

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K14782

研究課題名(和文)(111)配向磁気トンネル接合に対する理論研究

研究課題名(英文)Theoretical study for (111)-oriented magnetic tunnel junctions

研究代表者

増田 啓介(Masuda, Keisuke)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：40732178

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文):新規な配向性を持つ(111)配向磁気トンネル接合(MTJ)のトンネル磁気抵抗(TMR)効果について理論研究を行った。まずMgO(111)をトンネルバリアとしたMTJについて検討し、強磁性電極としてCo合金(CoNi, CoPt, CoPd)を用いた場合に数1000%級の非常に高いTMR比を得た。また界面共鳴トンネル現象がこのようなTMR比の起源である可能性を提唱した。続いてSrTiO<sub>3</sub>(111)をトンネルバリアに用いたMTJについて解析し、数100%の比較的高いTMR比を見出した。この系のTMR比はバルクのバンド構造によるコヒーレントトンネル機構で説明可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁気トンネル接合(MTJ)は全てのハードディスクドライブや磁気ランダムアクセスメモリに搭載されるビックデータ社会に不可欠なデバイスである。従来のMTJはFe/MgO/Fe(001)に代表されるように、bcc強磁性体の[001]方向に成長させる構造を取っていた。しかし次世代電子デバイスへの搭載に向けて、さらに高いトンネル磁気抵抗比や大きな垂直磁気異方性を達成する必要がある、そのためには新規なMTJを模索することが重要である。本研究ではこのような主眼から新規な(111)配向MTJを理論的に研究し、これらの望まれる特性が達成されうることを理論的に示すことができた。

研究成果の概要(英文):We theoretically investigated the tunnel magnetoresistance (TMR) effect in unconventional (111)-oriented magnetic tunnel junctions (MTJs). We firstly addressed (111)-oriented MTJs with MgO(111) tunnel barriers and found that the MTJs with Co-based ferromagnetic alloys (CoNi, CoPt, and CoPd) show quite high TMR ratios of the order of 1000%. We suggested a possibility that the high TMR ratios are attributed to interfacial resonant tunneling. We next studied (111)-oriented MTJs with SrTiO<sub>3</sub>(111) tunnel barriers and obtained relatively high TMR ratios of around 500%. We clarified that these TMR ratios can be understood by the bulk band structures of ferromagnetic electrodes and the tunnel barrier, which is in contrast to the MgO-based (111)-oriented MTJs mentioned above.

研究分野：物性理論

キーワード：スピントロニクス トンネル磁気抵抗効果 スピン輸送 垂直磁気異方性 磁気トンネル接合 第一原理計算

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

磁気トンネル接合 (MTJ) は、2つの強磁性層の間に絶縁トンネルバリア層が挟まれた3層構造を有し、左右の強磁性層の磁化の相対角に応じて電気抵抗が変化するトンネル磁気抵抗 (TMR) 効果が生じる。このようなMTJはこれまでに種々の磁気センサや不揮発磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) として実用化されてきた。従来のMTJは、Fe/MgO/Fe(001)に代表されるように、bcc構造を有する強磁性体の[001]方向に積層された構造を取っている。そしてこのような(001)配向MTJでは、高いTMR比が得られる一方、次世代MRAMで必要とされる大きな垂直磁気異方性を得ることが難しいという弱点が存在する。したがって、高いTMR比と大きな垂直磁気異方性を併せ持つ新たなMTJを探索することは、将来のMRAM開発の基盤研究として大変重要であると考えられる。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、新規な配向性を持つ(111)配向MTJに着目し、理論計算によって高いTMR比と大きな垂直磁気異方性の発現可能性を調べることを目的とした。fcc強磁性体の中には[111]方向に大きな磁気異方性を持つものが数多く存在し、またこのようなfcc強磁性体では(111)面が最密面であり表面として表れやすいという性質がある。したがって、(111)配向MTJは実験的に作製できる可能性が高く、また作製されたMTJは[111]方向の大きな磁気異方性(すなわち大きな垂直磁気異方性)を有することが期待される。しかし、このような(111)配向MTJのTMR効果に関する先行研究は皆無であったため、本研究課題でTMR効果に着目した理論研究を行うことにした。

