電圧誘起巨大トンネル磁気キャパシタンス効果の観測と理論的解明

緒方健太郎*、中山雄介*、Gang Xiao**、海住英生****、 (*慶大理工、**ブラウン大理、***慶大スピンセンター)

Observation and theoretical calculation of voltage-induced large tunnel magnetocapacitance effect

K. Ogata*, Y. Nakayama*, G. Xiao** and H. Kaiju*.***

(*Keio Univ., **Brown Univ., ***Keio Univ. CSRN)

<u>はじめに</u>

近年、磁気トンネル接合(MTJ)におけるトンネル磁気キャパシタンス(TMC)効果は、トンネル磁気抵抗 (TMR)効果には見られないいくつかの新現象を示す他、高感度磁気センサや磁気メモリへの応用も期待され ていることから、国内外で注目を集めている[1,2]。TMC 効果の興味深い特徴の一つとして、電圧に対するロ バスト性が挙げられる。例えば、TMC の V_{1/2}(=ゼロバイアス付近の TMC 比が半分になるときの電圧)は TMR と比較して 2 倍程度大きいことが報告されている[3]。このようなロバスト性に関連して、本研究では、室温 にて 300%を超える巨大な電圧誘起 TMC 効果の観測、及びその理論計算フィッティングに成功したので、詳 細について報告する。

<u>実験方法</u>

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化 Si 基板上 に Ta/Co₅₀Fe₅₀/IrMn/Co₅₀Fe₅₀/Ru/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/Ta/Ru から構成される MTJ を作製した。強磁性層 Co₄₀Fe₄₀B₂₀の膜厚は 3 nm、絶縁層 MgO の膜厚は 2 nm とした。微細加工にはフォトリソ グラフィーとイオンミリング法を用いた。接合面積は 1800 μm² と した。TMC および TMR 効果の測定には、室温磁場中交流 4 端子 法を用いた。

実験結果

図1に電圧印加時のTMC 効果を示す。周波数160 Hz、印加電 E 92 mV の条件下で300%を超えるTMC 比が観測された。図2に 周波数30、160、400 Hz におけるTMC 比のバイアス電圧依存性 を示す。TMC 比はある特定の電圧範囲内で増加し、最大値を示し た。また、TMC 比の電圧依存性は周波数160Hz で最も大きな挙動 を示すこともわかる。これらの実験結果は、放物線バリア近似、 スピン依存ドリフト拡散モデル、Debye-Fröhlich モデル[4]に加え て、シグモイド関数を取り入れた Zhang モデル[5]による計算結果 と良い一致を示した。これは Zhang モデルにおけるスピンフリッ プが巨大な電圧誘起 TMC 効果に大きな影響を及ぼすことを意味 する。講演ではより詳細な実験・計算結果について報告する。

60 $V_{\rm DC} = 92 \text{ mV}$ 50 Capacitance (nF) = 160 Hz 40 30 20 332 10 0 0 Magnetic field (kOe) 図 1: 電圧印加時の TMC 効果 500 30 Hz 160 Hz 400 Hz Exp 400 Exp. Exp. Cal. TMC (%) 300 200 100

0

 $V_{\rm DC}~({\rm mV})$

100

200

参考文献

- [1] H. Kaiju et al.: Appl. Phys. Lett. 107, 132405 (2015).
- [2] T.-H. Lee *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015).
- [4] H. Kaiju et al.: Sci. Rep. 7, 2682 (2017).

[3] A. M. Sahadevan *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **101**, 162404 (2012).
[5] S. Zhang *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).

-200

-100

図 2: 各周波数における TMC 比の バイアス電圧依存性

Ni₇₈Fe₂₂/Mq₃(M = Al, Er)/Ni₇₈Fe₂₂ナノ接合素子における

室温磁気抵抗効果

千秋賀英子*、佐々木悠馬**、中山雄介*、三澤貴浩**、小峰啓史***、星野哲久****、 芥川智行****、藤岡正弥**、西井準治**、海住英生*·****

(*慶大理工、**北大電子研、***茨大工、****東北大多元研、*****慶大スピンセンター)

 $Room\ temperature\ magnetoresistance\ effect\ in\ Ni_{78}Fe_{22}/Mq_3 (M=Al,\ Er)/Ni_{78}Fe_{22}\ nanoscale\ junctions$

K. Senshu*, Y. Sasaki**, Y. Nakayama*, T. Misawa**, T. Komine***, N. Hoshino****,

T. Akutagawa****, M. Fujioka**, J. Nishii** and H. Kaiju******

(*Keio Univ., **Hokkaido Univ. RIES, ***Ibaraki Univ.,

****Tohoku Univ. IMRAM, *****Keio Univ. CSRN)

<u>はじめに</u>

分子スピントロニクスデバイスでは、スピン軌道相互作用(SOI)、及び超微細相互作用(HFI)が弱い分子材料 を選択することにより、長いスピンコヒーレンス長、及び大きな磁気抵抗(MR)効果の実現が期待できる[1,2]。 本研究では、磁性薄膜エッジを利用した分子ナノ接合作製手法[3]を用いることでNi₇₈Fe₂₂/Mq₃(M = Al, Er, q = 8-hydroxyquinolinato)/Ni₇₈Fe₂₂ナノ接合素子を作製し、電気伝導特性、及び磁気抵抗効果を調べた。

<u>実験方法</u>

Ni₇₈Fe₂₂薄膜電極の作製にはイオンビームスパッタ法、熱圧 着法、及び化学機械研磨法を用いた。分子の成膜にはスピンコ ーティング法を用いた。これにより図1の挿入図に示すナノ接 合素子を作製した。素子の電気磁気特性評価には磁場中直流四 端子法、及び集光型磁気光学カー効果法を用いた。

<u>実験結果</u>

図1にNi₇₈Fe₂₂/Alq₃/Ni₇₈Fe₂₂素子における抵抗の接合面積依 存性を示す。計算結果との比較により、電気伝導特性には接合 面積に対応して量子状態、古典状態、及びそれらの遷移状態が 存在することが明らかになった。図2(a)に低抵抗を示したナノ 接合(接合面積 $S = 33 \times 33$ nm²)の MR 効果を示す。室温にて MR 効果の観測(MR 比=0.3%)に成功した。図2(b)に Ni₇₈Fe₂₂/Erq₃/Ni₇₈Fe₂₂素子の MR 効果を示す。MR 比は 0.7%を 示し、Ni₇₈Fe₂₂/Alq₃/Ni₇₈Fe₂₂素子の MR 比よりも2倍程度大き くなることがわかった。実験結果は Julliere モデルによる計算 結果と良い一致を示した。Al の核スピンが 5/2 であることに対 し、Er の核スピンは0 であることから、HFI が小さい Erq₃を 用いることが大きな MR 比の観測に至ったと考えられる。

<u>参考文献</u>

- [1] C. Barraud et al., Nat. Phys. 6, 615 (2010).
- [2] X. Zhang et al., Nat. Commun. 4, 1392 (2013).
- [3] T. Misawa et al., Appl. Surf. Sci. 390, 666 (2016).



図1Ni₇₈Fe₂₂/Alq₃/Ni₇₈Fe₂₂接合素子における 抵抗の接合面積依存性



図2 室温でのNi₇₈Fe₂₂/Mq₃/Ni₇₈Fe₂₂接合素子 (S = 33×33 nm²)の磁化曲線と MR 効果 ((a)M = Al、(b)M = Er)

Investigation of negative spin-polarization in Fe_xCr_{1-x} thin films for spin-torque oscillator

Nagarjuna Asam¹, Tomoya Nakatani¹, Hossein Sepehri-Amin¹, Yohei Kota², Yuya Sakuraba¹, Kazuhiro Hono¹

¹National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305–0047, Japan

²National Institute of Technology, Fukushima Collage, Iwaki, Fukushima 970-8034, Japan

Magnetic materials having negative spin polarization have recently attracted attention because of potential application¹⁾ in the spin torque oscillator (STO) for Microwave assisted magnetic recording (MAMR). FeCr is one of the candidate materials showing negative spin polarization. Experimentally, Vouille *et al.* reported the spin polarization of Fe₇₀Cr₃₀ at low temperature (4.2 K) to be -0.28⁴⁾. Shimizu et al. have already demonstrated¹⁾ the reduction of threshold current density for the spin transfer torque (STT) induced magnetization precession using FeCr as a spin injection layer (SIL) of STO. However, for practical application, fundamental study of this material is necessary to answer the following several questions. ; What is the optimal composition of Fe_xCr_{1-x} for maximum MR ratio? How much is the theoretical bulk spin polarization (β) and the experimental β at room temperature? To answer these questions, we performed systematic study on the Fe_xCr_{1-x} film and those-based CPP-GMR devices.

The electronic conductivity of majority and minority spin electrons in Fe_xCr_{1-x} was calculated based on Kubo-Greenwood formula employing a method similar to the one previously reported for CoFe³). Our result shows very large negative spin-polarization ($\beta < -0.8$) for Fe_{1-x}Cr_x for x > 0.1, with progressively increasing β as x increases. Experimentally, we made a series of several current perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices as shown in figure 1(a) using Fe_xCr_{1-x}(t_{FeCr}) as the spin injection layer where x is chosen among {x=0.2, 0.3 and 0.4}, t_{FeCr} (thickness of Fe_xCr_{1-x} layer) is varied from 2 nm to 15 nm. For each thin film structure, we microfabricated pillar shaped CPP-GMR devices using as-deposited films and performed electrical characterization. Figure 1(b) shows an example of negative sign of GMR arising from the negative spin polarization of Fe_xCr_{1-x}. Our study showed that the best composition of Fe_xCr₁.

x is x=0.4 for maximum negative MR ratio. We also estimated the bulk spin-polarization (β) of Fe₇₀Cr₃₀ to be -0.13, which is much lower than the theoretical value. The possible reason for large deviation of experimental ß from theoretical value examined was by microstructure and element-resolved analysis for the Fe_xCr_{1-x} films.

