

Perpendicular magnetic tunnel junctions with the p-SAF structure having strong interlayer exchange coupling by the iridium spacer layer and their spin-transfer-torque switching properties

A. Sugihara, K. Yakushiji, A. Fukushima, H. Kubota, and S. Yuasa
(National Institute of Advanced Science and Technology)

A perpendicularly magnetized magnetic tunnel junction (p-MTJ) is promising for a memory cell of spin-transfer-torque switching magnetic random access memory (STT-MRAM). For steady read and write operation of the cell, perpendicularly magnetized synthetic antiferromagnetic (p-SAF) coupling in the reference layer is one of the key technologies. So far, p-SAF with a Ru spacer layer has been intensively developed because of the high AF exchange coupling field (H_{ex}). Although there have been other candidates such as Ir and Rh besides Ru, they have not been extensively investigated yet. In this study, we systematically investigated magnetic properties of the p-SAF films with an Ir and Rh spacer layer. We also evaluated STT-switching properties in the p-MTJs with an Ir spacer layer.

The p-SAF films whose structure is Si-O substrate / Ta(50) / Ru(60) / Pt(20) / [Pt(1.6)/Co(2.4)]_{n=6} / Spacer(t) / [Pt(1.6)/Co(2.4)]_{n=6} / Pt(20) / capping layer (thicknesses are in Å) were fabricated, where n is repetition number. Figure 1(a) shows the antiferromagnetic exchange coupling energy (J_{ex}) for Ir, Ru, and Rh spacer layers as the functions of t and the M - H curve for the Ir at $t = 4.5$ in the inset. The maximum H_{ex} and the maximum J_{ex} values achieved 12 kOe and 2.6 erg/cm², respectively, being over 20% higher than that for the Ru.¹⁾ Furthermore, the width of the first peak in fig.1 and annealing tolerance (not shown) for Ir spacer layer is greater than those for Ru, suggesting that Ir has very high potential for manufacturability of STT-MRAM because they give wider process window than that for Ru.

We also fabricated p-MTJ stacks with the Ir spacer layer and microfabricated them into nano-pillars (18 - 60 nm in diameter (ϕ)) to evaluate their STT-switching properties. The TMR ratio, RA-product, and H_{ex} were observed to be 133%, 5.2 $\Omega\mu\text{m}^2$, and over 8 kOe, respectively. Figure 1 (b) and (c) show STT switching properties of the nano-pillar whose size is 25 nm ϕ . Average switching current (I_{c0}) and thermal stability factor (Δ) were estimated to be 43 μA and 85 by fitting from theory.²⁾ The switching efficiency which is calculated from the I_{c0} and the Δ achieved high value of about 2.³⁾ These results indicate that the Ir has more suitable properties and no disadvantage compared with Ru for the spacer layer in p-SAF structure for STT-MRAM.

This work was supported by the IMPACT Program of the Council for Science, Technology, and Innovation.

References

- 1) K. Yakushiji, H. Kubota, A. Fukushima, and S. Yuasa, Appl. Phys. Express **8**, 083003 (2015).
- 2) T. Taniguchi, M. Shibata, M. Marthaler, Y. Utsumi, and H. Imamura, Appl. Phys. Express **5**, 063009 (2012).
- 3) K. Yakushiji, A. Sugihara, A. Fukushima, H. Kubota, and S. Yuasa, Appl. Phys. Lett **110**, 092406 (2017).

