

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月22日現在

機関番号：13903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22740223

研究課題名（和文）高性能強磁性トンネルバリアの開発とトンネル型スピントランジスタ効果の実現

研究課題名（英文）Development of high quality ferromagnetic tunnel barrier and realization of tunneling spin filter devices

研究代表者

田中 雅章 (TANAKA MASAOKI)

名古屋工業大学・工学研究科・助教

研究者番号：50508405

研究成果の概要（和文）：

本研究ではパルスレーザー堆積法を用いて作製した垂直磁気異方性を有する CoFe_2O_4 薄膜によるトンネル型スピントランジスタ効果の実現を目指した。トンネル型スピントランジスタ効果に用いるにはドロップレットが少ない平坦な強磁性絶縁体薄膜の作製法の確立が重要である。本研究ではシャドウマスクを用いることで基板上への大きな粒子の付着を低減させることに成功した。シャドウマスクを用いて $\text{MgO}(001)$ 基板上に製膜した垂直磁気異方性を有する CoFe_2O_4 薄膜の作製条件の探索を行った。最適条件で $\text{FePd}/\text{MgO}/\text{CoFe}_2\text{O}_4$ を基本構造とする磁気トンネル接合素子を作製し、磁気抵抗測定を行ったところ、300 K で 0.7%、5 K で 16.5% の磁気抵抗比が得られ、室温におけるトンネル型スピントランジスタ効果を示唆する結果が得られた。

研究成果の概要（英文）：

In this study, tunneling-spin filtering effect of ferromagnetic insulator CoFe_2O_4 with perpendicular magnetic anisotropy was studied. To improvement surface flatness of CoFe_2O_4 films, the films were grown on $\text{MgO}(001)$ substrates by pulse laser deposition method with a shadow mask. The CoFe_2O_4 films without droplet formation with perpendicular anisotropy energy density of $2.36 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ were obtained. Magnetoresistance measurements were carried out for magnetic tunnel junctions (MTJs) using $\text{MgO}/\text{CoFe}_2\text{O}_4$ and ferromagnetic metal L10-type FePd electrodes fabricated on $\text{MgO}(001)$ substrates. The tunnel magnetoresistance ratio of 0.7% at 5 K and 16.5% at 300 K was obtained for the MTJs.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
総計	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：スピントロニクス, コバルトフェライト, トンネル型スピントランジスタ効果

1. 研究開始当初の背景

従来のエレクトロニクスでは、主に電子が持つ電荷だけが利用されてきた。近年、電子が持つスピン自由度の利用を目指したスピントロニクスに関する研究が注目されている。スピントロニクスデバイスの発展にはスピン状態が偏極した電子(スピン偏極電子)を効率的に非磁性体に注入する「スピン注入源」の開発は重要である。強磁性金属をスピン注入源とした場合、電気伝導率のミスマッチが大きい半導体へスピン注入を試みると、スピン情報がほとんど消失する。そのため、新しいスピン注入法の開拓が必要である。電気伝導率の違いに影響を受けないスピン注入源として、強磁性絶縁体を用いたトンネル型スピンフィルター効果が有望とされている。トンネル型スピンフィルター効果とは、強磁性絶縁体の障壁の高さが、電子がもつスピン自由度により異なるために、片方のスピンをもつ電子のみが通過する効果である。これまで国内外で EuS やコバルトフェライト(CoFe_2O_4)、 $\text{La}_{0.1}\text{Bi}_{0.9}\text{MnO}_3$ などのトンネル型スピンフィルター効果が観測されており、室温でのトンネル型スピンフィルター効果の観測も報告されているが、これまでに観測されたトンネル型スピンフィルター効果はすべて面内磁化を持つ強磁性絶縁体薄膜を用いている。

CoFe_2O_4 はバルク体のキュリー温度が室温より十分に高いフェリ磁性体であり、数 nm 程度の薄膜の場合でも室温以上のキュリー温度を示すことが期待できる。また、 $\text{MgO}(001)$ 上に、パルスレーザー堆積(PLD)法を用いて製膜した CoFe_2O_4 は、作製時の酸素圧や基板温度などの条件を最適化することで(001)方向にエピタキシャル成長し、また垂直磁気異方性を示すことが知られている。