### 3. 研究の方法

TMR効果の解析はバリスティック輸送理論に従って行った。また強磁性層及び絶縁トンネルバリア層の電子状態は第一原理計算を用いて計算した。具体的な計算手順としては、まず強磁性層の第一原理計算を実行しFermi準位にかかるバンドを求める。求めた複数のバンドの各々について、その状態の平面波を作り一電子トンネル問題を解く。ここでトンネル障壁ポテンシャルは強磁性体/絶縁体/強磁性体の超格子に対して第一原理計算を行うことで求めた。このような計算から、電子がトンネル障壁層(絶縁体層)を透過する透過率が得られるので、これをLandauer公式に代入することでバリスティック伝導の範囲での電気伝導度が得られる。このような計算を左右電極の磁化が平行、反平行の場合について行うことでTMR比を算出することができる。第一原理計算とLandauer公式を用いたこのような電気伝導度の計算は、第一原理計算コードQUANTUM ESPRESSOにおいてPWCONDとして実装されており、本研究ではこのコードを利用した。また(111)配向MTJの超格子の作成においては、強磁性層のバルク状態での格子定数を面内格子定数として採用し、絶縁体層の面内格子定数は強磁性層に合わせるようにした。さらに、第一原理構造緩和計算によって、超格子内の各原子位置を面直方向について最適化し、最適化された超格子を上述の輸送量計算において使用した。またL1<sub>1</sub>合金を用いたMTJの研究では磁気異方性の解析も行ったが、その計算では第一原理計算と力定理を用いた。

### 4. 研究成果

まず絶縁体としてMgO、強磁性体としてfcc Co、fcc Niを用いた最も単純な(111)配向MTJ、Co/MgO/Co(111) [図1(a)] およびNi/MgO/Ni(111)に対する研究から開始した。上記の計算方法に従いTMR比を計算した結果、Co/MgO/Co(111)では2130%、Ni/MgO/Ni(111)では250%のTMR比が得られた。特にCo/MgO/Co(111)での値は非常に高く、その物理的起源を探求するため電気伝導度の面内波数依存性を解析した。従来研究が行われてきたFe/MgO/Fe(001)MTJでは、多数スピン状態の電気伝導度の面内波数依存性において、 $\mathbf{k}_{\parallel}=(0,0)$ を中心としたブ

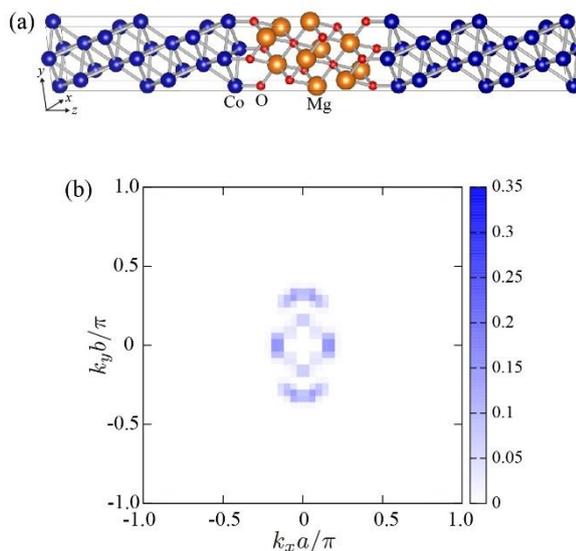


図1. (a) Co/MgO/Co(111)の模式図。(b) Co/MgO/Co(111)の多数スピン状態の電気伝導度の面内波数依存性 [K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020)].

