

ホイスラー合金 Co_2FeAl とスピネル Mg-Al-O バリアを用いた格子整合強磁性トンネル接合

介川裕章¹、T. Scheike^{1,2}、古林孝夫¹、Z. C. Wen¹、猪俣浩一郎¹、三谷誠司^{1,2}
(¹ 物材機構、² 筑波大)

Lattice-matched magnetic tunnel junctions using Heusler alloy Co_2FeAl and spinel Mg-Al-O barrier
H. Sukegawa,¹ T. Scheike,^{1,2} T. Furubayashi,¹ Z. C. Wen,¹ K. Inomata,¹ S. Mitani^{1,2}
(¹NIMS, ²Univ. Tsukuba)

はじめに

Co 基ホイスラー合金 (Co_2XY 型、 X は遷移金属、 Y は主に典型元素) は高いスピン偏極率、高いキュリー温度を有するため、これを用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) では巨大なトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が期待されるため盛んに研究がなされてきた。コヒーレントトンネル効果による TMR 増大効果を示す MgO がホイスラー-MTJ のバリアとして用いられるようになり、近年巨大な TMR 比が報告されるようになった。特に $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ 構造を有する MTJ において 2000% もの極めて大きな TMR 比が低温で報告されている¹⁾。その一方、ホイスラー-MTJ の室温における TMR 比は $\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$ 系 MTJ の最大値に比べまだ小さく、その向上が求められている。一般的に MgO と Co 基ホイスラー合金との格子不整合は数% と無視できない程度に大きく、 MgO 界面近傍に多数の欠陥が導入²⁾されることによりハーフメタル特性を引き出すことが容易ではない。また、ホイスラー合金の表面は活性であるため、酸化物バリア形成時に容易に酸化されやすく、バリア層との界面を理想的に保つことが必要となる。これらの問題の解決を目指して、本研究では格子定数が MgO よりも小さいスピネル系トンネルバリア (Mg-Al-O)³⁾を用いて高品質な格子整合ホイスラー-MTJ の作製を行った。ホイスラー合金には、 Co_2FeAl (CFA)⁴⁾を用い、 Mg-Al-O 層と CFA 層間に CoFe 層を挿入することでバリア界面の構造の調整も図った。

実験方法

MTJ 多層膜は、マグネトロンスパッタ装置を用いて $\text{MgO}(001)$ 単結晶基板上に $\text{Cr}/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 層をバッファ層として、CFA (5 nm) / $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 挿入層 (d_{CoFe}) / $\text{Mg-Al-O}/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (5 nm) / IrMn 構造を作製した。CFA 層は Co-Fe-Al の合金ターゲットから成膜を行った。また、 Mg-Al-O バリア層は $\text{Mg}/\text{Mg-Al}$ 合金の 2 層膜をプラズマ酸化することにより得た³⁾。作製した MTJ 多層膜は適宜磁場中熱処理を行い、TMR 比及び面積抵抗 RA の評価には面内電流トンネル (CIPT) 法および、素子微細加工後に直流 4 端子法を用いて行った。

実験結果

バリア層作製条件、ポストアニール条件を最適化することにより、(001) 方位にエピタキシャル成長した CFA/(CoFe) / $\text{Mg-Al-O}/\text{CoFe}$ 構造の MTJ 素子の作製に成功した。CFA は X 線回折から $B2$ 構造を有していることがわかった。CFA/ MgO/CoFe ($d_{\text{CoFe}} = 0$ nm) 構造において、室温で約 230% の比較的大きな TMR 比が得られた。これは CFA の持つ高いスピン分極率に加え、 Mg-Al-O バリアのコヒーレントトンネル効果が有効に働いているためであると考えられる。CoFe 層を挿入することで TMR 比の向上がみられ、 $d_{\text{CoFe}} = 1$ nm において最大の室温 TMR 比 : 281% が得られた。その一方で RA は d_{CoFe} の増大とともに減少し、バリア層作製時の酸化による CFA 表面へのダメージが CoFe 層挿入により低減されている可能性が示唆される。MTJ 構造最適化により今後さらなる TMR 特性の向上が期待できる。

参考文献

- 1) H. Liu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 132418 (2012).
- 2) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 184418 (2009).
- 3) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012); Appl. Phys. Lett. **103**, 142409 (2013).
- 4) W. H. Wang *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95**, 182502 (2009); Phys. Rev. B **82**, 092402 (2010).