2. 研究の目的

本研究では垂直磁気異方性を持つ強磁性絶縁体薄膜によるトンネル型スピンフィルター効果の実現を目的とした。そのために本研究では PLD 法を用いて表面平坦性、垂直磁気異方性の良い CoFe_2O_4 薄膜の作製法の確立を目指した。次に最適製膜条件でトンネル型スピンフィルター効果検証用の磁気トンネル接合(MTJ)素子の作製を行い、トンネル磁気抵抗効果の観測からトンネル型スピンフィルター効果の実証を目指した。

3. 研究の方法

本研究では PLD 法を用いて垂直磁気異方性を有する CoFe_2O_4 薄膜の $\text{MgO}(001)$ 基板上への製膜条件の探索を行った。PLD 法を用いた成膜では、組成のズレ等が少なく高品質な酸化物薄膜の作製が可能である一方で、レー

ザーによりターゲットから未分解で粒径の大きな材料が多く飛ばされる。これらの未分解の粒子は基板表面にドロップレットが生成される原因である。ドロップレットが多く存在するトンネル型スピンフィルター素子では、ピンホールが原因のリーク電流が多くなりスピン注入効率が極端に悪化する。そこで、本研究では、ターゲットと基板の間にシャドウマスクを配置し、ドロップレットの生成の抑制を試みた。シャドウマスクを用いることで、レーザーでターゲットから直接飛ばされる材料を遮断し、周囲の酸素分子との衝突によりシャドウマスクの背後に回りこむ完全に分解された材料のみを製膜に用いる。この方法でドロップレットの減少が期待できる。シャドウマスクは1枚の金属板で構成した平面型シャドウマスクの他に、図1に示す立体構造を持つものを使用した。これにより酸素分子との衝突により回り込んだ材料が、均一に基板に付着し、基板全体での膜厚のむらをへらすことが期待できる。 CoFe_2O_4 薄膜の作製条件と表面平坦性、結晶性、垂直磁気異方性等を調べるために、 $\text{MgO}(001)$ 単結晶基板に CoFe_2O_4 単層膜を作製した。 CoFe_2O_4 単層膜は、5~20 Pa の酸素雰囲気中で、基板加熱を行い、YAG 2 倍波レーザーを用いた PLD 法で作製した。ターゲットは市販の焼結体を用いた。 CoFe_2O_4 作製した試料は、原子間力顕微鏡(AFM)による表面平坦性の評価、X 線回折装置による結晶構造解析及び SQUID 磁束計による磁化測定を行った。

次に CoFe_2O_4 薄膜のトンネル型スピンフィルター効果の効率を評価するために、強磁性金属を参照層とする MTJ 素子を作製し、そのトンネル磁気抵抗効果の測定を行った。 CoFe_2O_4 単層膜の評価から得られた条件を元にトンネル型スピンフィルター効果の評価を行った。トンネル型スピンフィルター効果のスピン注入効率を直接評価するのは難し



Fig. 1 立体型シャドウマスク。

い。そのために、非磁性絶縁体 MgO を

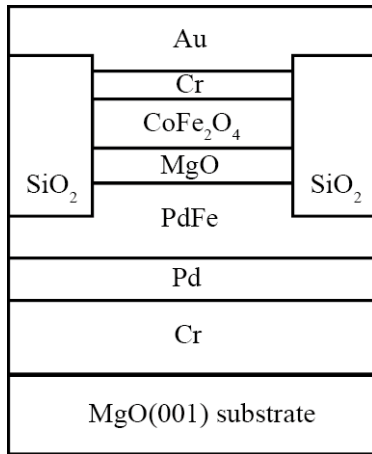


Fig. 2 本研究で作製した FePd(21.5 nm)/MgO(1 nm)/CoFe₂O₄(5 nm)を基本構造とする磁気トンネル接合素子.

