

トンネル磁気抵抗効果の温度変化に対する新たな物理描像: 界面 s - d 交換相互作用の重要性

増田啓介, 只野央将, 三浦良雄
(物質・材料研究機構)

New physical picture on large temperature dependence of tunnel magnetoresistance:
Crucial role of interfacial s - d exchange interaction

K. Masuda, T. Tadano, and Y. Miura
(National Institute for Materials Science)

はじめに

磁気トンネル接合 (MTJ) は種々の磁気センサや磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) へ応用されるが、これら全ての用途において室温で高いトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) を達成することが重要である。しかしながらこれまで作製されてきた全ての MTJ において、TMR 比は温度上昇とともに大きく低下することが知られている [1,2]。今後 TMR 比の温度変化が小さい MTJ を探索する上でも、この現象の物理機構を十分に理解することが必要不可欠である。このような主眼から本研究では TMR 比の温度依存性の理論解析を行った。

解析方法・結果

磁性材料の温度依存性に対する先行理論研究のほとんどはバルク磁性体の静的特性 (磁化等) を対象にしたものであり、そこでは d 電子状態密度の温度変化が議論されてきた。一方 TMR に関する多くの実験研究から、輸送現象である TMR には d 電子よりも有効質量が小さい sp 電子が重要であることが指摘されてきた。

これらの事情を鑑み、本研究では Fe/MgO/Fe(001) MTJ [Fig. 1(a)] の Fe 層における sd 交換相互作用 J_{sd} を考慮した有効タイトバインディングモデルを構築した [3]。このモデルは「温度上昇に伴い生じた d 電子スピンの揺らぎが sd 交換相互作用を通して s 電子状態にスピン反転散乱を与え TMR 比が減少する」という物理描像を記述するものである [Fig. 1(b)]。このモデルを用い TMR 比の温度依存性を計算した結果、実験結果を説明しうる大きな温度変化が得られた [Fig. 1(c)]。我々はさらに、界面 Fe 層における sd 交換相互作用が TMR 比の温度変化に主たる寄与を与えていることも明らかにした。講演ではこれらの結果の詳述に加え、時間が許せば sd 交換相互作用の結合定数 J_{sd} の非経験的評価法についても紹介したい。本研究は TDK 株式会社, JSPS 科研費 (JP16H06332, JP17H06152, JP20H02190, JP20K14782) の助成を受け行われた。

参考文献

- 1) B. Hu *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 094428 (2016).
- 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021).
- 3) K. Masuda, T. Tadano, and Y. Miura, Phys. Rev. B **104**, L180403 (2021).

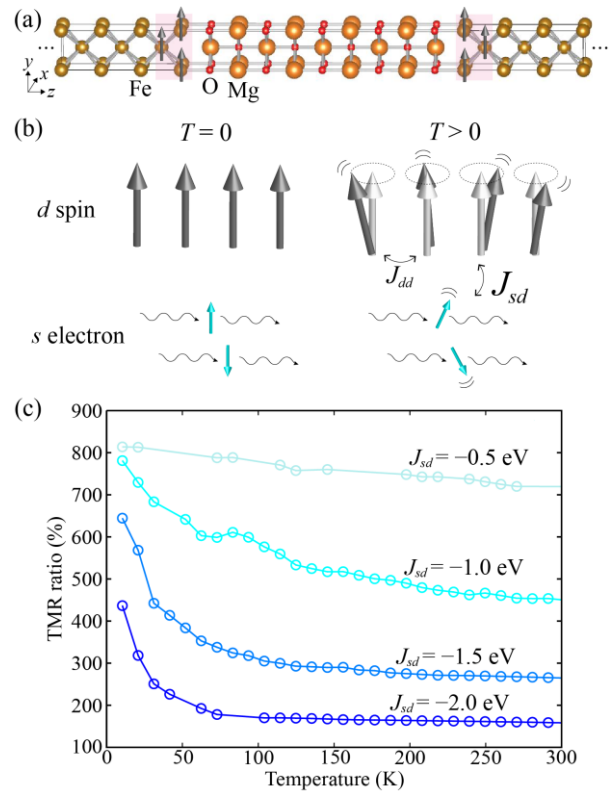


FIG.1 Schematics of (a) an Fe/MgO/Fe(001) MTJ and (b) s - d exchange interaction in interfacial Fe layers. (c) Calculated TMR ratios as a function of the temperature. From Ref. [3].

MBE 法による Co_2FeAl ホイスラー合金電極

強磁性トンネル接合の作製

北條 峻之、手束 展規、中野 貴文、角田 匡清、大兼 幹彦
(東北大工)

Fabrication of MTJs with Co_2FeAl Heusler electrode using MBE technique

T. Hojo, N. Tezuka, T. Nakano, M. Tsunoda, and M. Oogane
(Graduate School of Engineering, Tohoku Univ.)

はじめに

Co 基ホイスラー合金 Co_2YZ ($\text{Y}=\text{Mn}, \text{Fe}, \text{Z}=\text{Al}, \text{Si}$) 電極と MgO 絶縁層を用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) 素子は、Co 基ホイスラー合金のハーフメタル性と MgO 絶縁層のスピンフィルター効果の相乗効果により、高いトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が期待されている。しかし、これらの MTJ 素子は、低温では高い TMR 比を実験的に実現できている一方で、室温では期待されるほどの高い TMR 比は得られていない。この TMR 比の温度依存性を改善することが大きな課題である。そこで本研究では、良質な薄膜を作製可能な分子線エピタキシー (MBE) 法に注目した¹⁾。MBE 法を用いることで、ホイスラー合金電極や MgO 絶縁層の結晶性が向上し、TMR 比の改善が期待される。また、ホイスラー合金/MgO 界面に極薄装飾を行うことで、TMR 比の温度依存性を改善できる可能性がある^{2),3)}。本発表では、 $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}$ 界面に極薄の挿入層を用いた MTJ 素子の TMR 効果について報告する。

実験方法

MgO(001)基板上に Cr (20)/ Co_2FeAl (30)/A (d)/MgO (2.0)/CoFe (5)/IrMn (10)/Cr (5) (nm)を MBE 法により作製した。ただし、IrMn のみマグネトロンスパッタ法により成膜を行った。ここで、 d は挿入層 A の膜厚である。微細加工後、1T の磁界印加中で 400°C の熱処理を行い、TMR 特性を 4 端子法により評価した。

実験結果

ホイスラー合金電極を有する MTJ において室温で TMR 比が低下する原因の一つが、界面での局所的なキュリー温度の低下であると考えられている⁴⁾。そこで、MgO との界面で高いキュリー温度を有する Fe 極薄膜を $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}$ 界面に挿入することで、室温での TMR 比が向上することが期待される。Fig. 1 は、Fe を挿入した際の室温での TMR 比と磁化平行状態における面積抵抗 RA_p である。期待していた結果に反し、Fe を挿入したことで TMR 比が低下した。これは Fe を挿入することで $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgO}$ 界面の酸化が促進されたためと考えられる。しかし、このことは、極薄の Fe 挿入が、TMR 特性に大きな影響を及ぼしていることも示唆している。学会当日は、他の極薄界面材料を挿入した MTJ 素子の TMR 効果についても併せて報告する。

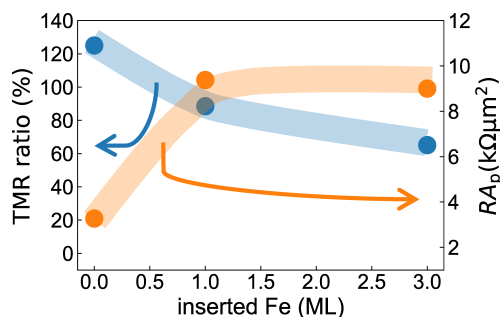


Fig.1 TMR ratio and resistance area product in magnetic parallel state RA_p of Fe inserted Co_2FeAl electrode-MTJ

謝辞

本研究は JSPS 科研費及び東北大学 GP-Spin プログラム、CSIS、CSRN 及び CIES の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) N. Tezuka *et al.*, Appl. Phys. Lett. 94, 162504 (2009)
- 2) Y. Miura *et al.* J. Phys.: Conf. Ser. 200, 052016 (2010)
- 3) H. L. Yu *et al.*, Appl. Phys. Lett. 109, 083509 (2011)
- 4) Y. Miura *et al.*, Phys. Rev. B 83, 214411 (2011)

