# 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 22 年 5月 14 日現在

研究種目:若手研究 B 研究期間:2008 ~ 2009

課題番号:20760005

研究課題名(和文) 高磁気異方性を有するハーフメタル薄膜の創製と室温高スピン分極

率の実現

研究課題名(英文) Fabrication of half-metallic thin films with large magnetic anisotropy and realization of room-temperature high spin-polarization

研究代表者 桜庭 裕弥 (SAKURABA YUYA)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号:10451618

研究成果の概要 (和文):高いスピン偏極率と大きな磁気異方性を併せ持つ強磁性材料を開発することは、スピントロニクスデバイスの性能向上と高集積化・小型化のための必須課題である。本研究ではハーフメタル材料  $Co_2MnSi$  を  $L1_0$ 規則合金 FePt, CoPt 上に積層させた構造を作製することによって、極薄膜化した  $Co_2MnSi$  に高い磁気異方性を付加することに成功した。これを用いた強磁性トンネル接合においてトンネル磁気抵抗効果を明瞭に観測した。

研究成果の概要(英文): It is necessary to develop the ferromagnetic material with high spin-polarization and large magnetic anisotropy in order to improve a performance of spintronics devices. In this project, a large magnetic anisotropy was successfully applied to half-metallic  $Co_2MnSi$  from  $L1_0$ -ordered alloys FePt or CoPt in the  $L1_0$ -ordered alloy/thin  $Co_2MnSi$  stacking structure. Clear tunneling magnetoresistance was observed in the magnetic tunnel junctions with these electrodes.

## 交付決定額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合 計
2008 年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2009 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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: スピントロニクス

### 1. 研究開始当初の背景

電子の有する電荷とスピンの2つの自由度を 統括的に取り扱うことにより、新たな物理現 象の発見・解明と新機能デバイス創製を目指 す"スピントロニクス"分野における研究が世 界的に活発化している.スピントロニクスに おいて取り扱われるスピン依存の物理現象 において最も重要な要素の1つとして挙げ られるのが、強磁性材料のもつスピン分極率Pである。Pとは  $(D \cap D \cup M)$   $(D \cap D$ 

性及び光を媒介とする様々なデバイスの性 能を向上させることが可能となる. すなわち, その極限である完全スピン分極状態(P=1)を 室温で実現することは今後のスピントロニ クスの発展に対し極めて大きな意義を持つ. スピントロニクスデバイスを創製する上で 上述のスピン分極率 Pと同様に重要な要素と なるが磁性体の持つ磁気異方性である. スピ ントロニクスデバイスの小型化・大容量化が 急速に進むにつれ, 記録素子となる磁性体の 微細化が必要となるため、磁気異方性エネル ギー(KuV)が小さい強磁性材料では熱揺らぎ エネルギー(kBT)によってその磁化情報を消 失してしまう. 一般的な指標として一度記録 した磁化情報が 10 年以上保持されるために は K<sub>u</sub>V /k<sub>B</sub>T>60 が必要とされ, 例えばギガビ ットクラスの大容量磁気ランダムアクセス メモリ(MRAM)を実現するために磁性体に は K<sub>u</sub> >1 x 10<sup>6</sup>erg/cm<sup>3</sup>以上を有することが 必要とされる. CoFe, NiFe などの 3d 系強磁 性合金,並びに上述した Co<sub>2</sub>MnSi など Co 基 フルホイスラー合金の Kuは 104 -5erg/cm3で あるため,このような熱揺らぎ耐性の条件を 満たしていない.

### 2. 研究の目的

1に記載の理由から現在,高い磁気異方性  $K_u$  とスピン分極率Pとを併せ持つ究極的な強磁性材料"高磁気異方性ハーフメタル"の創製が切望されている。本研究は、研究代表者がこれまで培った良質な  $Co_2MnSi$  ハーフメタル薄膜の成膜技術を発展させることにより、Co 基フルホイスラー合金系ハーフメタルに高い磁気異方性を付加し"高熱揺らぎ耐性"と"室温高スピン分極率"の双方の実現を目指すものであるものである.

## 3. 研究の方法

# (1)垂直磁化 Co<sub>2</sub>MnSi 電極の作製

 $Co_2MnSi$  薄膜を垂直磁化膜化させるために、高い一軸磁気異方性を有することで知られる  $L1_0$ 型規則合金を利用する。まず酸化マグネシウムの単結晶基板上に下地層として Cr 及び Pt を成膜し、その後基板加熱状態で FePt 及び CoPt 等の L10 規則合金を成膜する。これにより (001) 配向が得られ、磁化容易軸が面直方向に向くために、垂直磁化膜が得られる。その後、L10 規則合金上に  $Co_2MnSi$  を堆積させる。FePt, CoPt と  $Co_2MnSi$  は格子不整合が 5%未満と良好であるため(001)配向した  $Co_2MnSi$  を作製することができる。これにより、FePt、CoPt から高い磁気異方性を  $Co_2MnSi$  への付加を試みる。 $Co_2MnSi$  を成膜する際のアニール温度や、 $Co_2MnSi$  の膜厚等を最適化

することにより、より高い結晶性・サイト規則性と高い磁気異方性を両立できる条件の最適化を目指す。磁気異方性を付加させ維持させるには Co<sub>2</sub>MnSi を極薄膜化させる必要があるため、結晶性は主に面内入射の XRD、磁気特性に関しては SPring-8 の放射光を利用し、XMCD(X 線磁気円二色性)による元素選択的な評価を行った。

# (2)垂直磁化 Co<sub>2</sub>MnSi 電極を用いた強磁性トンネル接合の作製と評価

(1)にて作製した  $L1_0$  合金/ $Co_2$ MnSi 電極を下部電極として強磁性トンネル接合を作製する。トンネル障壁層としては結晶性の MgO を利用することにより上部強磁性電極まで配向させた全単結晶の強磁性トンネル接合を作製する。上部強磁性電極としては下部と同様の  $L1_0$  規則合金か、もしくは TbCoFe 等希土類元素を用いた電極を利用する。作製した積層膜は、リソグラフィーと Ar イオンミリングによって4端子構造に加工し、直流4端子法によって磁気抵抗効果を評価する。

### 4. 研究成果

(1) 垂直磁化 Co<sub>2</sub>MnSi 電極の作製結果 酸化マグネシウム基板上に(001)配向した CoPt 膜及び FePt 膜を作製した。これらの上 に Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜を 1nm から 5nm まで膜厚変 化させて成膜をおこなった。これら Co<sub>2</sub>MnSi 膜の結晶構造を XRD で評価した結果、 Co<sub>2</sub>MnSiが1nmと非常に極薄の状態において も, Co<sub>2</sub>MnSi が(001)配向し、さらに B2 構造 (Co 原子が規則配列した構造、Mn,Si はラン ダム)以上の規則状態を有していることが分 かった。理論計算によれば、Co<sub>2</sub>MnSi が高い スピン偏極度を持つには、B2以上の規則状態 が必要とされており、高いスピン偏極度を期 待できる構造を有していることが分かった。 さらに、これらの試料を Spring-8 BL25SU に て XMCD による磁気特性の評価を行った。 その結果、CoPt 上では 4nm 以上、FePt では 2nm 以上で Co<sub>2</sub>MnSi は明瞭な XMCD シグナ ルを示すことが分かった。また、Fe,Co,Mn の XMCD シグナルの磁場依存性を測定し、元素 選択的磁気ヒステリシス曲線を測定したと ころ、Co<sub>2</sub>MnSi が 4nm 以下では Co と Mn が 磁化容易軸が薄膜面直方向を向いているこ とが確認された。これは下部の CoPt や FePt の磁気異方性が界面を介し、Co<sub>2</sub>MnSi に付加 されていることを示すものである。以上の実 験より、良質な結晶性と高い規則状態と垂直 磁気異方性を併せ持つ Co<sub>2</sub>MnSi 下部電極を 作製することに成功した。

(2)垂直磁化 Co<sub>2</sub>MnSi 電極を用いた強磁性トンネル接合の作製と評価

作製した Co<sub>2</sub>MnSi 下部電極を用い、強磁性トンネル接合を作製した。トンネル障壁層には MgO を用い、上部強磁性層としては FePt や希土類元素添加の CoFe 等を用いた。作製した積層膜の磁化曲線を測定したところ、上下強磁性膜の磁化が反平行になる状態が確認できた。これらの膜を微細加工によって 4 端子形状にし、面直方向への磁場印加によって磁気抵抗効果を評価した結果、室温で最大 15% 程度の磁気抵抗効果を確認することができた。

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7件)

1) 著者名: S. Bosu, <u>Y.Sakuraba</u>, K. Saito, H. Wang, and K. Takanashi

論文標題: Interlayer exchange coupling in Full Heusler Co<sub>2</sub>FeSi/Cr/Co<sub>2</sub>FeSi epitaxial trilayer structures