CoFe₂O₄層と強磁性金属 L1₀型 FePd 層で挟んだ図2に示す MTJ 素子用の多層膜を作製した. 下部強磁性電極に用いた L1₀型 FePd 層は超高真空蒸着器を用いた原子層交互蒸着法により作製した. L1₀型 FePd は作製条件により垂直磁気異方性を持つ. また, 非磁性絶縁体 MgO を CoFe₂O₄層と強磁性金属 L1₀型 FePd 層の間に挿入することで, 上下の強磁性層間の磁氣的相互作用を低減し, 磁化の平行・反平行状態を実現することができる. また MgO 層の上に製膜される CoFe₂O₄層が垂直磁気異方性を有することが期待される. 多層膜を作製した後に, コンタクトアライナーを用いたフォトリソグラフィ及びアルゴンイオンミリング装置を用いた微細加工により, 数マイクロメートルの大きさの MTJ 素子を作製した. 作製した MTJ 素子は物理特性測定装置 PPMS 及びソースメーターを用いて 2 K から

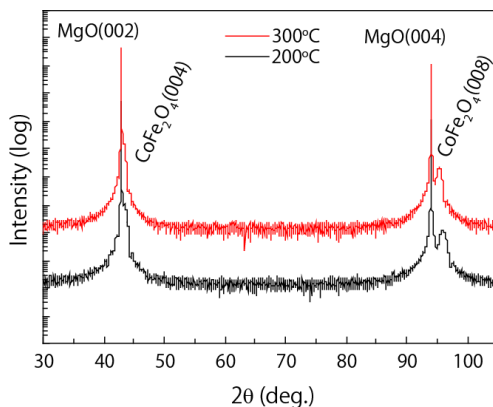


Fig. 3 立体型のシャドウマスクを用いて作製した CoFe₂O₄ 単層膜の X 線回折.

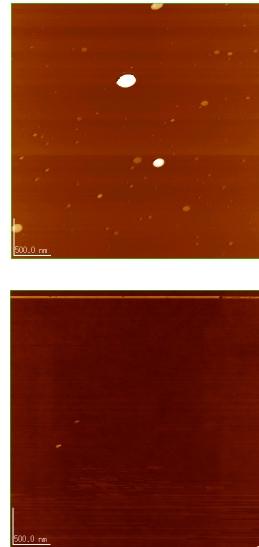


Fig. 4 (a)シャドウマスクなし及び(b)立体型シャドウマスクを使用して作製した CoFe₂O₄ 単層膜の AFM 像.

300 K の範囲で電流電圧測定及び磁気抵抗測定を行った.

4. 研究成果

MgO(001)単結晶基板上に立体型のシャドウマスクを用いて酸素圧 5.0 Pa で作製した CoFe₂O₄ 単層膜の X 線回折の結果を図 3 に示す. これらの結果から, 成膜温度 200°C, 300°C で製膜した CoFe₂O₄ 単層膜は 001 方向にエピタキシャル成長することがわかる. また, 膜面垂直方向の格子定数を評価したところ, バルクの値である 8.38 Å よりも短くなっていることが分かった. また, CoFe₂O₄(008)における半値幅はいずれも 1°程度であった.

図 4(a)にシャドウマスクを使用しないで酸素圧 2.0 Pa, 基板温度 400°C で製膜した CoFe₂O₄ 単層膜, 図 4 (b)に立体型シャドウマスクを使用して酸素圧 5.0 Pa, 基板温度 300°C で製膜した CoFe₂O₄ 単層膜の AFM 像を示す. シャドウマスクを使用しないで製膜した試料では, 大きさや形状が不定形の粒子が多く存在している. これらはレーザーにより飛ばされた未分解の材料に起因するドロップレットであると考えられる. 一方, 図 4(b)に示す立体型のシャドウマスクを用いて製膜した試料の AFM 像では大きなドロップレットがほとんど存在していない. このことから, シャドウマスクを用いることでドロップレットを減少させることが可能である事がわかる. この試料では, 平均表面粗さは 0.2 nm 程度と良好であった. また, 図 1 のような立体型のシャドウマスクではなく, 1 枚の金属板のみの平面マスクを用いた場合は, MgO 基板の中心付近に CoFe₂O₄ 単層膜が製膜されな

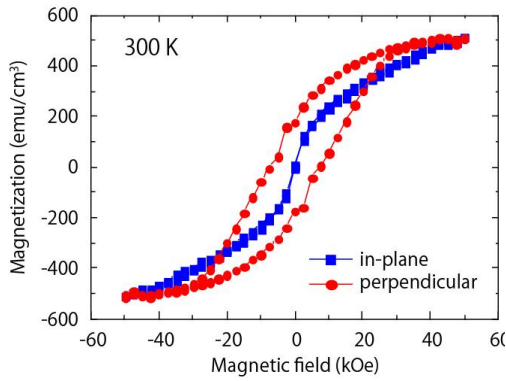


Fig. 5 酸素圧 5.0 Pa 基板温度 300°Cで製膜した CoFe₂O₄ 薄膜の面内, 膜面垂直方向の磁化曲線.