(Fe,Co)₄N 薄膜を用いた強磁性トンネル接合の作製

鹿原 和樹, 角田 匡清
(東北大学)

Fabrication of magnetic tunnel junctions with (Fe,Co)₄N films

Kazuki Kabara and Masakiyo Tsunoda

(Tohoku Univ.)

はじめに

γ -Fe₄N/MgO/CoFeB の積層構造を有する強磁性トンネル接合(MTJ)において、Fe₄N の負のスピンの分極[1]を反映したインバーストンネル磁気抵抗効果が報告されている[2]。また、Takahashi らの理論計算[3]によれば、Fe₄N の面心位置の Fe を Co に置換した FeCo₃N はフェルミ面で多数スピンの状態密度(DOS)が無く、ハーフメタリックであると報告している。さらに、我々は異方性磁気抵抗効果の測定から(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜がハーフメタルである可能性を既に報告している[4]。そこで本研究では同薄膜を強磁性層に用いた MTJ の形成を試みた。

実験方法

Bare Si 基板上に Cu(5nm)/Fe-N(10)/Cu(50)/下部強磁性層/MgO(1.5)/Co_{0.75}Fe_{0.25}(4)/MnIr(5)/Ru(7)の MTJ を作製した。下部強磁性層は(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N および Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N とし、Ar+30%N₂ の混合ガスを用いた反応性 DC マグネトロンスパッタ法で作製し、堆積直後に赤外線(IR)加熱処理を施した。作製した薄膜の結晶構造解析には X 線回折法(XRD)を、また TMR 特性評価には CIPT を用いた。

実験結果

MTJ の作製に先立ち(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜の加熱耐性について検討した。Fig.1 に MgO 基板上、Cu 下地層上、Fe₄N 強磁性層上それぞれに作製し、300°C で IR 加熱処理を施した 10nm 厚の(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜の in-plane XRD プロファイルを示す。MgO 基板上の試料では、bcc CoFe の回折線が確認できることから(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 相が熱分解してしまっていることがわかる。別途行った実験から MgO 基板上の(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜の IR 加熱耐性温度は 120°C であることが判った。一方で Cu 下地層上および Fe₄N 強磁性層上の試料では、Cu と(Fe,Co)₄N の回折線のみが確認できることから、(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 相が保たれていることが確認される。このことは、下地との格子ミスフィットを小さくすることにより(Fe,Co)₄N 薄膜の加熱耐性温度が向上することを意味している。

Fig.2 は(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N および Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 下部強磁性層を用いた MTJ の後加熱処理温度に対する TMR 比をプロットしたものである。両 MTJ で Fe₄N 基 MTJ と同様にインバース TMR 効果が得られた。(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ と比較して、Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ では高い TMR 比が得られている。また、(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ では 320°C 以上で TMR 比が急激に低下しているが、Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ では 370°C でも -30% 以上の TMR 比を維持できている。このことは格子ミスフィットが Cu 下地層よりさらに小さい Fe₄N 下地層を用いることで(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 層の加熱耐性温度が向上したことによるものと考えられる。

参考文献

- 1) S.Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73** (2006) 172410
- 2) Y.Komasaki, *et al.*, J. Appl. Phys. **105** (2009) 07C928
- 3) Y.Takahashi, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **323** (2011) 2941
- 4) 角田 匡清 他, 第 37 回日本磁気学会講演概要集, 5aC-10 (2013)

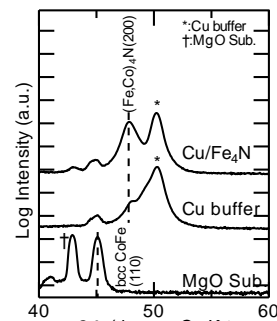


Fig.1 In-plane XRD profile for (Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N layer.

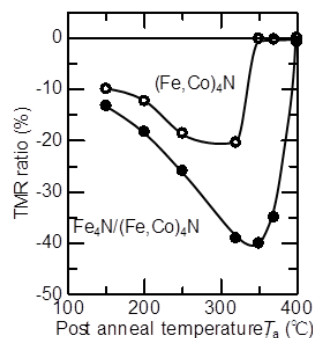


Fig.2 Dependence of TMR ratio against post anneal temperature.