ロードなピーク構造が見られることが知られてきた。このようなピークは $\Gamma$ 点から $k_z$ 方向に伸びる高対称波数線 ( $\Delta$  線) 状における Fe と MgO のバンド構造によって理解されることが知られ、このようなバルクのバンド構造に基づく TMR 効果の発現機構はコヒーレントトンネル機構と呼ばれてきた。その一方で、我々が計算した(111)配向 MTJ における電気伝導度の面内波数依存性はこのような従来の振る舞いとは定性的に異なるものとなった。図 1(b) に Co/MgO/Co(111)の多数スピン状態における電気伝導度の面内波数依存性を示す。この結果からわかるように、 $\mathbf{k}_{\parallel}=(0,0)$ を中心としたピーク構造は存在せず、 $\mathbf{k}_{\parallel}=(0,0)$ を囲む王冠状のような形状で電気伝導度が大きな値を持つことがわかる。このことから(111)配向 MTJ では、従来の(001)配向 MTJ とは異なる物理機構で TMR 効果が発現していることが期待される。そこでこの物理起源について情報を得るため、次にこの MTJ の局所状態密度の解析を行った。

図 2(a,b)は Co/MgO/Co(111)の界面における Co の  $d$  軌道および O の  $p$  軌道の局所状態密度である。Fermi 準位近傍において、Co の  $d_{xz}$  軌道と O の  $p_x$  軌道 (また同様に Co の  $d_{yz}$  軌道と O の  $p_y$  軌道) が同じ形状のピーク構造を有しており、このことから両軌道の間で  $d-p$  反結合状態が形成されていると考えられる。この事実から、我々は界面で形成された  $d-p$  反結合状態が左右界面の間で共鳴トンネル効果を起こすことで高い TMR 比が生じたと結論付けた [図 2(c)参照]。しかしながら、本研究ではまだ界面状態と高い TMR 比の直接的な関係を示すレベルには至っておらず、高い TMR 比の発現機構の詳細を理解することはできていない。この点を明らかにするためには、界面効果等の実空間現象と相性が良いタイトバインディング模型を用いた解析が有効であると考えており、今後の研究で取り組んでいきたい。ここまでの成果を論文 [K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B 101, 144404 (2020)] としてまとめ、複数の学会で講演も行った。

続いて我々は、大きな垂直磁気異方性が期待される  $L1_1$  強磁性合金を用いた(111)配向 MTJ において TMR 比の解析を行った。絶縁体としては先の研究と同様に MgO を用いた。計算の結果、Co を含む  $L1_1$  合金 (CoNi, CoPt, CoPd) を用いた MTJ において 2000% を超える非常に大きな TMR 比が得られた。また期待通り、多くの MTJ で  $K_u=1\sim 10$  MJ/m<sup>3</sup> の大きな垂直磁気異方性が得られることも確認した。まず大きな TMR 比の物理起源を調べるため、電気伝導度の面内波数依存性と MTJ の局所状態密度の解析を行ったところ、先の Co/MgO/Co(111)と同様の結果が得られた。すなわち電気伝導度の面内波数依存性では  $\mathbf{k}_{\parallel}=(0,0)$ を囲む王冠状のような形状が見られ、界面 Co、O 原子の局所状態密度では Fermi 準位近傍にピーク構造が見られた。このことより、 $L1_1$  強磁性合金を用いた(111)配向 MTJ においても、界面共鳴トンネル効果が高い TMR 比をもたらしていると推察される。さらに大きな垂直磁気異方性の起源についても電子論的な考察を行った。垂直磁気異方性の物理的起源は、磁気異方性定数  $K_u$  をスピン軌道相互作用に関する二次摂動論で解析することにより明らかにすることができる。例として CoNi における解析結果を図 3 に示す。二次摂動論を行うことによって、磁気異方性定数を Fermi 準位近傍の各摂動過程 (仮想的な電子遷移) からの寄与に

