



TOHOKU  
UNIVERSITY

KEK-PF研究会

「磁性薄膜・多層膜を究める：キャラクタリゼーションから新奇材料の創製へ」  
2011年10月13~14日， KEK研究本館小林ホール

# 磁性多層膜とスピントロニクス

東北大学・金属材料研究所

高 梨 弘 毅



# 発表構成

---

## 1. イントロダクション

スピントロニクスとは何か  
多層膜の関係：歴史的経緯  
多層膜と規則合金

## 2. ホイスラー合金とスピントロニクス

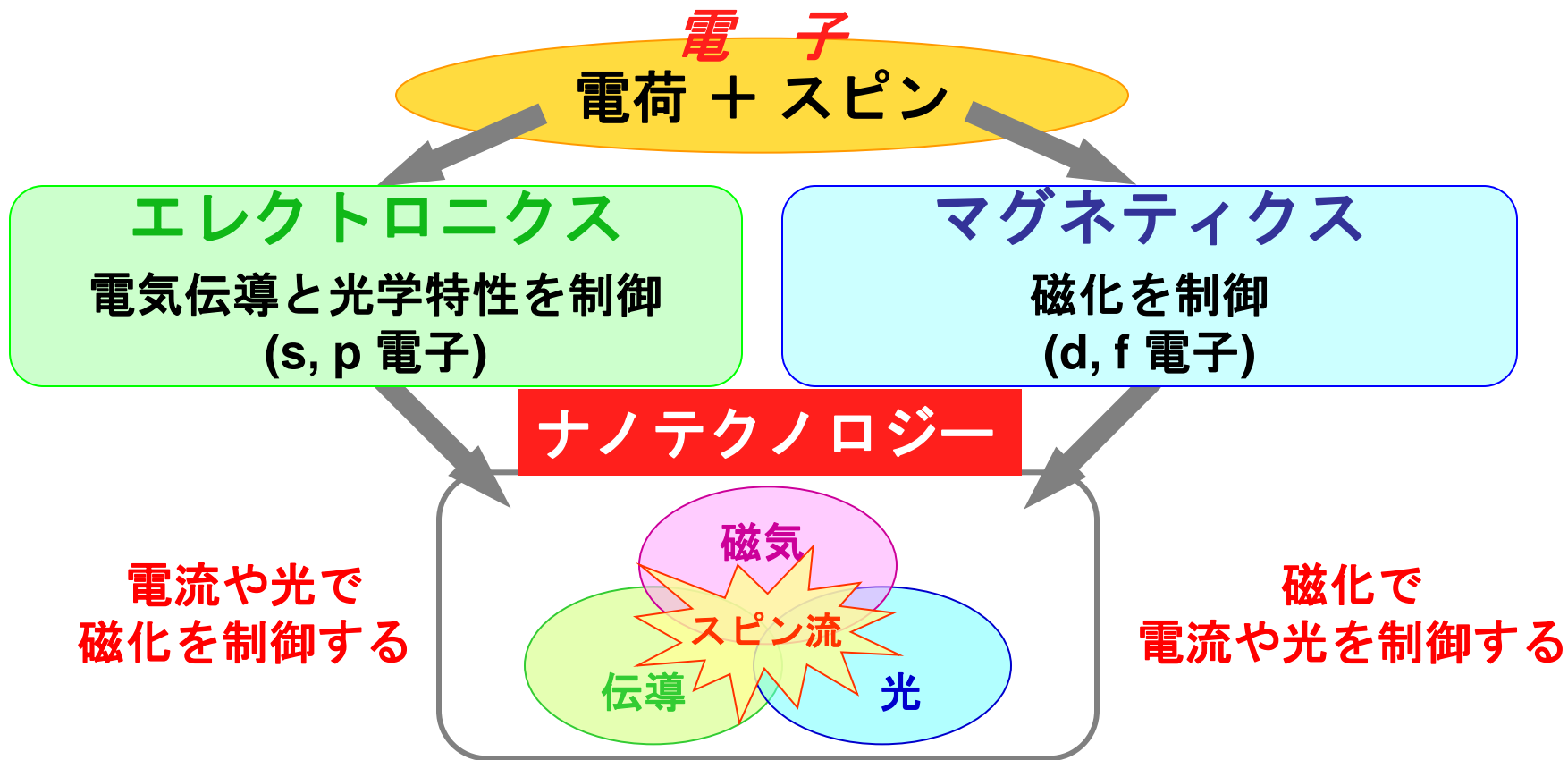
高スピン偏極率：ハーフメタル  
TMR / CPP-GMR

## 3. $L1_0$ 型規則合金とスピントロニクス

垂直スピン偏極源： $L1_0$ -FePt  
元素戦略的観点： $L1_0$ -FeNi

## 4. まとめと放射光への期待

# スピントロニクスとは



# 科研費特定領域研究「スピン流の創出と制御」

(2007~2010年度)

創出

物性

機能制御

**A01**  
スピン源の  
探索・創製

高梨 (東北大)  
黒田 (筑波大)  
白井 (東北大)  
高橋 (物材機構)  
藤森 (東大)  
山本 (北大)

**A03**  
スピン流と  
光物性

大野 (東北大)  
安藤 (東北大)  
永長 (東大)  
宗片 (東工大)

**A05**  
スピン流の  
機能と制御

田中 (東大)  
清水 (東大)  
鈴木 (阪大)  
仲谷 (電通大)  
吉田 (阪大)

高スピン偏極材料  
構造・形態

スピン流

Gate

M

**A02**  
スピン流と  
ナノヘテロ構造

大谷 (東大)  
秋永 (産総研)  
井上 (名大)  
新田 (東北大)

**A04**  
スピン流と  
電子物性

小野 (京大)  
勝本 (東大)  
齊藤 (慶大)  
多々良 (首都大)  
前川 (東北大)

# スピントロニクスとは

電子

電荷 + スピン

エレクトロニクス

電気伝導と光学特性を制御  
(s, p 電子)

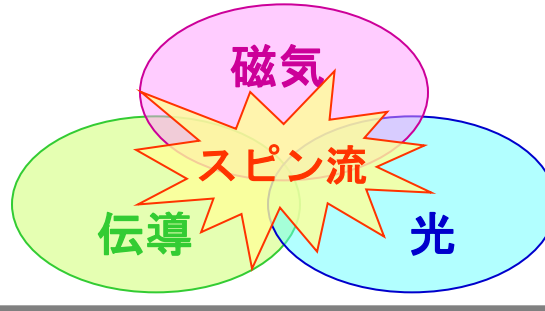
マグネティクス

磁化を制御  
(d, f 電子)

ナノテクノロジー

電流や光で  
磁化を制御する

磁化で  
電流や光を制御する



現象

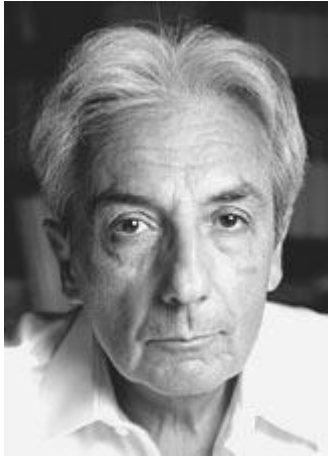
巨大磁気抵抗 (GMR) 効果  
トンネル磁気抵抗 (TMR) 効果  
スピン注入 / スピン蓄積  
スピントランスファー現象  
キャリア / 光誘起強磁性

デバイス

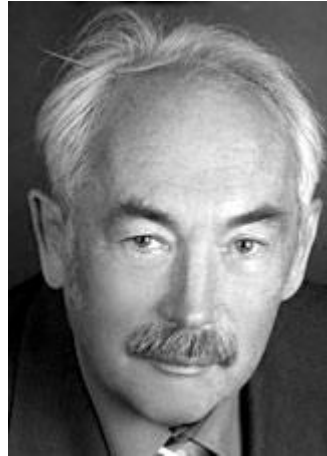
GMR / TMR ヘッド  
磁場センサー  
磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM)  
スピンスイッチ / トランジスタ  
スピンロジック

# スピントロニクスの原点：巨大磁気抵抗効果

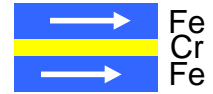
Albert Fert  
(France)



Peter Grünberg  
(Germany)



2007年ノーベル物理学賞受賞



巨大磁気抵抗効果（GMR）の発見



HDD 記録密度の飛躍的向上  
The first major application  
of nanotechnology

スピントロニクスの発展

M. N. Baibich *et al.*, Phys. Rev. Lett., **61** (1988) 2472.

Fe/Cr 人工格子：多層膜

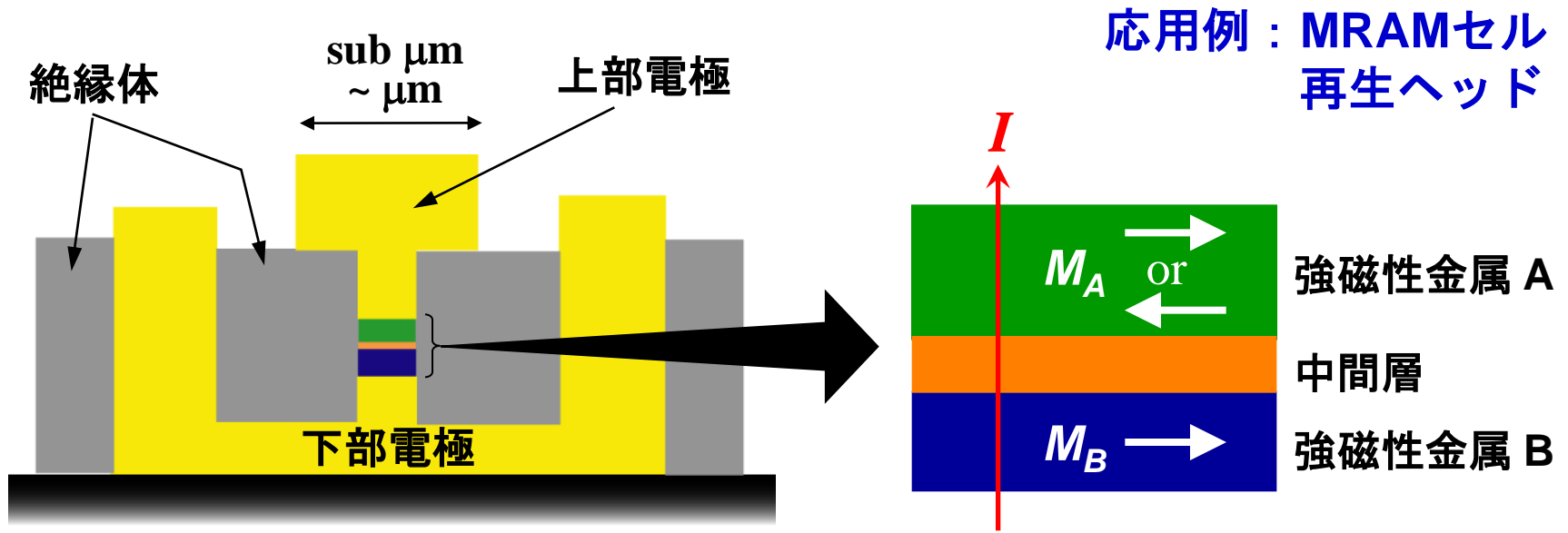
Giant Magnetoresistance (GMR)

磁化が平行状態と反平行状態とで  
電気抵抗が大きく変化する。  
(スピン依存伝導)

スピンバルブGMRヘッドの原理

# 基本的なデバイス構造 (1)

## CPP (Current-Perpendicular-to-Plane: 膜面垂直通電) 型



中間層 = 絶縁体: トンネル磁気抵抗効果 (TMR)

金属: 巨大磁気抵抗効果 (CPP-GMR)

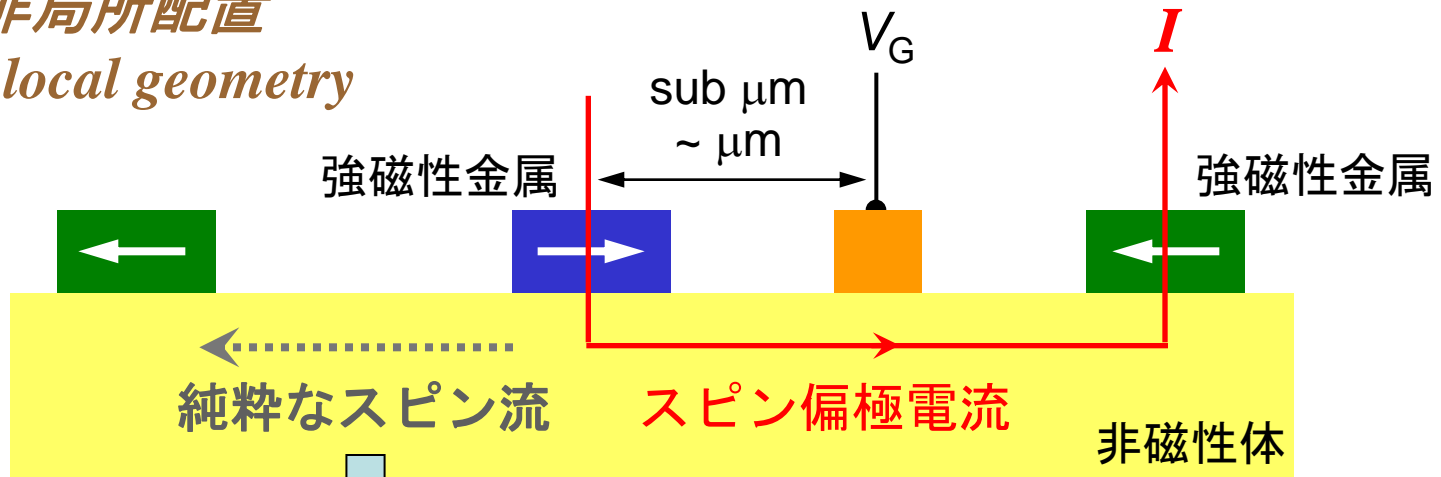
磁気抵抗効果 (MR) の大きさ:  $\frac{\Delta R}{R} \propto P_A \cdot P_B$        $P_{A(B)}$ : スピン偏極率

# 基本的なデバイス構造 (2)

## Lateral structure (面内構造) 型

応用例：スピントランジスタ

非局所配置  
Non-local geometry



スピン注入

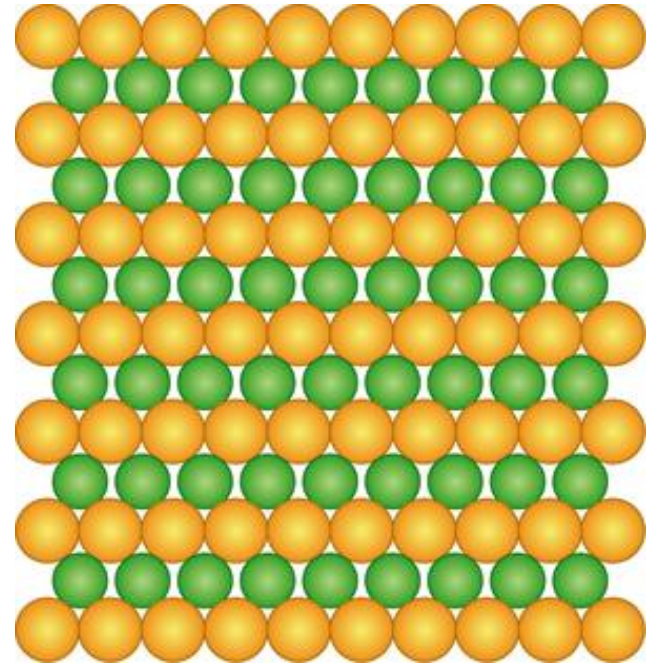
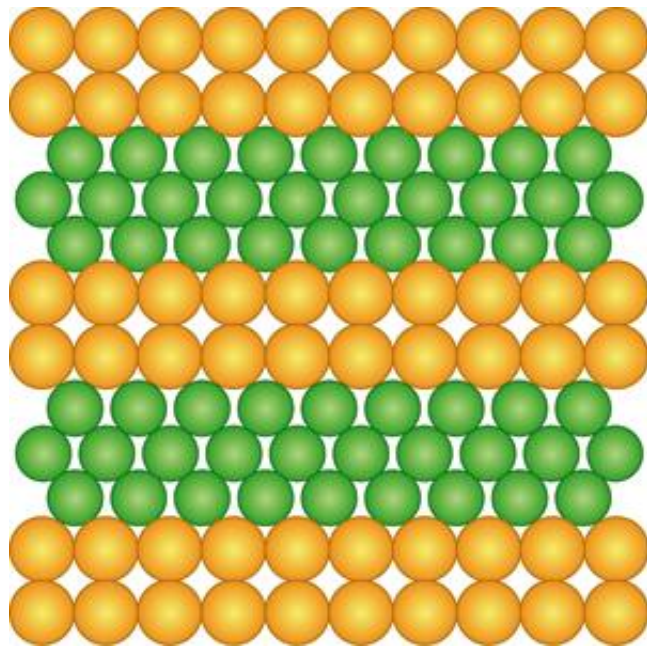
スピン緩和 (拡散)

$$J_e = J_{\uparrow} + J_{\downarrow} = 0$$

$$J_s = J_{\uparrow} - J_{\downarrow} \neq 0$$



# 多層膜から規則合金へ



多層膜(人工格子/超格子)

巨大磁気抵抗効果 (GMR)

層間交換結合

垂直磁気異方性, . . .

規則合金

多層膜の積層構造の極限

# $L1_0$ 型規則合金薄膜

---

高い磁気異方性 → 磁化の熱安定性  
垂直磁化

- 垂直磁化とスピントロニクス
- $L1_0$ -FePt とスピントロニクス
- $L1_0$ -FePt における保磁力の電圧制御 (震災後発表)
- $L1_0$ -FeNi の人工合成

# 垂直磁化の有用性

高磁気異方性→磁化の安定性

負の形状磁気異方性→スピン注入磁化反転が容易

アスペクト比無制限

→ 高集積化

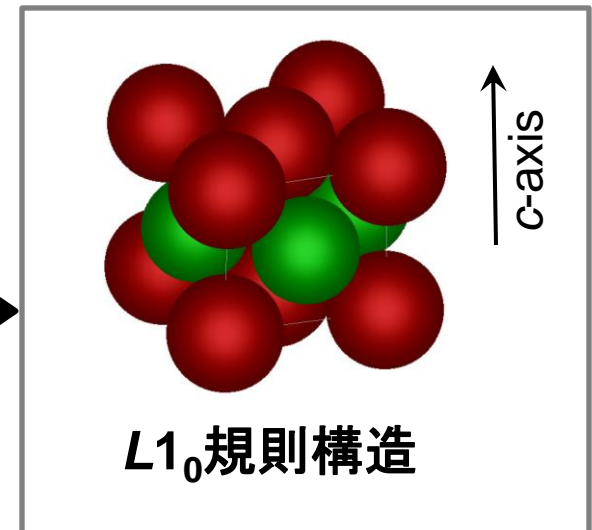
## 垂直磁化膜の例：

CoCr 系合金膜, Co(Pt)-SiO<sub>2</sub>グラニューラー膜

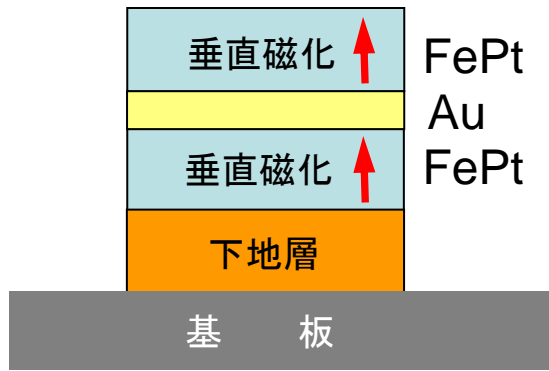
Ni/Co, Co/Pd 等, 人工格子膜

TbFeCo 等, RE-TM 系アモルファス合金膜

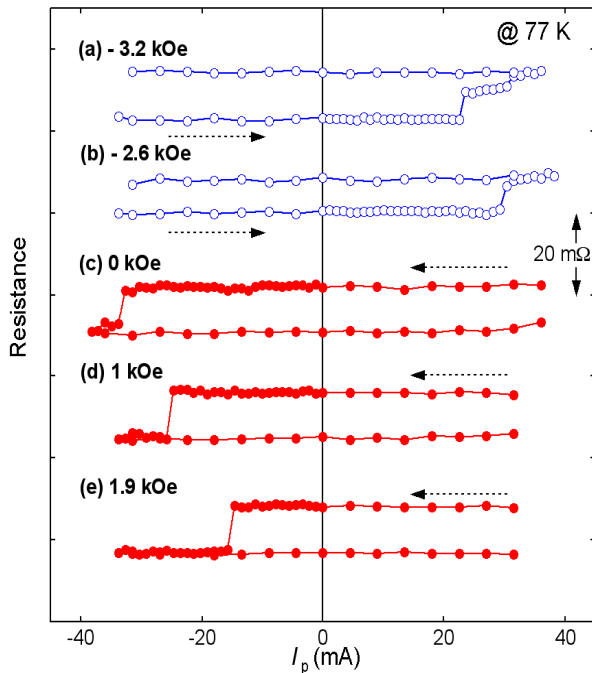
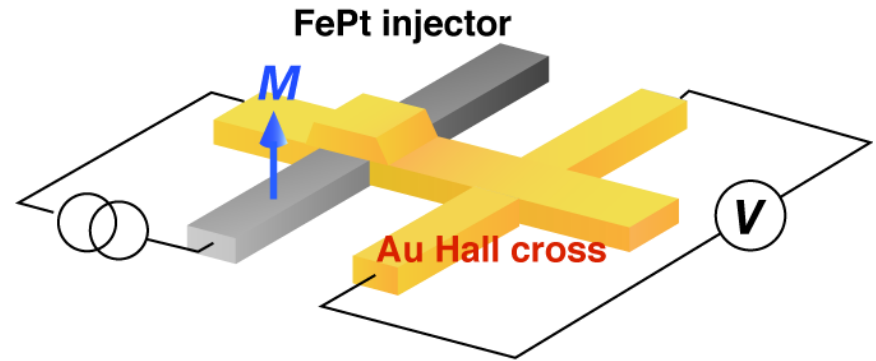
FePt, FePd, CoPt 等 L<sub>1</sub><sub>0</sub> 型規則合金膜



# $L1_0$ -FePtとスピントロニクス

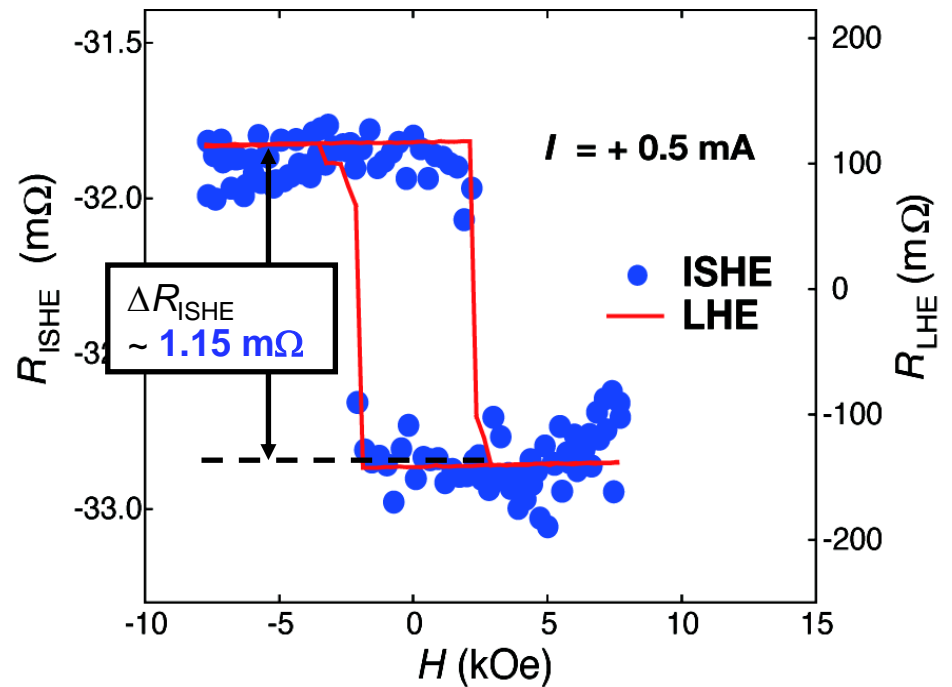


*Fully epitaxial*



垂直磁化FePtのspin注入磁化反転

T. Seki *et al.*, Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 172504.



FePt/Auにおける巨大spinホール効果

T. Seki *et al.*, Nature Materials, 7 (2008) 125.

**Coercivity change by electric field  
in a perpendicularly magnetized  
 $L1_0$ -FePt thin layer**

**T. Seki *et al.*, Appl. Phys. Lett., 98 (2011) 212505.**

# Electric field control of magnetism in metals

**FePt / FePd**

Electrolyte  
double layer

M. Weisheit *et al.* Science **315** (2007) 349

**Ultrathin Fe(Co)**

T. Maruyama *et al.*  
Nat. Nano. **4** (2009) 158.

Y. Shiota *et al.*  
APEX **2** (2009) 063001.

Solid state device structures

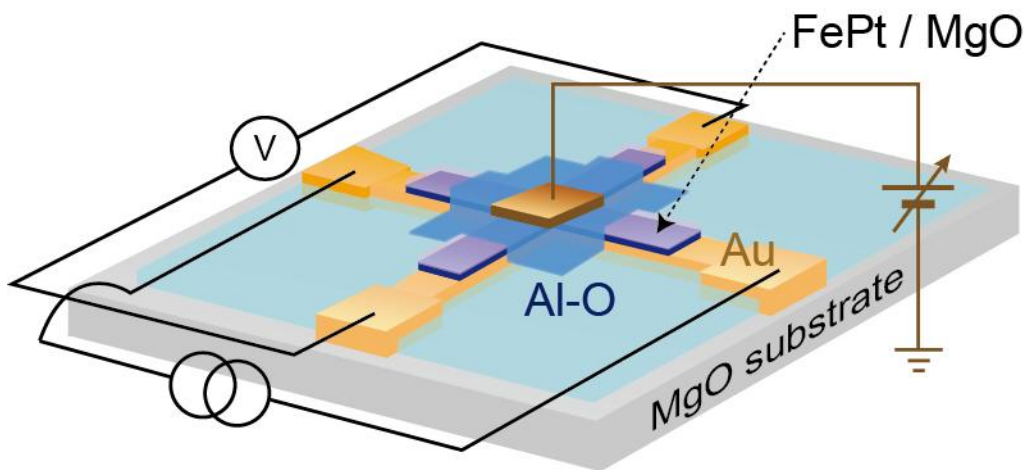
**CoFeB**

M. Endo *et al.*  
APL **96** (2010) 212503.

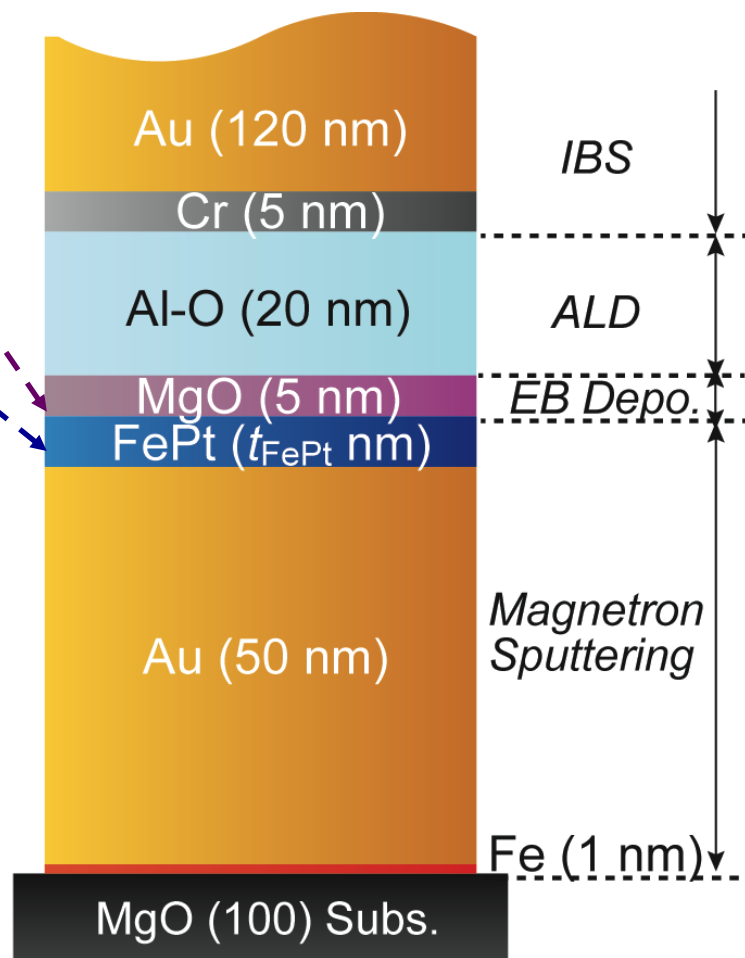
# Device structure for voltage application

MgO barrier  
Depo. Temp. : 300 °C

Bottom FePt layer  
Depo. Temp. : 300 °C  
Annealed : 450 °C

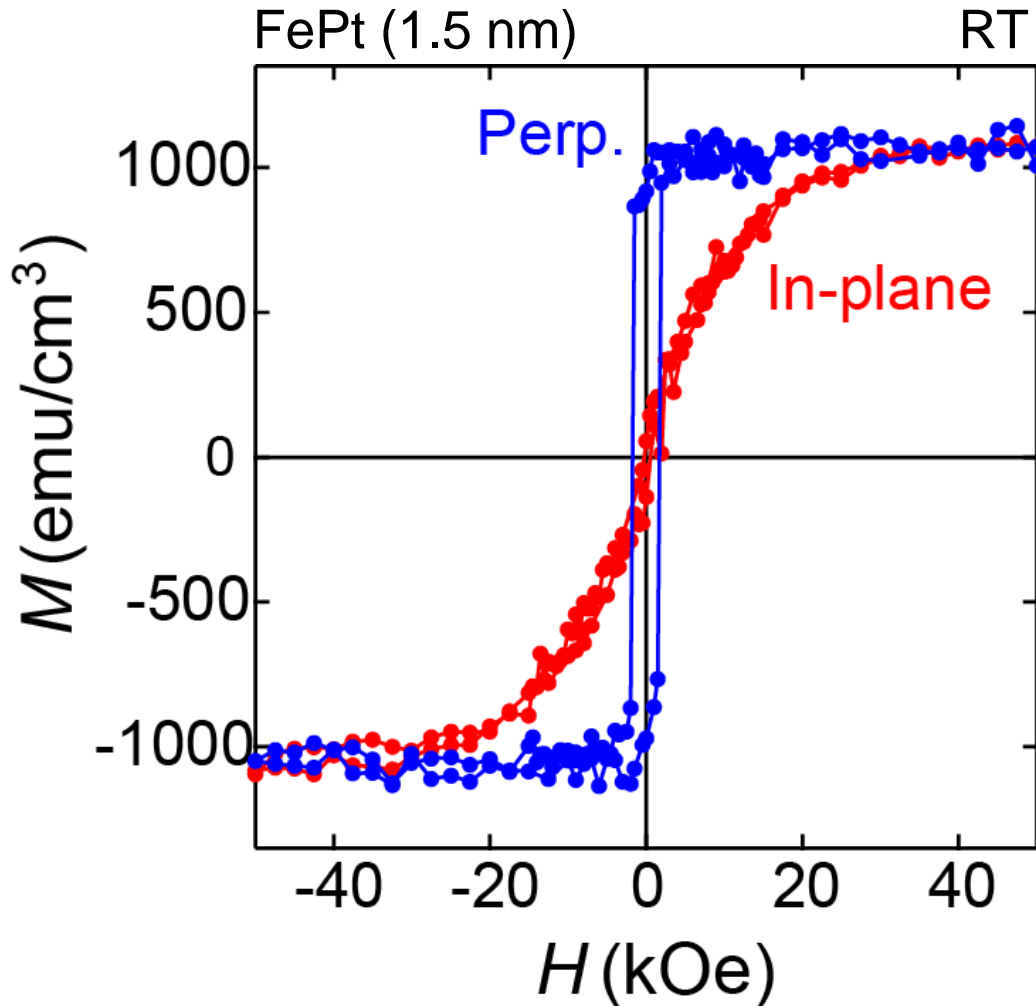


**Hall device**



**Layered structure**

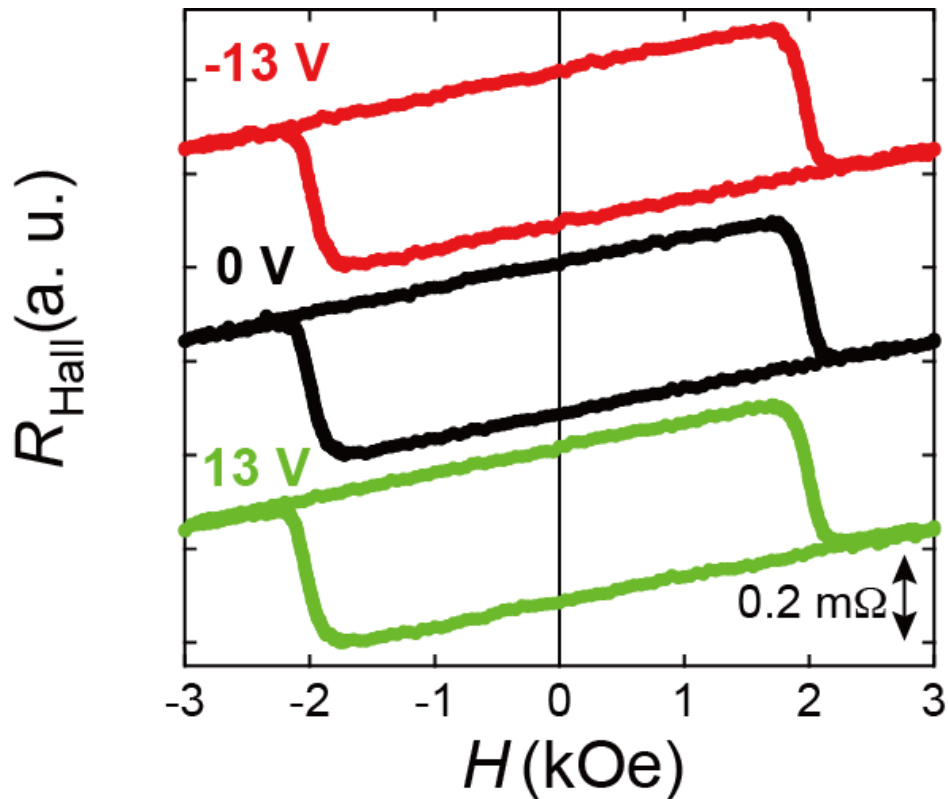
# Basic magnetization curves for FePt



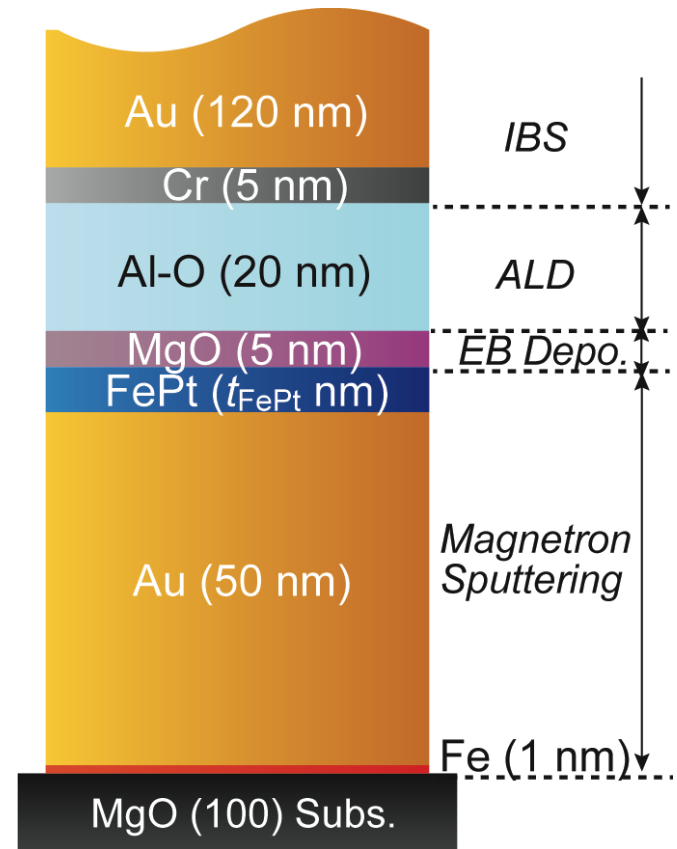
$$M_s \sim 1100 \text{ emu/cm}^3$$
$$K_u \sim 1.7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$$
$$(1.7 \times 10^6 \text{ J/m}^3)$$
$$H_K \sim 30 \text{ kOe}$$
$$H_{c, \text{ perp}} \sim 2 \text{ kOe}$$



# Hall resistance curves



$$t_{\text{FePt}} = 1.5 \text{ nm}$$

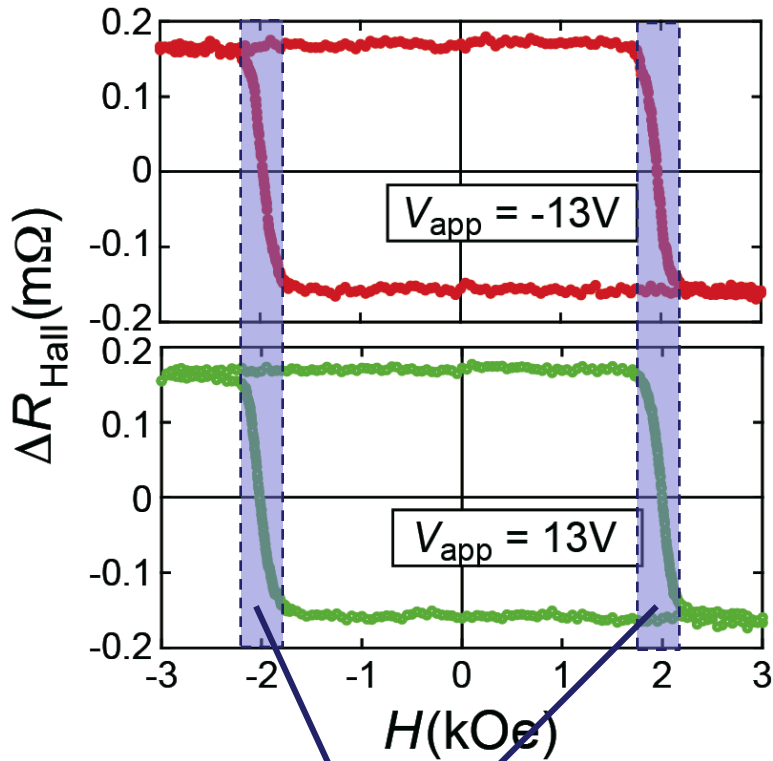


$$R_{\text{Hall}} = R_{\text{OHE}}(H) + R_{\text{AHE}}(M_{\text{FePt}}) + R_{\text{BG}}$$

- $R_{\text{OHE}}$  : Ordinary Hall effect in the system
- $R_{\text{AHE}}$  : Anomalous Hall effect in FePt
- $R_{\text{BG}}$  : Background offset

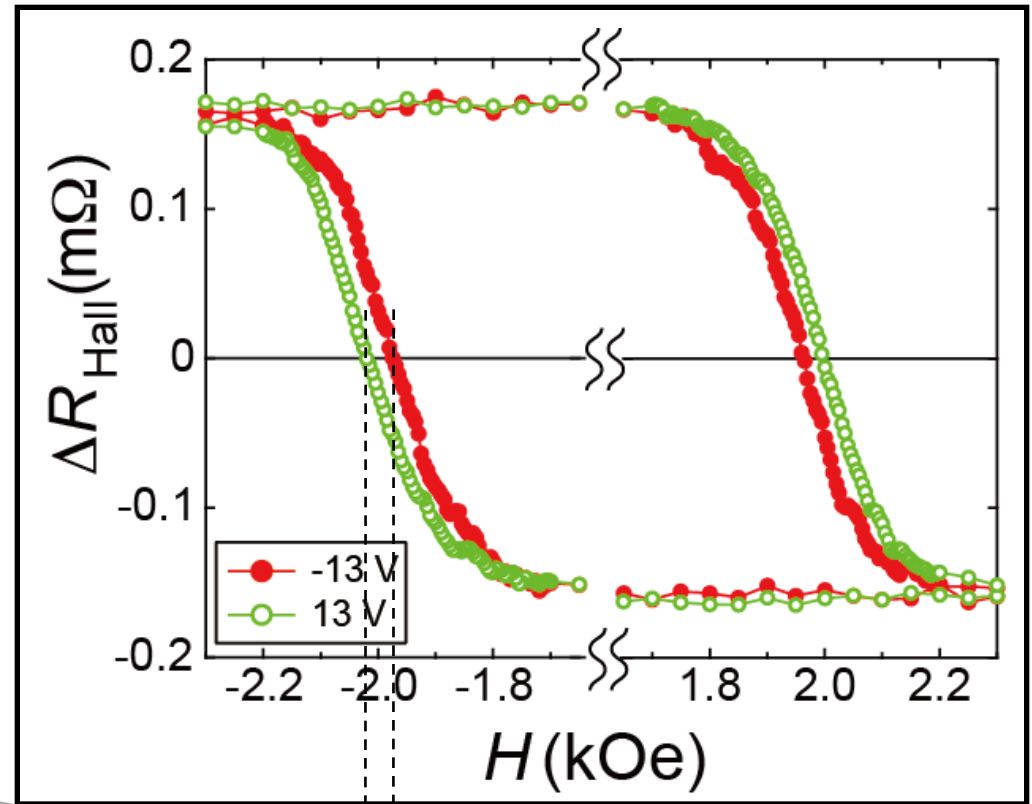
# Hall resistance curves (corrected)

Corrected Hall loops



Enlarge the  $H_c$  regions

$t_{\text{FePt}} = 1.5 \text{ nm}$



45 Oe

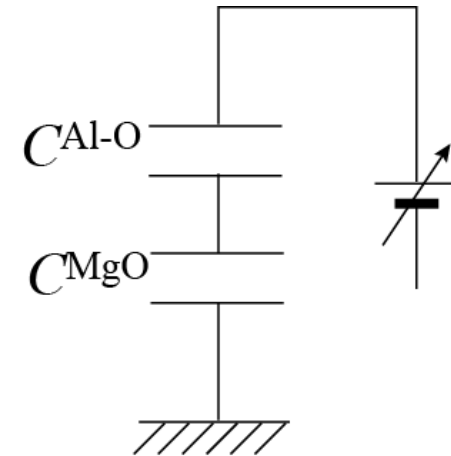
$H_c$  modulation  
by changing  $V_{\text{app}}$  (-13 ~ 13V)

# Coercivity change vs. electric field

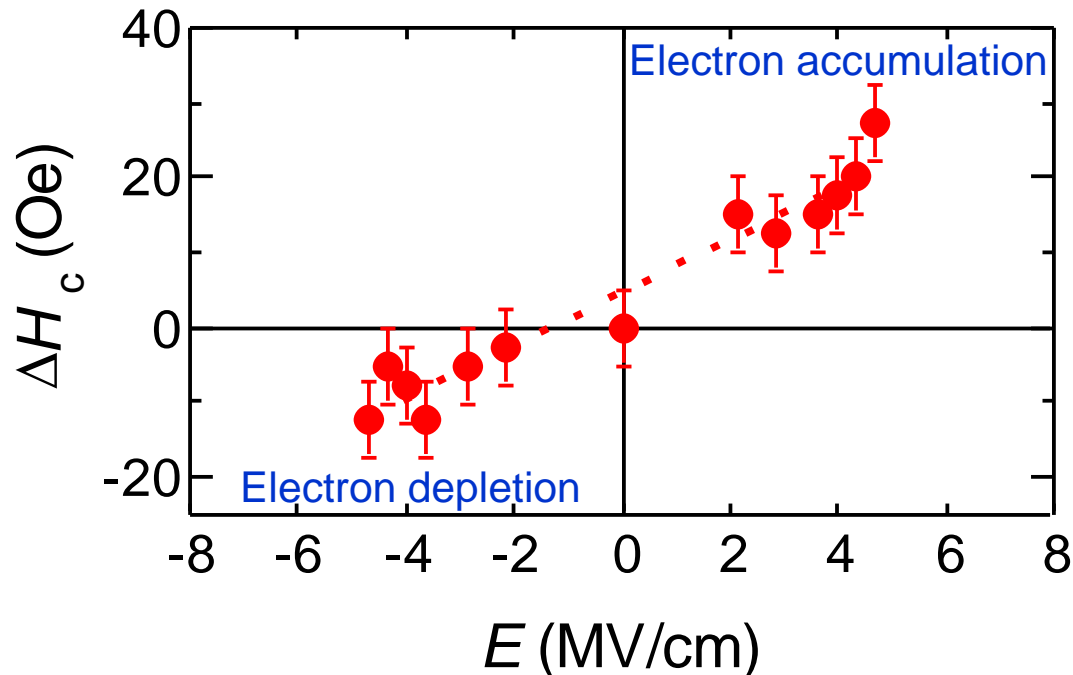
## Estimation of Electric Field

$$\epsilon_r^{\text{Al-O}} = 8.5, \quad \epsilon_r^{\text{MgO}} = 9.6, \quad d^{\text{Al-O}} = 20\text{nm}, \quad d^{\text{MgO}} = 5\text{nm}$$

$$\begin{cases} V^{\text{Al-O}} = \frac{d^{\text{Al-O}} \epsilon_r^{\text{MgO}}}{d^{\text{Al-O}} \epsilon_r^{\text{MgO}} + d^{\text{MgO}} \epsilon_r^{\text{Al-O}}} V = 0.82V \\ V^{\text{MgO}} = \frac{d^{\text{MgO}} \epsilon_r^{\text{Al-O}}}{d^{\text{Al-O}} \epsilon_r^{\text{MgO}} + d^{\text{MgO}} \epsilon_r^{\text{Al-O}}} V = 0.18V \end{cases}$$



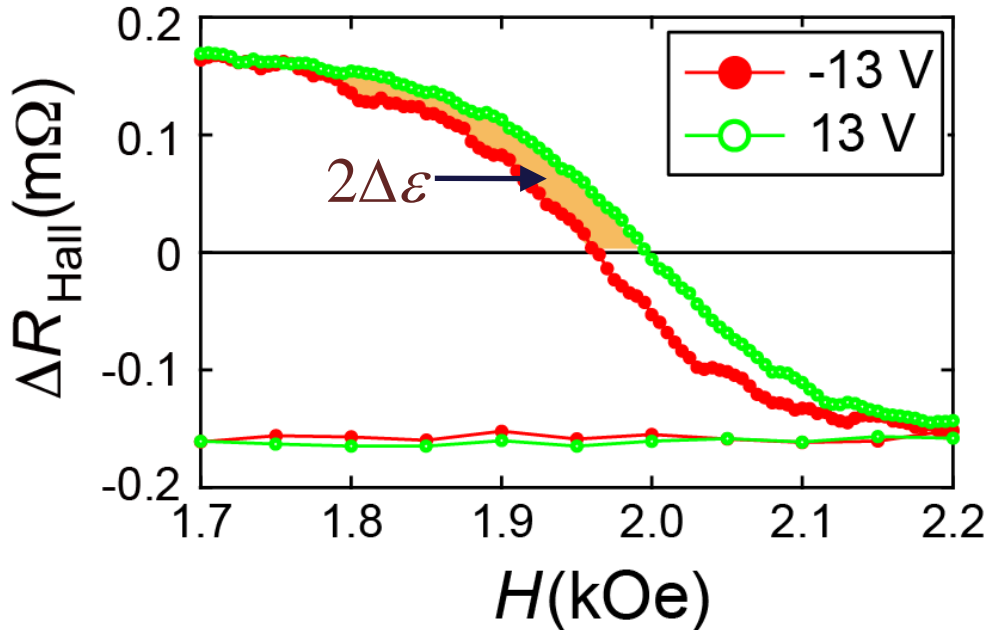
## Coercivity Change as a function of Electric Field



# Evaluation of magnetic energy change (1)

## Change in Magnetic Energy per Sheet Area

$$\Delta \varepsilon_{FePt} = \frac{1}{2} \frac{M_S t_{FePt}}{(\Delta R_{Hall})_{Sat}} \left\{ \left( \int_0^{H_c} \Delta R_{Hall} dH \right)^{V_{app}=13V} - \left( \int_0^{H_c} \Delta R_{Hall} dH \right)^{V_{app}=-13V} \right\}$$



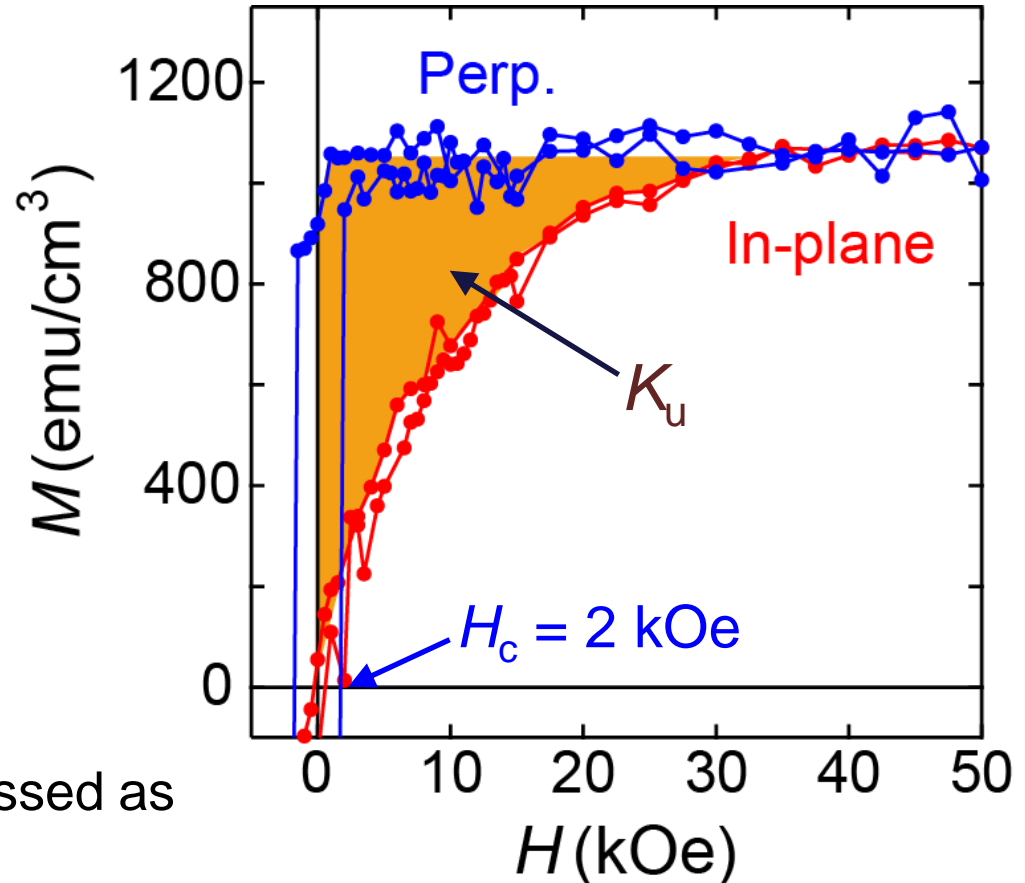
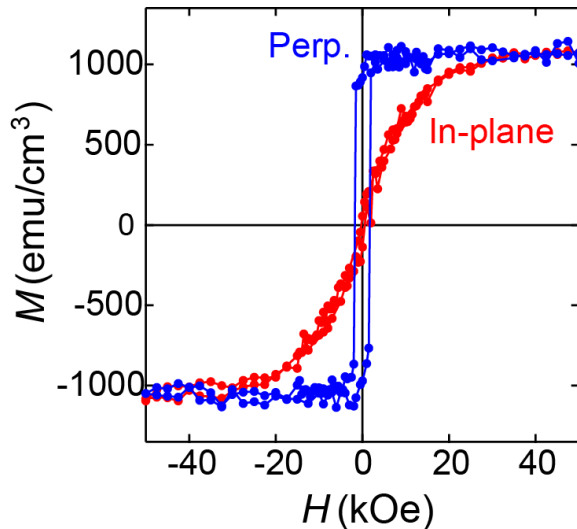
$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta \varepsilon_{FePt} = 2.44 [\mu J / m^2] \\ \text{Applied Electric Field :} \\ \Delta E = 9.36 [MV / cm] \end{array} \right.$$

$$\Delta \varepsilon(V) = 2.6 [fJ / (Vm)]$$

cf. (FeCo) ~30 [fJ/Vm], (CoFeB) 33 [fJ/Vm]  
Theory: Pt / Fe / Pt 72 [fJ/Vm]

# Evaluation of magnetic energy change (2)

Magnetization curves



$H_c$  is phenomenologically expressed as

$$H_c = \alpha (2K_u/M_s) - N_{\text{eff}} M_s$$

$$H_c \sim 2 \text{ kOe}, M_s \sim 1100 \text{ emu/cc}, K_u \sim 1.7 \times 10^7 \text{ erg/cc}, N_{\text{eff}} \sim 0 \rightarrow \alpha \sim 0.07$$

$$\Delta H_c = \alpha (2\Delta K_u/M_s) \rightarrow \Delta K_u = \Delta \varepsilon / \alpha$$

$$\Delta K(V) = 38.8 \text{ [fJ/(Vm)]}$$

# 垂直磁化の有用性

高磁気異方性→磁化の安定性

負の形状磁気異方性→スピン注入磁化反転が容易

アスペクト比無制限

→ 高集積化

## 垂直磁化膜の例：

CoCr 系合金膜

Ni/Co, Co/Pd 等, 人工格子膜

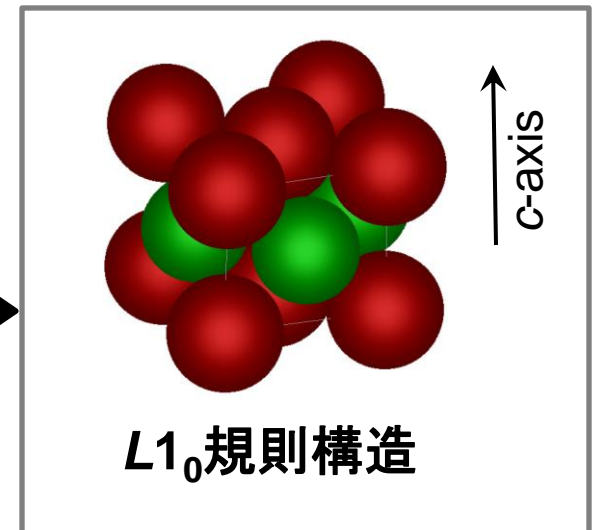
TbFeCo 等, RE-TM 系アモルファス合金膜

FePt, FePd, CoPt 等  $L1_0$  型規則合金膜

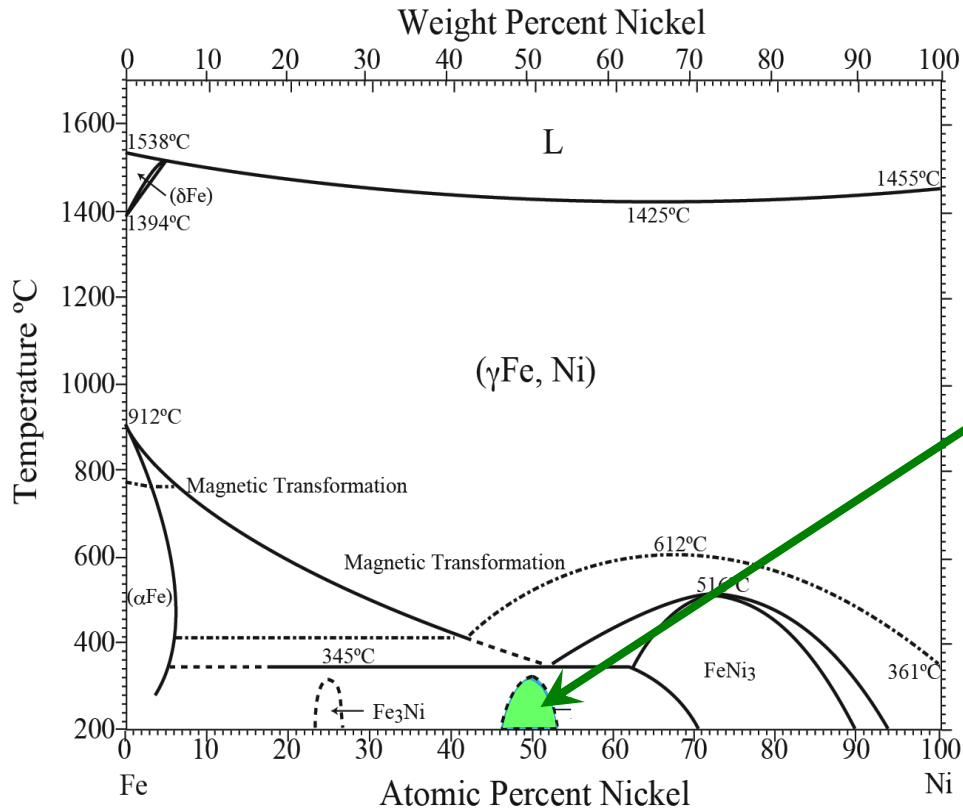
多くの場合, レアメタルを使用



元素戦略上の重大問題



# L<sub>1</sub><sub>0</sub>型FeNi規則合金



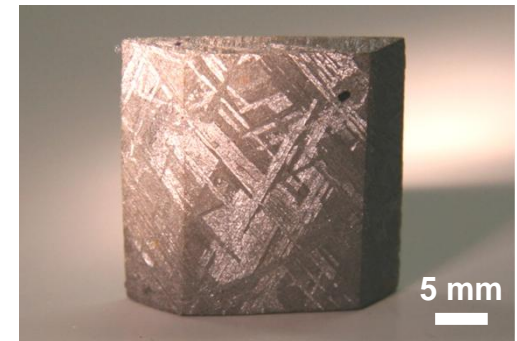
規則不規則変態温度 ~ 320°C

$a \approx c = 3.582 \pm 0.002 \text{ \AA}$

L<sub>1</sub><sub>0</sub> 型FeNi規則合金

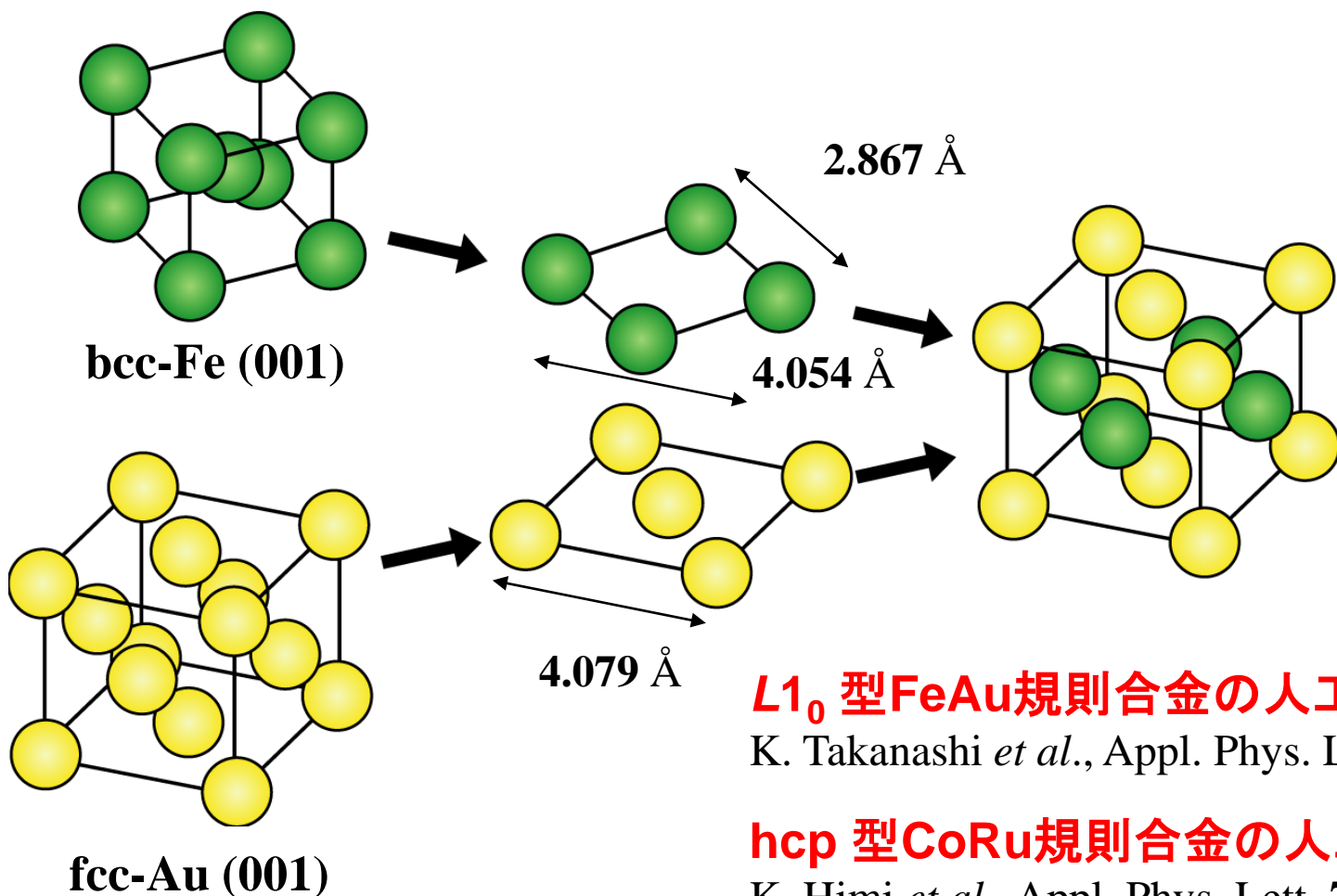
天文学的時間の熱処理が必要。  
自然界では隕鉄 (meteorite) 中にしか存在しない。

中性子照射による作製 :  $K_u = 1.3 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$   
J. Pauleve *et al.*, J. Appl. Phys. **39**, 989 (1968).



meteorite

# 単原子層交互積層による規則合金薄膜作製



## **L<sub>1</sub>型FeAu規則合金の人工合成**

K. Takanashi *et al.*, Appl. Phys. Lett., **67**, 1016 (1995).

## **hcp型CoRu規則合金の人工合成**

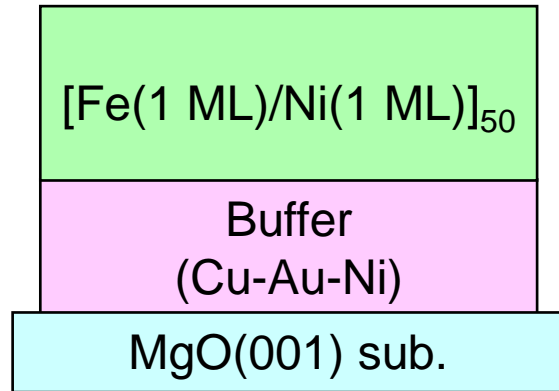
K. Himi *et al.*, Appl. Phys. Lett., **78**, 1436 (2001).

## **L<sub>1</sub>型FePt規則合金薄膜の低温規則化**

T. Shima *et al.*, Appl. Phys. Lett., **80**, 288 (2002).



# 単原子層交互積層による $L1_0$ -FeNi薄膜の創製



Uniaxial magnetic anisotropy constant  
 $K_u$  ( $10^6$  erg/cm<sup>3</sup>)

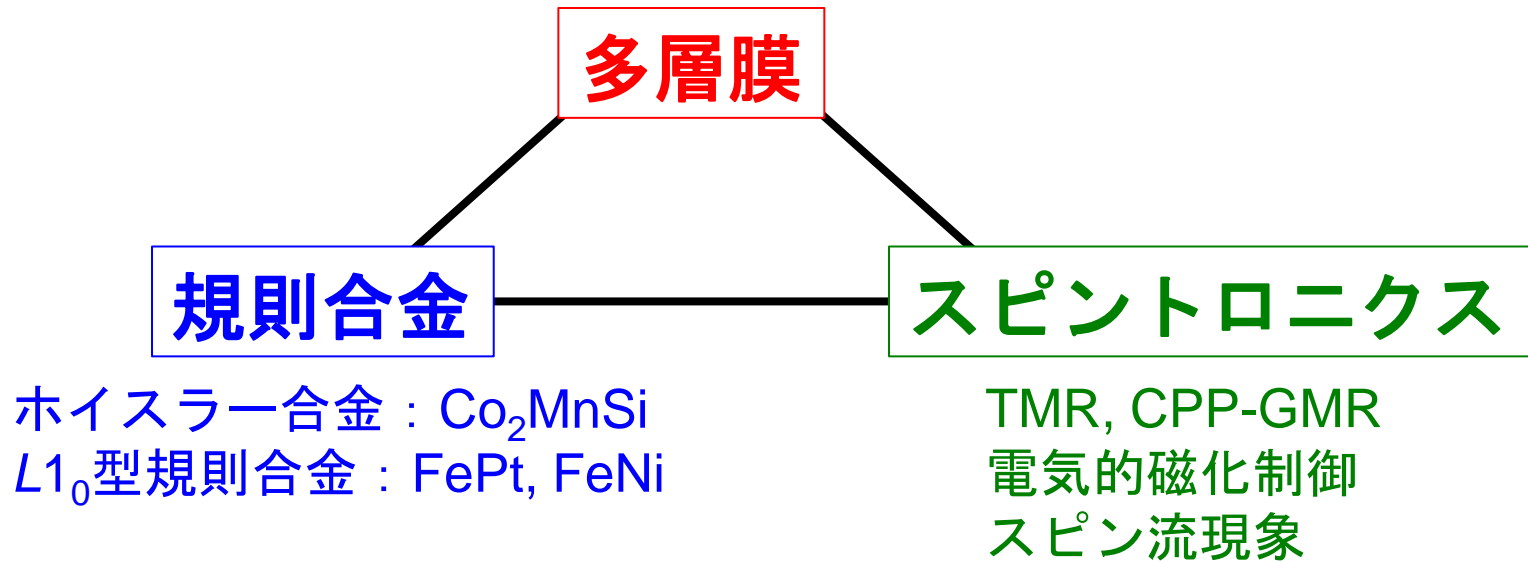
$S \sim 0.5$

$K_u \sim 7 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>

Long-range order parameter  $S$   
XRD using anomalous dispersion  
(SPring-8 BL46XU)

作製条件の最適化で  
 $S > 0.9$ ,  $K_u > 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> (垂直磁化)  
を目指す。

# まとめと放射光への期待



- 元素選択的磁気状態評価／XMCD
- 埋もれた界面の磁気状態評価／深さ分解XMCD
- 微小領域の磁区観察・ダイナミクス／PEEM
- X線異常散乱を用いた構造（規則度）の精密評価

# 共同研究者

## 研究室メンバー

准教授	水口将輝
助 教	桜庭裕弥
	関 剛斎
ポスドク	Bosu Subrojati
	Yang Fujun
DC 学生	Kang Jun-Goo
	小嶋隆幸
MC 学生	宇津宮和寿, 大倉 遼
	櫻田 俊, 柴田 俊
	渡邊 祐介
	植田 正輝, 荻原美沙子
	菊池 祐介, 長谷川浩太



## 外部協力者

$L1_0$ -FePt の電圧効果 : 新田淳作, 好田 誠 (東北大学工学研究科)

$L1_0$ -FeNi の人工合成 : 小嗣真人, 小金澤智之 (Spring 8)

理論計算 : 白井正文 (東北大学電気通信研究所)