

令和 5 年 5 月 24 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05296

研究課題名（和文）ハーフメタル逆ホイスラー合金におけるスピン軌道トルクの解明

研究課題名（英文）Spin-orbit-torque in inverse Heusler alloy films

研究代表者

窪田 崇秀（Kubota, Takahide）

東北大学・工学研究科・特任准教授

研究者番号：00580341

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、逆ホイスラー合金 $Mn_2CoGa$ 薄膜における磁気特性およびスピン依存伝導特性の結晶格子のひずみ依存性を解明することを目的とした。磁気特性については、薄膜作製技術を駆使することで格子ひずみ $c/a$ が0.96から1.04程度と広い範囲で系統的に変化した薄膜試料を作製することで、結晶磁気異方性定数（ $K_u$ ）が $c/a$ に依存して正から負に変化することを実験、理論両面から示すことに成功した。また、 $K_u$ の $c/a$ 依存性を電子論的観点で考察した。スピン依存伝導特性に関しては、異常ホール効果の高調波成分の測定により、スピン軌道トルクの観測に成功し、その絶対値が $c/a$ に異存することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性薄膜における磁気異方性並びにスピン軌道トルクの制御は磁気記録や磁気メモリ応用において重要な課題である。本研究で見出した材料は、薄膜作製条件によりそれらの物性を制御できるという特徴がある。従来材料では、材料組成そのものを変える、あるいは、他の材料との積層界面を形成することが物性制御に必要であったが、単一の材料でそれを実現したことは、学術、応用の両面で重要な意義がある成果である。

研究成果の概要（英文）：Lattice distortion dependence of magnetocrystalline anisotropy and spin-orbit torque were investigated for epitaxially grown inverse Heusler alloy,  $Mn_2CoGa$ , in this study. We successfully fabricated a series of  $Mn_2CoGa$  films showing different values of  $c/a$  in our experiments, and discovered that the magnetocrystalline anisotropy energy ( $K_u$ ) was proportional to  $c/a$  of the samples. The ab initio calculation also demonstrated the  $c/a$  dependent  $K_u$  and explained according to the change of electronic structure. Finally, we successfully demonstrated spin-orbit torque in  $Mn_2CoGa$  films experimentally.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 垂直磁化膜 MRAM マンガン 金属間化合物

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスの研究分野では、電子の電荷とスピン、2つの自由度を活用することで物性理解の深化、並びに、磁気抵抗効果をはじめとするスピン依存伝導現象の活用による電子機器の高性能化・高機能化を目指している。その中で、電気的手法による磁化の制御と検出の高効率化が課題とされている。本研究では、電気的手法による磁化の制御手法として注目されている「スピン軌道トルク」の高効率生成を、磁気抵抗素子高出力化のカギとされる高スピン分極率材料を用いて実現するための新規材料の必要性に着目した。

スピン軌道トルクとは、空間反転対称性の破れた(非中心対称)結晶中のスピン軌道相互作用に起因した有効磁場、または、磁性 / 非磁性積層界面におけるスピン蓄積によって磁性層の局在磁気モーメントに対して与えられるトルクである。試料中の電流によって生成可能なことから、薄膜磁性体中のダイナミクス誘起や、磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) の情報書き込み手法として着目されている。MRAM の情報書き込みについては、トルク生成原理の異なるスピン移行トルク (STT) に関する研究が先行しており製品化もなされているものの、スピン軌道トルクではトルク生成の電流経路が、STT とは異なり、MRAM の情報セルを構成するトンネル接合を通過しないため、情報書き込み時のエラー低減等の観点で STT に対して利点を有するとされている。