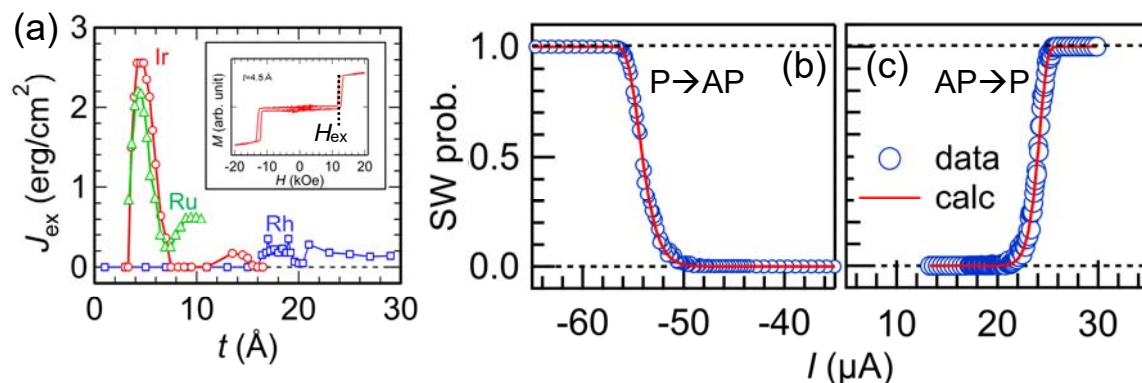


Fig.1 (a) Antiferromagnetic exchange coupling energy (J_{ex}) for functions of spacer layer thickness (t) and magnetization (M - H) curve for the p-SAF film with a 4.5 Å-thick Ir spacer layer (inset). The STT switching properties of the nano-pillar with an Ir spacer layer for (b) the parallel to antiparallel (P \rightarrow AP) and (c) the antiparallel to parallel (AP \rightarrow P) configuration.

半導体バリア CuInSe_2 , CuGaSe_2 を持つ磁気トンネル接合の理論解析

増田啓介¹, 三浦良雄^{1,2}
(物材機構¹, 京都工繊大²)

Theoretical analyses of magnetic tunneling junctions with semiconductor barriers CuInSe_2 and CuGaSe_2
Keisuke Masuda¹ and Yoshio Miura^{1,2}
(NIMS¹, KIT²)

超高記録密度ハードディスクドライブの読み取りヘッドや大容量磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) といった磁気トンネル接合を利用した革新的デバイスの実現のためには、従来重要視されてきた高い磁気抵抗比 (MR 比) に加え、 $0.1\sim 1\ \Omega\mu\text{m}^2$ 程度の低い面積抵抗 (RA) が不可欠である。葛西らは近年、化合物半導体 $\text{CuIn}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{Se}_2$ (CIGS) をバリア層に持つ MTJ の作製に成功し、この系で高い MR 比 (低温で $\sim 100\%$ 、室温で $\sim 40\%$) と低い RA ($0.3\sim 3\ \Omega\mu\text{m}^2$) が同時に得られることを示した [1]。本系に関する理論解析はこの時点では行われておらず、高い MR 比の起源をはじめ、理論的に明らかにされるべき課題が数多く残されていた。

このような経緯を受け、本研究で我々は CIGS と同じカルコパイライト構造を有する半導体 CuInSe_2 (CIS) と CuGaSe_2 (CGS) を取り上げ、これらをバリア層に持つ磁気トンネル接合 (Fe/CIS/Fe および Fe/CGS/Fe) のスピン依存伝導特性について第一原理計算に基づいた解析を行った [2]。本研究では MR 比が半導体ギャップの大きさとのような相関を持つかという点も重要なテーマである。そこでバンドギャップを系統的に変化させることが可能な Cu の 3d 状態におけるオンサイト Coulomb 相互作用 U を考慮に入れ計算を行った。図 1(a) は Fe/CIS/Fe MTJ ($U=5\text{eV}$) の平行磁化状態における Majority-spin 電子透過率の k_{\parallel} 依存性である。良く知られた Fe/MgO/Fe の結果と同様に鋭いピーク構造が $k_{\parallel}=(0,0)$ に見られ、この系でコヒーレントトンネル伝導現象が発現していることがわかる。同様の振る舞いを Fe/CGS/Fe おいても確認することができた。図 1(b) は CIS, CGS, MgO それぞれをバリア層に持つ MTJ の RA と MR 比の計算結果をまとめたものである。Fe/CIS(CG)/Fe は 100% 前後の高い MR 比と $1\ \Omega\mu\text{m}^2$ 以下の低い RA を有することがわかった。このような RA の値はバリア厚が半分未満の Fe/MgO/Fe よりも十分に低いものである。また我々は、 U を大きくする (=半導体ギャップを大きくする) とともに Fe/CIS(CG)/Fe の MR 比が大きくなることも確認することができた。

