー合金電極を用いたトンネル接合を直列に接続し、またその間に容量結合したゲート電極を作製した素子において、 6K ではあるが、印加電圧によって磁気抵抗比が大きく変化する特性を観測した(図 3 に種々の印加電圧に対する磁気抵抗曲線を示す)。図 4 にゲート電圧に対する電流の変化を示す。0.6 V 付近で電流のジャンプが見られ、スイッチとして用いることが出来ることが分かる。目標とする 200 倍の On/Off 比は得られていないが、50 倍程度 ($1\text{ nA} \rightarrow 50\text{ nA}$) の電流変化を観測することができた。さらに、このスイッチ特性は、強磁性トンネル接合の磁化が平行、反平行状態で変化している。これらによって、ハーフメタル電極強磁性トンネル接合を組み合わせることで、論理回路動作が可能であることを示せた。

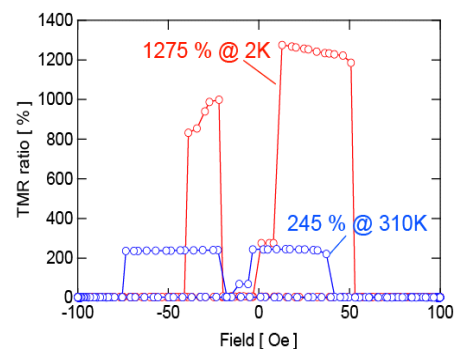


図 1. $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{CoFe}/\text{MgO}/\text{Co}_2\text{MnSi}$ 強磁性トンネル接合における磁気抵抗曲線。

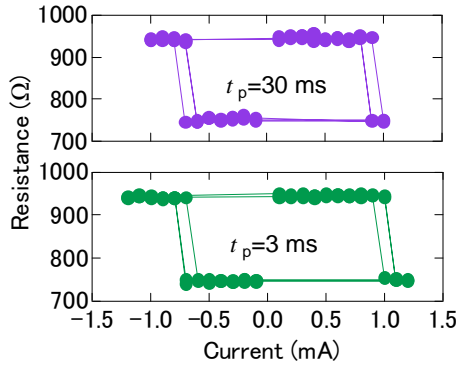


図 2. $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{CoFe}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ 強磁性トンネル接合における抵抗-パルス電流特性.

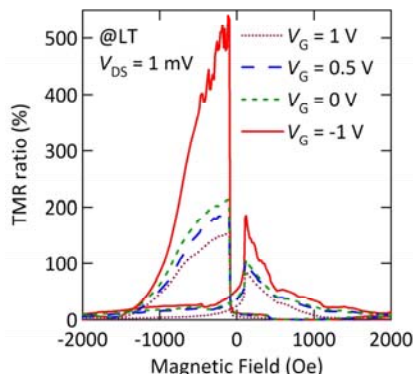


図 3. 二つの強磁性トンネル接合を直列接続した素子における磁気抵抗曲線のゲート電圧依存性.

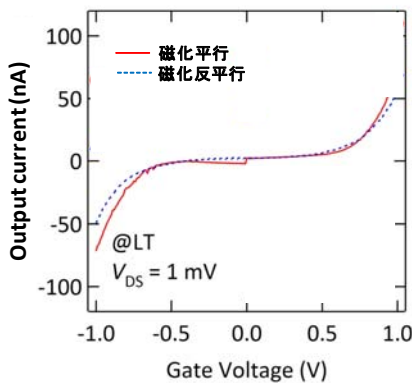


図 4. 二つの強磁性トンネル接合を直列接続した素子における出力電流のゲート電圧依存性.