一方、高スピン分極材料に関しては、フェルミ準位における状態密度が完全にスピン分極したハーフメタルをはじめ様々な材料が MRAM 用の素子応用の他、スピントロニクス素子の高出力化を目指し探索や研究が進んでいる。ハーフメタル材料におけるスピン軌道トルクの研究については、非中心対称構造の磁性半導体(例、GaMnAs[1])や結晶格子にひずみを与えた C1<sub>b</sub> 型ハーフホイスラー合金(例、NiMnSb[2])の先行研究がある。磁性半導体においては、比較的低い電流値でのスピン軌道トルクによる磁化反転が実現されているものの、強磁性転移温度が室温より低いため、デバイス応用が困難である。一方、ハーフホイスラー合金については、本来の結晶系(立方晶系)のままでは反転対称性があるため、薄膜作製技術によるひずみがスピン軌道トルク生成に本質的に重要であるものの、ひずみの大小との定量的な関係性は未知であった。また、ハーフホイスラー合金は、ハーフメタルとしての電子状態を実現するためには、C1<sub>b</sub> 型の結晶構造中の原子空孔の規則性が重要であるが、薄膜作製において、その制御が困難という課題があった[3]。先行研究における課題(低温動作、ハーフメタル性の安定化)の解決を目指すべく、本研究課題では、新規材料として「逆ホイスラー合金、Mn<sub>2</sub>CoGa」に着目した。

図1に本研究と関連するホイスラー合金系材料の結晶構造の模式図を示す。各々、(a) L2<sub>1</sub> 型のフルホイスラー合金、(b) 逆ホイスラー合金、(c) 正方晶ひずみを与えた逆ホイスラー合金、(d) 正方晶ひずみを与えた C1<sub>b</sub> 型のハーフホイスラー合金(先行研究においてスピン軌道トルクの実験的観測がなされた結晶系)である。逆ホイスラー合金は、ハーフメタルとして知られるフルホイスラー合金と比較して、一部の原子位置が入れ替わった結果対称性が低下している。そこに、正方晶のひずみが入ることで、空間反転対称性の破れが生じる。ハーフホイスラー合金とは異なり、単位格子中に空孔位置を有しないため、規則相の制御が容易と予想されていた。

2. 研究の目的

本研究では、逆ホイスラー合金 Mn<sub>2</sub>CoGa 中に電流により誘起されるスピン軌道トルクを定量的に評価し、正方晶ひずみの大小との関係性を明らかにすることを目的とした。

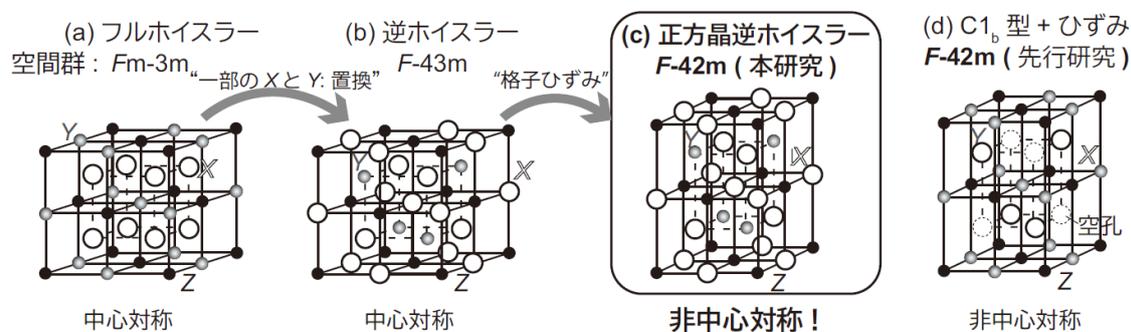


図 1 ホイスラー合金系材料の結晶構造。(a) フルホイスラー合金、 $X_2YZ$ 、(b) 逆ホイスラー合金、 $X_2YZ$  ( $XYXZ$ )、(c) 逆ホイスラー合金に正方晶ひずみを与えた場合。(d) 先行研究においてスピン軌道トルクの実験が行われた正方晶にひずんだハーフホイスラー合金、 $XYZ$ 。

### 3. 研究の方法

$\text{Mn}_2\text{CoGa}$  の薄膜試料を基板の種類並びに膜厚を変化させて作製し、正方晶ひずみの大きさ ( $c$  軸と  $a$  軸の比) を制御する。基板は  $\text{MgO}(100)$ 、 $\text{SrTiO}_3(100)$ 、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4(100)$  の各種単結晶基板を用いた。本報告中では、紙面の都合上  $\text{MgO}$  及び  $\text{SrTiO}_3$  (以下、 $\text{STO}$ ) に関する結果について記述する。膜厚は、3–100 nm の範囲で変化させた。各基板の格子定数とバルクにおける  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  の格子定数の不整合度は  $\text{MgO}$ : -1.5%、 $\text{STO}$ : +6.3%、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ : +2.6% である。したがって、 $\text{MgO}$  の場合は  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  に対する引っ張りひずみが、他の基板においては圧縮ひずみが誘起される。試料は結晶構造と磁気特性をそれぞれ X 線回折装置 (XRD) と振動試料型磁力計 (VSM) で評価した。スピン軌道トルクは、薄膜試料をホールバー形状に微細加工し、異常ホール抵抗値の 2 次の高調波を測定することで評価した。

実験の検討に加えて、第一原理による電子状態の計算を行った。 $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  の格子ひずみに依存した Fermi 面近傍の状態密度および、結晶磁気異方性エネルギー化を計算し、理論的考察を行った。

### 4. 研究成果

図 2 に  $\text{MgO}$  基板上及び  $\text{STO}$  基板上に成膜した  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  薄膜の格子定数 (薄膜面内:  $a$ , 面直:  $c$ ) 並びに  $c/a$  比の膜厚 ( $t$ ) 依存性を示す。 $\text{MgO}$  基板上 (図 2(a))、 $\text{STO}$  基板上 (図 2(b)) いずれの場合も、5 nm 付近では格子がひずみ、膜厚の増大に伴い  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  (図中では MCG と表記) のバルク値に向かって緩和していく傾向が確認できる。また、薄膜領域における格子定数については、面内の格子定数が基板の格子定数に近づく傾向が確認できる。上述の傾向に伴い、 $\text{MgO}$  基板上では薄膜面内の方向に引っ張りのひずみが誘起され、膜厚の薄い領域では負の  $c/a$  比を、対する  $\text{STO}$  基板上では圧縮ひずみが誘起され、正の  $c/a$  比をそれぞれ示す試料を作製することに成功した。

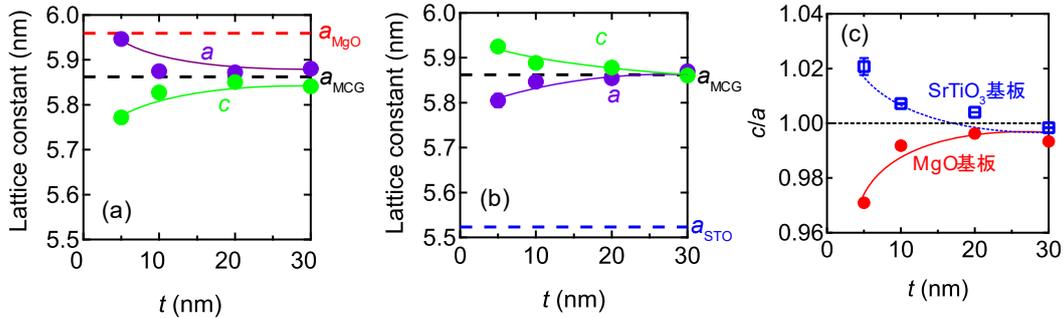


図 2 (a)  $\text{MgO}$  基板及び(b)  $\text{SrTiO}_3$  ( $\text{STO}$ )基板上に成膜した  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  (MCG) 薄膜の格子定数 ( $a$ : 薄膜面内、 $c$ : 面直) 及び(c)  $c/a$  比の膜厚( $t$ )依存性。点線は、MCG、 $\text{MgO}$ 、 $\text{STO}$  のバルクにおける格子定数を示す。

図 3 に  $\text{MgO}$  基板上及び  $\text{STO}$  基板上に成膜した  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  薄膜の  $t = 5$  nm および 30 nm における磁化曲線を示す。図中の赤線 ( $\parallel$ ) は薄膜面内方向に磁場掃引を行った結果、青線 ( $\perp$ ) は面直方向の結果である。いずれの基板の場合も、 $t = 30$  nm においては格子ひずみがほぼ緩和した状態 ( $c/a \sim 1$ ) である一方、 $t = 5$  nm においては、 $\text{MgO}$  基板上では  $c/a < 1$ 、 $\text{STO}$  基板上では  $c/a > 1$  である。まず、 $\text{MgO}$  基板上の結果について、 $t = 5$  nm と 30 nm とを比較すると、 $t = 5$  nm の方が 30 nm よりも垂直方向の飽和磁場が大きいことが確認でき、面内の引っ張りひずみにより、薄膜面内方向の異方性が誘起されていることが示唆される。一方、 $\text{STO}$  基板上の結果では、 $t = 5$  nm では垂直磁化膜になっているのに対し、30 nm では面内磁化膜が得られている。この結果から、 $\text{STO}$  基板上の  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  薄膜では、圧縮ひずみにより垂直磁気異方性が誘起されていると考えられる。格子ひずみと結晶磁気異方性の関係性を考察するために、薄膜面内及び面