なお、本研究の一部は革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の援助を受け行われたものである。

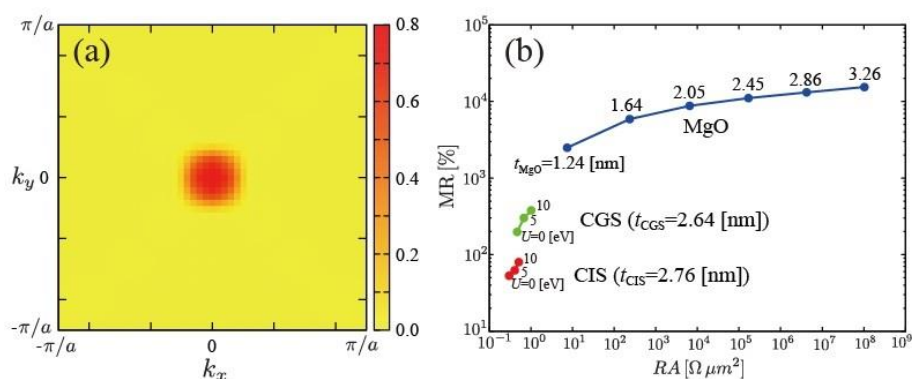


図 1. (a) Fe/CIS/Fe MTJ ($U=5\text{eV}$) の平行磁化状態における Majority-spin 電子透過率の k_{\parallel} 依存性. (b) Fe/CIS/Fe, Fe/CGS/Fe, Fe/MgO/Fe MTJ における RA と MR 比. バリア厚 (t_{CIS} , t_{CGS} , t_{MgO}) はバリアに最も近い左右の Fe 原子層の距離で測ったものである。

- 1) S. Kasai *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109**, 032409 (2016).
- 2) K. Masuda and Y. Miura, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 020306 (2017).

固相エピタキシー法により低温形成された全単結晶 Fe/GaO_x/Fe 磁気トンネル接合における磁気輸送特性

土公尚樹^{*,**}, N. Sai Krishna^{*}, 松尾紀宏^{*,**}, 齋藤秀和^{*}, 湯浅新治^{*}
(*産業技術総合研究所 スピントロニクス研究センター、**千葉工業大学)

Magneto-transport properties of fully epitaxial Fe/GaO_x/Fe magnetic tunnel junctions fabricated by
solid-phase epitaxy at low temperatures

N. Doko^{*,**}, N. Matsuo^{*,**}, N. Krishna^{*}, H. Saito^{*}, and S. Yuasa^{*}
(*AIST Spintronics Research Center, **Chiba Institute of Technology)

はじめに

最近、半導体系材料を絶縁障壁層とした全単結晶磁気トンネル接合 (MTJ) において、電圧印加によるトンネル電流変調[1]や 1Ωμm²以下の低抵抗接合[2]等の新機能・特性が報告され注目されている。我々はワイドギャップ半導体酸化ガリウム(GaO_x)を障壁層とした全単結晶 Fe/GaO_x/Fe MTJ を作製し、室温で 92%に達する磁気抵抗変化率 (MR 比)を報告した[3]。単結晶 GaO_x障壁層は、成膜後のアモルファス GaO_x膜をその場アニールすることにより得られるが、その際に約 500°C の高温が必要であることから実用素子への応用は困難な状況にある。本研究では、アニール条件等を系統的に変化させた上記 MTJ を作製し、結晶構造および磁気輸送特性を調べた。

実験方法

膜試料は分子線エピタキシー法により作製された。MTJ 構造は Au(20 nm) / Co(10 nm) / Fe(5 nm) / GaO_x(2 nm) / MgO(1 nm) / Fe(30 nm) / MgO(001) 基板である。上部 Fe 電極成膜後に真空中にてその場アニールを 250°C で行った。比較のため、上部 Fe 成膜前に GaO_x層を酸素雰囲気中でその場アニール (250°C ~ 500°C) した試料も作製した。