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 20 件)

1. Yusuke Ohdaira, Mikihiro Oogane, and Yasuo Ando, "Tunnel magnetoresistance effect in double magnetic tunnel junctions using half-metallic Heusler alloy electrodes", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 105 (2009) 07C920-1-2.
2. S. Mizukami, D. Watanabe, M. Oogane, Y. Ando, Y. Miura, M. Shirai, and T. Miyazaki, "Low damping constant for Co_2FeAl Heusler alloy films and its correlation with density of states", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 105 (2009) 07D306-1-3.
3. 大兼幹彦, 窪田崇秀, 廣瀬直紀, 安藤康夫, " Co_2FeMnSi ホイスラー合金の磁気緩和定数", J. Magn. Soc. Jpn., 査読有, 33 (2009) 270-273.
4. Takahide Kubota, Kenji Kodama, Tetsuya Nakamura, Yuya Sakuraba, Mikihiro Oogane, Koki Takanashi, and Yasuo Ando, "Ferrimagnetism in epitaxially grown Mn_2VAI Heusler alloy investigated by means of soft x-ray magnetic circular dichroism", APPLIED PHYSICS LETTERS, 査読有, 95 (2009) 222503-1-3.
5. Takahide Kubota, Jaroslav Hamrle, Yuya Sakuraba, Oksana Gaier, Mikihiro Oogane, Akimasa Sakuma, Burkard Hillebrands, Koki Takanashi, and Yasuo Ando, "Structure, exchange stiffness, and magnetic anisotropy of $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$ Heusler compounds", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 106 (2009) 113907-1-4.
6. M. A. I. Nahid, M. Oogane, H. Naganuma, and Y. Ando, "The effect of MgO barrier on the structure and magnetic properties of Co_2MnSi films on $n\text{-Si}(100)$ substrates", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 106 (2009) 103907-1-3.
7. S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, N. D. Telling, L. R. Shelfold, E. Arenholz, G. van der Laan, R. J. Hicken, K. Takanashi, and Y. Ando, "Tunnel magnetoresistance in epitaxially grown magnetic tunnel junctions using Heusler alloy electrode and MgO barrier", J. Phys. D: Appl.

- Phys., 査読有, 42 (2009) 195004-1-6.
8. M. A. I. Nahid, Mikihiko Oogane, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, "Study of Structure, Magnetic and Electrical Properties of Co_2MnSi Heusler Alloy Thin Films Onto n-Si Substrates", IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 査読有, 45 (2009) 4030-4032.
 9. Mikihiko Oogane, Masatsugu Shinano, Yuya Sakuraba, and Yasuo Ando, "Tunnel magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions using epitaxial Co_2FeSi Heusler alloy electrode", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 105 (2009) 07C903-1-3.
 10. Takahide Kubota, Sumito Tsunegi, Mikihiko Oogane, Shigemi Mizukami, Terunobu Miyazaki, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, "Half-metallicity and Gilbert damping constant in $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ Heusler alloys depending on the film composition", APPLIED PHYSICS LETTERS, 査読有, 94 (2009) 122504-1-3.
 11. Feng Wu, Shigemi Mizukami, Daisuke Watanabe, Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, Yasuo Ando, and Terunobu Miyazaki, "Epitaxial $\text{Mn}_{2.5}\text{Ga}$ thin films with giant perpendicular magnetic anisotropy for spintronic devices", APPLIED PHYSICS LETTERS, 査読有, 94 (2009) 122503-1-3.
 12. Toyoo Miyajima, Mikihiko Oogane, Yasutoshi Kotaka, Takashi Yamazaki, Mineharu Tsukada, Yuji Kataoka, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, "Direct Observation of Atomic Ordering and Interface Structure in $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}/\text{Co}_2\text{MnSi}$ Magnetic Tunnel Junctions by High-Angle Annular Dark-Field Scanning Transmission Electron Microscopy", Applied Physics Express, 査読有, 2 (2009) 093001-1-3.
 13. Muhammad Ariful Islam Nahid, Mikihiko Oogane, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, "Structural and Magnetic Properties of Co_2MnSi Heusler Alloy Thin Films on Si", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 48 (2009) 083002-1-3.
 14. S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, Hiroshi Naganuma, K. Takanashi, and Y. Ando "Enhancement in tunnel magnetoresistance effect by inserting CoFeB to the tunneling barrier interface in $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ magnetic tunnel junctions", APPLIED PHYSICS LETTERS, 査読有, 94 (2009) 252503-1-3.
 15. 大平祐介, 大兼幹彦, 安藤康夫, "Co₂MnSiを電極とする微小二重トンネル接合の作製と評価", J. Magn. Soc. Jpn., 査読有, 33 (2009) 262-265.
 16. N. D. Telling, P. S. Keatley, G. van der Laan, R. J. Hicken, E. Arenholz, Y. Sakuraba, M. Oogane, Y. Ando, K. Takanashi, A. Sakuma, and T. Miyazaki, "Evidence of local moment formation in Co-based Heusler alloys", PHYSICAL REVIEW B, 査読有, 78 (2008) 184438.
 17. Sumito Tsunegi, Yuya Sakuraba, Mikihiko Oogane, Koki Takanashi, and Yasuo Ando, "Large tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using a Co_2MnSi Heusler alloy electrode and a MgO barrier", APPLIED PHYSICS LETTERS, 査読有, 93 (2008) 112506-1-3.
 18. O. Gaier, J. Hamrle, S. J. Hermsdoerfer, H. Schultheiß, B. Hillebrands, Y. Sakuraba, M. Oogane, and Y. Ando, "Influence of the L_{21} ordering degree on the magnetic properties of Co_2MnSi Heusler films", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 103 (2008) 103910-1-6.
 19. N. D. Telling, P. S. Keatley, L. R. Shelford, E. Arenholz, G. van der Laan, R. J. Hicken, Y. Sakuraba, S. Tsunegi, M. Oogane, Y. Ando, K. Takanashi, and T. Miyazaki, "Temperature dependence of the interface moments in Co_2MnSi thin films", APPLIED PHYSICS LETTERS, 査読有, 92 (2008) 192503-1-3.
 20. L. R. Shelford, Y. Liu, R. J. Hicken, Y. Sakuraba, M. Oogane, and Y. Ando, "Magnetic second harmonic generation at the $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{AlO}_x$ interface", JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, 査読有, 103 (2008) 07D720-1-3.
- [学会発表] (計9件)
1. 大兼幹彦, 窪田崇秀, 常木澄人, 佐藤丈, 水上成美, 永沼博, 安藤康夫, $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ および $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$ ホイスラー合金の磁気