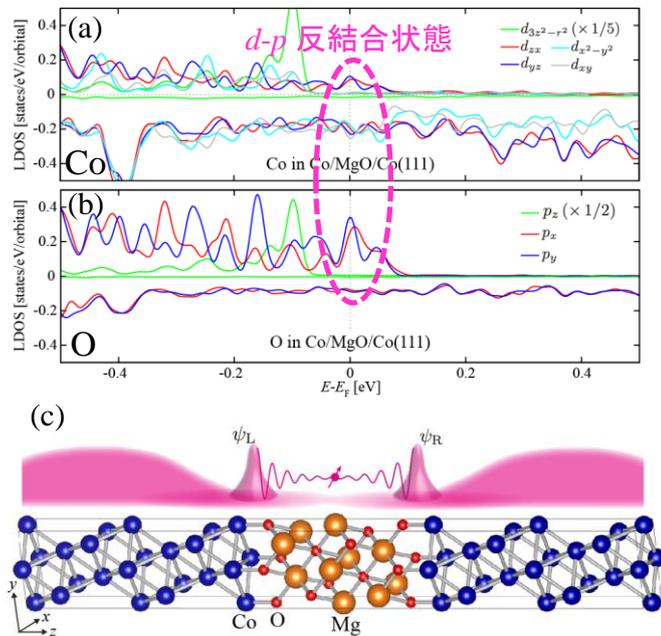


図 2. (a,b) Co/MgO/Co(111)の界面における局所状態密度 [K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B 101, 144404 (2020)]. (a) Co の  $d$  軌道。 (b) O の  $p$  軌道。 (c) 界面共鳴トンネル効果の模式図。

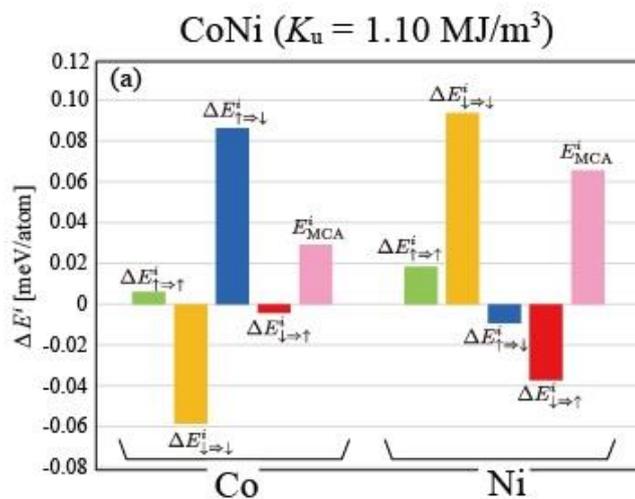


図 3. CoNi における磁気異方性定数の二次摂動解析の結果 [K. Masuda et al., Phys. Rev. B 103, 064427 (2021)].

分解することができる。図3の結果からCoNiではNi原子が垂直磁気異方性に主たる寄与を与えており、特にNi原子内の少数スピン状態における電子遷移が垂直磁気異方性の鍵となっていることがわかった。これらの結果を論文 [K. Masuda *et al.*, *Phys. Rev. B* **103**, 064427 (2021)] としてまとめ、複数の学会において発表も行った。

ここまでの解析では(111)配向MTJの絶縁体層として一貫してMgOを用いてきた。しかしその他の絶縁体層を用いた(111)配向MTJの特性を知ることも重要であるため、SrTiO<sub>3</sub>を絶縁体層に用いた(111)配向MTJ [図4(a)] についてTMR効果の解析を行った。計算の結果、Co/SrTiO<sub>3</sub>/Co(111)で534%、Ni/SrTiO<sub>3</sub>/Ni(111)で290%という比較的大きなTMR比が得られた。このようなTMR効果の興味深い点は、その物理起源がこれまでの(111)配向MTJにおけるTMR効果の物理起源と異なる点にある。実際、この系の高いTMR比は強磁性体と絶縁体のバルクのバンド構造で説明できることがわかった。図4(b)にfcc Coの $\Lambda$ ラインにおけるバンド構造を示す。 $\Lambda_1$ 状態と呼ばれる対称性の高い電子状態がハーフメタル性を持っており、これが高いTMR比の主要因であることが明らかになった。このように(111)配向MTJにおけるTMR効果は多様であり、系によって異なる物理起源のTMR効果が発現することがわかった。これらの結果を論文 [K. Masuda *et al.*, *Phys. Rev. B* **106**, 134438 (2022)] としてまとめ、複数の学会において発表も行った。