い. 一方で立体型のシャドウマスクを用いて作製した試料は基板全体にほぼ均一に製膜されている. このことから, PLD 法による CoFe₂O₄ の製膜において立体型のシャドウマスクの使用は, ドロップレットの生成を低減し, かつ均一な薄膜の作製に有用であることがわかった.

図 5 に立体型シャドウマスクを用いて酸素圧 5.0 Pa, 基板温度 300°Cで製膜した CoFe₂O₄ 単層膜の面内方向及び膜面垂直方向に対する磁化測定の結果を示す. 面内方向及び膜面垂直方向に磁場を印加した際のヒステリシスループを比較すると, MgO 基板上的 CoFe₂O₄ 単層膜は垂直磁気異方性を有する事がわかる. ヒステリシスループから求めた垂直磁気異方性エネルギーは $2.36 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 程度であることがわかった.

以上のように PLD 法で立体型のシャドウマスクを使用して製膜することで, 垂直磁化型のトンネル型スピニフィルター素子として利用できる表面平坦性, 垂直磁気異方性を有する CoFe₂O₄ 単層膜を製膜することが可能であることがわかった.

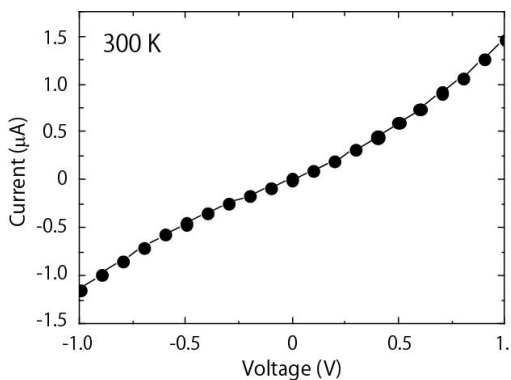


Fig. 6 FePd/MgO/CoFe₂O₄ 構造の磁気トンネル接合素子の電流電圧測定の結果.

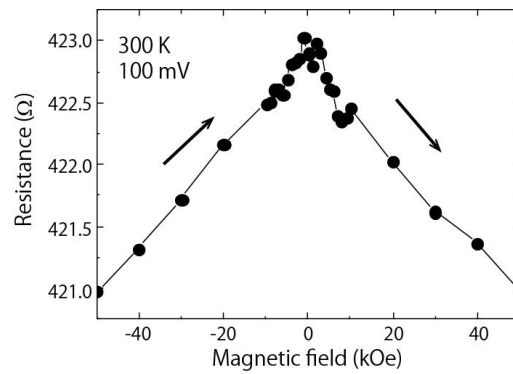


Fig. 7 FePd/MgO/CoFe₂O₄ 構造の磁気トンネル接合素子の 300 K における磁気抵抗測定.

図 6 に FePd/MgO/CoFe₂O₄/Au を基本構造とした MTJ 素子の電流電圧測定の結果を示す. 結果から明確な 3 次曲線が得られることから, 比較的良好なバリアが得られた事がわかる. これはシャドウマスクを持ちることで表面平坦性が改善され, 強磁性絶縁体層の絶縁性が改善されたことが考えられる.

図 7 に 300 K で 100 mV 印加した時の FePd/MgO/CoFe₂O₄/Au の MTJ 素子の磁気抵抗効果を示す. この結果から, 小さいものの外部磁場に依存した抵抗の変化が見られる. 磁気抵抗測定から 300 K で 0.7%, および 5 K で 16.5% 程度の磁気抵抗効果が得られた. 以上のように本研究において垂直磁気異方性を持つ強磁性絶縁体 CoFe₂O₄ 薄膜を用いて室温でトンネル型スピニフィルター効果を示唆する結果が得られた.

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 1 件)

奈木南, 中川浩次, 田中雅章, 壬生攻, 「Studies on spin-filtering CoFe₂O₄ layers for room-temperature TMR effect」, 応用物理学会スピントロニクス研究会・若手研究会, 平成 24 年 12 月 11 日, 札幌.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 雅章 (TANAKA MASA AKI)
名古屋工業大学・工学研究科・助教
研究者番号: 50508405

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし