

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 21 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2012～2016

課題番号：24226001

研究課題名(和文)規則合金系ヘテロ接合における多彩な物理現象とスピndeバイス創製

研究課題名(英文)Variety of physical properties of hetero-junction with ordered alloys and the spin devices

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 167,800,000円

研究成果の概要(和文)：大きな磁気異方性と小さな磁気緩和定数を示し、平坦性の良いL10構造MnAl薄膜の作製に成功した。高いスピnde分極率と小さい磁気緩和定数を示すCoFeMnSiホイスラー合金を、アモルファスのSiO<sub>2</sub>基板上に作製することができた。L10-FePd電極上に極薄のPd薄膜を挿入し、成膜温度を最適化することでエピタキシャル成長したトンネル絶縁層を作製することができた。極薄かつ高品質のBiフェライト薄膜をLaSrMnO<sub>3</sub>強磁性層上に作製することに成功した。以上の規則合金を用いたヘテロ接合は、従来のスピndeバイスの性能を凌駕し、多彩な物理現象を示すことから、全く新しいスピndeバイスの創成につながるものである。

研究成果の概要(英文)：L10 structure MnAl thin film with large magnetic anisotropy, small magnetic relaxation constant and good flatness was succeeded in producing. A CoFeMnSi Heusler alloy exhibiting high spin polarizability and small magnetic relaxation constant could be fabricated on an amorphous SiO<sub>2</sub> substrate. By inserting an ultra-thin Pd thin film on the L10 - FePd electrode and optimizing the deposition temperature, it was possible to fabricate a tunnel insulating layer epitaxially grown. We succeeded to fabricate ultra-thin and high quality Bi ferrite thin film on LaSrMnO<sub>3</sub> ferromagnetic layer. Since the heterojunction using the ordered alloy as described above exceeds the performance of the conventional spin device and shows various physical phenomena, it leads to the creation of a completely new spin device.

研究分野：磁気工学

キーワード：スピndeバイス ヘテロ接合 規則合金 ホイスラー合金 L10合金 マルチフェロ材料 トンネル接合

## 1. 研究開始当初の背景

(1) スピントロニクス研究領域において近年の成膜技術、微細加工技術などの急速な発展によりデバイス開発が加速化してきている。これまで複雑なデバイス構造においてあまり使用されてこなかった規則合金系材料を比較的容易に積層でき、多彩な物性を示す薄膜および多機能のデバイス作製が可能となってきた。

(2) L21 規則構造をもつホイスラー合金を用いた研究は、材料の多彩さにもかかわらず、最適な材料探索に関しては手探り状態であるという状況である。特に磁気メモリ応用に関しては磁気異方性の大きさもさることながら、磁化反転に必要な電流の制限から、磁気緩和定数の小さい材料が求められている。これらを共に有する材料の開発は途についたばかりであり、更なる材料探索の観点からの研究が必要である。

(3) 国内の関連するプロジェクトとしては、科学研究費補助金による特定領域研究、スピン流の創出と制御、日本学術振興会の最先端プロジェクト、を初めとして、規則合金材料およびこれを用いたスピndeデバイス開発に関する多くのプロジェクトが展開されている。しかしながら、上記のように規則合金系ヘテロ構造の多彩な機能を十分に生かしたスピndeデバイスの開発に関する研究は充分であるとはいえない。

## 2. 研究の目的

強磁性体/絶縁体/強磁性体トンネル接合 (MTJ) におけるトンネル磁気抵抗効果を利用したデバイス開発は、産学連携のもとに飛躍的な発展を遂げている。なかでも、強磁性体に規則合金を用いると多彩な機能性を有する MTJ を実現することができる。その代表的なものが、L21 規則構造を有し高スピン分極率が期待できる Heusler 合金系および L10 規則構造を有する高磁気異方性材料である。これらの材料は将来の高速駆動、低消費電力、高熱耐性機能を有するデバイスの実現に不可欠と考えられている。一方で、これらの材料そのものがもつ特徴を薄膜構造内で十分に発現させてきているとは言えない。本提案の最終目標は、規則合金のヘテロ構造を最適化することにより高スピン分極率、低磁気緩和定数、高磁気異方性を持つスピndeデバイス開発を推進する。

