

(111)配向磁気トンネル接合の理論研究

増田啓介¹, 伊藤博介², 園部義明¹, 介川裕章¹, 三谷誠司¹, 三浦良雄¹
(物質・材料研究機構¹, 関西大システム理工²)

Theoretical study for unconventional (111)-oriented magnetic tunnel junctions

K. Masuda¹, H. Itoh², Y. Sonobe¹, H. Sukegawa¹, S. Mitani¹, and Y. Miura¹
(NIMS¹, Kansai Univ.²)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) への応用のため、磁気トンネル接合 (MTJ) は高いトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) に加えて大きな垂直磁気異方性 (PMA) を有する必要がある。このような必要条件を満足させるため、これまで bcc 構造を持つ Co(Fe)と MgO バリアによる(001)配向 MTJ が広く研究され、 Δ_1 コヒーレントトンネル効果による高い TMR 比と界面電子状態由来の PMA が報告されてきた [Fig. 1(a)]. その一方で、MTJ 電極に用いる強磁性体を fcc 構造のものにまで拡張できれば、バルク電子状態由来の PMA を利用することができ、MTJ 研究の幅を大きく広げることができると期待される。fcc 構造の最密面は(111)面であるため、fcc 強磁性体を用いた MTJ の自然な配向方向は[111]方向となる。以上のような理由で、本研究では様々な fcc 強磁性体を用いた(111)配向 MTJ の TMR 比と磁気異方性を理論的に解析した。

解析方法・結果

TMR 比、磁気異方性の計算とも密度汎関数法による第一原理計算を用いて行った [1,2]. TMR 比の計算ではバリスティック伝導を仮定して Landauer 公式を用い、磁気異方性の計算では Force theorem を利用した。

まず(111)配向 MTJ の TMR 比について基本的な知見を得るため、最も簡単な fcc Co, Ni と MgO による MTJ を考え、これらの系の TMR 比を計算した [1]. その結果、Co/MgO/Co(111)が 2000%を超える高い TMR 比を持つことがわかった。電子状態に関する解析の結果、このような高 TMR 比は Co-d 状態と O-p 状態の反結合によって形成される界面電子状態が MTJ の両界面間でトンネルする界面共鳴トンネル効果によるものであることがわかった [1].

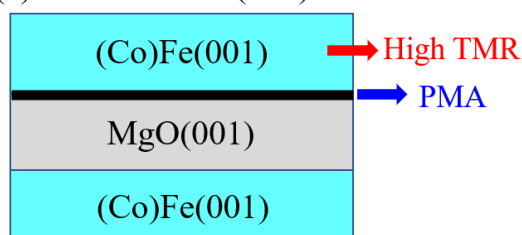
続いて強磁性電極として fcc 構造を持つ $L1_1$ 合金 (FeNi, CoNi, XPt, XPd; X = Fe, Co, Ni) を考え、これらを用いた MTJ の TMR 比と磁気異方性を評価した [2]. まず磁気異方性については、大きな PMA が CoNi, CoPt, CoPd を含む多くの系で得られた。続いて TMR 比について解析を行った結果、界面に Co 層を含む CoNi, CoPt, CoPd の MTJ で 2000%を超える高い TMR 比が得られた。

これは上記のシンプルな fcc Co の場合と同様に、界面共鳴トンネル効果由来の高 TMR 比であることが確認できた [2]. 以上のような結果から、我々は今回の(111)配向 MTJ が、従来とは異なる機構で高 TMR, 巨大 PMA を実現しうる系であることを提案する [Fig. 1(b)].

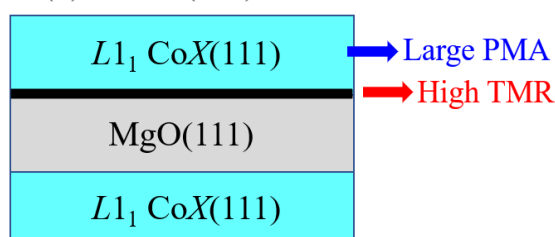
参考文献

- 1) K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020).
- 2) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **103**, 064427 (2021).