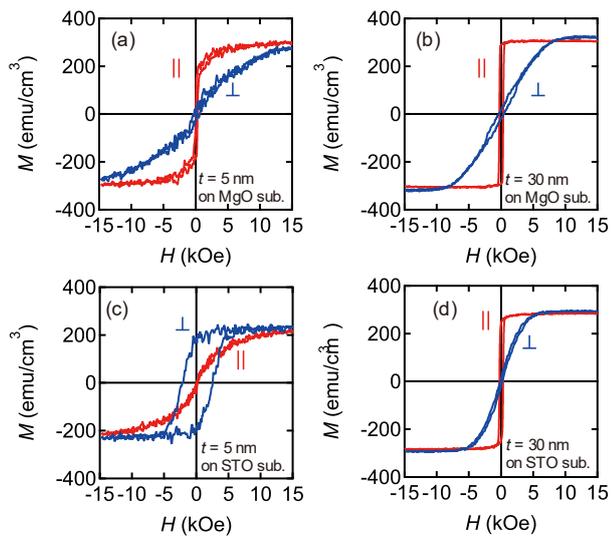


図 3 (a,b)  $\text{MgO}$  基板上及び(c, d)  $\text{STO}$  基板上に成膜した  $\text{Mn}_2\text{CoGa}$  薄膜の磁化曲線。赤 ( $\parallel$ ) が薄膜面内方向、青 ( $\perp$ ) が面直方向の測定結果。

直の磁化曲線の差分に形状磁気異方性の大きさを加味した値を垂直磁気異方性エネルギー $K_u$ とし、 $c/a$ 依存性をプロットした図を図4(a)に示す。図4には、前述の試料とは異なる成膜条件で作製したMgO、STO基板上的 $Mn_2CoGa$ 薄膜の結果に加えて、先行研究によるエピタキシャルAg(001)並びにCr(001)下地上に作製した $Mn_2CoGa$ 薄膜の結果も合わせてプロットした。また、実験結果の考察のために、第一原理計算により求めた $Mn_2CoGa$ の結晶磁気異方性エネルギーの $c/a$ 依存性を図4(b)に示す。まず、実験結果について、種々に下地並びに膜厚他の成膜条件を制御することで、 $c/a$ をおよそ0.96から1.04の範囲で系統的に変化させることに成功した。それに伴い $K_u$ は0を挟んで線形に変化することが確認できた。また、第一原理の計算結果においても同様の傾向が確認できる。計算によって得られた $Mn_2CoGa$ 中のMnのd軌道のひずみに伴う変化を考察した結果、 $Mn_2CoGa$ における $K_u$ の $c/a$ 依存性はFermi面近傍の軌道混成の変化によって説明できるとの結論が得られた[4]。