## 3. 研究の方法

(1) L21 規則構造を有する Heusler 合金系材料の高品位薄膜作製

申請者らのグループで実績のある L21 規則構造を有する Heusler 合金系材料の高品位薄膜化を推進する。

MgO/Buffer/Heusler/X/MgO エピタキシャル薄膜の作製と界面制御

## 薄膜の物性評価

(2) L10 規則構造を有する高磁気異方性材料の高品位薄膜作製

申請者らのグループで実績のある L10 規則構造を有する高磁気異方性材料の高品位薄膜化を推進する。

MgO/Buffer/L10 合金/X/MgO エピタキシャル薄膜の作製と界面制御  
薄膜の物性評価

(3) 新規の物性を有する規則合金薄膜の探索

材料系を広範囲に探索する。スピン分極率向上は理論的予測に基づいて組成を幅広く探索する。

(4) L21 規則合金、L10 規則合金を用いたエピタキシャルトンネル接合の作製

MgO/Buffer/L21Heusler/X/MgO/X/L21Heusler, MgO/Buffer/L1 合金/X/MgO/X/L10 合金のエピタキシャルトンネル接合を作製する。前年度に作製したエピタキシャル薄膜上に X/L21Heusler, X/L10 合金を作製したトンネル接合構造とする。

(5) 規則合金ヘテロ接合の作製とデバイス評価

L21 規則合金薄膜と L10 規則合金薄膜のヘテロ接合を作製する。これらの接合構造により多彩な物性が期待できる。

L10 規則合金 / L21 規則合金接合による、高スピン分極率、高磁気異方性の実現

スピン注入用 L10 合金/X/MgO/X/L21 合金トンネル接合の作製

## 4. 研究成果

(1) L21 規則構造を有する Heusler 合金系材料の高品位薄膜作製

これまでに  $\text{Co}_2(\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6})\text{Si}$  ホイスラー合金が高いスピン分極率と非常に小さい磁気緩和定数を示すことを明らかにしてきた。最終年度に、アモルファスの  $\text{SiO}_2$  基板上に多結晶の  $\text{Co}_2(\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6})\text{Si}$  ホイスラー合金薄膜の作製を試みた。その結果、Ta/CoFeB/MgO 下地層を用いることで高規則度かつ高 (001) 配向を有する  $\text{Co}_2(\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6})\text{Si}$  ホイスラー合金薄膜を作製することができた。さらに、最適条件で作製した  $\text{Co}_2(\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6})\text{Si}$  ホイスラー合金薄膜を電極とした MTJ 素子においてエピタキシャル膜と同等の TMR 効果を観測することに成功した。開発した MTJ 素子は超高感度磁気センサに应用可能である。

(2) L10 規則構造を有する高磁気異方性材料の高品位薄膜作製

L10 構造を有する MnAl 薄膜は非常に大きな磁気異方性と小さな磁気緩和定数を示す一方で、薄膜作製時の基板温度が高いことで表

面平坦性が悪いことが問題であった。最終年度は、成膜後に適切な熱処理を施すことで良好な磁気特性を保持しつつ、表面平坦性を劇的に改善できた。開発した L10-MnAl 薄膜は 10 ナノメートル程度の超微小なトンネル磁気抵抗 (MTJ) 素子に应用可能である。また、これまでは MgO 単結晶基板上にエピタキシャル薄膜を作製してきたが、CrRu 合金下地層を用いることで、アモルファス SiO<sub>2</sub> 基板にも良質な L10-MnAl 薄膜を作製できた。

### (3) 新規の物性を有する規則合金薄膜の探索

L10-FePd 電極上にペロブスカイト型の SrTiO<sub>3</sub> エピタキシャルトンネル絶縁膜の作製を試みた。FePd と SrTiO<sub>3</sub> 界面に極薄の Pd 薄膜を挿入し、また、成膜温度を最適化することでエピタキシャル成長した SrTiO<sub>3</sub> トンネル絶縁層を作製することができた。SrTiO<sub>3</sub> トンネル絶縁層は低抵抗かつ高 TMR の MTJ 素子に应用可能である。

### (4) L21 規則合金, L10 規則合金を用いたエピタキシャルトンネル接合の作製

それぞれの合金を用いたトンネル接合の結果は上記(1), (2), (3)の成果に併せて示した。

### (5) 規則合金ヘテロ接合の作製とデバイス評価

極薄かつ高品質の Bi フェライト薄膜を LaSrMnO<sub>3</sub> 強磁性層上に作製することに成功した。マルチフェロイック特性を示すトンネル絶縁層を有する MTJ 素子は、電界効果を利用した新しいスピンドバイスの創成に結びつく画期的な成果である。

以上の規則合金を用いたヘテロ接合は、従来のスピンドバイスの性能を凌駕する可能性があり、また多彩な物理現象を示すことから、全く新しいスピンドバイスの創成につながるものである。

