### MBE 法で作製した Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜のハーフメタル特性

大兼幹彦<sup>1</sup>, A. P. McFadden<sup>2</sup>, 福田健二<sup>1</sup>, 角田匡清<sup>1</sup>, 安藤康夫<sup>1</sup>, C. J. Palmstrøm<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>東北大学大学院工学研究科,<sup>2</sup>University of California)

Half-metallic properties in  $\mathrm{Co}_2\mathrm{MnSi}$  thin film grown by molecular beam epitaxy

M. Oogane<sup>1</sup>, A. P. McFadden<sup>2</sup>, K. Fukuda<sup>1</sup>, M. Tsunoda<sup>1</sup>, Y. Ando<sup>1</sup>, and C. J. Palmstrøm<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering, Tohoku University, <sup>2</sup>University of California)

#### 背景

室温でハーフメタル特性を示すと考えられるホイスラー合金に対する期待は大きい。特に Co 基のホイスラ ー合金を用いた強磁性トンネル接合や面直通電型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子では、大きな磁気抵抗効果が 観測されている。しかし、原理的にはさらに大きな磁気抵抗効果が得られるはずであり、さらなるハーフメ タル特性の改善が求められている。本研究では、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて高品質の Co<sub>2</sub>MnSi ホ イスラー合金薄膜を作製し、ハーフメタル特性の改善を目的として実験を行った。先行研究を参考にして、 負の異方性磁気抵抗(AMR)効果<sup>1)</sup>、および、小さい磁気緩和定数<sup>2)</sup>をハーフメタル特性の指標として用いた。

#### 実験方法

MgO(001)単結晶基板上に、20 nm の MgO 下地層薄膜を電子ビーム蒸着により作製し、10 nm の Co<sub>2-x</sub>Mn<sub>1+x</sub>Si ホイスラー合金薄膜を MBE 法で形成した。成膜時の温度は室温で、薄膜形成後に成膜チャンバ内で 600°C にて熱処理を行った。また、共蒸着により組成を制御し、x = -0.1~0.3 の間で変化させた。作製した薄膜の結晶構造を X 線構造解析、磁気特性を SQUID で測定した。異方性磁気抵抗効果は微細加工によりホールバーを形成し、直流 4 端子法で測定した。また、磁気緩和定数は強磁性共鳴(FMR)を用いて測定した。

#### 実験結果

薄膜の組成分析の結果から、作製した試料は若干設計値よりも Co リッチの組成であったが、MBE 法で組成制御ができていることが分かった。X線回折の結果から、x=0.0-0.2の組成では、高い B2 規則度を有していることを確認した。また、飽和磁化がバルクと同程度の値が得られたことも、薄膜の規則度が高いことを示している。AMR 効果を測定した結果、すべての組成において負の AMR 効果が観測された。特に x=0.0-0.2の化学両論組成に近い試料では、従来のスパッタ法によって作製された Co 基ホイスラー合金の AMR 比に比べて、大きな AMR 効果が観測された。さらに磁気緩和定数を測定した結果、x=0.0-0.2において小さな磁気緩和定数が観測された。特に x=0.1 組成では、0.0007 と金属磁性体の中では極めて小さい磁気緩和定数が得られた。本研究で得られた、大きな負の AMR 効果と非常に小さい磁気緩和定数を有する Co<sub>2</sub>MnSi ホイスラー合金薄膜は、非常に良好なハーフメタル特性を有しているものと考えられる。

#### 謝辞

本研究は、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)、JST S-イノベプロジェクト、および U.S. Department of Energy (DE-SC0014388)の支援を受けて行われた。

#### <u>参考文献</u>

- Y. Sakuraba, S. Kokado, Y. Hirayama, T. Furubayashi, H. Sukegawa, S. Li, Y. K. Takahashi, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **104** 172407 (2014).
- M. Oogane, T. Kubota, Y. Kota, S. Mizukami, H. Naganuma, A. Sakuma, and Y. Ando, *Appl. Phys. Lett.* 96 252501 (2010).

### Analysis of microstructure and transport properties in Mn<sub>2</sub>CoAl Heusler alloy

Z.Chen, X.Xu, Y.Sakuraba, W. Zhou, J. Wang, T. Nakatani, K.Hono (Research Center of Magnetic and Spintronic Materials, NIMS)

#### 1. Introduction

A spin gapless semiconductor (SGS) is a new type of material in spintronics which is predicted to have a band gap in one of the spin channels and a zero band gap in the other, allowing novel spin transport functionalities such as carrier spin-polarization tunability by electric field [1]. Recently, various SGS materials have been reported in the group of Heusler compounds. Mn<sub>2</sub>CoAl is most widely studied SGS material, which was reported to exhibit SGS-like behavior in a bulk sample [2]. However, such SGS-like properties have not been reproduced in thin films [3][4]. We have already noticed that the phase separation often happens in Mn<sub>2</sub>CoAl thin films made by a sputtering method, therefore, we could not observe the transport properties arising from SGS such as low carrier density and positive MR ratio at low temperature. Since no one has ever investigated how the composition, atomic ordering and microstructure affect the transport properties in Mn<sub>2</sub>CoAl with different composition to carry out systematic investigation and find out what the critical factor to determine SGS properties is.

#### 2. Experiment

Mn<sub>2</sub>CoAl bulk alloy was prepared by arc melting Mn, Co, and Al high purity metals. The initial ratio of materials was Mn<sub>2</sub>Co<sub>2</sub>Al=50:25:25. The alloy buttens were annealed at 1100°C for 72h, then quenched in ice water. According to the result of ICP, the composition of the bulk was determined to be Mn<sub>47.1</sub>Co<sub>27</sub>Al<sub>25.9</sub> (at%), the Mn is less than stoichiometry. XRD is used to detect the structure. Conventional Van der Pauw method was used to measure temperature dependence of electric resistance, Hall effect and MR ratio in bulk MCA by PPMS. Microstructure of the samples was carefully investigated by SEM, TEM, 3D atom probe and EDS.

#### 3. Results and Discussion

XRD result shows a diffraction pattern arising from single phase MCA and clear (111) super lattice peak, suggesting the presence of either L2<sub>1</sub>, D0<sub>3</sub> or XA ordering. Curie temperature was 827K, which did not change by annealing. Temperature dependence of resistivity shows semiconducting behavior. The carrier density as  $2.17 \times 10^{22} cm^{-3}$  at 10K, and  $2.73 \times 10^{22} cm^{-3}$  at 300K, are much higher than reported for a bulk (10<sup>17</sup>) and a thin film (10<sup>20</sup>). The result of MR ratio has the similar trend as the reported for the bulk [4], positive at low temperature. However, the MR ratio was only 0.12% at 10K, which is much lower than the reported previously, 5% at 40K. According to the 3D atom probe map and TEM analysis, the annealed sample contained nanoscale Mn-rich second phase, while the matrix is Mn<sub>2</sub>CoAl having inverse Heusler structure. Therefore, the observed transport property cannot be attributed to the single phase SGS.





Fig.1 3D atom probe map of the samples before and after annealing.

Fig.2 MR ratio measured at different temperature

#### Reference

- 1) X. L. Wang, PRL 100, 156404 (2008).
- 2) Michelle E. Jamer et al., Appl. Phys. Lett. 103, 142403 (2013).
- 3) G. Z. Xu et al., Appl. Phys. Lett. 104, 242408 (2014)
- 4) S. Ouardi et al., Phys. Rev. Lett. 110, 100401 (2013)

# CoVMnAl 合金の原子配列と電子状態

梅津理恵、福島鉄也\*、齊藤耕太郎\*\*、小野寛太\*\*、黒田文彬\*、小口多美夫\*、石垣徹\*\*\* (東北大、\*阪大、\*\*高エネ研、\*\*\*茨城大)

Atomic configuration and electronic state for CoVMnAl alloy

R.Y. Umetsu, T. Fukushima\*, K. Saito\*\*, K. Ono\*\*, F. Kuroda\*, T. Oguchi\*, T. Ishigaki\*\*\*

(Tohoku Univ., \*Osaka Univ., \*\*KEK, \*\*\*Ibaraki Univ.)

#### <u>はじめに</u>

近年、様々な4元系ホイスラー合金がハーフメタル型電子状態やスピンギャップレス半導体(SGS)型電子状態を有することが第一原理計算において報告されている<sup>1-3)</sup>。これらの合金の電子状態は原子配列や規則度に影響されると考えられるが、合金が電子散乱因子の近い元素から構成されている場合、粉末X線回折測定から結晶構造を精密に決めることは困難である。本研究では、CoVMnAl合金の多結晶試料を作製して粉末中性子回折測定を行い、原子の配列を決定するとともに、その構造について電子状態の計算を行った。

#### <u>実験方法</u>

CoVMnAl 多結晶試料は高周波浮揚溶解(レビテーション溶解)により作製し、1473 K にて 2 日間均一化 熱処理を施した後、水中に急冷して得た。規則-不規則相変態温度を調べるために示差走査熱量(DSC)測 定を行い、その結果を基に時効熱処理温度を決定した。磁化測定は SQUID 磁束計を用い、粉末中性子回折測 定は、J-PARC の BL20 に設置されている茨城県材料構造解析装置(iMATERIA)を用いて飛行時間法(TOF) により行い、解析には Z-Code を用いた<sup>4.5</sup>。

#### <u>実験結果</u>

ICP 発光分光分析法により、得られた合金試料の組成は Co-26.7, V-26.1, Mn-22.1 and Al-25.1 at.%であることが確認 された。Fig.1に 500 Oe の磁場中で測定した熱磁化曲線を 示す。内挿図は5Kにおける磁化曲線である。試料はそれ ぞれ 1323 K、または 873 K にて時効熱処理を施して急冷し た。磁化曲線より得た自発磁化の値を単位砲当たりの磁気 モーメントに換算すると、それぞれ 0.15、0.04 µ<sub>B</sub> /f.u.と非 常に小さく、高い温度から急冷して得た試料の方が値がや や大きい。熱磁化曲線の温度微分において極小値をキュリ ー温度と定義すると、それぞれ 48 K, 11 K であった。Fig. 2 は室温で測定を行った、873 Kより急冷して得た CoVMnAl 合金の粉末中性子回折測定による回折パターンである。 LiMgPdSn 型構造として解析を行うと、実験で得られた回 折パターンは全く説明がつかず、空間群 225 の L21,型構造 とした場合に最も良く実験結果が再現された。この場合の 電子状態は、ハーフメタル性は維持されるものの、8cサイ トの Co と Mn の不規則化により SGS 型の電子状態の特徴 は損なわれていた。

#### <u>参考文献</u>

- 1) X. Dai et al., J. Appl. Phys. 105 (2009) 07E901.
- 2) G. Z. Xu et al., Euro. Phys. Lett. 102 (2013) 17007.
- 3) K. Özdoğan et al. J. Appl. Phys., 113 (2013) 193903.
- 4) R. Oishi *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 600 (2009) 94.
- 5) R. Oishi-Tomiyasu et al., J. Appl. Cryst. 45 (2012) 299.



Fig. 1 Thermomagnetization and magnetization curves for the CoVMnAl specimens obtained by the annealing at 1323 K and 873 K.



Fig. 2 Powder neutron diffraction pattern of the CoVMnAl specimen annealed at 873 K.

# Large MR ratio in epitaxial Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/Cu/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> current-in-plane giant magnetoresistive devices

K.B. Fathoni<sup>1,2</sup>, Y. Sakuraba<sup>1</sup>, T. Sasaki<sup>1</sup>, T. Nakatani<sup>1</sup>, K. Hono<sup>1</sup> <sup>1</sup>National Institute of Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan <sup>2</sup>University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

Current in-plane giant magnetoresistance (CIP-GMR) is a classical magnetoresistive effect, which had been utilized as read heads for HDD. After tunnel magnetoresistance (TMR) became major interest in spintronics, the research on CIP-GMR has become obsolete. However, CIP-GMR is worth to be revisited for a highly sensitive magnetic field sensor because of its advantages such as small low frequency noise and small bias voltage dependence of MR ratio unlike TMR devices. A serious drawback of CIP-GMR is low MR ratio compared to TMR devices, at most 29% in the trilayer device by using the specular reflection technique [1]; thus the enhancement of MR ratio will expand the possibility of CIP-GMR for various sensor applications. Although the spin-dependent scattering at the ferromagnetic layer/non-magnetic spacer interface is essential in CIP-GMR have not been systematically studied so far. Therefore, in this study, we fabricated epitaxial and poly-crystalline CIP-GMR devices having different crystalline orientation and interfacial lattice matching to investigate their transport property and microstructure systematically.

A multilayer stack of  $Co_{50}Fe_{50}(6)/Ag(t)$  or  $Cu(t)/Co_{50}Fe_{50}(6)/IrMn(8)/Ta(3)$  (thickness in nm) was deposited onto MgO(001) single-crystalline substrate using ultrahigh magnetron sputtering system and then annealed at 250 °C under 3 kOe constant magnetic field to obtain the exchange bias by IrMn. The thicknesses (*t*) of the Cu and Ag spacers were varied from t = 0 - 5 nm. Figure 1 shows *t* dependence of MR ratio. As *t* decreases, MR ratio increases until two  $Co_{50}Fe_{50}$  layers are coupled ferromagnetically. Interestingly, the device with Cu spacer having a large lattice mismatch with  $Co_{50}Fe_{50}$  (lattice misfit ~ 10%) shows larger MR ratios up to 25% at room temperature compared to those with a Ag spacer with a smaller lattice mismatch with  $Co_{50}Fe_{50}$  (lattice misfit ~ 2%). Figure 2 shows temperature dependences of MR ratio and  $\Delta R$  of the CIP-GMR devices with Cu and Ag spacers. As temperature decreases, the MR ratio of both samples increases. On the other hand,  $\Delta R$  increases with decreasing temperature in the device with a Cu spacer while  $\Delta R$  decreases in the sample with a Ag spacer. If we assume the same spin-dependent bulk scattering in  $Co_{50}Fe_{50}$  between two samples, this result suggests a spin-dependent scattering at the  $Co_{50}Fe_{50}/Cu$  interface enlarges with decreasing temperature.

#### Reference



Figure 1. Spacer thickness (*t*) dependence of MR ratio.



Figure 2. Temperature dependences of MR ratio and  $\Delta R$  with Ag and Cu spacers.

1) M. Seigler, IEEE Trans. Magn., **43** (2007) 651.

# 非化学量論組成 MBE 法で成長した CoFeVSi エピタキシャル薄膜の 磁性および磁気伝導特性

小林慎也<sup>1</sup>,山田晋也<sup>1,2</sup>,、浜屋宏平<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>阪大基礎工、<sup>2</sup>阪大基礎工スピントロニクスセンター) Magnetic and magnetotransport properties of CoFeVSi epitaxial films grown by a nonstoichiometric MBE technique S. Kobayashi<sup>1</sup>, S. Yamada<sup>1,2</sup>, and K. Hamaya<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ.)

#### <u>はじめに</u>

スピンギャップレス半導体(SGS)は、高スピン偏極率と高キャリア移動度を併せ持ち、電界などの外場によってフェルミ準位の位置を制御できる可能性を有している<sup>1)</sup>と予想されている。我々は、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて、SGS 系の材料であると理論的に予測されている CoFeVSi(CFVS)<sup>2)</sup>の薄膜の形成を試みてきたが、化学量論組成蒸着では組成ズレの影響が大きいことが明らかになっていた。本講演では、非化学量論組成蒸着を積極的に利用し、組成制御された CoFeVSi の薄膜成長に成功したため、それらの磁性および磁気伝導特性について述べる。

#### 実験結果

MBE 法を用いて、MgO(100)基板上に Co、Fe、V、Si を 1:1:x:1 の比率(x=1.13、1.26、1.39)で同時蒸着 して CFVS 薄膜を形成した(基板温度:400 ℃)。薄膜形成後の RHEED 像から、いずれの x においてもエピタキ シャル成長に成功していることを確認した。EDX 分析の結果から、x の増加に伴って膜中の V 比率が増加し、 x=1.26 で Co:Fe:V:Si=1:1:1:1に制御されていることが判明した。図1に x=1.26 の磁化曲線を示す。

50 K における飽和磁化は約 1.7  $\mu_B/f.u.$ で、理論値(~2  $\mu_B/f.u.$ )<sup>2)</sup>に近づく傾向が見られた。温度上昇に伴い磁化は減少し、キュリー温度は室温付近であることが示唆された。

作製した CFVS 薄膜の磁気抵抗(MR)比の温度依存性を図 2 に示 す。低温で強磁性を示すにも関わらず、磁場に対して正の線形的 な MR の変化が観測されている。これは、SGS 特性が報告されて いるバルク Mn<sub>2</sub>CoAl などで観測された特徴的な磁気伝導特性<sup>3)</sup>と 同様の振る舞いである。また、ホール効果測定の温度依存性から、 温度降下に伴ってキャリアが正孔から電子に変化していく様子が 観測され、フェルミ準位が SGS 特有のバンド構造の価電子帯と伝 導帯の中心付近に存在することを示唆している。これらの結果は、 作製した CFVS 薄膜において SGS 系に特徴的な電子構造が実現し つつあることを示唆している。講演では CFVS 薄膜の V 量が磁気 特性や伝導特性に与える影響について述べる。

本研究の一部は、科研費基盤研究(A)(No. 16H02333)の支援を受けた。

#### 参考文献

- 1) X. L. Wang, Phys. Rev. Lett. 100, 156404 (2008).
- 2) Z. Ren *et al.*, J. Supercond. Nov. Magn. **29**(**12**), 3181 (2016).
- 3) S. Ouardi et al., Phys. Rev. Lett. 110, 100401 (2013).



図 2:CFVS 薄膜(x=1.26)の磁気抵抗効果.

# Bulk and near-interface magnetic properties of Co<sub>2</sub>Fe(Ga<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>) Heusler alloy explored by magnetic circular dichroism in hard x-ray photoelectron spectroscopy

J. W. Jung<sup>1</sup>, Y. Sakuraba<sup>1</sup>, T. T. Sasaki<sup>1</sup>, Y. Miura<sup>1</sup>, A. Yasui<sup>2</sup>, L. S. R. Kumara<sup>2</sup>, T. Nakatani<sup>1</sup>, and K. Hono<sup>1</sup>

<sup>1</sup> National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-004, Japan

<sup>2</sup> Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Sayo 679-5198, Japan

Co-based Heusler alloys have attracted attention for the applications as ferromagnetic (FM) electrodes spintronic devices. In particular, in large magnetoresistance (MR) ratios over 50% at room temperature have been demonstrated in the currentperpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices using Co-based Heusler alloys with the  $L2_1$  structure<sup>1</sup>), which are one order of magnitude larger than those using conventional FMs such as CoFe. In general, however, the MR ratio in the CPP-GMR devices using Heusler alloys largely decreases with increasing temperature compared to the CoFebased CPP-GMR, whose origin has not been understood sufficiently. One possibility for the origin of the large MR degradation at elevated temperature is



Fig. 1 Sketch of sample structure of CoFe and CFGG films. The normalized magnetic moments with Co and Fe elements in the case of a) CoFe and b) CFGG films

the weak magnetic exchange stiffness at the interface between Heusler alloy and non-magnetic spacer, which is considered to lead to a large thermal fluctuation of the magnetization near the interface. In order to understand the mechanisms of such large temperature dependence of CPP-GMR, we performed *in-situ* hard x-ray photoelectron spectroscopy (HAXPES)-magnetic circular dichroism (MCD) experiment at beamline BL09XU of SPring-8. The HAXPES-MCD is a powerful method for investigating the element-specific magnetic properties in thin magnetic films and buried layers of multilayers.<sup>2)</sup> By varying the take-off angle (TOA) of photoelectron by using a rotatable sample stage, it is possible to control the probing depth of circularly polarized x-rays from near-interface (lower TOA) to bulk (higher TOA) region. We performed HAXPES-MCD measurements for two kinds of samples: CoFe(50 nm) and CFGG(50 nm) thin films, which were grown epitaxially on a MgO (001) single-crystal substrate buffered by Cr (10 nm)/Ag (100 nm). Thin Ag (2 nm)/Ta (2.5 nm) were deposited on top of films to prevent surface oxidation. Before the measurement, we confirmed atomically flat interface between CFGG and Ag by STEM/HAADF. The HAXPES-MCD experiments with an excitation energy of 8003.58eV by circularly polarized x-ray were performed. Fig. 1 shows the normalized magnetic moments resulting from the normalized peak intensities at each Fe and Co  $2p_{3/2}$  states for the CoFe and CFGG samples, as TOA is varied from  $20^{\circ}$ -70° form sample normal, which corresponds to an effective probing depth variation of 8-22 nm. The normalized intensities were calculated from different MCD intensities of opposite helicity divided by their sum of total intensities after subtracting a Shirley-type background. In the case of CFGG sample, the normalized intensities reduce with decreasing TOA, indicating large thermal fluctuation with smaller magnetic moment compared to that of bulk CFGG. On the other hand, for the CoFe case, the magnetic moment did not exhibit marked changes by changing TOA. Consequently, this result suggests that an improvement of exchange stiffness at near interface is the key to reduce temperature dependence of MR ratio in Heusler alloy-based CPP-GMR.

#### **Reference**

1) J.W. Jung et al., Appl. Phys. Lett. 108, 102408 (2016).

<sup>2)</sup> X. Kozina et al., Phys. Rev. B 84, 054449 (2011).

# AgInZnO スペーサー層を用いたホイスラー合金 CPP-GMR 素子

中谷 友也、佐々木 泰祐、桜庭 裕弥、宝野 和博 (物質・材料研究機構) CPP-GMR devices using Heusler alloy and AgInZnO spacer layer Tomoya Nakatani, Taisuke Sasaki, Yuya Sakuraba, Kazuhiro Hono (National Institute for Materials Science)

#### <u>はじめに</u>

ホイスラー合金を強磁性層に用いた面直電流巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子は、低素子抵抗かつ比較的大 きな磁気抵抗(MR)出力のため、高記録密度ハードディスクドライブの再生ヘッドセンサや、高感度磁気セ ンサへの応用が期待される。非磁性スペーサー層に Ag/InZnO など金属と酸化物の積層膜を用いることで、 MR比の増大が報告されており[1]、さらなるMR出力の改善のためにスペーサー層の材料開発が重要である。 本研究では AgInZnO をスペーサー層に用いた CPP-GMR素子を作製し、磁気抵抗特性と微細構造を調査した。

#### 実験方法

マグネトロンスパッタリングにより、多結晶擬スピンバルブ膜を作製した。積層構造は Cu 電極 /Ta(2)/Ru(2)/CoFe(0.5)/CoFeBTa(1.5)/CMFG(5)/CoFe(0.4)/AgInZnO(1.2)/CoFe(0.4)/CMFG(5)/CoFeBTa(1.5)/Ru(8) (膜厚は nm) であり、成膜後に 280 °C で 3 h の熱処理をおこなった。CMFG は Co<sub>2</sub>(Mn<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>)Ge ホイスラー 合金であり、AgInZnO は Ag と InZnO (In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 10 wt. %–ZnO 90 wt. %の混合体)の同時スパッタリングにより成 膜した。AgInZnO 中の Ag の公称濃度は 20-36 at. %である。比較のため、Ag<sub>90</sub>Sn<sub>10</sub>(3.5 nm)スペーサー、Ag(0.4 nm)/InZnO(1.3-1.75 nm)スペーサーを用いた CPP-GMR 素子を作製した。

#### 実験結果

図1に CPP-GMR 素子の室温における素子抵抗×面積 (*RA*)と MR比 ( $\Delta R/R$ )を示す。AgInZnO スペーサーを用いた素子では、 AgInZnO 中の Ag 濃度の増加とともに  $\Delta R/R$  と *RA* が減少し、 Ag<sub>90</sub>Sn<sub>10</sub> スペーサーを用いた全金属 CPP-GMR 素子の値 (*RA* = 0.03  $\Omega$  µm<sup>2</sup>,  $\Delta R/R$  = 18%) に漸近する。*RA* > 0.2  $\Omega$  µm<sup>2</sup>の領域で  $\Delta R/R \sim 60\%$ , *RA* = 0.08  $\Omega$  µm<sup>2</sup>において  $\Delta R/R \sim 50\%$ という高い MR 比が多結晶薄膜を用いて実現される。これは面記録密度 5 Tbit/in<sup>2</sup>に要求される *RA* と  $\Delta R/R$  の値[2]を満足しており、次世 代の再生ヘッドセンサとして有望である。一方、Ag/InZnO 2 層 スペーサーを用いた場合では、MR 比が最大で 35%と AgInZnO スペーサーに比べ低い値しか得られない。

図2に走査透過電子顕微鏡でのエネルギー分散型X線分析法 による、CPP-GMR 膜内の元素分布を示す。元来 Mn は CMFG

層にしか存在しないはずであるが、スペーサー内に高濃 度の Mn と O が見られた。電子回折図形からこれは岩塩 構造の MnO であることがわかった。一方、In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は還元 され、AgIn 合金を形成している。AgIn は部分的に上下の CMFG 間をつなぐパスを形成しており、電流が狭窄して 流れるために大きな MR 比が得られるのであると考えら れる。

<u>参考文献</u> [1] Nakatani *et al.* IEEE Trans. Magn. 54, 3300211 (2018). [2] Takagishi *et al.* IEEE Trans. Magn. 46, 2086 (2010).



図 1 CPP-GMR 素子の *RA* と MR 比の分 布。再生ヘッド要求値は文献[2]より引用。



図 2 AgInZnO スペーサーを用いた CPP-GMR 膜中における Mn, O, Ag および In の分布。

### CPP-GMR devices using $C1_b$ -type half Heusler alloys

Zhenchao Wen<sup>1,2</sup>, Takahide Kubota<sup>1,2</sup>, and Koki Takanashi<sup>1,2</sup> <sup>1</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan <sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices are promising as read heads for hard disk drives (HDDs) for achieving ultrahigh density magnetic recording of more than 5 Tbit/inch<sup>2</sup>. Half-metallic Heusler alloys have shown great potential for enhancing CPP-GMR effect due to their high spin polarization. Half-metallic Heusler alloys are classified into full- and half-Heusler compounds with the chemical formula of  $X_2YZ$  in the  $L2_1$  structure and XYZ in the  $C1_b$  structure (X and Y: transition metals; Z: non-magnetic element). For half-Heusler alloys, the bandgap of minority spin originates from *d*-band hybridization of elements X and Y, which can form a larger bandgap compared to that in full-Heusler alloys. From the origin of the bandgap, half-Heusler alloys are beneficial for the development of high-performance CPP-GMR devices owing to the suppression of thermal activations on the bandgap. In this work, we fabricated half-Heusler alloy films (NiMnSb,<sup>1,2)</sup> PtMnSb, and NiMnSb with doping Ti) and investigated the CPP-GMR effect in the nanojunctions using the half-Heusler alloys.

Half-Heusler NiMnSb and PtMnSb alloy films were optimized with varying deposition temperatures on Cr/Ag-buffered MgO(001) substrates by investigating structural and magnetic properties. Fully (001)-oriented NiMnSb epitaxial films with flat surface and high magnetization were achieved at the substrate temperature of 300 °C. In the case of PtMnSb films, epitaxial growth was achieved at 200 °C while high magnetization was observed at 500 °C. Further, anisotropic magnetoresistance (AMR) effect was measured in the half-Heusler alloy films since negative AMR effect was reported to be a fingerprint for half-metallic band structure.<sup>3)</sup> A modest AMR value with negative sign was found in the NiMnSb films while a remarkably negative AMR effect was observed in the PtMnSb films. Epitaxial CPP-GMR devices using both the NiMnSb and the PtMnSb films were fabricated, and room-temperature (RT) CPP-GMR ratios for the half-Heusler alloys were determined for the first time. A CPP-GMR ratio of 8% (21%) at RT (4.2 K) was observed in the fully epitaxial NiMnSb/Ag/NiMnSb structures and a very low CPP-GMR ratio of 0.7% was shown in PtMnSb/Ag/PtMnSb nanojunctions at RT. In addition, TEM observation was carried out in order to examine the degree of  $C1_b$  order in the NiMnSb film. It is found that  $L2_1$  like structure is dominant in the NiMnSb alloy film while  $Cl_{b}$  order is rarely observed. This indicates a poor half metallicity for the NiMnSb film, which is consistent with the results of AMR and CPP-GMR. Nevertheless, the inconsistency between CPP-GMR and AMR effects was found in the PtMnSb material system, which could be due to high spin-orbit interaction in the PtMnSb films owing to Pt. Furthermore, in order to improve the  $C1_b$  order in half-Heusler alloys, the element of Ti was doped into NiMnSb films. The epitaxial structure of the NiMn(Ti)Sb films was achieved at a post annealing temperature of 500 °C on Cr/Ag-buffered MgO(001) substrates. However, the NiMn(Ti)Sb based multilayers showed much weaker AMR effect and reduced CPP-GMR ratios compared to pure NiMnSb based samples. The result reveals the ordering structure was degraded by doping Ti at the current deposition condition. Table 1 summarizes the values of both AMR and CPP-GMR in half-Heusler based multilayers with NiMnSb, PtMnSb, and NiMn(Ti)Sb at RT. Reference data<sup>4)</sup> for Co<sub>2</sub>(Mn<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>)Si were also shown. This study indicates that it is still challenging to improve the  $C1_b$  ordering structure in half Heusler alloys for CPP-GMR applications at the current stage.

This work was partially supported by JSPS, ASRC, and CRDAM-IMR, Tohoku University. The authors also thank Mr. I. Narita of CRDAM, Tohoku University for his technical support.

#### Reference,

- 1) Z. Wen et al., Sci. Rep., 5 (2015) 18387.
- 2) Z. Wen et al., Appl. Phys. Lett., 108 (2016) 232406.
- 3) F. J. Yang *et al.*, Phys. Rev. B (R) **86** (2012) 020409.
- 4) Y. Sakuraba *et al.*, J. Magn. Soc. Jpn., **38** (2014) 45.

Table 1, AMR and CPP-GMR in half-Heusler based multilayers with NiMnSb, PtMnSb, and NiMn(Ti)Sb at RT.

	NiMnSb	PtMnSb	NiMn(Ti)Sb	Ref. <sup>4)</sup> : Co <sub>2</sub> (Mn <sub>0.6</sub> Fe <sub>0.4</sub> )Si
AMR	-0.1%	-0.17%	-0.07%	-0.2%
CPP-GMR	8%	0.7%	1.5%	55%

# ホイスラー合金 CPP-GMR 素子における界面挿入効果

窪田 崇秀<sup>1,2</sup>,温 振超<sup>1,2</sup>,高梨 弘毅<sup>1,2</sup>

(1 東北大学金属材料研究所、2 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター)

Interface layer effects for Heusler alloy based CPP-GMR junctions

T. Kubota<sup>1,2</sup>, Z. Wen<sup>1,2</sup>, and K. Takanashi<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> Institute for Materials Research, Tohoku Univ., <sup>2</sup> Center for Spintronics Research Network, Tohoku Univ.)

#### はじめに

ハーフメタルホイスラー合金を用いた膜面垂直通電型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子は、低抵抗領域(面積抵抗値、 $RA < 0.1 \Omega \mu m^2$ )において比較的大きな磁気抵抗変化率(MR 比)が得られる点で注目されている。 我々のグループでは最近 Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si (CFMS)ホイスラー合金と  $L1_2$ 型 Ag<sub>3</sub>Mg 規則合金中間層を組み合わ せることで、室温で 60%を超える MR 比を報告したが<sup>1)</sup>、応用の観点では出力特性の更なる向上が望まれる。 Mn を含むホイスラー合金は、界面における交換スティフネスの低下<sup>2)</sup>や Mn 元素の拡散<sup>3)</sup>などが更なる高 MR 化のための課題として議論されており、その対応策としてホイスラー合金層と中間層との界面への極薄 挿入層の導入が提案されている<sup>4)</sup>。そこで本研究では CFMS/Ag<sub>3</sub>Mg/CFMS 素子における界面挿入の効果につ いて検討した<sup>5)</sup>。

#### 実験方法

積層膜試料は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO(100)単結晶基板上に作製した。膜構成は MgO 基板/Cr 20 nm/Ag 40 nm/CFMS 20 nm/界面層  $t/Ag_3Mg 5$  nm/界面層 t/CFMS 7 nm/Ag 2 nm/Au 5 nm であ る。界面層は Fe 又は Mg を用い、いずれも膜厚(t) をゼロから 0.6 nm までの範囲で変化させた。積層膜は 電子線リソグラフィー、イオンミリング法によりピラーに加工した。CPP-GMR は直流 4 端子法で測定し、低 バイアス(電流密度、 $J \sim 10^5 \text{A/cm}^2$ )に加えて、バイアス依存性による出力電圧( $\Delta V$ )の評価を室温で行った。 また、低バイアスにおける MR 比の測定温度依存性を 10 – 300 K の範囲で評価した。

#### 実験結果

室温、低バイアス電流密度において、Fe、Mg いずれの挿入層の場合も MR 比は挿入層膜厚の増大に伴い低下した。一方、バイアス依存性の評価の結果、高バイアス(J>10<sup>7</sup>A/cm<sup>2</sup>)領域における *dV* は挿入層膜厚に依存せず 4 mV 程度の値が得られた。加えて、*dV* が最大値を示すバイアス電流密度が、挿入層を導入することで増加することを確認した。この結果は、挿入層の導入によりスピントランスファートルクによる磁化の揺動が抑制され、高バイアス領域で大きな出力電圧を維持しやすくなったためと考えられる。測定温度依存性においては、Fe 挿入の素子では MR 比が 50~250 K の範囲で最大値を示し、MR 比が最大となる温度が挿入層膜厚に依存することを確認した。一方、Mg 挿入の素子では、挿入層が無い素子と同様に測定温度の低下に伴い MR 比は増加した。講演では、挿入層材料に依存した測定温度依存性の違いの起源について議論する予定である。

#### 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金(基盤研究 S、25220910)、情報ストレージ研究推進機構 (ASRC)の支援を受けた。

#### 参考文献

- 1) T. Kubota et al., Phys. Rev. Materials 1, 044402 (2017).
- 2) Y. Sakuraba et al., Appl. Phys. Lett. 101, 252408 (2012).
- 3) Y. Sakuraba et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 064009 (2011); T. Kubota et al., ibid. 59, 014004 (2017).
- 4) J. W. Jung, et al., IEEE Trans. Magn. 52, 4400404 (2016).
- 5) T. Kubota *et al.*, Materials **11**, 219 (2018).

# CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Pt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>三層膜のスピンホール磁気抵抗効果

### 山本匠<sup>1</sup> 野土翔登<sup>1</sup> 柳瀬隆<sup>2</sup> 島田敏宏<sup>2</sup> 〇長浜太郎<sup>2</sup> (<sup>1</sup>北大総化院 <sup>2</sup>北大院工) Spin Hall Magnetoresistance effect in CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Pt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> trilayers T. Yamamoto, S. Nodo, T. Yanase, T. Shimada, and T. Nagahama (Hokkaido Univ.)

#### はじめに

近年スピン流研究が盛んに行われており、中でもスピン軌道相互作用を利用したスピン流生成に関する研究 が精力的に進められている。とくに 2013 年に報告されたスピンホール磁気抵抗効果は、YIG/Pt などの二層 膜を用いた簡便な直流抵抗測定により観測されることもあり、発見以後多くの研究が進められた。また、 Chen らの理論式と比較することにより、スピン拡散長やミキシングコンダクタンスなどスピン流伝導に関 連するパラメーターを決定することができる。本研究では CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Pt/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 三層膜を作製し、その SMR について調べた。三層膜の SMR に関する実験的な報告はなされていないが、理論的には Chen らによって 調べられており、スピン拡散長依存性について二層膜と異なる振る舞いをする可能性が示されている。

#### 実験

SMR 研究は YIG/Pt 二層膜で行われることが多いが、YIG は気相成長で作製することが難しく、三層膜作製 には適していない。そこで、反応性蒸着法やスパッタでの作製が報告されている CoFe2O4を磁性絶縁体層と して用いた。金属層としては Pt を用いた。製膜温度は CoFe2O4:300℃、Pt:100℃である。CoFe2O4 は 10<sup>4</sup>Pa の酸素ラジカル中で製膜した。また二層膜については CoFe2O4/Pt と Pt/CoFe2O4 の積層順の異なる試料を作 製して、結晶構造や界面状態、SMR について調べた。

#### 結果

図に CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)/Pt(4nm)/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)の角度依存磁気抵抗効果(ADMR)を示す。それぞれの角度  $\alpha$ 、  $\beta$ 、  $\gamma$  は図中に示す通りである。 $\alpha$ 、  $\beta$  方向では三角関数的な抵抗変化が観測され、 $\gamma$  方向では位相の異な る相対的に小さな抵抗変化が観測された。 $\alpha$   $\beta$  方向は通常の SMR、 $\gamma$  方向については Pt の近接効果に起因 する AMR 効果であると考えられる。三層膜と二層膜を比較すると、三層膜は二層膜の 3 倍程度の SMR を 示しており、大幅な増大が観測された。また、Pt 膜厚依存性に関しては、Pt 膜厚が薄い領域の SMR の振る 舞いに違いがあることがわかった。



図1 CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)/Pt(4nm)/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(50nm)の角度依存磁気抵抗効果。測定温度室温、測定磁場1T。

# Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜を用いた電流面直型スピンバルブ素子における 双二次層間交換結合の起源

谷本哲盛<sup>1</sup>, 犬伏和海<sup>2</sup>, 毛利大樹<sup>1</sup>, 井上将希<sup>1</sup>, 中田勝之<sup>2</sup>, 山本眞史<sup>1</sup>, 植村哲也<sup>1</sup> (<sup>1</sup>北海道大学, <sup>2</sup>TDK 株式会社)

> Origin of bi-quadratic interlayer exchange coupling in Co<sub>2</sub>MnSi-based current-perpendicular-to-plane spin valves Tessei Tanimoto<sup>1</sup>, Kazuumi Inubushi<sup>2</sup>, Daiki Mouri<sup>1</sup>, Masaki Inoue<sup>1</sup>, Katsuyuki Nakada<sup>2</sup>, Masafumi Yamamoto<sup>1</sup>, and Tetsuya Uemura<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Hokkaido University, <sup>2</sup>TDK Corporation)

#### 1. はじめに

Co 基ホイスラー合金を用いた電流面直型巨大磁気抵抗(CPP-GMR)素子は、ホイスラー合金のハーフメタル 性に起因する高い磁気抵抗(MR)比が期待されることから、これまで盛んに研究がなされている<sup>1-3)</sup>. 最近, 我々 は Co<sub>2</sub>MnSi(CMS)を用いた CPP-GMR 素子において、その MR 比が Mn 組成とともに増加することを見出し、 強磁性磁気結合(MTJ)同様、Mn-rich CMS の有用性を GMR 素子においても実証した<sup>1)</sup>. しかしながら、MR 比の温度依存性において異常な振る舞いが見られ、Mn 組成の増加につれ、低温における MR 比の顕著な減 少が見られた. 同様の低温における MR 比の減少は以前にも CMS あるいは Co<sub>2</sub>(Mn,Fe)Si を用いた GMR 素子 に対して報告されており<sup>2.3)</sup>、その起源の解明は Co 基ホイスラー合金の優れたハーフメタル性をフル活用す る上で重要な課題である. これまで、低温における MR 比の減少がスピン移行トルク(STT)により緩和される ことが見出されており、このことから、強磁性層間の bi-quadratic interlayer exchange coupling(90° coupling)の影 響が指摘されている<sup>3)</sup>. また、この 90° coupling の強さが温度に大きく依存することから loose spin model<sup>4)</sup> と の関連が指摘されているが、その詳細な機構に関しては明らかになっていない、本研究の目的は、CMS 系 GMR 素子における 90° coupling の起源と loose spin model との関連を明らかにすることである.

#### 2. 実験方法

MgO(001)単結晶基板上に(下部側から)Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>(CoFe)/Ag/CoFe 下地層を介して, CMS/Ag/CMS 三層構造を 有する保磁力差型 CPP pseudo spin valve(PSV)素子(series-A)の層構造と, CMS と Ag の界面に厚さ 1.8 nm の極 薄 CoFe 層を挿入した CPP-PSV 素子(series-B)の 2 通りの層構造を作製した. 各シリーズにおいて, CMS 電極 (Co<sub>2</sub>Mn<sub>a</sub>Si<sub>0.82</sub>)電極の Mn 組成  $\alpha$  を Mn deficient の  $\alpha$  = 0.62 から Mn rich な  $\alpha$  = 1.40 まで系統的に変化させた. CMS 電極の結晶性向上のため,上部 CMS 電極を室温にて堆積後, in-situ で 550℃のアニールを行った.上記 の層構造に対して, 微細加工により CPP-PSV 素子を作製し,それら

の MR 特性および STT 特性を直流 4 端子法により測定した.

#### 3. 結果および考察

図1に series-Aの CPP-PSV 素子の,室温における MR 特性と STT 特性の比較を示す.磁場掃引による反平行(AP)状態の抵抗  $R_{AP}^{(MAG)}$ に 比べ STT による AP 状態の抵抗  $R_{AP}^{(STT)}$ が大きくなり,磁場掃引では 完全な AP 状態が形成されていないと考えられる.このことより 90° coupling の存在が示され,この結合の強さは,(1)Mn 組成増加ととも に強くなること,(2)CMS と Ag スペーサの界面に CoFe 層を挿入する ことで弱くなること,(3)低温で顕著に増大すること,が分かった.以 上の結果は,CMS 層から Ag スペーサ層に拡散した Mn 原子が loose spin として振舞うという機構で説明できる.

#### 参考文献

1) Y. Sakuraba et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 064009 (2011).

- 2) M. Inoue et al., Appl. Phys. Lett. 111, 082403 (2017).
- 3) H. S. Goripati et al., J. Appl. Phys. 110, 123914 (2011).
- 4) J.C. Slonczewski, J. Appl. Phys. 73, 5957 (1993).



Fig. 1.Comparison between an MR curve and an STT curve at 290 K for a series-A PSV (w/o CoFe insertion) with a Mn composition of  $\alpha = 1.40$  (Co<sub>2</sub>Mn<sub>1.40</sub>Si<sub>0.82</sub>). The red and black curves indicate the MR curve and STT

### 低キュリー温度 CoPd/Pd 系多層膜を用いた

MRAM 用交換結合ハイブリッドメモリ層

趙望臻、木村匠、董夏茵、大島大輝、加藤剛志、園部義明\*、川戸良昭\*、岩田聡

(名古屋大学,\*サムスン日本研究所)

Exchange coupled hybrid memory layer with low Curie temperature CoPd/Pd multilayer for high-density magnetic random-access memory cells

W. Zhao, T. Kimura, X. Dong, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe\*, Y. Kawato\*, S. Iwata (Nagoya Univ., \*Samsung R&D Institute Japan)

#### 1. はじめに

MRAM における磁化反転には、スピン注入磁化反転が利用されているが、10 Gbit 級の大容量の MRAM を 実現するには、高い熱安定性 $\Delta$ と低い臨界電流密度  $J_{sw}$ を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められ ている。大容量 MRAM を実現するメモリ層として、異なるキュリー温度の磁性層を交換結合したハイブリッ ドメモリ層が提案されている[1]。これまでに我々は、高キュリー温度 ( $T_{c}$ )の Co/Pd 多層膜 (ML)と低  $T_{c}$ の CoPd/Pd ML の交換結合二層構造ハイブリッドメモリ層を作製し、CoPd/Pd ML の  $T_{c}$ 以上である 170℃から 冷却する過程で CoPd/Pd ML の磁化方向が、交換結合により高  $T_{c}$  Co/Pd ML の磁化方向に支配されることを 報告した[2]。今回我々は、(高  $T_{c}$  Co/Pd ML)/(低  $T_{c}$  CoPd/Pd ML)/(高  $T_{c}$  Co/Pt ML)の三層ハイブリッド構造の 磁化過程を報告するとともに、低  $T_{c}$  CoPd/Pd メモリ層のスピン注入磁化反転について報告する。

#### 2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により、Si sub./Ta (10 nm)/Pt (5nm)/[Pt (1.2 nm)/Co (0.4 nm)]<sub>6</sub> ML/[Pd (1.2 nm)/Co<sub>48</sub>Pd<sub>52</sub> (0.3 nm)]<sub>3</sub> ML/[Pd (1.2 nm)/Co (0.4 nm)]<sub>3</sub> ML/SiN (5 nm) (サンプル A) を作製した。中間層の CoPd/Pd ML は 130 °C 程度の低い  $T_{\rm C}$ を持つ。また、この低  $T_{\rm C}$  CoPd/Pd ML を非磁性の Pd (4.5 nm) に置き換えたもの (サンプル B) も 作製し、その磁化過程を比較した。



#### 3. 実験結果

図1は室温及び172°Cにおける三層ハイブリッド膜(サンプル A)のKerr ループを示している。高 $T_c$ の Co/Pd ML および Co/Pt ML が低 $T_c$  CoPd/Pd ML 中間層を介して交換結合するため、三層が同時に反転している。一方、 172°C では、二つ高 $T_c$  ML が独立に反転し、Kerr ループが二段の形状になっており、高 $T_c$ の Co/Pd および Co/Pt の保磁力 $H_c$ はそれぞれ,0.42 kOe, 1.8kOe である。図に示されていないが、中間層を Pd (4.5 nm)としたサンプ ル B の室温における Kerr ループはサンプル A の 172°C での Kerr ループと 同様、二段のループになっている。図 2 は、サンプル A の(a) Kerr 回転角 と(b)保磁力の温度依存性を示している。Kerr 回転角は温度上昇とともに減 少する。図 2 (b)は、サンプル A が室温から 130°C まで中間層を介した交換 結合により三層同時に反転しているが、130°C を超えると、Co/Pd ML と Co/Pt ML が独立に反転するようになり、温度上昇とともに、保磁力がそれ ぞれ減少、増加することを示している。これより、CoPd/Pd 層を介した交 換結合が温度により制御できることが分かる。講演では、低 $T_c$ の CoPd /Pd ML のスピン注入磁化反転の結果も述べる。

#### 4.参考文献

Machida et al., IEEE Trans. Magn., 53, 2002205 (2017).
W. Zhao et al., IEEE Trans. Magn., DOI: 10.1109/TMAG.2018.2828138 (2018).

Fig. 1 Kerr hysteresis loops of sample A, [Co/Pd] / [CoPd/Pd] / [Co/Pt], measured at (a)26°C and (b)172°C.



Fig. 2 Temperature dependence of Kerr rotation and coercivities of Pt/Co and Pd/Co MLs in the sample A.

### Co/Pd 多層膜のスピン注入磁化反転臨界電流の層厚比依存性

趙望臻、木村匠、大島大輝、加藤剛志、園部義明\*、川戸良昭\*、岩田聡 (名大,\*サムスン日本研究所)

Dependence of critical current of spin transfer torque magnetization switching on the layer thickness ratio of Co/Pd

multilayers

#### W. Zhao, T. Kimura, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe\*, Y. Kawato\*, S. Iwata

(Nagoya Univ., \*Samsung R&D Institute Japan)

#### 1. はじめに

スピン注入磁化反転は、大容量 MRAM を実現する技術として開発が進められているが、10 Gbit を超える容量の実現には、高い熱安定性と低い臨界電流を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められる。我々は高効率な磁化反転を実現するメモリ層として、低いキュリー温度( $T_c$ )の低  $T_c$ 層と高  $T_c$ 層を交換結合させた積層型垂直磁化メモリ層に注目している[1]。低  $T_c$ 層として CoPd / Pd 多層膜、高  $T_c$ 層として Co / Pd 多層膜を用いた積層膜の磁化反転を検討し、低  $T_c$ 層の磁化反転が、高  $T_c$ 層の磁化方向との交換結合により制御できることを示してきた[2]。今回は高  $T_c$ 層である Co / Pd 多層膜へのスピン注入磁化反転を検討し、その臨界反転電流密度の層厚比依存性を調べたので報告する。

#### 2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により、Si sub. / Ta (10) / Cu<sub>70</sub>Ta<sub>30</sub> (150) / Pt (5) / [Pt (1.0) / Co (0.6)]<sub>6</sub> / Cu (2.5) / [Co (*t<sub>Co</sub>*) / Pd (*t<sub>Pd</sub>*)]<sub>3</sub> / Cu (5) / Ta (2) (膜厚の単位は nm) を作製した。素子の微細加工には、フォトリソグラフィ、ECR プラズマ Ar イオンエッチング、および電子ビームリソグラフィを用い、直径 140 - 200 nmφの接合を有する CPP-GMR 素子を作製した。磁気抵抗特性は直流 4 端子法により評価し、スピン注入磁化反転はパルス幅 10 µsec~10 msec のパルス電流を印加後、100 µA の読み出し電流で接合抵抗を測定することで評価した。

#### 3. 実験結果

Fig. 1 は Co (0.3 nm) / Pd (1.2 nm)層へのスピン注入磁化反転の臨界電流密度のパルス幅依存性である。素子直径は 140 nm ゆであり, Fig. 1 には反平行状態(AP)から平行状態(P)への電流密度(JAP-P), P から AP への電流密度 (JP-AP) 及び それらの平均電流密度 Jave を示している。臨界電流密度はパルス幅 tの増大により減少しているが, これから t= 1 nsec の電流密度 J<sub>c0</sub>, 熱安定性指標  $\Delta = K_u V / k_B T$ を見積もった。Fig. 2 は様々な素子直径の Co / Pd の Jav のパルス幅依存性 より見積もった J<sub>c0</sub> と $\Delta$ の層厚比  $t_{Pd} / t_{Co}$ 依存性である。 $t_{Pd} / t_{Co} \leq 2$  では, J<sub>c0</sub> は  $t_{Pd} / t_{Co}$ の増加とともに増加している。 Co / Pd 多層膜では  $t_{Pd} / t_{Co}$ の増大によりダンピング定数  $\alpha$ が増加することから[3], この領域での J<sub>c0</sub>の増加は Co / Pd の Jav の増加 Co / Pd の Jav の 2 の の増加 Co / Pd の  $\alpha$ の増加を反映している可能性がある。一方,  $t_{Pd} / t_{Co}$ がさらに増加すると J<sub>c0</sub> が減少する傾向が見られ, Co / Pd の Jav の 変化のみでは説明できないと考えられる。一方, Fig. 2 から  $\Delta$ の  $t_{Pd} / t_{Co}$ 依存性は小さいと考えられる。 4.参考文献

[1] Machida et al., IEEE Trans. Magn., 53, 2002205 (2017).

[2] W. Zhao et al., IEEE Trans. Magn., DOI: 10.1109/TMAG.2018.2828138 (2018).

[3] T. Kato et al., IEEE Trans. Magn., 48, 3288 (2012).





Fig. 1 Pulse width dependence of the STT switching current densities of the Co / Pd multilayer with a pillar diameter of  $140 \text{ nm}\phi$ .

Fig. 2 Dependence of  $J_{c0(av)}$  and  $\Delta$  on the thickness ratio  $t_{Pd}$  /  $t_{Co}$  of the [Co ( $t_{Co}$ ) / Pd ( $t_{Pd}$ )]<sub>3</sub> ML. The data taken from the CPP-GMR nano-pillars with various pillar diameters are plotted.

### 垂直磁化 Co 超薄膜における電界アシストスピンホール磁化反転

### 國島 和哉,周 興,大島 大輝,加藤 剛志,岩田 聡 (名古屋大学)

# Electric-field-assisted spin Hall magnetization switching in perpendicularly magnetized Co ultra-thin films K.Kunishima, X.Zhou, D.Oshima, T.Kato, S.Iwata

(Nagoya University)

#### <u>はじめに</u>

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)は、不揮発性、高速のランダムアクセス、無限の書き換え耐性といった特長を持ち、次世代のメモリとして注目されている。現行のMRAMは消費電力が大きいという欠点があるため、新たな磁化反転の手法として、スピンホール効果を用いた磁化反転が検討されている<sup>1)</sup>。しかし、この手法でも純スピン流を生成するために、重金属膜に10<sup>6</sup>~10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup>程度の大きな電流密度を必要とする。近年、磁性層に電界を印加することにより界面異方性を制御し、スピンホール磁化反転の反転電流密度を低減できることが報告されている<sup>2)</sup>。ここでは、垂直磁気異方性を示す Co 超薄膜において、電界による磁気特性の制御と電界アシストスピンホール磁化反転を調べた。

#### 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて、MgO (10 nm) / Co (0.4 nm) / Pt (3 nm) / SiN (5 nm) / (熱酸化膜付き Si 基板)を成膜した。電子線露光装置と Ar<sup>+</sup>イオンエッチング装置を用い、異常ホール効果測定用の幅 3  $\mu$ m×6  $\mu$ m の十字パターンに加工した。その後、電圧を印加して測定を行うため、フォトリソグラフィとスパッタリングにより絶縁層パターン HfO<sub>2</sub> (100 nm)と電極パターン Al (100 nm)を作製した (Fig. 1)。 異常ホール効果の測定は、膜面内方向に電流 30  $\mu$ A を流し測定した。スピンホール磁化反転の測定は、電流と平行方向に外部磁界を 200 Oe 印加し、パルス幅 0.01 msec ~ 1 msec のパルス電流を印加した直後のホール電圧を測定することで行った。これらの測定時には、Al 電極にゲート電圧  $V_{\rm G}$  = -20 V ~ +20 V を印加し、電界印加効果を調べた。

#### <u>実験結果</u>

Fig. 2 はゲート電圧  $V_G = -20 V$ , +20 V を印加した場合の異常ホールループである。保磁力は  $V_G = +20 V$ のとき 336Oe,  $V_G = -20 V$ のとき 291 Oe と、0.3 %/V 程度の保磁力変化が確認された。Fig. 3 はスピンホール磁 化反転における、反転電流密度  $J_s$ の電流パルス幅  $\tau$  依存性を示している。反転電流密度は、電流パルス幅が 大きくなるにつれて減少している。また、正の  $V_G$ 印加で  $J_s$ が増加, 負の  $V_G$ で  $J_s$ が減少することは、保磁力 の変化と対応しており、 $V_G = +20 V$ から-20 V へ変化することで  $J_s$ が 0.5 MA/cm<sup>2</sup>程度減少することが確認さ

#### れた。 参考文献

- 1) L.Liu et al., Phys. Rev. Lett., 109, 096602 (2012).
- 2) T. Inokuchi et al., Appl. Phys. Lett., 110, 252404 (2017).



Fig. 1 Optical microscopeimageofthemicro-fabricatedCoultrathin film.



Fig.2 Hall loops of microfabricated MgO / Co / Pt measured under  $V_{\rm G}$  = ±20 V.



30

Fig.3 Pulse width dependence of critical current density of spin Hall switching of MgO / Co / Pt under  $V_{\rm G} = 0, \pm 20$  V.

## エピタキシャル CoFe/n-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造の作製

<u>椎原貴洋</u><sup>1</sup>、沖宗一郎<sup>1</sup>、酒井宗一朗<sup>1</sup>、井川昌彦<sup>1</sup>、山田晋也<sup>1,2</sup>、浜屋宏平<sup>1,2</sup> (1阪大基礎工、2阪大基礎工スピントロニクスセンター)

Fabrication of all-epitaxial CoFe/n-Ge/Fe<sub>3</sub>Si vertical structures

T. Shiihara<sup>1</sup>, S. Oki<sup>1</sup>, S. Sakai<sup>1</sup>, M. Ikawa<sup>1</sup>, S. Yamada<sup>1,2</sup>, and K. Hamaya<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Osaka

Univ.)

#### [はじめに]

我々は、分子線エピタキシー(MBE)法と固相成長(SPE)法を併用することで、エピタキシャル CoFe/p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造を低温で形成し[1]、その縦型構造を用いて p型 Ge を介した室温スピン伝導の観測 に成功してきた[2]。しかし、p-Ge のスピン拡散長は非常に小さく[2]、スピン信号は温度の上昇とともに急速 に減衰する。一方、n-Ge のスピン拡散長は、p-Ge のスピン拡散長よりも室温で1桁大きい[3]。そのため、 Fe<sub>3</sub>Si 層上に n-Ge 層を成長できれば、CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造のスピン信号の増大が期待される。

本研究では、Fe<sub>3</sub>Si 層上に Sb を同時蒸着した Ge 層を成長し、CoFe/n-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造の作製を試みる。 [実験方法]

MBE 法を用いて Ge(111)基板上に Fe<sub>3</sub>Si 層(50 nm)を成長した 後、最表面を Si 面終端した[4]。その直上に非晶質 Ge 層(2 nm)を 室温堆積し、125℃で 30 分のアニール処理を施した(SPE-Ge)[1]。 その後、温度を 175℃に上げて、SPE-Ge 層上に Sb を同時蒸着(セ ル温度:280℃)した Ge 層(18 nm)を MBE 成長した。最後に、基板 温度を室温まで下げた後、CoFe 層(10 nm)を MBE 成長し、 CoFe/Sb-doped Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造とした。

#### [実験結果]

Fig. 1 に各層を成長した後の RHEED パターンを示す。Fig. 1(b) から、Sbを同時蒸着しても Ge 層はエピタキシャル成長しており、 低温成長によって Sb の表面偏析を抑制できていることがわかる。 また、Fig. 1(c)に示すように、三層成膜後でも RHEED はストリー クパターンを維持している。 つまり、エピタキシャル CoFe/Sb-doped Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造の作製に成功した。

Fig. 2 に 300 K で測定した磁化曲線を示す。二段のヒステリシ ス曲線が観測され、CoFe, Fe<sub>3</sub>Si が Ge を介して磁気的に分断して いることが示唆される。 講演では、Au-Ti/Sb-doped Ge/Fe<sub>3</sub>Si/p-Ge/Al 縦型デバイスの電気伝導特性について述べ、作 製した Ge 層が n 型伝導を示すことについても言及する。

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・科研費基盤研究 (S)(17H06120)の補助を受けた。

#### <u>参考文献</u>

- 1) S. Sakai et al., Semicond. Sci. Technol. 32, 094005 (2017).
- 2) M. Kawano *et al.*, Phys. Rev. Mater. **1**, 034604 (2017).
- 3) M. Yamada et al., Appl. Phys. Express 10, 093001 (2017).
- 4) S. Yamada et al., Cryst. Growth Des. 12, 4703 (2012).



Fig.1 RHEED patterns of (a) Si-terminated Fe<sub>3</sub>Si, (b) Sb-doped Ge and (c) CoFe layers.



Fig. 2 *M*-*H* curve of a CoFe/n-Ge/Fe<sub>3</sub>Si trilayer at 300 K.

# 反平行磁化配置が不安定なゲルマニウム横型スピンバルブ素子 における非局所スピン伝導

沖宗一郎<sup>1</sup>、山田道洋<sup>1</sup>、山田晋也<sup>1,2</sup>、澤野憲太郎<sup>3</sup>、浜屋宏平<sup>1,2</sup> (1 阪大基礎工, 2 阪大基礎工スピントロニクスセンター, 3 東京都市大) Nonlocal spin signals in Ge-based lateral spin valves with unstable anti-parallel magnetic configuration S. Oki<sup>1</sup>, M. Yamada<sup>1</sup>, S. Yamada<sup>1,2</sup>, K. Sawano<sup>3</sup>, K. Hamaya<sup>1,2</sup> (<sup>1</sup>Osaka Univ, <sup>2</sup> Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., <sup>3</sup> Tokyo City Univ.)

#### [はじめに]

一般的に、半導体へのスピン注入を実証する時に用いられる横型スピンバルブ素子では、用いる強磁性体の物性によって反平行磁化配置を作ることが容易でないものもある.我々のこれまでの研究で、Fe<sub>3</sub>Siという2元ホイスラー合金をスピン注入/検出電極として用いた半導体横型スピンバルブ素子では、反平行磁化配置を作ることが難しく、スピン伝導の評価が難しかった[1].本研究では、最近我々がスピン伝導特性を明らかにした Ge をチャネル材料として、この Fe<sub>3</sub>Si を注入電極とした横型スピンバルブ素子のスピン伝導評価を行う.

#### [実験方法および結果]

n-Ge(n-1×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>)/Si(111)上に MBE 法で膜厚 10 nm の Fe<sub>3</sub>Si 薄膜[2]を作製し,電子線描画と Ar<sup>+</sup>ミリング を用いて Fig.1 (a)の横型スピンバルブ素子へと加工した[3]. Fig.1 (b)に 8 K で測定した非局所磁気抵抗信号を 示す. 従来と同様に,緩やかな抵抗変化を伴った信号が観測された[1]. この信号は温度の上昇とともに減衰 し,~150 K で消失した. Fig.1 (c)には,平行磁化配置における非局所 Hanle 信号(黒点)を示す.平行磁化配置 を実現するために, y 軸方向に磁場( $H_y$ )を 300 Oe 印加し, $H_y$ をゼロにした後に Hanle 信号を測定した結果で ある.この平行配置の Hanle 信号の解析から, n-Ge のスピン緩和時間は~0.2 ns と見積もられ,これまでの我々

の報告[3]と一致していることから, 観測されている信号 はスピン信号であると判断される. 観測された Hanle 信 号の大きさは, (b)に示されたスピン信号の大きさとほぼ 同じであることから, (b)で観測されている信号強度は, 反平行磁化配置を実現していない状態で出現している スピン信号であると判断される. 次に, *H*yを変化させて Hanle 信号を測定したところ, 信号強度に明瞭な変化が 見られた. これは, Fe<sub>3</sub>Si スピン注入電極と検出電極間 の磁化配置が, (b)から予想される通り, 緩やかに磁化回 転的に変化しているため, 反転途中の磁化状態で留まっ ている時の Hanle 信号を測定できていることを示してい る. 同様の挙動は, Si スピンバルブ系の実験でも既に報 告されている[4].

本研究は,科研費基盤研究(A)(16H02333)・科研費基盤 研究(S)(17H06120)の補助を受けた.

#### 参考文献

- Y. Ando *et al.*, App. Phys. Lett. **94**, 182105 (2009); Appl. Phys. Express **3**, 093001 (2010).
- [2] K. Hamaya et al., Phys. Rev. B 83, 144411 (2011).
- [3] M. Yamada et al., Phys. Rev. B 95, 161304(R) (2017).
- [4] O. M. J. van 't Erve *et al.*, Appl. Phys. Lett. **91**, 212109 (2007).



Fig.1 (a) Illustration of the fabricated lateral spin-valve device. (b) Nonlocal spin signal and (c) nonlocal Hanle signals, at I = -1 mA, 8K. The black solid curve shows the fitting curve using one-dimensional spin-drift diffusion model.

### AlGaAs/GaAs 系高移動度 2 次元電子系へのスピン注入及び検出

潘達<sup>1</sup>,林志超<sup>1</sup>,Mahmoud Rasly<sup>1</sup>,植村哲也<sup>1</sup> (<sup>1</sup>北海道大学大学院情報科学研究科)

Electrical spin injection and detection in an AlGaAs/GaAs-based

high-mobility two-dimensional electron system

#### Da Pan, Zhichao Lin, Rasly Mahmoud, and Tetsuya Uemura

#### (<sup>1</sup>Graduate School of Information Science and Technology, Hokkaido University)

#### 1. はじめに

従来のトランジスタ機能に加え、スピンの機能性を有するスピントランジスタの実現に向け、強磁性電極から半導体にスピンの揃った電子を注入する半導体スピン注入の研究が盛んに行われている.これまでGaAs [1]やSi[2], Ge[3]など種々のバルク半導体へのスピン注入が室温で実証されている.一方, AlGaAs/GaAs2次元電子ガス(2DEG)構造は高い電子移動度を有することから、高電子移動度トランジスタ(HEMT)をはじめとする高速デバイスへの応用が期待されている.また、スピントランジスタのチャネルとしても有用である.

しかしながら、これまで AlGaAs/GaAs 2DEG チャネルへのスピン注入の報告例は少なく、強磁性半導体 の GaMnAs をスピン源として用いた素子で実現されているのみである[4]. さらに、GaMnAs の強磁性転移温 度( $T_c$ )は室温より低いため、スピン注入の実証も 50 K 以下に限られている. 今回、我々は  $T_c$ が室温より十分 高い CoFe ( $T_c > 1000$  K)をスピン源に用い、AlGaAs/GaAs 2DEG チャネルへのスピン注入を 138 K まで実証し たので報告する.

#### 2. 実験方法

半絶縁性 GaAs(001)基板上に, ud-GaAs (400 nm)/ud-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As (100 nm)/n<sup>-</sup>-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As (Si =  $3 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>, 100 nm)/ud-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As (15 nm)/ud-GaAs (50 nm)/n<sup>-</sup>-GaAs (Si =  $7 \times 10^{16}$  cm<sup>-3</sup>, 100 nm)/n<sup>+</sup>-GaAs (Si =  $5 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>, 30 nm)からなる逆 HEMT 構造を, 分子線エピタキシー法(MBE)により成膜した. 次に, 厚さ5 nm の CoFe 層 をマグネトロンスパッタリング法により室温で成長した. その後, 電子線リソグラフィーと Ar イオンミリン グにより非局所四端子素子に加工した. スピンの注入と検出用の電極のサイズはそれぞれ 0.5 × 5  $\mu$ m<sup>2</sup> と 1.0 × 5  $\mu$ m<sup>2</sup> であり, 両者の間隔は 0.5  $\mu$ m である.

#### 3. 結果および考察

ホール効果測定により,製作した 2DEG 層の 77 K におけるシートキャリア濃度及び移動度はそれぞれ 6.9×10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup>~8.5×10<sup>11</sup> cm<sup>-2</sup> と 24200 ~43700 cm<sup>2</sup>/V·s となり,高い移動度を有することが分かった.このことは、良好な AlGaAs/GaAs ヘテロ界面が形成され、また、キャリアは 2DEG 層を伝導していることを示している.Fig.1(a)に 77 K における非局所スピンバルブ信号を示す.図に示すように、注入電極と検出電極間の相対磁化配置の変化による明瞭なスピンバルブ信号が観測され、GaMAs を用いた先行研究[4]に比べ、より高い温度でスピン注入を実証した.同図(b)には、スピン注入の大きさの指標として、非局所電圧の変化量と注入電流の比で定義された |  $\Delta V_{\rm NL}/I_{\rm bias}$  | の温度依存特性を示す.CoFe をスピン源として用いることで、非局所信号は 138 K まで検出された.バルク GaAs ではスピン信号の大きさは温度の上昇と共に単調に減少するのに対し、2DEG チャネルでは 80 K 付近で最大となった.講演ではこの複雑な温度依存性についても議論する.

#### <u>参考文献</u>

[1] T. Uemura et al., Appl. Phys. Lett. 99, 082108 (2011).

- [2] T. Suzuki et al., APEX 4, 023003 (2011).
- [3] M. Yamada et al., APEX 10, 093001 (2017).
- [4] M. Oltscher et al., Phys. Rev. Lett. 113, 236602 (2014).



Fig. 1(a). 77 Kにおけるスピンバルブ信号(b) 非局所信号の温度依存性