Fe/MgAlO/Fe(001)単結晶トンネル接合における 巨大トンネル磁気抵抗効果

介川裕章、T. Scheike、Z. Wen、葛西伸哉、三谷誠司
(物材機構)

Giant tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgAlO/Fe(001) magnetic tunnel junctions
Hiroaki Sukegawa, Thomas Scheike, Zhenchao Wen, Shinya Kasai, and Seiji Mitani
(NIMS)

はじめに

強磁性トンネル接合 (MTJ) はハードディスク読み取りヘッドや磁気ランダムアクセスメモリの記録ビットなどスピントロニクス応用の中核となる素子である。しかし、現状では実用に用いることができるトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) は 200~300%以下であり、応用の幅を広げるためには TMR 比の巨大化が必要である。最近、我々は Fe/MgO/Fe(001)の従来型 MTJ においても、界面構造の改善によって大幅に TMR 増大が可能であり、室温 400%以上の TMR 比が得られることを報告した [1]。しかし MgO と Fe との格子不整合により界面構造のさらなる構造改善は困難とわかった。このため本研究ではより格子整合性がよいスピネルバリアに着目した。Mg リッチ組成の Mg_4Al-O_x (MAO) をバリアとした Fe/MAO/Fe(001)素子を開発することで TMR 比の増大が観察されたこと、TMR 比のバリア膜厚に対する振動の振幅にも増大がみられたことを報告する [2]。また TMR 振動の精密なデータ取得のため多数の微細加工素子を用いたデータ収集を行った。

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 Cr 下地/Fe (50 nm)/Mg-Al-O ($t_{MAO} = 1-3$ nm)/Fe (5 nm)/IrMn (12 nm)/Ru 保護膜の構造を持つ面内磁化型 MTJ を作製した。MAO バリア層は Mg_4Al-O_x 組成の焼結体から電子線蒸着により作製し、線形移動シャッターによってウェハ内連続傾斜膜として形成した。磁場中熱処理後に $10 \times 5 \mu m^2$ サイズの MTJ へ微細加工し、直流 4 端子法によって磁気抵抗曲線と電流-電圧特性を評価した。素子は MAO 膜傾斜方向に 46 行、傾斜に垂直な方向に 20 列作製し全数評価を行うことで信頼性の高い MAO 膜厚依存性データを取得した。

実験結果

作製した Fe/MAO/Fe 素子の TMR 比は最大で室温 429%、10 K で 1,034%が得られ、Fe/MgO/Fe [1] よりも大きな値が得られた。MAO バリア導入により、低温では理論計算による Fe/MgO/Fe での典型的な予測値である 1,000%に到達した。TMR 比のバリア膜厚に対する振動も非常に大きくなり、振幅は室温で 125%に達した [2]。この振動をより明確に解析するためウェハ内素子全数評価を行ったところ、Fig. 1 に示すように単純な正弦曲線ではなく、ノコギリ刃形状であることが新たに明らかになった。未解決の TMR 振動の物理解釈のためにも重要な知見であると考えられる。本研究は JSPS 科研費 (21H01750、21H01397) 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] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021). [2] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).

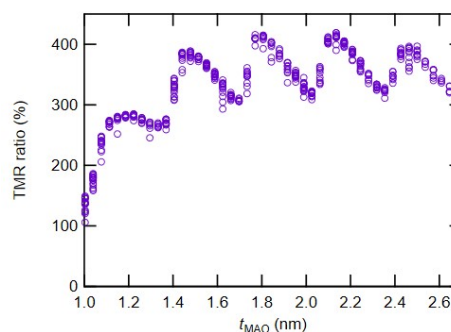


Fig. 1: TMR ratio vs. t_{MAO} of Fe/Mg₄Al-O_x/Fe(001) MTJs at room temperature.

fcc-Co₉₀Fe₁₀/MgAlO/Co₉₀Fe₁₀(111) フルエピタキシャル強磁性トンネル接合の開発

Jieyuan Song^{1,2}, Thomas Scheike², Cong He², Zhenchao Wen², 介川裕章²,
大久保忠勝², 宝野和博², 三谷誠司^{1,2}

(1 筑波大、2 物材機構)

Development of fcc-Co₉₀Fe₁₀/MgAlO/Co₉₀Fe₁₀(111) fully epitaxial magnetic tunnel junctions

Jieyuan Song^{1,2}, Thomas Scheike², Cong He², Zhenchao Wen², Hiroaki Sukegawa²,
Tadakatsu Ohkubo², Kazuhiro Hono², Seiji Mitani^{1,2}

(1 Univ. Tsukuba, 2 NIMS)

はじめに

強磁性トンネル接合 (MTJ) を用いた新規応用デバイスの創生、例えば超高密度磁気ランダムアクセスメモリや超高感度磁気センサーの実現など、には現在よりも大きなトンネル磁気抵抗 (TMR) の実現が不可欠である。現在の MTJ のほとんどは、Fe/MgO/Fe や CoFeB/MgO/CoFeB に代表される bcc(001)積層型であり、 Δ_1 バンド優先コヒーレントトンネル機構による TMR 効果が用いられている。最近第一原理計算によって、fcc(111)型積層を持つ Co/MgO/Co(111)や L1₁-CoPt/MgO/CoPt(111)構造において、従来とは異なる界面共鳴メカニズムによって大きな TMR 比 (~2000%) が得られる可能性が予測されている [1,2]。本研究では fcc 構造が安定に得られる Co₉₀Fe₁₀ を磁性層に用い、Co₉₀Fe₁₀/Mg-Al-O(MAO)/Co₉₀Fe₁₀(111)型のフルエピタキシャル MTJ を開発し TMR 効果が観測されたことを報告する。

実験方法

マグネトロンスパッタ装置を用い、サファイア(0001)単結晶基板上に Ru 下地/Co₉₀Fe₁₀ (20 nm)/Mg (0.5 nm)/MAO (2.8 nm)/Co₉₀Fe₁₀ (5 nm)/Ru (0.75 nm)/Co₅₀Fe₅₀ (2.2 nm)/IrMn (10 nm)/Ru 保護膜の構造を持つ面内磁化型 MTJ を作製した。MAO バリア層は Mg₄Al-Ox 焼結体の電子線蒸着 [3] によって作製した。また結晶性と界面平坦性を改善するため各層の成膜後のアニール条件を最適化した。各層の結晶性は反射高速電子回折 (RHEED)、X 線回折、断面走査透過顕微鏡 (STEM) 像により評価を行った。MTJ 多層膜は磁場中熱処理を行った後、10×5 μm² サイズのピラー状に微細加工パターンニングを行い直流 4 端子法によって MTJ の磁気伝導特性評価を行った。

実験結果

成長条件及びアニール条件の最適化により、Ru 下地層上の下部 Co₉₀Fe₁₀ 層、バリア層、上部 Co₉₀Fe₁₀ 層のいずれも fcc(111)エピタキシャル成長していることを確認した。断面 STEM 観察からも基板から上部層までエピタキシャル成長が明確に確認され、比較的平坦なバリア界面も得られていることが確認された。fcc-Co₉₀Fe₁₀ と MAO の格子不整合は 20%弱あるものの界面にミスフィット転移が周期的に導入されており、これが界面平滑化につながったと期待される。この薄膜試料から作製した MTJ において室温で 37%の TMR 比が観察された。電流-電圧特性はバイアス電圧極性に対して対称的であり、これはバリア上下界面がほぼ同一品質で形成できていることを示唆している。これらの結果から fcc(111)型 MTJ を安定に作製することが可能であることが明らかになった。界面構造の改善と強磁性層の開発によって今後更に TMR 特性の向上が期待できる。本研究は JST CREST (JPMJCR19J4) および JSPS 科研費 (21H01750) の支援により行われた。

参考文献

- [1] K. Masuda *et al.*, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020).
- [2] K. Masuda *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 064427 (2021).
- [3] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).