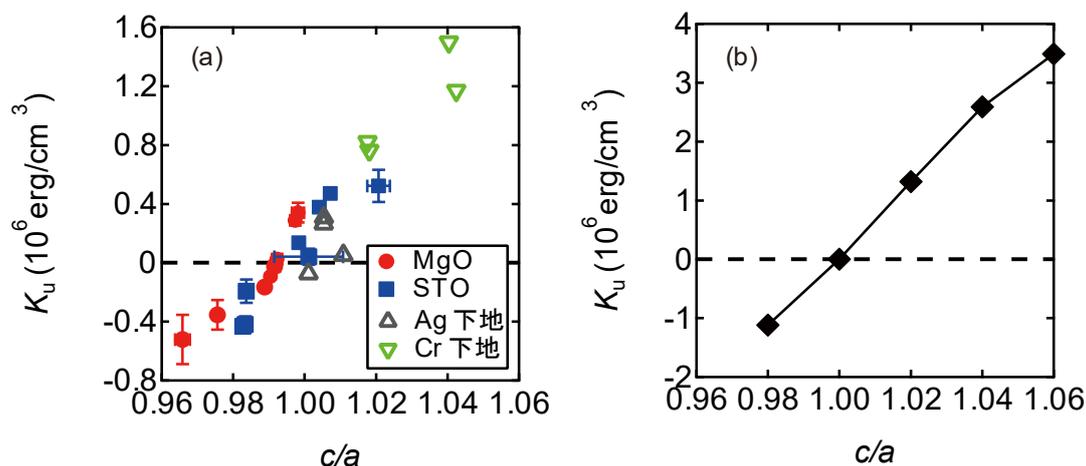


図4(a) 種々の基板、下地条件で作製した $Mn_2CoGa(001)$ エピタキシャル薄膜の垂直磁気異方性エネルギー $K_u$ の $c/a$ 依存性。(b)第一原理計算により求めた $Mn_2CoGa$ の結晶磁気異方性エネルギー $K_u$ の $c/a$ 依存性

以上の試料の中から、MgO基板上に作製した $t = 10, 20, 30 \text{ nm}$ の $Mn_2CoGa$ 薄膜について、異常ホール抵抗値の2次の高調波を測定し、スピン軌道トルクを評価した。図5に測定結果例とスピン軌道トルクのfield-like項の $c/a$ 依存性を示す。測定は、異常ホール抵抗値を印可電流に微小な交流振幅を与え、その1次( $\omega$ )及び2次の応答( $2\omega$ )成分の磁場印可角度依存性を複数の磁場で測定し、フィッティングを行うことでスピン軌道トルクを算出した。図5(a)及び5(b)はその測定結果の一例である(膜厚20 nm)。図5(c)が実験により得られたスピン軌道トルクのfield-like項( $H_{FL}$ )の $c/a$ 依存性であり、 $c/a$ に依存して $H_{FL}$ が変化していることが確認された。今後、そのメカニズムについて考察を進めていく予定である。

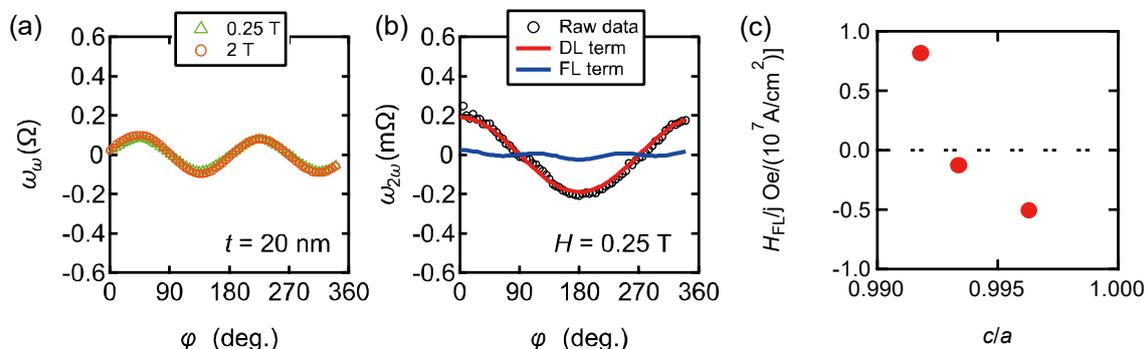


図5(a, b) 異常ホール抵抗値の角度依存性の測定およびフィッティング結果。(c) フィッティングにより求めたスピン軌道トルクのfield-like項の $c/a$ 依存性。