References:

- Shimizu M et al. The 39th Annual conf. on Magnetics in Japan, Nagoya, 2015, 10pE-3.
- 2. Barnaś, J., et al. Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys. 72, 024426 (2005).



Figure 1. Negative sign of magnetoresistance (MR) in $Fe_{1-x}Cr_x(t_{FeCr})/Cu(3 \text{ nm})/Fe_{68}Co_{32}(5 \text{ nm})$ (a) Film structure (b) MR curves showing negative MR ratio for Cr buffer layer and t_{FeCr} =5nm

- 3. Kota, Y., et. al., J. Appl. Phys. 105, 07B716 (2009).
- 4. Vouille, C., et al. Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys. 60, 6710–6722 (1999).

微細素子における AFC 構造効果のシミュレーション

木村大貴、仲谷栄伸 電気通信大学、情報理工学研究科 Computer simulation of AFC effect for small MTJ Hiroki Kimura, Yoshinobu Nakatani

Graduate School of Infomatics and Engineering, The University of Electro-Communications

はじめに

スピントルクにより磁化反転 [1] を行う STT-MRAM[2] は、高密度化のために記録素子の微細化、及び反転電流密 度の低減などが必要とされている。近年、自由層の膜厚を厚くすることで体積の増加、及び形状異方性を利用して、 熱安定性を確保しながらも素子を微細化可能であることが示された [3]。しかし、この手法では高速動作に向けて反転 電流密度の低減が課題となっている。以前我々は、直径 d = 30 nm、膜厚 h = 2 nm の自由層に対し、反強磁性交換 結合 (AFC) 構造を用いることにより、反転電流密度を低減可能であることを示した [4]。本研究では、以前の研究で 用いた形状よりも自由層の直径を小さくし、膜厚を様々に変化させた形状を考え、AFC 構造による反転電流密度の低 減効果の有無を調査した。

計算条件

材料定数は CoFeB の値を用い、飽和磁化 $M_{\rm s} = 600 \,{\rm emu/cm^3}$ 、交換スティッフネス定数 $A = 1.0 \times 10^{-6} \,{\rm erg/cm}$ 、 スピン分極率 P = 1.0、磁気回転比 $\gamma = 1.76 \times 10^7 \,{\rm rad/(Oe \cdot s)}$ とした。また、スピン電流のパルス幅 $t_{\rm p} = 1.0 \,{\rm ns}$ 、 直径 $d = 10 \,{\rm nm}$ 、上層の膜厚 h_1 は 2 ~ 16nm と変化させ、下層の膜厚 h_2 は上層との比率より定めた。今回は $h_2/h_1 = 0$ (単層構造: SL), 1/4 となる形状を考えた。またこのとき、異方性定数 $K_{\rm u}$ は熱安定性指数 $\Delta = 60$ となる ように定めた。以上の条件より、磁化反転シミュレーションを行い、反転電流密度 $j_{\rm sw}$ を調べた。

結果

まず、直径 d = 10 nm における各膜厚による熱安定性指数 $\Delta = 60$ となる異方性定数 K_u を図 1 に示す。以前の計算で用いた形状における熱安定性指数 $\Delta = 60$ となる異方性定数は 3.48 Merg/cm³ であった。そのため、 d = 10 nm, $h_1 \ge 10$ nm においては、以前の計算で用いた形状よりも小さい異方性定数で良いことが確認できた。次 に、得られた異方性定数を用いて、シミュレーションにより反転電流密度 j_{sw} を求めた。結果を図 2 に示す。図より、 膜厚 h_1 が大きくなると体積が増えるため、反転電流密度 j_{sw} が大きくなることが確認できた。ただし、損失定数 α を小さくすることにより、AFC 構造によって反転電流密度 j_{sw} を低減可能であることがわかった。また、以前の研究 において示された程度の反転電流密度の低減率が得られていることも確認できた。よって、微細素子に対しても AFC 構造による反転電流密度の低減効果を得られることがわかった。



参考文献

- [1] J. C. Slonczewski, J. of Magn. Magn. Mater., 159, 1 (1996).
- [2] L. Thomas, et al., IEEE Intertnational Electron Device Meeting pp. 27.3, 1-4 (2018).
- [3] K. Watanabe, et al., Nat. Commun., 9, pp. 5–10, (2018).
- [4] K. Yamada, et al., J. Appl. Phys., **127**, 133906 (2020).