Extremely large spin-polarization in Co₂MnSi based magnetic tunnel junctions

Y. Sakuraba, M. Hattori, M. Oogane, H. Kubota*, Y. Ando, A. Sakuma, N. D. Telling**, P. Keatley***,

G. van der Laan**, E. Arenholz****, R. J. Hicken***, and T. Miyazaki

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Aoba-yama 6-6-05, Aramaki, Aoba-ku, Sendai, 980-8579, Japan

*Nanoelectronics Research Institute, National Institute of Advanced Science and Technology (AIST), 1-1-1 Umezono, Tsukuba, 305-8568, Japan

**Magnetic Spectroscopy Group, CCLRC Daresbury Laboratory, Warrington WA4 4AD, United Kingdom

***School of Physics, University of Exeter, Stocker Road, Exeter EX4 4QL, United Kingdom

**** Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA

We fabricated Co₂MnSi(Mg)/Al-O/CoFe MTJs using UHV magnetron sputtering. The interfacial chemical bond between Co₂MnSi and Al-O was intensively optimized by changing plasma oxidation time for Al-O and by inserting a Mg layer. The Mg inserted layer between Co₂MnSi and Al-O effectively suppressed the generation of interfacial magnetic impurities. Finally, we successfully observed a giant TMR ratio of 203% at 2 K in the MTJ with a 1.0 nm-Mg layer inserted. The spin-polarization for Co₂MnSi estimated from this TMR ratio was 0.97 - 1.00, which indicated that an almost perfect spin-polarization state was achieved. We also investigated the relationship between the TMR ratio and the site-ordering level of Co₂MnSi. As a result, we found that an L2₁-ordering state is not necessary to achieve high spin-polarization for Co₂MnSi in MTJs.

Key words: magnetic tunnel junctions, tunnel magnetoresistance, half-metal, full-Heusler alloys, spin-polarization

Co₂MnSi を用いた強磁性トンネル接合における 極高スピン分極率の実現

桜庭裕弥・服部正志・大兼幹彦・久保田均*・安藤康夫・佐久間昭正・N. D. Telling**・P. Keatley***・G. van der Laan**・

E. Arenholz****・R. J. Hicken***・宮崎照宣

東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05 (〒980-8579)

*独立行政法人産業技術総合研究所, エレクトロニクス研究部門, つくば市梅園 1-1-1 (〒305-8568)

**Magnetic Spectroscopy Group, CCLRC Daresbury Laboratory, Warrington WA4 4AD, United Kingdom

***School of Physics, University of Exeter, Stocker Road, Exeter EX4 4QL, United Kingdom

**** Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA

1. はじめに

近年, スピンエレクトロニクス分野においてハーフメタル材料が非常に大きな注目を集めている. ハーフメタルとはフェルミエネルギー近傍において片方のスピンバンドにのみエネルギーギャップを有する強磁性材料のことであり, 完全にスピン偏極した伝導電子を持つ. このような物質を強磁性トンネル接合(MTJ)やCPP(current perpendicular to plane)-GMR素子の電極として用いた場合, 磁気抵抗比(MR比)やスピン注入効率を飛躍的に向上させることが期待され, 磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)や磁気センサーといった応用面における可能性は極めて大きい.

現在までLa₂₃Sr₁₃MnO₃, CrO₂, Fe₃O₄といった酸化物系^{1,3)}, CrAs, CrSbといった閃亜鉛型化合物^{4,5)}, NiMnSb, Co₂MnSi, Co₂MnGeに代表されるホイスラー合金系^{6,8)}の物質がハーフメタリックなバンド構造を有することが理論的に予測されている. 中でもホイスラー合金系のハーフメタルはそのキュリー温度が室温に比べて非常に高いことから室温でもそのハーフメタル性が維持されることが期待され, 現在多くのグループにおいてそれらを電極としたMTJの作製⁹⁻¹²⁾, アンドレーフ反射による分極率測定¹³⁾