(a) Conventional (001)MTJ



(b) Novel (111)MTJ



X = Ni, Pt, Pd

FIG.1. Schematics of (a) conventional (001)-oriented MTJs and (b) novel (111)-oriented MTJs.

Fe/MgO/Fe(001) : 室温 400%・低温 900%を超える トンネル磁気抵抗比の観測

Thomas Scheike, Qingyi Xiang, Zhenchao Wen, ○介川裕章, 大久保忠勝, 宝野和博, 三谷誠司
(物材機構)

Fe/MgO/Fe(001): Observation of tunnel magnetoresistance exceeding 400%
at room temperature and 900% at low temperature

Thomas Scheike, Qingyi Xiang, Zhenchao Wen, ○Hiroaki Sukegawa, Tadakatsu Ohkubo,
Kazuhiro Hono, and Seiji Mitani
(NIMS)

はじめに

2004年にFe/MgO/Fe(001)構造の強磁性トンネル接合(MTJ)において室温180%の巨大トンネル磁気抵抗(TMR)効果が報告されたのち、スピントロニクス応用は飛躍的な進化を遂げた¹⁾。それまでのアモルファスバリアを用いたMTJより数倍大きい値が容易に得られるようになり、素子電気出力増大の恩恵によって新デバイス創成に大きく寄与してきた。一方、理論計算によるとFe/MgO/Feは1,000%を優に超えるTMR比が予測されており²⁾、室温180~220% (低温290~370%)の実験値とは大きな乖離がある。本研究ではその理由の一端を明らかにするためFe/MgO/Feに改めて着目した。単結晶成長法の改善の結果、素子の高品質化を達成し、室温で400%以上、低温では理論値に迫る900%を超える非常に大きな値が得られたので報告する³⁾。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用いてMgO(001)単結晶基板上に、Crバッファ層、Fe/Mg/MgO/Fe/IrMn/Ruキャップ構造のMTJ多層膜を作製した。MgO層作製には電子線蒸着を用い、基板処理、バッファ層、上下Fe層、Mg層、MgO層、各層熱処理、後酸化の各プロセスの最適化を行った。多層膜成膜後、磁場中熱処理を行い、面内電流トンネル(CIPT)法によるTMR特性の評価を行った。その後、 μm サイズのMTJ素子に微細加工を行い、直流4端子法によって素子の磁気伝導特性評価を室温及び低温(5 K)において行った。

実験結果

各層の最適化に伴いTMR比の増大がみられ、磁化平行時の微分コンダクタンス曲線にも特徴的な極小構造が大きく発達することが確認された。最終的に室温で最大417% (CIPT: 405%)、5 Kにおいて914%の値を観測した(TMR曲線: Fig. 1)。またCoFe層をMgO下側界面に挿入することで、496%への室温TMR比増大がみられた。この結果、TMR比のMgO膜厚に対し振動する現象も非常に大きくなりFe/MgO/Fe報告値¹⁾の数倍の振動振幅が観測された(振動幅~80%、室温)。TMR比の大幅な増大がFe/MgO/Feという単純な構造でも観測できたことから、作製法のさらなる改善や強磁性層・バリア層への新材料の導入によって今後さらに巨大な室温TMR比の実現につながることを期待される。本研究の一部は佐橋ImPACTにより、科学技術振興機構を通して委託されて行われた。また、JSPS科研費(16H06332、21H01750)の支援により行われた。新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(No. JPNP16007)の結果得られたものを含む。

参考文献

- 1) S. Yuasa *et al.*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004).
- 2) W. Butler *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001);
J. Mathon and A. Umerski, Phys. Rev. B **63**, 220403(R) (2001).
- 3) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021).

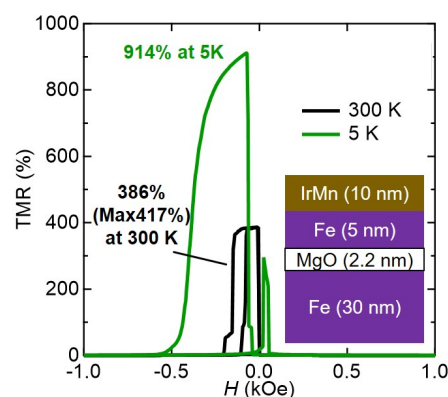


Fig 1. TMR ratio vs. magnetic field H of an Fe/MgO/Fe(001) MTJ at 300 and 5 K.