参考文献

- [1] M. Jiang *et al.*, Nat. Commun. **10**, 2590 (2019).
- [2] C. Ciccarelli *et al.*, Nat. Phys. **12**, 855 (2016).
- [3] T. Kubota *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **492**, 165667 (2019).
- [4] T. Kubota *et al.*, Phys. Rev. Mater. **6**, 044405 (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Frost William, Seki Takeshi, Kubota Takahide, Ramos Rafael, Saitoh Eiji, Takanashi Koki, Hirohata Atsufumi	4. 巻 118
2. 論文標題 Evaluation of edge domains in giant magnetoresistive junctions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 172405 ~ 172405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0049315	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Kubota Takahide, Ito Keita, Umetsu Rie Y., Takanashi Koki	4. 巻 118
2. 論文標題 Perpendicular magnetic anisotropy in ultra-thin Cu<sub>2</sub>Sb-type (Mn?Cr)AlGe films fabricated onto thermally oxidized silicon substrates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 262404 ~ 262404
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0049899	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kubota Takahide, Shimada Yusuke, Tsuchiya Tomoki, Yoshikawa Tomoki, Ito Keita, Takeda Yukiharu, Saitoh Yuji, Konno Toyohiko, Kimura Akio, Takanashi Koki	4. 巻 11
2. 論文標題 Microstructures and Interface Magnetic Moments in Mn<sub>2</sub>VAl/Fe Layered Films Showing Exchange Bias	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 1723 ~ 1723
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/nano11071723	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kubota Takahide, Takano Daichi, Kota Yohei, Mohanty Shaktiranjana, Ito Keita, Matsuki Mitsuhiro, Hayashida Masahiro, Sun Mingling, Takeda Yukiharu, Saitoh Yuji, Bedanta Subhankar, Kimura Akio, Takanashi Koki	4. 巻 6
2. 論文標題 Magnetoelastic anisotropy in Heusler-type Mn <sub>2</sub> -CoGa <sub>1+</sub> films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 044405-1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.6.044405	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Sasaki Yuta, Hiramatsu Ryoya, Kota Yohei, Kubota Takahide, Sonobe Yoshiaki, Sakuma Akimasa, Takanashi Koki, Kasai Shinya, Takahashi Yukiko K.	4. 巻 18
2. 論文標題 Magnetization Precession at Sub Terahertz Frequencies in Polycrystalline Cu2Sb Type (Mn-Cr)AlGe Ultrathin Films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2200378 ~ 2200378
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202200378	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計6件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)

1. 発表者名 Mitsuhiro Matuki, Takahide Kubota, Yohei Kota, Keita Ito, Yong-Chang Lau, Koki Takanashi
2. 発表標題 Lattice distortion and transport properties in Mn2 - CoGa1+ thin films
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松木充弘、窪田崇秀、小田洋平、伊藤啓太、高梨弘毅
2. 発表標題 Mn2 - CoGa1+ における垂直磁気異方性の格子歪依存性
3. 学会等名 第140回金属材料研究所講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Mitsuhiro Matuki, Takahide Kubota, Yohei Kota, Keita Ito, Koki Takanashi
2. 発表標題 Tetragonal strain and perpendicular magnetic anisotropy in Mn2- CoGa1+ thin films
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松木充弘、窪田崇秀、小田洋平、伊藤啓太、高梨弘毅
2. 発表標題 ホイスラー合金Mn <sub>2</sub> -CoGa <sub>1+</sub> 薄膜の歪誘起垂直磁気異方性
3. 学会等名 日本金属学会 第168回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takahide Kubota, Syuta Honda, Yoshiaki Sonobe, Takeshi Kato, Koki Takanashi
2. 発表標題 Current induced magnetization switching in (Mn-Cr)AlGe films showing perpendicular magnetization
3. 学会等名 67th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials conference in Minneapolis (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takahide Kubota, Takeshi Kato, Syuta Honda, Yoshiaki Sonobe, Koki Takanashi
2. 発表標題 Current Induced Magnetization Switching
3. 学会等名 in Perpendicularly Magnetized (Mn-Cr)AlGe/W Bilayer Samples
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	小田 洋平  (Kota Yohei)  (80751875)	福島工業高等専門学校・一般教科・准教授    (51601)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	伊藤 啓太  (Ito Keita)		
研究協力者	高梨 弘毅  (Takanashi Koki)		
研究協力者	木村 昭夫  (Kimura Akio)		
研究協力者	斎藤 祐児  (Saitoh Yuji)		
研究協力者	竹田 幸治  (Takeda Yukiharu)		
研究協力者	関 剛斎  (Sekki Takeshi)		
研究協力者	ラウ ヨンチャン  (Lau YongChang)		

## 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------