以上のように、本研究課題では種々の(111)配向MTJのTMR効果と磁気異方性を理論的に解析した。多くの系で高いTMR比と大きな垂直磁気異方性を理論予測することができ、今後の実験研究に対して十分な示唆を与えることができたと感じている。また従来の(001)配向MTJとは異なる(111)配向MTJに着目したことで、TMR効果自体についての物理的理解も深まったと感じている。本課題で着目したMTJは(111)配向MTJのほんの一部であり、まだ調べられていないMTJが数多く存在する。また(001)、(111)配向以外の配向性を持つMTJについては未だに研究例がなく、今後開拓していく余地が十分に残されている。本研究課題を契機として、今後も新規MTJの開拓を通じてTMR効果の理解を深める研究を行っていきたいと感じている。

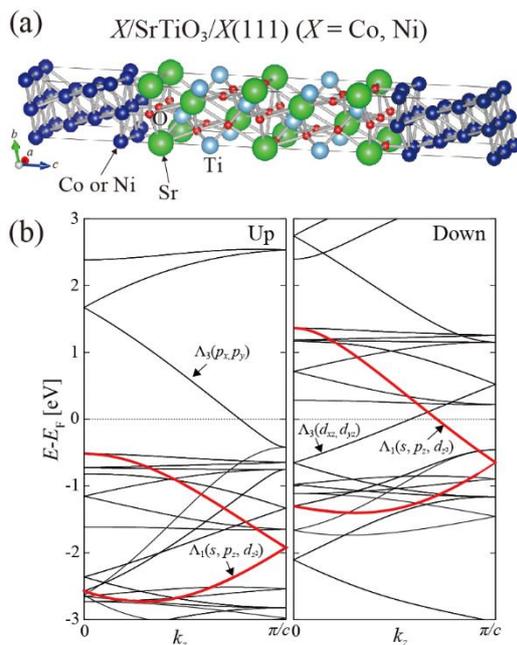


図4. (a)  $X/\text{SrTiO}_3/X(111)$  ( $X = \text{Co}, \text{Ni}$ ) の模式図。(b)  $\text{Co}/\text{SrTiO}_3/\text{Co}(111)$ 内のfcc Coの $\Lambda$ ラインにおけるバンド構造 [K. Masuda *et al.*, *Phys. Rev. B* **106**, 134438 (2022)]。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Kozuka Y., Isogami S., Masuda K., Miura Y., Das Saikat, Fujioka J., Ohkubo T., Kasai S.	4. 巻 126
2. 論文標題 Observation of Nonlinear Spin-Charge Conversion in the Thin Film of Nominally Centrosymmetric Dirac Semimetal SrIrO <sub>3</sub> at Room Temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 236801
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.126.236801	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Nawa Kenji, Masuda Keisuke, Miura Yoshio	4. 巻 16
2. 論文標題 Enhanced Magnetoresistance under Bias Voltage in Fe/MgO/MgAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /MgO/Fe Trilayer Tunneling Barrier Junction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 44037
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevApplied.16.044037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Masuda Keisuke, Tadano Terumasa, Miura Yoshio	4. 巻 104
2. 論文標題 Crucial role of interfacial s-d exchange interaction in the temperature dependence of tunnel magnetoresistance	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L180403
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.L180403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Masuda Keisuke, Itoh Hiroyoshi, Miura Yoshio	4. 巻 101
2. 論文標題 Interface-driven giant tunnel magnetoresistance in (111)-oriented junctions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144404
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.144404	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Masuda Keisuke, Itoh Hiroyoshi, Sonobe Yoshiaki, Sukegawa Hiroaki, Mitani Seiji, Miura Yoshio	4. 巻 103
2. 論文標題 Interfacial giant tunnel magnetoresistance and bulk-induced large perpendicular magnetic anisotropy in (111)-oriented junctions with fcc ferromagnetic alloys: A first-principles study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 64427
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.064427	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Masuda Keisuke, Itoh Hiroyoshi, Sonobe Yoshiaki, Sukegawa Hiroaki, Mitani Seiji, Miura Yoshio	4. 巻 106
2. 論文標題 Band-folding-driven high tunnel magnetoresistance ratios in (111)-oriented junctions with SrTiO <sub>3</sub> barriers	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134438
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.134438	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 増田 啓介、伊藤博介、三浦 良雄	4. 巻 17
2. 論文標題 (111)配向磁気トンネル接合: 界面共鳴誘起巨大磁気抵抗と垂直磁気異方性の理論予測	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 まぐね	6. 最初と最後の頁 27-34
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 増田啓介、伊藤博介、園部義明、介川裕章、三谷誠司、三浦良雄
2. 発表標題 (111)配向磁気トンネル接合の理論研究
3. 学会等名 第45回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小塚 裕介、増田 啓介、三浦 良雄、藤岡 淳、磯上 慎二、ダス サイカット、大久保 忠勝、葛西 伸哉
2. 発表標題 第一原理計算によるSrIrO <sub>3</sub> 薄膜における非線形スピンホール効果発現機構の解明
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keisuke Masuda, Hiroyoshi Itoh, Yoshiaki Sonobe, Hiroaki Sukegawa, Seiji Mitani, Yoshio Miura
2. 発表標題 Theoretical Prediction of Giant Tunnel Magnetoresistance and Large Perpendicular Magnetic Anisotropy in Unconventional (111)-Oriented Magnetic Tunnel Junctions
3. 学会等名 The 5th Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics, and the 4th Symposium on International Joint Graduate Program in Materials Science
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kenji Nawa, Keisuke Masuda, Shinto Ichikawa, Hiroaki Sukegawa, Tsuyoshi Suzuki, Katsuyuki Nakada, Seiji Mitani, Yoshio Miura
2. 発表標題 Design of MgAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub> Spinel-Oxide-Based Tunnel Barriers for Advanced Spintronics Devices
3. 学会等名 KMS 2021 Winter Conference
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増田 啓介、只野 央将、三浦 良雄
2. 発表標題 トンネル磁気抵抗効果の温度依存性に対する新たな物理機構の提案: 界面s-d交換相互作用の重要性について
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura
2. 発表標題 Ab initio prediction of giant tunnel magnetoresistance in (111)-oriented magnetic tunnel junctions
3. 学会等名 INTERMAG 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 増田啓介、只野央将、三浦良雄
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第46回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増田啓介
2. 発表標題 トンネル磁気抵抗効果の温度依存性に対する新たな物理起源の提案：界面s-d交換相互作用の重要性について
3. 学会等名 日本磁気学会 第240回研究会 / 第94回ナノマグネティクス専門研究会「磁気物性に関する計算科学の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増田啓介、伊藤博介、園部義明、介川裕章、三谷誠司、三浦良雄
2. 発表標題 SrTiO <sub>3</sub> バリアを用いた(111)配向接合における大きなトンネル磁気抵抗効果
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 K. Masuda, T. Tadano, Y. Miura
2. 発表標題 Theory for Temperature Dependence of Tunnel Magnetoresistance: Crucial Role of Interfacial s-d Exchange Interaction
3. 学会等名 Intermag 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, Y. Miura
2. 発表標題 Prediction of High Tunnel Magnetoresistance Ratios in (111)-Oriented Junctions with SrTiO <sub>3</sub> Barriers
3. 学会等名 Intermag 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関