極薄 Fe 酸化物層挿入による MgO 上 Fe 層成長の濡れ性改善効果

野崎隆行^{1,4}, 大久保忠勝², 塩田陽一^{3,4}, 久保田均^{1,4}, 福島章雄^{1,4}, 宝野和博², 鈴木義茂^{3,4}, 湯浅新治^{1,4}

1. 産総研 ナノスピントロニクス研究センター 2. 物材機構, 3. 阪大基礎工, 4. CREST-JST

Improvement in the wettability of an Fe layer grown on MgO by insertion of an ultrathin Fe oxide layer

T. Nozaki^{1,4}, T. Okubo², Y. Shiota^{3,4}, H. Kubota^{1,4}, A. Fukushima^{1,4}, K. Hono², Y. Suzuki^{3,4} and S. Yuasa^{1,4}

1. AIST, Spintronics Research Center, 2. NIMS, 3. Osaka Univ. 4. CREST-JST

はじめに

トンネル磁気抵抗素子における磁気記録(フリー)層の薄膜化は低駆動電力化における1つの指針である。スピン注入磁化反転の臨界電流低減だけでなく、最近では電圧による磁気異方性制御技術などへの展開においても重要性が高まっている。しかしながら、Feに代表される3d遷移金属強磁性体は、通常酸化マグネシウム(MgO)と比較して大きな表面エネルギーを有するため、Fe上のMgO層は平坦な成長が可能であるが、MgO上のFeは島状成長が促進され、1nm前後の超薄膜領域での高品質薄膜形成が困難となる。この問題は上部フリー層型のトンネル磁気抵抗素子を作製する際の弊害となる。

本発表では、MgO/Fe積層の界面に極薄のFe酸化物層を挿入することで見出された、MgO上極薄Fe層成長の濡れ性、および磁気特性改善効果について報告する。

実験方法および結果

分子線エピタキシー装置を用いてMgO(001)基板の上にCr(or Fe)/MgO(2 nm)/Fe-oxide(*t*)/Fe(0.8 nm)/MgO(2 nm)構造を作製した。Fe-oxideは原子状酸素雰囲気下での金属Fe成長による反応性蒸着法を用い[1]、それ以外の各層は電子線蒸着により作製した。図1に(a) Fe-oxide層無し、および(b) *t*=0.3 nmの場合の中間Fe層のRHEED像(挿図)、および暗視野-STEM(Scanning Transmission Electron Microscope)による断面像を示す。黒い領域がMgO層、その間に挟まれた白い領域が超薄膜Fe層である。MgO上に直接Fe層を成長させた場合、島状成長を示唆するスポット状のRHEED像が観察され、STEM像においてもその様子が確認された。一方で極薄のFe-oxide層を挿入した場合、1nm以下の超薄膜にも関わらずストリーク状のRHEEDパターンが観察され、STEM像においても非常に平坦なFe層が形成されていることが分かった。

さらに、Fe膜厚を0.4~1.5nmの領域で変化させて磁気特性を系統的に調べた結果、MgO上への成長の場合は1nmにおいて超常磁性を示唆する磁化曲線となったのに対し、極薄Fe-oxide層を挿入した場合は0.6nmまで薄膜化した場合でも角型のヒステリシスが観察され、磁気特性の改善にも有効であることが分かった[2]。

参考文献

[1] T. Nozaki *et al.* Appl. Phys. Exp. **6**, 053005 (2013)

[2] T. Nozaki *et al.* Appl. Phys. Exp. **6**, 113004 (2013)

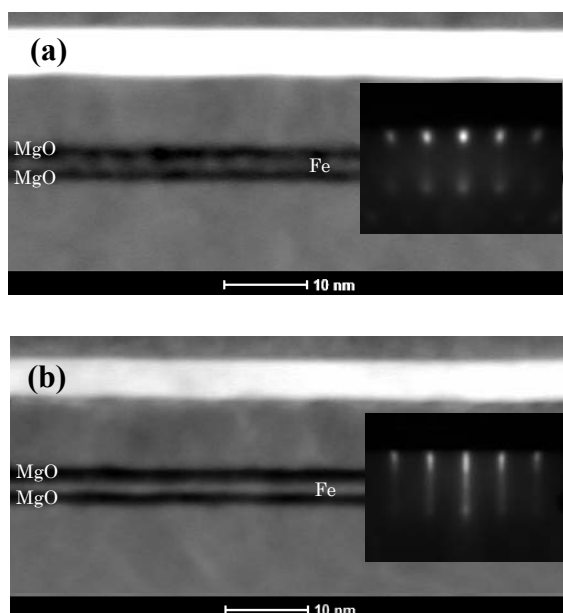


図1 (a) Fe-oxide層挿入無し、および(b) Fe-oxide層厚 *t* = 0.3 nmの場合の暗視野STEM像。MgO層(黒領域)に挟まれた超薄膜Fe層の設計膜厚は0.8 nmである。挿図は各構造における中間Fe層のRHEED像を示す。