MgO と MgAl₂O₄ を用いた 3 層型バリアによる磁気抵抗効果のバイアス電圧依存性の改善

名和憲嗣^{1,2}, 増田啓介², 三浦良雄²
(三重大院工¹, 物質・材料研究機構²)

Improved bias-voltage dependence of magnetoresistance by tri-layered tunnel barrier of MgO and MgAl₂O₄

K. Nawa^{1,2}, K. Masuda², and Y. Miura²
(Mie Univ.¹, NIMS²)

はじめに

巨大トンネル磁気抵抗効果 (TMR) の実現に向け、MgO バリアを用いた磁気トンネル接合 (MTJ) は精力的に研究され、近年では極低温での TMR が CoFeB 電極系で 1144%¹⁾、Fe 電極系で 914%²⁾ と理論予測値 (~1000%) に匹敵するにまで至っている。一方、バイアス電圧の印加により TMR は急激に減少するため、情報読出し時の出力電圧信号が小さくなる点が課題である。MgAl₂O₄ (MAO) に代表されるスピネル酸化物は、種々の強磁性体と格子整合性が良く、MgO と比較して TMR のバイアス電圧依存性が大幅改善されることから、次世代バリア材料として期待される³⁾。第一原理計算から、例えば Fe/MAO/Fe MTJ の優れたバイアス電圧依存性は、MAO の面内格子定数が Fe より 2 倍大きいことから生じる Fe 電極のバンド折り畳み効果が起源とされる⁴⁾。しかし、Fe/MAO/Fe の TMR は Fe/MgO/Fe よりも低い。従って、高い TMR と優れたバイアス電圧依存性を両立するバリア材料の開発が急務である。この課題解決に向け、我々は、MgO 及び MAO で構成される 3 層型 MgO/MAO/MgO バリア型 MTJ の TMR とそのバイアス電圧依存性を第一原理計算により調べた。

計算方法と結果

典型的な Fe 電極を用い、単原子層の MgO を Fe/MAO 両界面に挿入した MgO/MAO/MgO バリア (3 層型) MTJ、及び比較対象として MAO バリア (単層型) MTJ に対し、非平衡 Green 関数法に基づく第一原理計算を実施した。TMR のバイアス電圧 (V_b) 依存性を図 1(a) に示す。 $V_b = 0$ V のとき、単層型 MTJ では低い TMR (125%) が得られた。これは上述のバンド折り畳み効果に起因する少数スピン状態における伝導性チャンネルの出現によることを確認した。一方、3 層型 MTJ の TMR は 1184% と巨大な値を得た。次に、バイアス電圧を印加すると、例えば $V_b = 1$ V 以下の領域では、3 層型 MTJ の TMR の変化は小さく一定の値を保った。これは、単層型 MTJ と同様の傾向である。図 1(b, c) に、各モデルに対する電流- V_b 依存性を示す。 $V_b = 1$ V 以下の領域の反平行 (AP) 磁化での電流について、3 層型 MTJ では電流値は極めて小さいが、単層型 MTJ では V_b の上昇に伴い電流値も大きくなった。波数空間におけるスピン透過率の解析から、3 層型 MTJ では MgO 層を挿入したことでバンド折り畳み効果による AP 磁化でのトンネル電子が抑制されていることが明らかになった。平行磁化では、いずれの MTJ モデルでもおおよそ単調増加し、大きな差は見られなかった。以上の結果から、3 層バリア型の MgO/MAO/MgO-MTJ が、高い TMR と優れたバイアス電圧依存性を両立する可能性が示唆された⁵⁾。本研究の一部は TDK 株式会社及び JSPS 科研費 (JP16H06332, JP17H06152, JP20H02190, JP20K14782) の助成により行われた。