$L1_0$ -(MnCo)Al 電極と $MgAl_2O_4$ 絶縁層を用いた強磁性トンネル接合における TMR 効果

菊地竜太郎、アルマダウィ ミフタ、角田匡清、大兼幹彦
(東北大工)

Tunneling magnetoresistance effect in magnetic tunnel junctions using $L1_0$ -(MnCo)Al electrode and $MgAl_2O_4$ insulating layer

R. Kikuchi, M. Al-Mahdawi, M. Tsunoda, M. Oogane
(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

はじめに

垂直磁化材料である $L1_0$ -MnAl は、高い磁気異方性、低飽和磁化、低ダンピング定数を有することから、スピントランスポール型磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) 用の強磁性トンネル接合 (MTJ) への応用が期待されている。しかし、MnAl を電極に用いた MTJ において TMR 効果を観測するためには、MnAl/MgO 界面に極薄挿入層が必要であった¹⁾。この原因として、MnAl 層と MgO 絶縁層との格子不整合が大きく、 Δ_1 電子のコヒーレントトンネルが阻害されることが考えられる¹⁾。本研究では、Co を 2% 添加することで低ラフネスかつ高 (001) 配向の (MnCo)Al 電極を作製し、さらに絶縁層として $MgAl_2O_4$ を用いることで格子不整合を低減した MTJ 素子を作製し、その TMR 効果を評価することを目的とした。

実験方法

作製した MTJ 素子の構造、各層の成膜および熱処理温度を Fig. 1 に示す。試料は超高真空マグネトロンスパッタリング法により作製した。 $MgAl_2O_4$ の組成は X 線光電子分光法 (XPS) を用いて測定した。組成分析の結果、 $MgAl_2O_4$ の組成は Mg : Al : O = 9.2 : 18.9 : 41.5 (atom%) であった。結晶構造、表面特性、磁気特性および磁気抵抗特性は X 線構造解析 (XRD)、原子間力顕微鏡 (AFM)、振動試料型磁力計 (VSM)、物理特性測定システム (PPMS) を用いた直流 4 端子法により測定した。

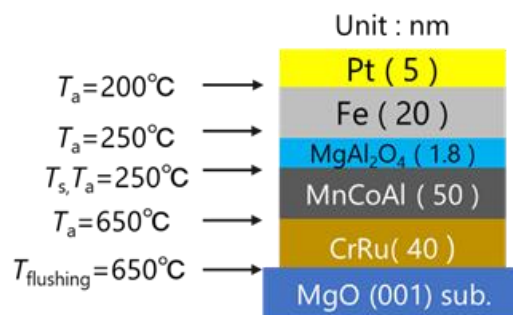


Fig. 1: Schematic illustration of a (MnCo)Al/ $MgAl_2O_4$ /Fe-MTJ structure.

実験結果

Fig. 2 に 300 K および 10 K における、(MnCo)Al/ $MgAl_2O_4$ /Fe-MTJ の垂直磁場印加の TMR 曲線を示す。作製した MTJ では、300 K および 10 K において、TMR 比が 17.4%、32.4% であった。界面挿入層無しで TMR 効果が観測されたことから、期待通り格子ミスマッチが低減できたと考えられる。さらなる TMR 比の改善のためには、 $MgAl_2O_4$ 成膜条件の更なる最適化が必要と考えられ、講演ではその最適化に関する結果も報告する予定である。

謝辞

本研究は、東北大学 GP-Spin プログラム、CSIS、CSRN 及び CIES の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) Haruaki Saruyama, *et al*, 2013 *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** 063003

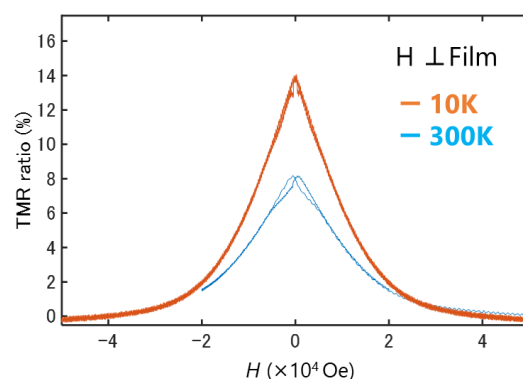


Fig. 2: TMR curve for MTJ with (MnCo)Al/ $MgAl_2O_4$ /Fe structure applying perpendicular magnetic field.