## 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 77 件)

安藤 康夫

強磁性トンネル接合素子を用いた生体磁気センサの開発

応用物理

査読：無、巻：86、発行年：2017

最初と最後の頁：305-309

DOI：なし

T. Nakano, M. Oogane, T. Furuichi, and Y. Ando

Magnetic tunnel junctions using perpendicularly magnetized synthetic

antiferromagnetic reference layer for wide-dynamic-range magnetic sensors  
Appl. Phys. Lett

査読：有、巻：110、発行年：2017

最初と最後の頁：12401

DOI：10.1063/1.4973462

S. Iihama, Y. Sasaki, A. Sugihara, A. Kamimaki, Y. Ando, and S. Mizukami  
Quantification of a propagating spin-wave packet created by an ultrashort laser pulse in a thin film of a magnetic metal

Phys. Rev. B

査読：有、巻：94、発行年：2016

最初と最後の頁：20401

DOI：10.1103/PhysRevB.94.020401

安藤 康夫

強磁性トンネル磁気抵抗素子センサ  
電気学会誌

査読：有、巻：136、発行年：2016

最初と最後の頁：22-25

DOI：なし

M Oogane, T Kubota<sup>1</sup>, H Naganuma and Y Ando

Magnetic damping constant in Co-based full heusler alloy epitaxial films  
Journal of Physics D: Applied Physics

査読：有、巻：48、発行年：2015

最初と最後の頁：164012-164012

DOI：10.1088/0022-3727/48/16/164012

Thomas Sebastian, Yuki Kawada, Björn Obry, Thomas Brächer, Philipp Pirro, Dmytro A Bozhko, Alexander A Serga, Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, Yasuo Ando and Burkard Hillebrands  
All-optical characterisation of the spintronic Heusler compound Co<sub>2</sub>Mn<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>Si

Journal of Physics D: Applied Physics

査読：有、巻：48、発行年：2015

最初と最後の頁：164015-164015

DOI：10.1088/0022-3727/48/16/164015

Hiroshi Naganuma, G. Kim, Yuki Kawada, Nobuhito Inami, Kenzo Hatakeyama, Satoshi Iihama, Khan Mohammed Nazrul Islam, Mikihiko Oogane, Shigemi Mizukami, and Yasuo Ando

Electrical Detection of Millimeter-Waves by Magnetic Tunnel Junctions Using Perpendicular Magnetized L10-FePd Free Layer

Nano Lett

査読：有、巻：15、発行年：2015

最初と最後の頁：623-628

DOI：10.1021/nl504114v

Yuki Kawada, Hiroshi Naganuma, Ahmet Serdar Demiray, Mikihiko Oogane, and Yasuo Ando

Mode change of vortex core oscillation induced by large direct current in 120 nm sized current perpendicular-to-plane giant magnetoresistance devices with a perpendicular polarizer  
Appl. Phys. Lett  
査読：有、巻：105、発行年：2014  
最初と最後の頁：052407\_1-4  
DOI：10.1063/1.4892077

Satoshi Iihama, Shigemi Mizukami, Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, Yasuo Ando, and Terunobu Miyazaki

Gilbert damping constants of Ta/CoFeB/MgO(Ta) thin films measured by optical detection of precessional magnetization dynamics  
Phys. Rev. B  
査読：有、巻：89、発行年：2014  
最初と最後の頁：174416\_1-6  
DOI：10.1103/PhysRevB.89.174416

Q. L. Ma, S. Mizukami, T. Kubota, X. M. Zhang, Y. Ando, and T. Miyazaki

Abrupt Transition from Ferromagnetic to Antiferromagnetic of Interfacial Exchange in Perpendicularly Magnetized L10-MnGa/FeCo Tuned by Fermi Level Position  
Phys. Rev. Lett  
査読：有、巻：112、発行年：2014  
最初と最後の頁：157202\_1-5  
DOI：10.1103/PhysRevLett.112.157202

安藤 康夫

スピントロニクス技術とデバイス開発  
応用物理  
査読：有、巻：83、発行年：2014  
最初と最後の頁：184-193  
DOI：-

Xianmin Zhang, Shigemi Mizukami, Takahide Kubota, Qinli Ma, Mikihiko Oogane, Hiroshi Naganuma, Yasuo Ando & Terunobu Miyazaki

Observation of a large spin-dependent transport length in organic spin valves at room temperature  
Nature communications  
査読：有、巻：4、発行年：2013  
最初と最後の頁：-  
DOI：10.1038/ncomms2423