緩和定数, 第 33 回日本磁気学会学術講演会, 2009 年 9 月 12 日, 長崎

2. 大兼幹彦, 飛田智史, 常木澄人, 西村真之, 井波暢人, 永沼博, 安藤康夫, ホイスラー合金電極トンネル接合におけるスピン注入磁化反転, 第 70 回応用物理学会学術講演会, 2009 年 9 月 8 日, 富山
3. 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 Workshop and Seminar on Magnonics, 2009 年 8 月 6 日, ドイツ, ドレスデン
4. 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, 2009 年 7 月 27 日, ドイツ, カールスルーエ
5. M. Oogane, S. Hida, S. Tsunegi, H. Naganuma, N. Inami, and Y. Ando, SPIN TRANSFER SWITCHING IN MAGNETIC TUNNEL JUNCTIONS WITH A HALF-METALLIC HEUSLER ALLOY ELECTRODE, 20th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces, 2009 年 7 月 22 日, ドイツ, ベルリン
6. 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, 2008 年 12 月 2 日, 米国, ボストン
7. M. Oogane, Tunnel magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions with Co-Mn-Si Heusler alloy electrode, 53rdMMM, 2008 年 11 月 12 日, 米国, オースチン
8. 大兼幹彦, 窪田崇秀, 廣瀬直紀, 桜庭裕弥, 高梨弘毅, 安藤康夫, ホイスラー合金薄膜の磁気異方性と磁気緩和, 第 32 回日本磁気学会学術講演会, 2008 年 9 月 14 日, 仙台
9. 大兼幹彦, 窪田崇秀, 廣瀬直紀, 桜庭裕弥, 高梨弘毅, 安藤康夫, フルホイ

スラー合金の磁気緩和定数測定, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008 年 9 月 2 日, 名古屋

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大兼 幹彦 (OOGANE MIKIHICO)
東北大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号 : 50396454

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし