

研究報告書

「磁性規則合金を用いた新機能性スピントルク発振素子の創製」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成26年10月～平成30年3月

研究者: 関 剛斎

1. 研究のねらい

本研究課題では、高スピン分極率を有する「磁性規則合金」の代表格であるホイスラー合金を材料の軸とし、磁気モーメントの渦状構造である「ボルテックス構造」を制御および利用することで、電流励起の磁気ボルテックス運動を動作原理とした「ボルテックス型スピントルク発振」の高性能化に取り組む。さらに、スピントルク発振の発振周波数が磁場強度に依存して変化する特徴に着目し、微小な磁場変化を検出でき、高速応答かつ高集積可能な磁場センサへの応用を視野に入れ、スピントルク発振型磁気センサの超高感度化に資する要素技術の確立を目指す。

強磁性層/非磁性層/強磁性層から構成される磁気抵抗(MR)素子に直流電流を通電させると、伝導電子スピンと磁気モーメントの間に量子力学的な相互作用であるスピントルクが働く。このスピントルクと磁化運動を収束させるダンピングトルクが釣り合う磁場条件下では、MR素子に直流電流を通電させることで磁気モーメントの定常的なダイナミクスを誘起でき、高周波の電圧を得ることができる。これが、スピントルク発振と呼ばれる現象である。現在のところ、全て金属層から構成される巨大磁気抵抗(GMR)型とトンネル障壁層を有するトンネル磁気抵抗(TMR)型の2種類のスピントルク発振素子が検討されており、GMR型はTMR型と比較してノイズを低減できると期待される。しかしながら、従来材料を用いたGMR型のスピントルク発振素子は、pWオーダーの発振出力しか得られていない、発振線幅の制御が不十分であるため周波数純度の指標となるQ値(=発振周波数/発振線幅)が1,000程度に留まっているなどの課題を抱えている。そのため、GMR型スピントルク発振素子を磁場センサへ応用するためには、発振出力、Q値、さらに周波数敏捷性の大幅な向上が不可欠である。

スピントルク発振の発振出力は、MR比の2乗に比例するため、大きなGMR比を示す材料を用いることが出力の改善策の1つとなる。また、有効磁場の均一性や運動の安定性を高めることでQ値や周波数敏捷性の向上に繋がるものと期待される。そこで本研究課題では、高スピン分極材料であるホイスラー合金の大きなMR効果と磁気ボルテックスのダイナミクスに着目することで、発振の高出力化と磁化運動の安定化を同時に図る。そして、高出力、高Q値、高周波数敏捷性の実現により、磁場センサ応用に向けた課題の解決を狙う。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究課題では、GMR素子を用いたボルテックス型スピントルク発振の高出力、高Q値、および高周波数敏捷性を実現するために、「L2₁型ホイスラー合金材料(図1)の最適化」、「ボルテックス構造およびダイナミクスの制御」、「ボルテックス型スピントルク発振の特性向上」、および

び「デバイス動作の評価」を課題遂行におけるマイルストーンとして全体計画を立案した。

まず、本研究のポイントとして、当該研究課題に着手する以前に、高スピン分極のホイスラー合金においてボルテックス構造を安定形成した報告はなく、ボルテックス型スピントルク発振の報告は皆無であった。また、ボルテックスダイナミクスを利用した新しい機能性の発現に関する研究も限られていた。そこで本研究課題では、「(研究テーマ A)ホイスラー合金薄膜における磁気ボルテックスの形成」から着手し、エピタキシャル成長させた $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ホイスラー薄膜

においても従来材料と同等の安定性を有する磁気ボルテックスを形成できることを明らかにした。そして、研究テーマ A で得られた知見をもとに、「(研究テーマ B)ホイスラー合金層を有するボルテックス型スピントルク発振素子の開発」を行い、ボルテックス型のスピントルク発振を観測し、出力向上と高 Q 値を同時に実現することに成功した。さらに、「(研究テーマ C)ボルテックス型スピントルク発振の特性向上とノイズ評価」に取り組み、ダブルボルテックス構造の発振素子を作製したところ、Q 値の大幅な増大と高い周波数敏捷性を得ることに成功した。また、「(研究テーマ D)磁気ボルテックスダイナミクスの解明と新機能性の創出」に関して、高周波磁場とスピントルクで誘起されるボルテックスダイナミクスに違いがあることを明らかにし、さらに磁気ボルテックス誘起の新しい低エネルギー磁化反転技術を構築した。

上記より、ボルテックス型スピントルク発振の高出力、高 Q 値、および高周波数敏捷性という当初目標としていた成果が得られ、加えて発振の低ノイズ化や新機能性の創出という研究の新展開も見られた。これらの成果は、超高感度磁気センサの実現に向けた要素技術と成り得るものである。

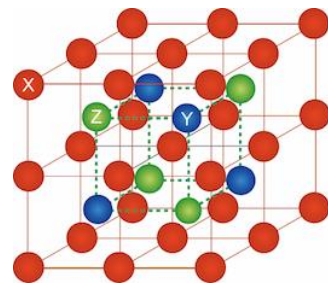


図1 $L2_1$ 型ホイスラー合金の結晶構造の模式図。

(2) 詳細

研究テーマ A「ホイスラー合金薄膜における磁気ボルテックスの形成」

図 1 に示した $L2_1$ 型の結晶構造を有する $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ホイスラー合金は、高いスピン分極を有する材料として有名であるが、エピタキシャル成長させた $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ 合金薄膜において磁気ボルテックスが安定に形成されるかは自明ではなく、安定化するためのサイズや膜厚の条件も明らかではなかった。そこで、 $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ エピタキシャル薄膜から円形ディスクを作製し、磁気光学カー効果および光電子顕微鏡を用いて磁気特性を評価した。図 2(a)は、直径(D)を 2 μm とした $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ディスクの光電子顕微鏡像である。黒白のコントラストが磁気像に対応しており、図 2(b)に示すような内部で磁気モーメントが渦状に配列した磁気ボルテックスが形成されている。これらの結果をもとに、磁気構造の相図(図 2(c))を作成して、従来の Fe-Ni 合金と同等の磁気ボルテックスの安定性を有していることを明らかにした。

高スピン分極率を有する $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ホイスラー合金において磁気ボルテックスを安定形成できることを実験的に示したのは本研究が初めてであり、ボルテックス発振素子の発振層を設計するための重要な知見が得られた。

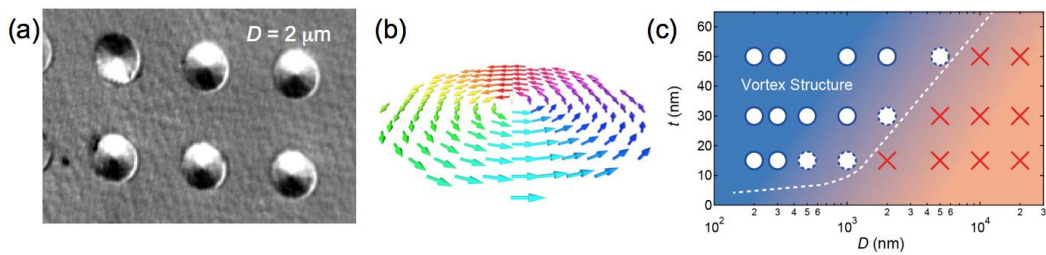


図2 (a) $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ホイスラー合金薄膜から作製した直径(D) $2\ \mu\text{m}$ のディスクの光電子顕微鏡像。(b) 磁気ボルテックスの磁気構造の模式図。(c) $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ホイスラー合金におけるディスク厚(t)と D に対する磁気構造の相図。

研究テーマ B「ホイスラー合金層を有するボルテックス型スピントルク発振素子の開発」

研究テーマ A で得られた知見をもとに、図 3(a)に模式的に示した $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ディスクをスピントルク発振層とする面垂直通電型 GMR 素子を作製し、電流により励起される磁化ダイナミクスを調べた。図 3(b)に、 $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}/\text{Ag}/\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ の GMR 素子において観測された高周波スペクトルを示す。発振周波数がサブ GHz 帯域に存在すること、および発振周波数が印加電流に対してブルーシフトする実験結果から、励起されているモードはボルテックスコアの回転運動であると考えられ、 $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ を用いたボルテックス型スピントルク発振に成功した。発振出力は最大でおよそ $10\ \text{nW}$ に達し、Q 値 $4,000$ という値を実現した。Co や Fe-Ni 合金などの従来材料のボルテックス型発振の出力が pW オーダであることを考慮すると、高スピン分極の $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ を用いたことで、出力向上と高 Q 値を同時に実現することに成功している。さらに、発振特性の合金組成依存性を調べることで最適な $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ 合金組成を明らかにし、

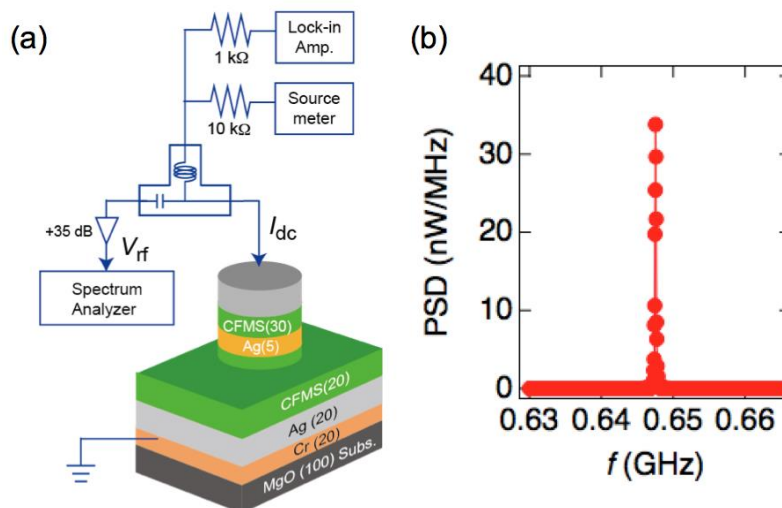


図3 (a) $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ディスクを有する面垂直通電型巨大磁気抵抗(GMR)素子と高周波測定用セットアップの模式図。(b) $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}/\text{Ag}/\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ の GMR 素子において観測された高周波スペクトル。

加えて、ボルテックスコアの回転半径がディスク径のおよそ 75%に達する大振幅運動を安定的に実現できていることを示した。

以上より、本研究課題では、 $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ホイスラー合金層を用いたボルテックス型スピントルク発振に成功し、ホイスラー合金とボルテックスダイナミクスを利用することで高出力と高 Q 値を同時に満足できることを実証した。

研究テーマ C「ボルテックス型スピントルク発振の特性向上とノイズ評価」

ボルテックス型スピントルク発振の更なる高 Q 値化を目指して磁化運動の安定化を図るために、上下ホイスラー合金層をディスク形状に加工し両ホイスラー合金層に磁気ボルテックスを形成させたダブルボルテックス構造の素子を作製した。垂直磁場において発振特性を評価したところ、Q 値が 23,000 まで増大し、 1×10^9 T/Hz の周波数敏捷性を得ることに成功した。また、単一の磁気ボルテックスを有するシングルボルテックス構造の発振素子においてノイズスペクトルを測定したところ、TMR 型のスピントルク発振素子よりもノイズを低減できることが示された。これは、GMR 素子がトンネル障壁層を有していないため、ショットノイズの影響を抑制することに起因していると考えており、GMR 素子を用いる優位性が示された。本研究テーマを遂行する上で、測定系のノイズレベルを低減することが不可欠であったため、研究費増額を申請し、低ノイズの高周波アンプを購入した。このアンプを使用することにより、上記したノイズの精密測定が可能となった。

加えて、シングルボルテックス構造の素子を用いて、スピントルク発振特性のディスクサイズ依存性を調べ、図 4 に示す発振出力と Q 値のサイズ依存性を明らかにした。これは、さらなる特性改善を図るための素子設計について指針を与える有用な成果である。

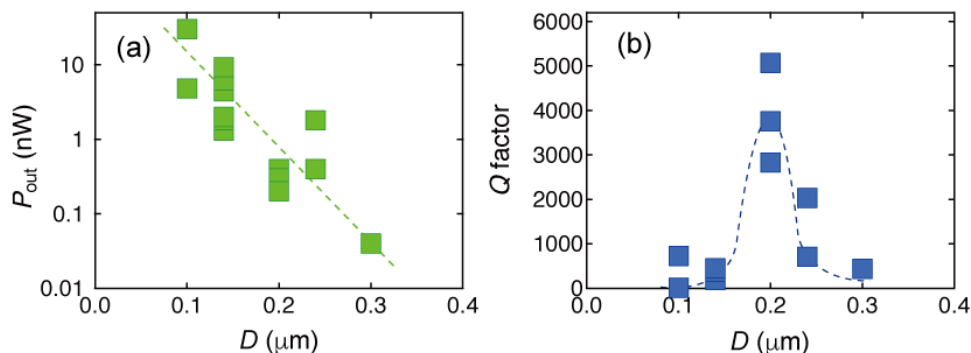


図3 $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ ディスクを有するスピントルク発振素子の(a)発振出力および(b)Q 値のディスク直径(D)依存性。

研究テーマ D「磁気ボルテックスダイナミクスの解明と新機能性の創出」

磁気ボルテックスの新しい機能性を創出する目的で、磁気ボルテックスにおける基本的な磁化ダイナミクスの解明に取り組んだ。高周波磁場およびスピントルクで誘起されるダイナミクスを比較した結果、スピントルクによるダイナミクスは膜面方向に磁気モーメントの運動が不均一になっている運動モードであることが示唆された。これは、スピントルクが主に界面磁気モー

ントに作用することに起因しており、スピントルク誘起の運動の詳細を理解することに成功した。さらに、新機能性の一つとして、界面で磁的に交換結合した異種磁性層の交換結合膜を利用し、磁気ボルテックス誘起の低エネルギー磁化反転技術を構築した。

3. 今後の展開

本研究課題では、ホイスラー合金層を用いることでボルテックス発振の高出力化、高 Q 値化、高敏捷性、さらには低ノイズという成果が得られた。これらは、超高感度磁気センサの実現に向けた要素技術と成り得るが、実際の応用のためには依然として特性改善が不可欠である。例えば、ピコテスラオーダの磁場検出を実現するためには、発振出力は μW オーダを必要とし、本研究課題で得られた出力では不十分である。

この問題点を解決するための今後の方針として、本研究課題で着目した $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ 以外の高スピン分極率を有するホイスラー合金をスピントルク発振層として適用することが考えられる。並行して、発振出力と Q 値のディスクサイズ依存性から得られた知見をもとに、Q 値を保ったまま出力を向上できる構造へと素子を改良することで、発振出力の大幅な改善も期待できる。

これらの改善策を講じることにより、 μW オーダに達する発振出力を実現できれば、磁気センサとしての高感度化にも繋がり、ポータブルかつ空間分解能の高い生体磁気センサなどへの応用の道筋も見えて来るものと期待される。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究課題では、「高スピン分極ホイスラー合金と磁気ボルテックスを利用してスピントルク発振素子の高性能化を図る」という主目的を概ね達成できた。また、磁気ボルテックスの安定性やスピントルク誘起のダイナミクスの機構解明など基礎学術的に価値ある知見を得ると同時に、発振特性の合金組成依存性やディスクサイズ依存性の解明、ダブルボルテックス構造を用いることによる特性改善、さらにはノイズの評価など、応用上も有用となる成果が得られた。さらに、磁気ボルテックスダイナミクスの新機能性を見出すこともでき、研究分野の拡充にも貢献できたものと考えている。よって、本研究課題で得られた成果は、学術・応用の両面において意義深いものである。

「素材技術・デバイス技術・ナノシステム最適化技術等の融合」という当該領域の戦略目標において、本研究課題は「素材」と「デバイス」のレイヤーに属するものと認識している。素材とデバイスをバランス良く扱えたことから、素材の特徴と活かしたデバイス開発を軸に戦略目標に沿って研究を遂行できたものと考えている。しかしながら、素材(材料)開発という観点では、研究開始当初に予定していた $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ 合金以外のホイスラー合金にも取り組んだものの、 $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ 合金の特性を上回る発振層材料は実現できず、残された重要な課題の 1 つとなった。この点は、計画立案の時点で熟考が必要であったと反省している。

IoT やトリリオンセンサが注目を集めている現在において、高感度磁気センサの実現にむけて要素技術開発に取り組んだ本研究課題の成果は、磁気センサの新しい選択肢を増やすものであり、今後のセンサ時代に波及効果があるものと期待している。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

L2₁型ホイスラー合金材料の開発と同材料を用いたボルテックス型の磁気構造を利用したスピントルク発振素子の開発を行い、生体磁場の測定が可能な高感度磁場センサーを開発することを目的とした。具体的には、10 μW以上の高い出力と、10000以上の高いQ値、そして、1 × 10¹⁰ Hz/T以上の周波数敏捷性を持つ発振素子の実現を目指した。

その結果、ホイスラー合金を用いたボルテックス型発振の実証に成功、素子の微細化が発振出力に対してメリットになることを示したことは評価できる。数値目標としては、発振線幅を狭めて高いQ値を得ることに成功しており、Co₂(Fe_xMn_{1-x})Siを用いた素子では、シングルボルテックス型でQ=4000、ダブルボルテックス型でQ=23000を達成、目標を上回る成果が得られた。ただし、出力については10 nWオーダに留まっており、目標未達となっている。ホイスラー合金という素材そのものについても検討を行った点、スピントルク発振器のノイズ特性を評価してMTJと比べてGMR系スピントルク発振素子のほうがノイズを抑制できる利点があることを実証した点は評価される。今後、ホイスラー合金のさらなる改善と素子構造の適正化により、高出力化が期待される。

さきがけ研究の期間中に助教から准教授に昇進したことや、日本磁気学会における受賞などは、さきがけ研究者のキャリアアップとして良い成功例になっている。総じて堅実に研究を進めて安定した成果を創出したと言える。SQUID並みの感度をもち室温以上で動作する高性能磁気センサーが実現できれば医療分野や脳機能の解明などへのインパクトが非常に大きいので、そのためにも出力性能を桁違いに向上させるためのブレークスルーを見出して欲しい。一方で、漏れ磁場が無く集積度を高くできることがこの方式の利点であるので、実デバイスを用いた磁場検出のデモ実験によって現在の特性での磁場センサーとしての能力を見極め、性能を活かせる用途を見出すことも重要である。スピントロニクス分野をけん引する若手として、今後も継続して頑張りたい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

- | |
|--|
| 1. T. Seki, W. Zhou, and K. Takanashi. Resonant switching for an in-plane magnetized L10-FePt Ni81Fe19 bilayer under spin wave excitation. J. Phys. D: Appl. Phys. (2016) 49 075002-1-10. |
| 2. T. Yamamoto, T. Seki, and K. Takanashi. Vortex spin-torque oscillator using Co ₂ Fe _x Mn _{1-x} Si Heusler alloys. Phys. Rev. B (2016) 94, 094419-1-9. |
| 3. W. Zhou, T. Yamaji, T. Seki, H. Imamura, and K. Takanashi. Resonant magnetization switching conditions of an exchange-coupled bilayer under spin wave excitation. Appl. Phys. Lett. (2017) 110, 082401-1-5. |
| 4. T. Seki, W. Zhou, T. Yamamoto, and K. Takanashi. Control of Magnetization Dynamics in |

Ordered Alloy Systems. J. Magn. Soc. Jpn. (2017) 41, 46–51.

5. W. Zhou, T. Seki, and K. Takanashi. Magnetization switching behavior of exchange-coupled bilayer nanodots characterized by magneto-optical Kerr effect. J. Appl. Phys. (2017) 122, 093902–1–5.

(2)特許出願

研究期間累積件数:2件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

1.

発 明 者: 関剛斎、高梨弘毅、山本竜也

発明の名称: 磁気センサ素子及び磁気センサ

出 願 人: 東北大学

出 願 日: 2016/4/12

出 願 番 号: 特願 2016-79870

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 受賞:平成 28 年 9 月 日本磁気学会 2016 年 優秀研究賞
2. 受賞:平成 29 年 5 月 第 16 回 インテリジェント・コスモス奨励賞
3. 主要な学会発表(招待講演): Takeshi SEKI, and Koki TAKANASHI. Spin dynamics in ordered alloy systems and its application to spintronic devices. *The 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing*.
4. 主要な学会発表(招待講演): Takeshi SEKI, Weinan Zhou, and Koki TAKANASHI. Magnetization Switching in Exchange-Coupled Systems. *4th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS)*.
5. 主要な学会発表(招待講演): T. Seki, and K. Takanashi. Spin Torque Vortex Oscillator Using Heusler Alloy Layers. *IUMRS-ICA 2017*.