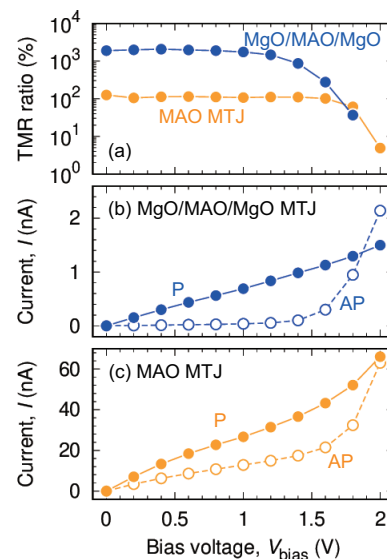


FIG. 1 Bias-voltage dependences of (a) TMR ratio and (b, c) current for the MTJs with tri-layered MgO/MAO/MgO and single MAO barriers, respectively.

参考文献

- 1) S. Ikeda *et al.*, APL 93, 082508 (2008). 2) T. Scheike *et al.*, APL 118, 042411 (2021). 3) H. Sukegawa *et al.*, APL 96, 212505 (2010). 4) K. Masuda *et al.*, PRB 96, 054428 (2017). 5) K. Nawa *et al.* (submitted).

格子整合 MgAl_2O_4 バリアトンネル磁気抵抗素子の絶縁破壊特性

介川裕章¹, Zhenchao Wen¹, 葛西伸哉¹, Ashutosh Kumar¹, 大久保忠勝¹,
宝野和博¹, 三谷誠司¹, 市川心人², 中田勝之²

(1 物材機構、2 TDK)

Dielectric breakdown characteristics of lattice-matched MgAl_2O_4 -based magnetic tunnel junctions

Hiroaki Sukegawa¹, Zhenchao Wen¹, Shinya Kasai¹, Ashutosh Kumar¹, Tadakatsu Ohkubo¹,

Kazuhiro Hono¹, Seiji Mitani¹, Shinto Ichikawa², Katsuyuki Nakada²

(1 NIMS, 2 TDK)

はじめに

スピントルク駆動型磁気メモリ (STT-MRAM) などの応用では高い絶縁破壊耐電圧を持つ強磁性トンネル接合 (MTJ) の実現が望まれる。MTJ バリア層として MgO が広く用いられているが、その膜厚は 1 nm 程度と非常に薄くその耐電圧の確保が大きな課題である。MTJ の耐電圧はバリア層界面近傍の結晶品位や原子欠陥と密接に関係していることが知られている。 CoFe(B) 磁性層と格子不整合が非常に小さく、界面欠陥の抑制が容易な MgAl_2O_4 スピネルバリア MTJ では比較的良好な TDDB (経時破壊) 特性を持つことが報告されている²⁾。本研究では MgAl_2O_4 バリア MTJ に着目し、その耐電圧について直流 (DC) 電圧及び 10 ns 程度の短パルス電圧を用いて詳細に検討した。この目的のため、数 $\Omega\cdot\mu\text{m}^2$ 程度の面積抵抗 (RA) を持つ単結晶 $\text{CoFe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{CoFe(001)}$ 格子整合 MTJ を作製し、同等のトンネル磁気抵抗 (TMR) 比、 RA を持つ CoFe/MgO/CoFe 参照試料と電圧破壊特性を比較した。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用い、 MgO(001) 単結晶基板上に $[(\text{Cr/Fe}) \text{下地}]/\text{CoFe/MgAl}_2\text{O}_4$ (0.9-1.2 nm)/ CoFe/Fe/IrMn/Ru を基本構造とする面内磁化型 MTJ を作製した。低 RA 領域において高品位 MgAl_2O_4 バリア層を得るため、 Mg 、 Mg-Al 成膜と後酸化を繰り返す 2 段階酸化法³⁾を採用した。多層膜は CIPT 法による TMR 比・ RA の評価を行ったのち、 $250\times 100 \text{ nm}^2$ 程度のサイズの MTJ ピラーに微細加工を行い、DC 電圧及びパルスジェネレーターによる ns オーダーのパルス電圧を用いて破壊電圧を 2 端子法で評価した。

実験結果

まず $RA < 10 \Omega\cdot\mu\text{m}^2$ 領域において MgAl_2O_4 バリア作製最適化を行った結果を Fig. 1 に示した。3~10 $\Omega\cdot\mu\text{m}^2$ の領域で 180% 以上の良好な TMR 比が実現されている。次にバリア膜厚を固定し素子の耐電圧を評価した。Fig. 2 に $RA = 4.9 \Omega\cdot\mu\text{m}^2$ の DC 破壊テスト (25 素子) の結果例を示している。抵抗が急激に低下する電圧 (耐電圧) のばらつきは比較的小さく、平均して 1.0 V 程度と見積もられた。また 10 ns の電圧パルスでは耐電圧 1.5 V 程度が得られた。これらは MgO バリア参照試料で得られた耐電圧 (DC : 0.8 V、10 ns パルス : 1.2 V) に比べ有意に大きく、 MgAl_2O_4 によるバリア界面微細構造の改善効果が考えられる。

参考文献

- 1) Ikhtiar *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 022408 (2018).
- 2) C.M. Choi *et al.*, Electronics Lett. **53**, 119 (2016).
- 3) S. Ichikawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **117**, 122409 (2020).

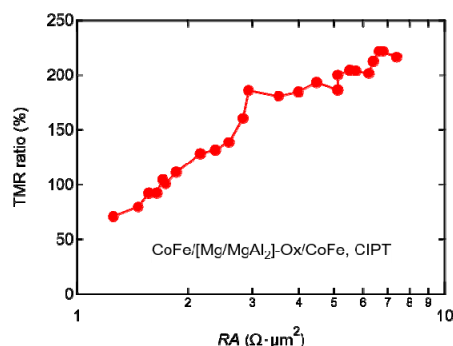


Fig. 1. TMR ratio vs. RA of $\text{CoFe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{CoFe}$ MTJs prepared by the 2-step process.²⁾

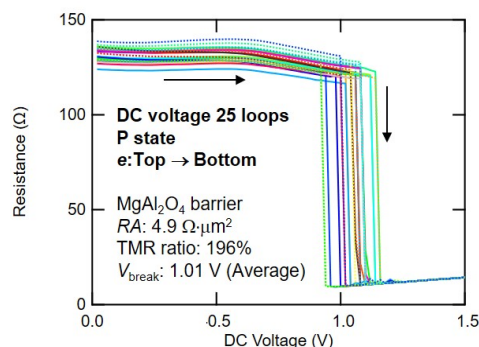


Fig. 2. DC breakdown test results of $\text{CoFe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{CoFe}$ MTJs with $RA = 4.9 \Omega\cdot\mu\text{m}^2$.

偶関数型抵抗-磁界特性を示すトンネル磁気抵抗素子の作製

中谷友也, Prabhanjan D. Kulkarni, 岩崎仁志, 桜庭裕弥
(物質・材料研究機構)

Fabrication of tunnel magnetoresistance devices with even-function type resistance-field response
T. Nakatani, P. D. Kulkarni, H. Iwasaki, Y. Sakuraba
(National Institute for Materials Science)

はじめに

生体磁気など微弱な低周波磁界の検出を目指し、磁気抵抗センサの研究が盛んに進められている。およそ 1 kHz 以下の周波数帯域では、磁気抵抗素子の $1/f$ ノイズが磁界分解能を決定するため、 $1/f$ ノイズの低減が重要課題である。最近、巨大磁気抵抗(GMR)センサに対し交流磁界を印加し、センサの動作周波数を高周波側にシフトすることで、 $1/f$ ノイズが低減されることが示された[1]。この方法を用いるためには、外部磁界の正負に対して対称な抵抗-磁界(R - H)特性を示すセンサが必要である。GMR の場合、スペーサー層を介した磁気結合や短冊状素子の形状磁気異方性により、自由層を平行磁化状態に安定化させ、外部磁界を自由層の困難軸方向に印加することで、偶関数型の R - H 特性が得られる。一方、トンネル磁気抵抗(TMR)の場合、Slonczewski の式[2]で表されるように、素子抵抗は強磁性電極間の磁化角度 $\theta = \pi/2$ に対し非対称な θ 依存性を示すため、高い感度(dR/dH)を得るためには、TMR センサを反平行磁化状態付近で用いることが重要である。

実験方法

図 1(a)に示すように、基板/電極/Ta (2)/Ru (2)/IrMn (6)/CoFe (2)/AgSn (2-3)/CoFe (1)/CoFeBTa (20)/Ta (0.3)/CoFeB (3)/MgO (2)/CoFeB (2.5)/Ta (0.3)/CoFe (1)/Ru (0.75)/CoFe (3)/IrMn (8)/Ru (8) (膜厚は nm) スピンバルブ構造を作製した。MgO バリアの基板側が自由層であり、軟磁性アモルファス CoFeBTa 層を有する。自由層は、AgSn スペーサーを介した固定層 1 との強磁性的な orange-peel 結合により微弱にピンングされており、ゼロ磁界で MgO バリアをはさんだ CoFeB 電極間の磁化配列は反平行となる。

実験結果

図 1(b)に自由層に対するピンング強度(H_{shift})の AgSn スペーサー層膜厚依存性を示す。スペーサー層膜厚の調整により、 H_{shift} を 1 mT 以下の微弱な領域で精密に制御することができる。また、AgSn は Ag や Cu に比べ平坦性に優れ、orange-peel 結合強度すなわち H_{shift} の微調整に適している。図 1(c)に R - H 曲線を示す。外部磁界をピンング方向に対し垂直 (困難軸) 方向に印加し、素子の形状を工夫することで、ほとんどヒステリシスのない偶関数 R - H 特性が得られる。 H_{shift} を小さくすることで感度 $1/R_{min} \cdot dR/dH$ は増大し、最大で 100 %/mT 程度の感度が得られた。講演ではこれらの TMR 素子のノイズ特性についても議論する。

参考文献 [1] Shirotori *et al.* IEEE Trans. Magn. **57**, 4000305 (2021). [2] Slonczewski, Phys. Rev. B **39**, 6995 (1989).

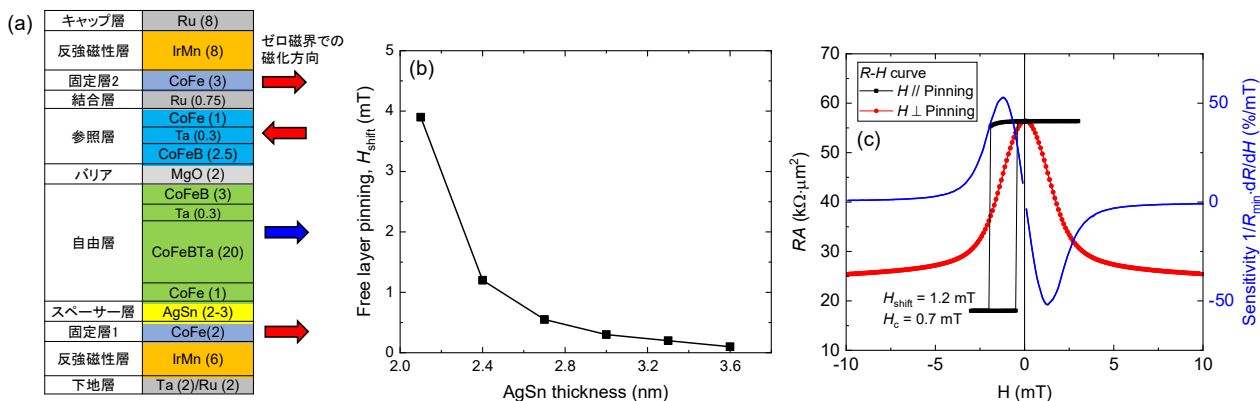


図 1(a) TMR 素子の積層構造, (b) 自由層のピンング強度と AgSn スペーサー膜厚, (c) TMR 素子の R - H 曲線。