T. Sebastian, T. Brächer, P. Pirro, A. A. Serga, B. Hillebrands, T. Kubota, H.

Naganuma, M. Oogane, and Y. Ando  
Nonlinear Emission of Spin-Wave Caustics from an Edge Mode of a Microstructured Co<sub>2</sub>Mn<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>Si Waveguide

Phys. Rev. Lett  
査読：有、巻：110、発行年：2013  
最初と最後の頁：067201-1-3  
DOI：10.1103/PhysRevLett.110.067201

Q. L. Ma, T. Kubota, S. Mizukami, X. M. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki

Interface tailoring effect on magnetic properties and their utilization in MnGa-based perpendicular magnetic tunnel junctions  
Phys. Rev. B  
査読：有、巻：87、発行年：2013  
最初と最後の頁：184421-1-4  
DOI：10.1103/PhysRevB.87.184426

Daiki Kato, Mikihiko Oogane, Kosuke Fujiwara, Takuo Nishikawa, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando

Fabrication of Magnetic Tunnel Junctions with Amorphous CoFeSiB Ferromagnetic Electrode for Magnetic Field Sensor Devices  
Applied Physics Express  
査読：有、巻：6、発行年：2013  
最初と最後の頁：103004-1-3  
DOI：10.7567/APEX.6.103004

S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, and Y. Ando

Composition dependence of magnetic properties in perpendicularly magnetized epitaxial thin films of Mn-Ga alloys  
Phys. Rev. B  
査読：有、巻：85、発行年：2012  
最初と最後の頁：014416-1-6  
DOI：10.1103/PhysRevB.85.014416

T. Sebastian, Y. Ohdaira, T. Kubota, P. Pirro, T. Brächer, K. Vogt, A. A. Serga, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and B. Hillebrands

Low-damping spin-wave propagation in a micro-structured Co<sub>2</sub>Mn<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>Si Heusler waveguide  
Appl. Phys. Lett  
査読：有、巻：100、発行年：2012  
最初と最後の頁：112402-1-3  
DOI：10.1063/1.3693391

Takahide Kubota, Qinli Ma, Shigemi Mizukami, Xianmin Zhang, Hiroshi

Naganuma, Mikihiro Oogane, Yasuo Ando and Terunobu Miyazaki  
Dependence of Tunnel Magnetoresistance Effect on Fe Thickness of Perpendicularly Magnetized L10-Mn62Ga38/Fe/MgO/CoFe Junctions  
Applied Physics Express  
査読：有、巻：5、発行年：2012  
最初と最後の頁：043003-1-3  
DOI：10.1143/APEX.5.043003

[学会発表](計 249 件)

M.Oogane, A.Ono and Y.Ando (招待講演)  
Magnetic tunnel junction with ferromagnetic ordered alloys  
Tohoku-Cambridge-CNRS Core-to-Core Project Symposium (国際学会)  
November 16, 2016  
Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Sendai, Japan

M.Oogane, Y.Ando (招待講演)  
Tunnel magnto-resistance using ferromagnetic ordered alloys  
2016 EMN on Spintronics (国際学会)  
October 11, 2016  
Las Vegas, USA

M.Oogane, A.Ono, Y.Ando (招待講演)  
Development of ferromagnetic ordered alloy films for spintronics  
3rd Workshop of the Core-to-Core Project Tohoku-York-Kaiserslautern (国際学会)  
June 22, 2016  
Kaiserslautern, Germany

安藤 康夫 (招待講演)  
TMR 素子を用いた磁場センサの心磁計への応用と展望  
第 31 回日本生体磁気学会大会  
2016 年 6 月 9-10 日  
金沢市：金沢市文化ホール

安藤 康夫 (招待講演)  
ホイスラー合金を用いた強磁性トンネル接合のデバイス応用の展望  
日本金属学会 2015 年秋期講演大会 (第 157 回)  
2015 年 9 月 16-18 日  
福岡市：九州大学 伊都キャンパス

安藤 康夫 (招待講演)  
強磁性トンネル接合を用いた高感度磁場センサの開発と展望  
日本磁気学会 第 203 回研究会  
2015 年 7 月 24 日  
東京都：日本大学理工学部

駿河台キャンパス

Yasuo Ando (招待講演)  
Bio-magnetic field sensor application of magnetic tunnel junctions  
The 6th IEEE international Nanoelectronics Conference 2014 (IEEE INEC 2014)  
July 29, 2014  
Hokkaido University, Sapporo