実験結果

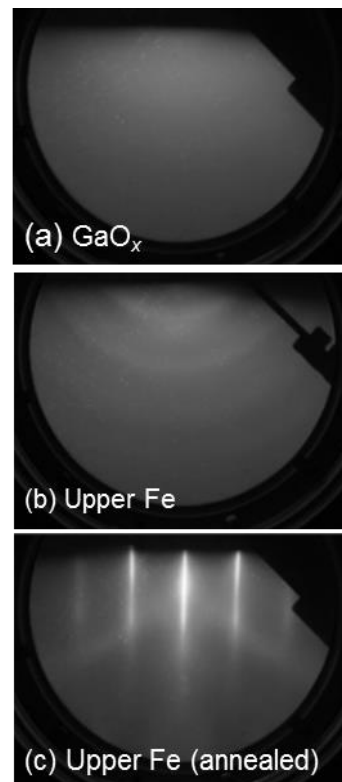
Figure 1 に各層の反射高速電子線回折 (RHEED) 像を示す。成膜後の GaO_x膜の RHEED 像はハロー状であり (Fig. 1a)、同膜がアモルファス状態であることを示した。同アモルファス GaO_x層上に成長した上部 Fe 電極膜はブロードなリング状パターンを示し (Fig. 1b)、多結晶であることが暗示された。注目すべきことに、多結晶 Fe の RHEED 像は 250°C でのアニールにより単結晶を示すストリーク状 (fig.1c) となった。断面電子顕微鏡観察により、同膜の GaO_x層は単結晶であることが確認された。同膜を用いた MTJ の MR 比は室温で 102% であり、GaO_x層のその場アニールを含むプロセスにより作製した MTJ と同程度の値が得られた。

謝辞

本研究は革新的研究開発プログラム (ImPACT) および科研費 (No. 26103003) の支援を受けた。

参考文献

- 1) T. Kanaki, H. Asahara, S. Ohya, and M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **107**, 242401 (2015).
- 2) S. Kasai, Y. K. Takahashi, P. -H. Cheng, Ikhtiar, T. Ohkubo, K. Kondou, Y. Otani, S. Mitani, and K. Hono, Appl. Phys. Lett. **109**, 032409 (2016).
- 3) N. Matsuo, N. Doko, T. Takada, H. Saito, and S. Yuasa, Phys. Rev. Applied **6**, 034011 (2016).



Figs. 1 RHEED images of the (a) GaO_x barrier layer, (b) Fe upper electrode, and (c) same layer after an *in situ* annealing at 250°C, respectively.

MgGa₂O₄ スピネル系バリアを用いた 低抵抗エピタキシャル強磁性トンネル接合

○介川裕章¹, 加藤侑志², M. Belmoubarik¹, P.-H. Cheng^{1,3}, 大坊忠臣², 下村尚治², 上口裕三²,
伊藤順一², 與田博明², 大久保 忠勝¹, 三谷誠司^{1,3}, 宝野和博^{1,3}

(¹ 物材機構, ² 東芝, ³ 筑波大)

Low resistance epitaxial magnetic tunnel junctions with an MgGa₂O₄ spinel based barrier

○H. Sukegawa,¹ Y. Kato,² M. Belmoubarik,¹ P.-H. Cheng,^{1,3} T. Daibou,² N. Shimomura,² Y. Kamiguchi,²
J. Ito,² H. Yoda,² T. Ohkubo,¹ S. Mitani,^{1,3} K. Hono^{1,3}

(¹NIMS, ²Toshiba, ³Univ. Tsukuba)

はじめに

スピネル系酸化物 (MgAl₂O₄) をバリア層として用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) では 300% を超える高い室温トンネル磁気抵抗 (TMR) 比が実現されている¹⁾。また、MgAl₂O₄ は CoFe や Co 基ホイスラー合金などとの格子整合性が良く、良好な強磁性/バリア界面が得られることから TMR 比のバイアス電圧依存性の改善効果も期待できる。一方、MgAl₂O₄ の持つバンドギャップ (E_g) は MgO とほぼ同等の 7~8 eV 程度の値を持つことから、MgO バリア MTJ を超える低抵抗化の実現は困難であった。本研究では、 E_g がより小さいスピネル系酸化物をバリア層として導入し、バリア高さの低減による低抵抗化を目指した。特に、逆スピネル構造を安定構造として有するガリウム系スピネル MgGa₂O₄ ($E_g \sim 4.9$ eV) に着目し、コヒーレントトンネル効果による高い TMR 比の実現に加え、バリア高さ低減の可能性を探った²⁾。

実験方法

MgO(001)単結晶上に Cr を下地として、Fe/MgGa₂O₄/Fe/IrMn/Ru 構造の面内磁化型 MTJ 膜を作製した。MgGa₂O₄ バリアは、MgAl₂O₄ バリア作製³⁾と同様に、焼結 MgGa₂O₄ ターゲットを高周波スパッタすることにより形成した。結晶性と平坦性向上のために各層を室温成膜した後ポスト加熱処理を行った。直流 4 端子法による伝導特性評価と断面 STEM 観察による微細構造解析を行った。

実験結果²⁾

Fig. 1 には作製した Fe/MgGa₂O₄/Fe 構造の断面 STEM 像を示しており、エピタキシャル(001)成長が確認できる。また Fe 層と面内格子整合した極めて平坦な界面が実現されていることもわかる。

TMR 比は室温 121% (4 K : 196%) と比較的高い値が得られ、これは MgGa₂O₄ バリアを介したコヒーレントトンネル効果による寄与と考えられる。同一バリア厚試料の電流密度-バイアス電圧の両対数プロットの比較 (Fig. 2) からわかるように、MgGa₂O₄ バリアは MgAl₂O₄ バリア³⁾に比べ非常に抵抗が低く (約 1/50)、また電流密度が急上昇するバイアス電圧 (矢印) は MgGa₂O₄ においてより小さい。これらのことは MgGa₂O₄ が低バリア高さを持つことを示しており、高 TMR 比と低抵抗を備えた MTJ バリアとして有望である。本研究の一部は、革新的研究開発推進プログラム

(ImPACT) により、科学技術振興機構を通して委託されて行った。

参考文献

- 1) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Express **9**, 053004 (2016).
- 2) H. Sukegawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 122404 (2017).
- 3) M. Belmoubarik *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 132404 (2016).

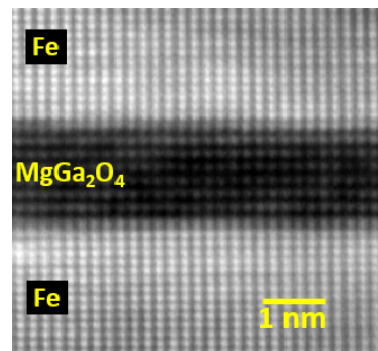


Fig. 1. High resolution STEM image of an Fe/MgGa₂O₄/Fe MTJ.

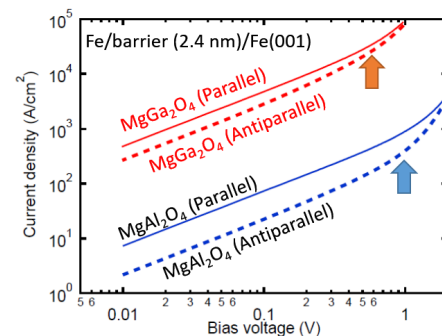


Fig. 2. Current-voltage characteristics for MTJs with MgGa₂O₄ and MgAl₂O₄.

Fe/AlO_x/Fe₃O₄における逆トンネル磁気キャパシタンス効果

海住英生、長浜太郎*、佐々木 駿*、島田敏宏*、北上 修**、
三澤貴浩、藤岡正弥、西井準治、Gang Xiao***
(北大電子研、*北大工、**東北大多元研、***ブラウン大学)

Inverse Tunnel Magnetocapacitance Effect in Fe/AlO_x/Fe₃O₄

H. Kaiju, T. Nagahama*, S. Sasaki*, T. Shimada*, O. Kitakami**,
T. Misawa, M. Fujioka, J. Nishii and G. Xiao***

(Hokkaido Univ. RIES, *Hokkaido Univ. Eng., **Tohoku Univ. IMRAM, ***Brown Univ. Rlys.)

はじめに

近年、強磁性トンネル接合 (MTJ) におけるトンネル磁気キャパシタンス (TMC) 効果は、交流スピンドイナミクスに関する新たな学術的知見を与えられる一方、高感度磁気センサー、高周波磁気インピーダンス素子への応用も期待されていることから国内外で大きな注目を集めている[1-4]。通常の TMC 効果では、両強磁性層の磁化が平行であるときキャパシタンス C_p が大きく、反平行であるとき C_{AP} が小さくなる。本研究では Fe/AlO_x/Fe₃O₄ MTJ においてその逆の現象 ($C_p < C_{AP}$) である逆トンネル磁気キャパシタンス (iTMC) 効果を発見したので報告する[5]。

実験方法

分子線エピタキシー法(最高到達真空度: 10^{-8} Pa) [6]により MgO(110) 基板に MgO(20 nm)/NiO(5 nm)/Fe₃O₄(60 nm)/AlO_x(2-4 nm)/Fe(10 nm)/Au(30 nm)から構成される MTJ を作製した。微細加工にはフォトリソグラフィと Ar イオンミリング法を用いた。接合面積は $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ とした。TMC 効果の測定には室温磁場中交流 4 端子法を用いた。測定周波数帯域は 20-1MHz、交流振幅電圧は 35 mV_{rms}、最大印加磁場は 1.4 kOe とした。

実験結果

図 1 に示すように Fe/AlO_x/Fe₃O₄ MTJ において明瞭な iTMC 効果が観測された。すなわち、磁化平行状態のとき C_p が小さく、反平行状態のとき C_{AP} が大きくなる。このときの変化率を iTMC 比 ($= (C_{AP} - C_p) / C_p$) と定義する。図 2 に iTMC 比の周波数特性を示す。iTMC 比は最大で 11.4% を示した。また、この周波数特性は Zhang モデルと放物線バリア近似 (PBA) を取り入れた Debye-Fröhlich モデル、及びスピン依存ドリフト拡散 (SDD) モデル[4]を用いた理論計算により定量的に説明できることがわかった。さらに、本計算結果によると 65%と-42%のスピン分極率を有する MTJ では 150%を超える iTMC 比が得られることが明らかになった。講演では iTMC 比の電圧依存性を含めた詳細な実験・計算結果を報告する。

参考文献

- [1] H. Kaiju *et al.*: *J. Appl. Phys.* **91**, 7430 (2002). [2] P. Padhan *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **90**, 142105 (2007).
[3] H. Kaiju *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **107**, 132405 (2015). [4] T.-H. Lee *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015).
[5] H. Kaiju *et al.*: *Sci. Rep.* **7**, 2682 (2017). [6] T. Nagahama *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **105**, 102410 (2014).

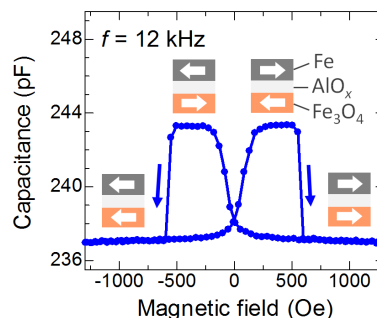


図 1: Fe/AlO_x/Fe₃O₄ における iTMC 効果

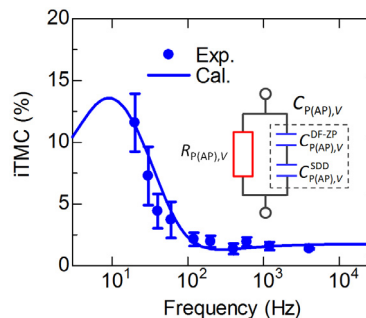


図 2: iTMC 比の周波数特性

Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si/MgO/Co₅₀Fe₅₀ トンネル接合における磁気抵抗効果の下地層材料依存性

○孫 銘嶺^{1,2}、窪田 崇秀^{2,3}、高橋 茂樹⁴、川戸 良昭⁴、園部 義明⁴、高梨 弘毅^{2,3}

(1 東北大学大学院工学研究科 2 東北大学金属材料研究所

3 東北大学スピントロニクス学術連携教育センター 4 サムスン日本研究所)

Buffer layer dependent magnetoresistance effect in Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si/MgO/Co₅₀Fe₅₀ magnetic tunnel junctions

○Mingling Sun^{1,2}, Takahide Kubota^{2,3}, Shigeki Takahashi⁴, Yoshiaki Kawato⁴,

Yoshiaki Sonobe⁴ and Koki Takanashi^{2,3}

(1 Grad. School of Eng., Tohoku Univ., 2 IMR, Tohoku Univ.,

3 CSRN, Tohoku Univ. 4 Samsung R&D Institute Japan)

緒言

次世代不揮発性メモリの有力な候補として、スピン注入書込型の磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) が注目を浴びている。特にギガビットクラスの記憶容量を実現するため、高いトンネル磁気抵抗 (TMR) 比を備えた垂直磁化型トンネル接合 (MTJs) が必須となる¹⁾。Co 基のフルホイスラー合金はスピン偏極率が 1 であるハーフメタル材料とされており、高 TMR 比実現に向けて有望な材料である。一方、その結晶構造は高対称な立方晶系であり結晶磁気異方性が小さいことから、垂直磁化ホイスラー合金実現のためには極薄膜の作製と界面磁気異方性の付与が不可欠である。我々のグループでは、Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si (CFMS) フルホイスラー合金に着目し、垂直磁気異方性の下地層材料(Pd, Ru 又は Cr)系統的に調べてきた²⁾。垂直磁化膜作製のために極薄膜化した CFMS 膜に於いては、下地材料等の拡散の影響でスピン分極率が低下することが懸念される。そこで本研究では、CFMS/MgO/Co₅₀Fe₅₀ (CoFe) MTJs における TMR 比の熱処理温度及び CFMS 層膜厚依存性を異なる下地層を用いた試料について調査することを目的とした。

実験方法

超高真空多元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“下地層”/CFMS (t_{CFMS})/MgO (2 nm)/CoFe (5 nm)/Ir₂₂Mn₇₈ (10 nm)/保護層、 $t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}, 10 \text{ nm}, 5 \text{ nm}, 3 \text{ nm}, 0.8 \text{ nm}$ とする積層試料を作製した。“下地層”は Pd, Ru 又は Cr とし、そのうち Pd 及び Ru 層は平坦性確保のために予め Cr 層を積層し、その上に成膜した。試料はフォトリソグラフィ、アルゴンイオンミリングとリフトオフ法で素子に微細加工した。素子加工後に真空中熱処理炉で 200°C から 500°C まで 50°C 刻みで熱処理を行った。TMR 効果の測定は室温で 4 端子プローバーを用いて行った。なお、測定時の印加磁場は全て面内方向である。

実験結果

$t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}$ 、熱処理温度 400°C の条件では、下地層材料に依らず全ての試料で約 120% の TMR 比が得られた。 $t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}$ における TMR 比が減少し始める熱処理温度について、Ru 及び Cr 下地層は 500°C であったのに対し、Pd 下地層では 450°C で TMR 比が減少し始めた。一方、 $t_{\text{CFMS}} = 5 \text{ nm}$ における熱処理温度依存性は、Ru 及び Cr 下地層を用いた試料は $t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}$ の場合と同様であったが、Pd 下地層の場合には熱処理温度に依らず TMR 比は 1% 以下となった。さらに、 $t_{\text{CFMS}} = 0.8 \text{ nm}$ の試料では、Cr 下地層を用いる試料のみ 250°C での熱処理で最大 22% の TMR 比を示す一方で、Pd 及び Ru 下地層を用いた試料は 5% 未満の TMR 比を示した。以上のような、TMR 比の熱処理並びに t_{CFMS} 依存性は下地材料により異なる相互拡散の度合いによるものと考えられる。

参考文献

- 1) H. Yoda *et al.*, *Curr. Appl. Phys.* **e10**, 387 (2010).
- 2) M. Sun *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, submitted.