雜誌名:IEEE Transactions on magnetics 掲載決定(2010). 査読有

2) 著者名: <u>Y. Sakuraba,</u> Y. Kota, T. Kubota, M. Oogane, A. Sakuma. Y. Ando and K. Takanashi

論文標題: Evidence of Fermi level control in a half-metallic Heusler compound Co<sub>2</sub>MnSi by Al-doping: Comparison of measurements with first-principles calculations

雜誌名: Physical Review B, 81, 144422 (2010) 查読有

3) 著者名: <u>Y. Sakuraba</u>, N. Hirose, M. Oogane, T. Nakamura, Y. Ando and K. Takanashi

論文標題: Co-concentration dependence of half-metallic properties in Co-Mn-Si epitaxial films

雜誌名: Applied Physics Letters, **96**, 092511 (2010) 查読有

4) 著者名: T. Hiratsuka, G. Kim, <u>Y. Sakuraba</u>, T. Kubota, K. Kodama, N. Inami, H. Naganuma, M. Oogane, T. Nakamura, K. Takanashi and Y. Ando

論文標題: Fabrication of perpendiculary magnetized magnetic tunnel junctions with L1<sub>0</sub>-CoPt/Co<sub>2</sub>MnSi hybrid electrode

雜誌名: Journal of Applied Physics, 107, 09C714 (2010). 查読有

5) 著者名: S. Bosu, <u>Y.Sakuraba</u>, K. Saito, H. Wang, S. Mitani and K. Takanashi 論文標題: Chemical ordering dependence of interlayer exchange coupling in Co-Mn-Si/Cr/Co-Mn-Si trilayer structures 雑誌名: Physical Review B **81**, 054426 (2010). 查読有

6) 著者名: <u>Y. Sakuraba</u>, T. Iwase, K. Saito, S. Mitani and K. Takanashi

論文標題: Enhancement of spin-asymmetery by L2<sub>1</sub>-ordering in Co<sub>2</sub>MnSi/Cr/Co<sub>2</sub>MnSi current-perpendicular-to-plane magnetoresistance devices

雜誌名: Applied Physics Letters, **94**, 012511 (2009). 查読有

7) 著者名: S. Bosu, <u>Y.Sakuraba</u>, K. Saito, H. Wang, S. Mitani and K. Takanashi

論文標題: Interlayer thickness dependence of 90 degree exchange coupling in Co<sub>2</sub>MnAl/Cr/Co<sub>2</sub>MnAl epitaxial trilayer structures."

雜誌名: Journal of Applied Physics **105**, 07C710 (2009). 查読有

〔学会発表〕(計6 件)

1) 発表者: 桜庭裕弥

発表標題: Fabrication and characterization of magnetic tunnel junctions with perpendicularly magnetized Co<sub>2</sub>MnSi half-metal electrode

Intermag-MMM Joing conference, 2010年1月14日 (ワシントン)

2) 発表者: 桜庭 裕弥

発表標題: Giant magneto-resistance in Co<sub>2</sub>MnSi/NM/Co<sub>2</sub>MnSi (NM = Cr, Ag) fully-epitaxial CPP-GMR devices 20th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces, 2009年7月23日(ドイツ)

3) 発表者: 桜庭裕弥

発表標題: Quantitative investigation of spin-asymmetry in Co<sub>2</sub>MnSi-based CPP-GMR devices
International Conference on magnetism, 2009 年 7 月 17 日(ドイツ)

4) 発表者: <u>桜庭裕弥</u> 発表標題:Co<sub>2</sub>MnSi /NM/ Co<sub>2</sub>MnSi (NM = Cr, Ag) CPP-GMR 素子の磁気伝導特性 第 144 回日本金属学会, 2009 年 3 月 30 日(東京)

# 5) 発表者: <u>桜庭裕弥</u>

発表標題:Co-Mn-Si/Cr/Co-Mn-Si 三層膜に おける層間交換結合の Co 組成依存性 第 143 回日本金属学会, 2008 年 9 月 24 日(熊本)

# 6) 発表者: 桜庭裕弥

発表標題: Co<sub>2</sub>MnSi /NM/ Co<sub>2</sub>MnSi (NM = Cr, Ag)構造 CPP-GMR 素子の作製と評価

第 32 回日本磁気学会, 2008 年 9 月 13 日 (宮城)

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

桜庭 裕弥 (YUYA SAKURABA) 東北大学・金属材料研究所・助教 研究者番号:10451618