安藤 康夫 (招待講演)  
強磁性トンネル接合を用いた高感度磁場センサの開発と展望  
日本磁気学会 第 197 回研究会「高感度磁気センサの研究と製品」  
2014 年 7 月 11 日  
東京都：中央大学 駿河台記念館

安藤 康夫 (招待講演)  
強磁性トンネル接合を用いた生体磁気計測の現状と進歩  
第 53 回 日本生体医工学学会 オーガナイズドセッション「生体磁気計測技術の進歩」  
2014 年 6 月 24 日  
仙台市：仙台国際センター

Yasuo Ando, Daiki Kato, Kosuke Fujiwara, Hiroshi Naganuma, Mikihiro Oogane, T. Nishikawa (招待講演)  
Bio-magnetic field sensor application of magnetic tunnel junctions  
The AIMR International Symposium 2014 (AMIS 2014)  
February 18, 2014  
Sendai : Sendai International Center

Y. Ando (招待講演)  
Magnetic materials with high thermal stability and low magnetic damping  
The 2nd SRJ MRAM Forum 2013  
November 20, 2013  
Yokohama : Auditorium

Y.Ando (招待講演)  
MTJ-based Spintronics  
SSDM 2013 SHORT COURSE  
B. "Fundamentals and Applications of Spintronics Frontier"  
September 24-27 2013  
Fukuoka : Hilton FUKUOKA SEA HAWK

安藤 康夫, 藤原 耕輔, 大兼 幹彦, 永沼 博, 西川 卓男 (招待講演)  
トンネル磁気抵抗素子を用いた心磁場および脳磁場の計測  
日本磁気学会 第 44 回スピニエレクトロニクス専門研究会  
2013 年 3 月 6 日

東京：中央大学 駿河台記念館

安藤 康夫 (招待講演)  
スピンによる心磁図・脳磁図計測 - 革新的スピントロニクス医療デバイスの創成の可能性 -  
第7回 ATI 合同研究会「スピンと生命の融合」 - バイオスピントロニクスの可能性を探る -  
2012年11月27日  
東京：東京大学

〔図書〕(計3件)

安藤 康夫  
応用物理学会、応用物理、2014、10

安藤 康夫  
トリケップス、新しい磁気センサとその応用、2014、40

安藤 康夫  
技術情報協会、技術シーズを活用した研究開発テーマの発掘(第6章)  
2013、1-7

〔産業財産権〕

出願状況(計7件)

名称：Mn系強磁性薄膜およびその製造方法、ならびにMn系強磁性薄膜を有する磁気トンネル接合  
発明者：大兼幹彦、安藤康夫、渡辺美穂、渡部健太、栗本雄太  
権利者：同上  
種類：特許  
番号：特願2016-067011  
出願年月日：2016年03月30日  
国内外の別：国内

名称：Mn系強磁性薄膜およびその製造方法、ならびにMn系強磁性薄膜を有する磁気トンネル接合  
発明者：大兼幹彦、安藤康夫、栗本雄太  
権利者：同上  
種類：特許  
番号：特願2015-210894  
出願年月日：2015年10月27日  
国内外の別：国内

名称：マルチフェロイックトンネル接合素子および超高感度センサデバイス  
発明者：永沼博、大兼幹彦、安藤康夫、一ノ瀬智浩  
権利者：同上  
種類：特許  
番号：特願2014-245314  
出願年月日：2014年12月03日  
国内外の別：国内

名称：磁気抵抗素子

発明者：矢野敏史、青建一、安藤康夫、大兼幹彦

権利者：同上  
種類：特許  
番号：特願2014-162820  
出願年月日：2014年08月08日  
国内外の別：国内

名称：磁気センサ  
発明者：矢野敏史、青建一、安藤康夫、大兼幹彦

権利者：同上  
種類：特許  
番号：176972  
出願年月日：2013年08月28日  
国内外の別：国内

名称：磁気センサー及びその製造方法

発明者：西川卓男、安藤康夫

権利者：同上  
種類：特許  
番号：150339  
出願年月日：2013年07月24日  
国内外の別：国内

名称：マルチフェロイック薄膜及びそれをを用いたデバイス

発明者：永沼博  
権利者：同上  
種類：特許  
番号：特願2012-179119  
出願年月日：2012年08月11日  
国内外の別：国内

〔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 Mikihiko)  
東北大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：50396454

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

水上 成美 (MIZUKAMI Shigemi)  
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・教授  
研究者番号：00339269