などの実験が精力的に試みられている. 本研究グループではこれまでMgO(001)単結晶基板上に良質なCo₂MnSiエピタキシャル膜を成膜し, Co₂MnSi/Al-O/CoFe, Co₂MnSi/Al-O/Co₂MnSi構造のMTJを作製することによって最大室温で69%, 低温2 Kで570%のトンネル磁気抵抗比(TMR比)を報告している¹⁴⁻¹⁶⁾. このようなTMR比はAl-Oアモルファス障壁層を用いたMTJとしては極めて大きな値であり, Co₂MnSiが理論予測通り高いスピン分極率を有することを実証する結果である. さらにトンネルコンダクタンスのバイアス電圧依存性の測定結果から, ハーフメタリックなエネルギーギャップを反映した構造が明瞭に観察されており, ハーフメタルのバンド構造を議論する上でも新たな成果が得られつつある^{15,16)}. しかしながら, それらの成果において, TMR比からJulliereの式によって算出されたCo₂MnSiのスピン分極率 P_{CMS} は最大でも0.89($P_{\text{CoFe}} = 0.50$)であり, ハーフメタルとしての理想的な分極率($P_{\text{CMS}} = 1$)は観測することができなかった.

Co₂MnSiを用いたMTJにおいてスピン分極率が1より低減する原因として主に以下の2つが考えられる.

(1) Co₂MnSi/Al-O界面における磁性不純物

MTJにおいて強磁性層/障壁層界面に磁性不純物が存在する場合,

スピントリッップを伴う非弾性的なトンネル過程が生じるため、強磁性電極の本質的なスピントリッップ率を得ることはできない。 Co_2MnSi を下部電極とした MTJ の場合、 Co_2MnSi が通常の $3d$ 強磁性体と異なり Mn, Si といった非常に酸素親和性の高い元素を含んでいることから、界面に磁性不純物が生じやすいことが指摘されている¹⁷⁾。これによって実際に観測されるスピントリッップ率が低減している可能性が考えられる。

(2) サイト不規則化によるスピントリッップ率の低下

フルホイスラー合金(X_2YZ)の結晶構造は、そのサイト規則状態によって $I2_1$ 構造(完全規則構造)、 $B2$ 構造(Y, Z 原子間の不規則構造)、 $A2$ 構造(完全不規則構造)に分類される。理論的な報告によれば、 Co_2MnSi を含むフルホイスラー合金系のハーフメタルのスピントリッップ率はサイト不規則化によって大きく低減することが予測されている^{18,19)}。しかしながら現在まで、実際に作製されたホイスラー合金電極の $I2_1$ 及び $B2$ 規則度と MTJ で観測される TMR 比は定量的に相関付けられておらず、 Co_2MnSi のハーフメタル性とサイト規則性の関係は未だ不明瞭な状態である。

以上の理由から、本研究は $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}/\text{CoFe}$ 構造の MTJ において、(1) $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}$ 界面状態を最適化し Co_2MnSi の本質的なスピントリッップ率を観測すること、(2) Co_2MnSi のサイト規則度を定量的に評価し、実際に MTJ で観測される TMR 比との相関を明らかにすることを目的とした。界面状態は Al-O 形成時のプラズマ酸化時間を調整することならびに酸素親和性の極めて高い Mg を挿入層として用いることによって改善を試み、実際の化学状態を X 線吸収スペクトル(XAS)の測定を行うことにより直接的に評価した。

2. 実験方法

試料は全て超高真空スパッタ装置(到達真空度 1×10^{-7} Pa 以下)で作製した。 Co_2MnSi エピタキシャル下部電極は $\text{MgO}(001)$ 単結晶基板に Cr バッファ層を堆積させた後、基板温度室温にて成膜し、そのまま *in situ* にて温度 $T_{\text{ann}}(^{\circ}\text{C})$ でポストアニールを行った。また、 Co-Mn-Si の薄膜組成をできる限り 2:1:1 の化学量論比を近づけるため、 $\text{Co}_{2.00}\text{Mn}_{1.28}\text{Si}_{1.30}$ と組成調整を行った合金ターゲットを用いた。 Co_2MnSi 電極の組成、構造・規則度はそれぞれ誘導結合型プラズマ(ICP)発光分析法、X 線ディフракトメータ(XRD)を用いてそれぞれ評価した。

作製した MTJ の基本的な膜構成は $\text{MgO-sub}/\text{Cr}(40\text{nm})/\text{Co}_2\text{MnSi}(30)/\text{Mg}(t_{\text{Mg}})/\text{Al}(1.3)\text{-O:}t_{\text{ox}}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}(5)/\text{IrMn}(10)/\text{Ta}(5)$ である。今回、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}$ 界面状態を改善するために以下に示すように 2 つのパラメータを変化させた。

- (1) Al-O 障壁層形成時の Al のプラズマ酸化時間 t_{ox} : 10 – 240 s
 - (2) $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}$ 界面への Mg 挿入層厚 t_{Mg} : 0 – 1.3 nm
- Mg は実用可能な単体元素の中で最も高い酸素親和性を有する物質であり、これを $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}$ 界面に挿入することにより Co_2MnSi 表面の磁性不純物の生成が抑制されることが期待される。また、これら界面状態の最適化を行うにあたり Co_2MnSi のポストアニール温度は過去の実験に倣い 450°C とした^{15,16)}。作製した積

層膜はフォトリソグラフィー及び Ar イオンミリングによって接合サイズ $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ から $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ まで微細加工を施し、直流 4 端子法によって磁気抵抗効果を測定した。

XAS の測定は米 Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory, beamline 6.3.1 において全電子収量法を用いて行った。

3. 実験結果

3.1 Al-O 酸化時間による界面状態の最適化

Fig. 1 に $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}(1.3 \text{ nm})\text{-O}/\text{CoFe}$ -MTJ における TMR 比及び $R \times A$ のプラズマ酸化時間 t_{ox} 依存性を示す。TMR 比は $t_{\text{ox}} = 10$ s から 50 s まで緩やかに増大し、50 s 酸化の試料において最大室温で 68%、低温 2 K で 159% を得た。さらに長時間の酸化を行った試料($t_{\text{ox}} > 60$ s)では TMR 比は室温で 40% 以下、2 K で 100% 以下まで急激に減少した。この結果から、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}(1.3)\text{-O}/\text{CoFe}$ -MTJ においては 50 s が最適な酸化時間であり、それ以上では過酸化状態となり界面に大量の磁性不純物を生じていることが推測される。ただし、Fig. 1(b) に示した $R \times A$ の t_{ox} 依存性をみると、 $R \times A$ が従来の $\text{CoFe}/\text{Al-O}/\text{CoFe}$ の MTJ に対し全ての酸化時間の領域で 1 桁以上増大していることが分かる。すなわち Co_2MnSi が下部電極であった場合、短時間のプラズマ酸化においても Co_2MnSi 表面に多少の不純物が生じ障壁層の

Fig. 1 Dependence of (a) TMR ratio and (b) resistance area products $R \times A$ on plasma oxidation time t_{ox} .

一部として働いている可能性が考えられる。よって、最も大きな TMR 比が得られた 50 s 酸化の試料においても真の界面の最適化は行われていないことが予想される。このことは 3.3 節で述べる XAS 測定結果において明瞭に確認されている。

3.2 Mg 挿入層による界面状態の最適化

Mg 挿入層を用いて界面状態の改善を試みるに当たり、Al の膜厚・酸化時間 t_{ox} は 1.3 nm・50 s で固定し、Mg 厚 t_{Mg} を 0–1.3 nm まで変化させた。Fig. 2 に TMR 比、 $R \times A$ の t_{Mg} 依存性を示す。期待した通り、TMR 比は Mg 挿入層を厚くするにつれ緩やかに増大する傾向を示し、 $t_{\text{Mg}} = 1.0$ nm の試料において室温で最大 93% の TMR 比を得た。この TMR 比は Al-O 障壁層を用いた MTJ において過去に報告された室温での TMR 比の中で最も大きな値である。しかしながら近年、Fe/MgO/Fe 系に代表される(001)配向した MgO 結晶性障壁層を用いた MTJ において室温でも 100%を超える巨大な TMR 比が報告されており²⁰⁻²³⁾、Mg 挿入によって観測された TMR 比の増大が Co_2MnSi の本質的なスピン分極率を反映したものではなく、界面において Mg が MgO として配向結晶化したことに起因している可能性が懸念される。よって、 Co_2MnSi 電極の本質的なスピン分極率を議論するためには、挿入した Mg 層を含め、障壁層全体の結晶性について調べ明瞭にする必要がある。まず Fig. 2(b)において、 $R \times A$ が t_{Mg} に対して増加する傾向が見られていることから、挿入した Mg 層が界面において酸化され Mg-O として Al-O と共に障壁層の一部となっていることが推測することができる。さらに、より直接的に障壁層の結晶性を評価するために、アニール後における MTJ 断面の透過電子顕微鏡(TEM)像を観察した(Fig. 3)。Al-O 層と Mg-O 層の断面像においては結晶の規則的な格子線は観測されておらず、共にアモルファス状態であり境界も不明瞭になっていることが分かる。すなわち、本研究において作製した $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Mg}/\text{Al}-\text{O}/\text{CoFe}$ -MTJ においては Mg は酸化し Mg-O となっているものの、Fe/MgO/Fe 系のような結晶配向した障壁層は形成されておらず、TMR 比増大のために重要であるコヒーレントな電子のトンネル過程は生じ得ないことが確認された。故に、Mg 層挿入した MTJ において実現された TMR 比の増大は MgO 結晶性障壁層によるものではなく、Mg 層により界面状態が改善された結果であることが推測される。Mg 層による界面不純物の抑制効果については、次節で述べる XAS 測定の結果から強く裏付けられている。

Fig. 4 に作製した MTJ ($t_{\text{Mg}} = 0.0, 0.5, 0.8, 1.0$ nm) の TMR 比の温度依存性を示す。全ての MTJ において TMR 比の急激な温度依存性が観測され、 $t_{\text{Mg}} = 1.0$ nm の試料においては低温 2 K で 203% という極めて大きな TMR 比を得ることができた。MTJ における TMR 比から Julliere の式によって強磁性電極のスピン分極率を算出するためには、必ず片側の電極(今回では $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$)の分極率を仮定しなければならず、その分極率のばらつきを考慮し見積もり値にも妥当な幅を持たせる必要がある。よって、得られた TMR 比から Co_2MnSi のスピン分極率を算出するにあたり、 $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ の分極率として妥当な値を調べる必要がある。過去に報告されている $\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}$ を用いた MTJ 及び超伝導トンネル分光法によるス

Fig. 2 Dependence of inserted Mg-layer thickness (t_{Mg}) on (a) TMR ratio and (b) $R \times A$. Inset shows MR curve of MTJ with 1.0-nm Mg layer insertion

Fig. 3 Cross-sectional TEM image of Mg-inserted MTJ after annealing at 250°C.

ピン分極率測定の結果によれば、CoFe 系の低温でのスピン分極率は概ね 0.50 前後であり、最大でも 0.52 である^{24,25)}。故に、今回の実験によって得られた R_{MS} の妥当な見積もり値の幅は 0.97 – 1.00 と考えられる。これはこれまで $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ において報告

Fig. 4 Dependence of TMR ratio on temperature for MTJs with Mg layer inserted. Inset shows MR curve at 2 K in the MTJ with 1.0 nm Mg layer insertion.

されていたスピンの分極率 0.95 を上回る結果である²⁶⁾。以上の結果より本研究では、 Co_2MnSi において極めて理想的なハーフメタル特性を得、ほぼ完全なスピン分極状態を実現することに成功した。

3.3 X線吸収スペクトル(XAS)による界面状態観察

本研究では前節までで述べた MTJ の界面状態をより直接的に評価するために全電子収量法によって X 線吸収スペクトルを測定した²⁷⁾。Table 1 に XAS 測定用に作製した 5 つの試料の膜構成を示す。全ての試料が MTJ の上部強磁性電極層以上を持たない構造になっている。全電子収量法で検出される試料の表面深さは光電子の脱出深度に依存するため、遷移金属の $L_{2,3}$ 吸収端においては 2-3 nm 程度と見込まれる。すなわち、Table 1 に示すような膜構成において $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}-\text{O}$ の界面状態のみを評価することが可能である²⁸⁾。試料 A, B, C は Al のプラズマ酸化時間 t_{ox} を 240 s, 50 s, 10 s と変化した試料である。Fig. 1 に示した MTJ 構造における TMR 比の結果から判断すると、50s (試料 B) が Al 1.3 nm に対する適切な酸化時間であり、240 s (試料 A) は過酸化、10 s (試料 C) は不十分な酸化であることが分かる。試料 D は 1.0 nm の Mg 層を $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}-\text{O}$ 界面に挿入した構造になっており、Table 1 右欄に示すように MTJ 構造においては最も高い TMR 比を示す試料である。試料 E は比較のために作製した Al に対し全くプラズマ酸化を行っていない試料である。

Fig. 5 に Mn $L_{2,3}(2p_{1/2, 3/2} \rightarrow 3d)$ 吸収端における XAS スペクトルを示す。試料 A, B, C ではその全てにおいて $L_{2,3}$ 吸収端のピーク近傍に矢印で示すようなマルチプレット構造が明瞭に現れている。このような構造は Mn の酸化物に起因するものであり、

Table 1 Prepared samples for XAS measurement. Observed TMR ratios in MTJ structures are indicated in the right column.

Name	Stacking structure	TMR ratio	
		RT	2 K
A	$\text{MgO-sub.}/\text{Cr}(40)/\text{Co}_2\text{MnSi}/(30)/\text{Al}(1.3)-\text{O}; t_{\text{ox}} = 240 \text{ s}$	56%	140%
B	$\text{MgO-sub.}/\text{Cr}(40)/\text{Co}_2\text{MnSi}/(30)/\text{Al}(1.3)-\text{O}; t_{\text{ox}} = 50 \text{ s}$	68%	159%
C	$\text{MgO-sub.}/\text{Cr}(40)/\text{Co}_2\text{MnSi}/(30)/\text{Al}(1.3)-\text{O}; t_{\text{ox}} = 10 \text{ s}$	38%	89%
D	$\text{MgO-sub.}/\text{Cr}(40)/\text{Co}_2\text{MnSi}/(30)/\text{Mg}(1.0)/\text{Al}(1.0)-\text{O}; t_{\text{ox}} = 50 \text{ s}$	92%	203%
E	$\text{MgO-sub.}/\text{Cr}(40)/\text{Co}_2\text{MnSi}/(30)/\text{Al}(1.3); \text{w/o oxidation}$	—	—

Fig. 5 XAS spectra measured around Mn $L_{2,3}$ edges. Arrows indicate multiplet structures around absorption edges.

$\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}-\text{O}$ 界面における磁性不純物の存在を示唆するものである²⁹⁾。つまり、Al 1.3 nm に対して適切な酸化時間(50 s)を施した試料 B や非常に短時間の酸化(10 s)しか行っていない試料 C においても界面磁性不純物が生じてしまっていることが分かる。このような結果は Mn が高い酸素親和性を有すること及びプラズマ酸化が Al 結晶粒界から優先進行することによって引き起こされているものと予測され、プラズマ酸化時間を変化させただけでは界面の真の最適化が困難であることを示唆するものである。一方、MTJ 構造においてほぼ理想的なハーフメタル性を観測した試料 D においては、プラズマ酸化を行っていない試料 E と同様に明瞭なマルチプレット構造は観測されなかった。すなわち、以上の XAS 測定結果より、Mg 挿入層が $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al}-\text{O}$ 界面における磁性不純物を極めて有効的に抑制し、 Co_2MnSi のほぼ完全な界面スピン分極状態を実現したことを直接的に証明することができた。

3.4 Co_2MnSi のスピン分極率とサイト規則度の相関

以上で示した Mg 挿入層による界面状態の最適化の結果を受け、 Co_2MnSi のサイト規則状態と TMR 比の相関について調べた。作製した MTJ の膜構成は $\text{MgO-sub.}/\text{Cr}(40\text{nm})/\text{Co}_2\text{MnSi}(30)/\text{Mg}(1.0)/\text{Al}(1.3)-\text{O}; t_{\text{ox}} = 50 \text{ s}/\text{Co}_{75}\text{Fe}_{25}(5)/\text{IrMn}(10)/\text{Ta}(5)$ であり、 Co_2MnSi に対するポストアニール温度 T_{ann} を 250~650℃まで変

化させた。予め各ポストアニール温度における Co_2MnSi 電極の表面粗さを AFM で評価したところ 550°C 以下のアニール温度においては平均表面粗さが 0.2 nm 程度と平坦に保たれていることが確認された。よって、 550°C 以下においては障壁層界面の凹凸はトンネル特性に影響せず、 Co_2MnSi のサイト規則状態と TMR 比の関係を本質的に評価することが可能であると考えられる。

Co_2MnSi の $B2$ 及び $L2_1$ の長距離規則度 S_{B2} , S_{L2_1} は通常の XRD パターン及び極点測定の結果得られる (002) 及び (111) の規則格子線と基本格子線の積分強度の比によって評価した。具体的には下記の 2 式によって定量的に計算した。

$$S_{B2} = [(I_{002}/I_{004})_{\text{obs}} / (I_{002}/I_{004})_{\text{calc}}]^{1/2} \quad (1)$$

$$S_{L2_1} = [(I_{111}/I_{220})_{\text{obs}} / (I_{111}/I_{220})_{\text{calc}}]^{1/2} \quad (2)$$

分母の計算値は完全に $L2_1$ 規則化した化学量論組成を有する $\text{Co}_{2.00}\text{Mn}_{1.00}\text{Si}_{1.00}$ において、原子形状因子、ローレンツ因子、偏向因子、温度因子、更に薄膜において重要となる膜厚因子を考慮し算出した。また、本研究で作製した Co-Mn-Si 膜は ICP 発光分析の結果から $\text{Co}_{2.00}\text{Mn}_{1.00}\text{Si}_{1.08}$ とほぼ化学量論組成を持つことを確認しており、組成ずれに起因する S の見積もり誤差はほとんどないと考えられる。

Fig. 6 に観測された長距離規則度 S と TMR 比の Co_2MnSi ポストアニール温度依存性を示す。 $B2$ 規則度は多少のばらつきがあるものの 300°C 付近において既に 1 に近い規則度が得られおり 600°C まで高く保たれていることが分かる。一方、 $L2_1$ 規則度は 400°C 付近において徐々に増大し、 600°C において最大規則度 0.88 をとることが分かった。すなわち作製した Co_2MnSi 薄膜は $300\text{--}350^\circ\text{C}$ のポストアニールを行った段階では薄膜全体が $B2$ 規則相であるが、 600°C のポストアニールを行うことにより大部分が $L2_1$ 規則相となることが分かる。長距離規則度 S と対比させ、TMR 比のポストアニール温度依存性をみると、TMR 比は T_{ann} が $300\text{--}600^\circ\text{C}$ の全領域において $180\text{--}200\%$ という極めて大きな値を示しており、 $L2_1$ 構造の長距離規則度 S_{L2_1} とは全く相関がないことが分かる。すなわち Co_2MnSi を MTJ の電極として用いるにあたり、 Co_2MnSi の高い界面スピン分極率を得るためには $L2_1$ 規則状態は必要条件ではなく、 $B2$ 規則以上を有していればよいことが分かる。このような結果は三浦らが Co_2CrAl において報告している計算結果と非常に良く一致するものである¹⁸⁾。

4. まとめ

本研究では $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}/\text{CoFe}$ 構造の MTJ において $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Al-O}$ 界面状態の最適化を重点的に取り組んだ。その結果、Mg 挿入層を用いた MTJ において、界面磁性不純物を効果的に抑制することに成功し、 Co_2MnSi におけるほぼ完全なスピン分極状態 ($P_{\text{CMS}} = 0.97 \sim 1.00$) を得ることができた。さらに、そのようなスピン分極率と Co_2MnSi のサイト規則度の相関を調査した結果、 $L2_1$ 規則度は Co_2MnSi を用いた MTJ における高い界面スピン分極率を

Fig. 6 Dependence of post-annealing temperature (T_{ann}) on (a) $B2$ and $L2_1$ ordered level and (b) TMR ratio. The estimated spin-polarization of Co_2MnSi (assuming $P_{\text{CoFe}} = 0.50$) is also shown on the right of (b).

得るための必要条件ではないことを明確にすることができた。

謝辞 本研究は文部科学省科学技術振興費主要 5 分野の研究開発委託事業の IT プログラム「高機能・超低消費電力メモリの開発」及び科学研究費、NEDO 国際共同研究の補助金によって行われた。本研究の一部は東北大学電気通信研究所所属ナノ・スピン実験施設において行われた。

References

- 1) S. Lewis, P. Allen, and T. Sasaki: *Phys. Rev. B*, **55** 10258 (1997).
- 2) Z. Zhang and S. Satpathi: *Phys. Rev. B*, **44** 13319 (1991).
- 3) W. Pickett and D. Singh, *Phys. Rev. B*, **53** 1146 (1996).
- 4) M. Shirai, T. Ogawa, I. Kitagawa, and N. Suzuki: *J. Magn. Magn. Mater.*, **177-181** 1383 (1998).
- 5) H. Akinaga, T. Manago, and M. Shirai: *Jpn. J. Appl. Phys.*, Part 2 **39** L1118 (2000).
- 6) S. Ishida, S. Fujii, S. Kashiwagi, and S. Asano: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **64**, 2152 (1995).
- 7) I. Galanakis, P. H. Dederichs, and N. Papanikolaou: *Phys. Rev. B*, **66**, 174429 (2002).
- 8) I. Galanakis, P. H. Dederichs, and N. Papanikolaou: *Phys. Rev. B*, **66**, 134428 (2002).
- 9) S. Kämmerer, A. Thomas, A. Hütten, and G. Reiss: *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 79 (2004).

- 10) T. Marukame, T. Ishikawa, K. -i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto: *J. Appl. Phys.*, **99**, 08A904 (2006).
- 11) T. Marukame, T. Ishikawa, K. -i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto: *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 262503 (2006).
- 12) N. Tezuka, N. Ikeda, A. Miyazaki, S. Sugimoto, M. Kikuchi, and K. Inomata: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 112514 (2006).
- 13) Z. Gercsi, A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi, K. Hono, M. Kikuchi, N. Tezuka, and K. Inomata: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 082512 (2006).
- 14) Y. Sakuraba, J. Nakata, M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, A. Sakuma, and T. Miyazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44**, L1100 (2005).
- 15) Y. Sakuraba, M. Hattori, M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, H. Kato, A. Sakuma, and T. Miyazaki: *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 192508 (2006).
- 16) Y. Sakuraba, T. Miyakoshi, M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, A. Sakuma, and T. Miyazaki: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 052508 (2006).
- 17) A. Hütten, S. Kämmerer, J. Schmalhorst, A. Thomas, and G. Reiss: *phys. stat. sol.*, **201**, 3271 (2004).
- 18) Y. Miura, K. Nagao, and M. Shirai: *Phys. Rev. B*, **69**, 144413 (2004).
- 19) S. Picozzi, A. J. Freeman, and A. Continenza: *Phys. Rev. B*, **69**, 094423 (2004).
- 20) S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando: *Nat. Mater.* **3** 868 (2004).
- 21) S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. -H. Yang: *Nat. Mater.* **3** 862 (2004).
- 22) D. D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando: *Appl. Phys. Lett.* **86** 092502 (2005).
- 23) S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. M. Lee, R. Sasaki, T. Meguro, F. Matsukura, and H. Ohno: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44** L1442 (2005).
- 24) X. -F. Han, M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki: *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 283 (2000).
- 25) D. J. Monsma and S. S. P. Parkin: *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 720 (2000).
- 26) M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J. -P. Contour, A. Anane, Y. Lemaitre, and A. Fert: *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 233 (2003).
- 27) N. D. Telling, P. Keatley, G. Van der Laan, R. J. Hicken, E. Arenholz, Y. Sakuraba, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki: to be published in *Phys. Rev. B*.
- 28) R. Nakajima, J. Sthir, Y. U. Idzerda: *Phys. Rev. B*, **59**, 6421 (1999).
- 29) J. Schmalhorst, S. Kämmerer, M. Sacher, G. Reiss, and A. Hütten: *Phys. Rev. B*, **70**, 024426 (2004).

2006年10月17日受理, 2007年1月9日再受理, 2007年5月16日採録