

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 29 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2011～2014

課題番号：23246006

研究課題名(和文) 完全格子整合2重トンネル接合におけるスピン依存共鳴トンネル効果と新機能創成

研究課題名(英文) Spin dependent resonant tunneling and related properties in perfectly lattice-matched double tunnel junctions

研究代表者

三谷 誠司(Mitani, Seiji)

独立行政法人物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・グループリーダー

研究者番号：20250813

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,800,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性トンネル接合は、磁気ヘッドや磁気メモリの中心となる重要なスピントロニクス素子である。本研究では、高度な成膜技術を駆使して格子整合した強磁性トンネル接合の作製を行い、共鳴トンネル磁気抵抗効果の観測と新機能創成を試みた。bcc-Cu層中の量子井戸構造が共鳴効果の発現に有用であること、原理的には相性が悪いと思われる強い界面垂直磁気異方性と共鳴トンネル効果が共存できることなどを実証した。また、ホイスラー合金を用いた場合には、ほぼ無欠陥の文字通りの完全格子整合トンネル接合とその大きな磁気抵抗効果を得ることができた。これらの成果は、次世代の強磁性トンネル接合素子の高度化に大きく寄与するものである。

研究成果の概要(英文)：Magnetic tunnel junction (MTJ) is a basic heterostructure used in magnetic read heads and magnetic memory devices etc. In this study, lattice-matched MTJs were prepared by using state-of-the-art thin film growth techniques, and resonant tunnel magnetoresistance (TMR) was studied. We showed that quantum well states formed in a bcc-Cu layer is useful to bring about resonant TMR phenomena and that resonant TMR can coexist with a strong interface perpendicular magnetic anisotropy (PMA) despite possible spin mixing due to PMA. In addition, perfectly lattice-matched MTJs, in which almost no misfit dislocation was introduced, and their large TMR were successfully obtained by using Heusler alloy electrodes. These results are likely to be quite useful for developing high-performance MTJ devices in next-generation spintronics.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：格子整合 2重トンネル接合 トンネル磁気抵抗効果 共鳴トンネル効果 スピントロニクス素子

1. 研究開始当初の背景

情報技術の一層の発展が利便性・効率性の観点から望まれると同時に、情報技術分野における省エネも喫緊の課題となっている。強磁性トンネル接合は、磁気ヘッドや磁気メモリといった情報技術分野の主要磁気デバイスに用いられる重要素子であり、情報技術の発展と低消費電力化のためにその高性能化が強く望まれている。

飛躍的特性向上の可能性を有する強磁性2重トンネル接合はスピン依存共鳴トンネル効果を示し、新規高集積度磁気メモリのためのダイオード特性や巨大な磁気抵抗効果の発現が期待される。また、共鳴状態におけるスピン注入などの未開拓の物理現象・機能特性の研究を可能にする。しかし、これまで強磁性金属電極を用いた高品位2重トンネル接合の研究はごく限られたものしかなく、理論予測や素子応用上の期待に反して、スピン依存共鳴トンネル効果の実験研究は進展していない。

2. 研究の目的

本研究では、強磁性金属電極を用いた高品位2重トンネル接合の実現に向けて、格子整合系単結晶トンネル接合の作製手法の新規開拓、確立を目指す。同時に、得られたトンネル接合試料について詳細な特性評価を行い、2重トンネル接合構造に特有の共鳴トンネル効果や関連する機能特性の探索・考究を行う。

3. 研究の方法

分子線エピタキシー法と最新の超高真空スパッタ技術を用いて高品位トンネル接合の成長プロセスを多角的に検討する。特に本研究の独創的部分として、理想的な格子整合が期待されるホイスラー合金電極と MgAlO 系バリアを組合せたトンネル接合に注力する。伝導物性の測定により、共鳴トンネル効果の評価や関連する機能特性の探索を行う。

4. 研究成果

成果の概要としては、適切な物質選択によって明瞭な共鳴トンネル効果を観測することができた。ただし、高特性が得られたのは、2枚の絶縁体バリア層を有する基本的な2重トンネル接合構造ではなく、金属層中の特定の対称性を有する電子状態に対するバンドギャップを利用した擬2重トンネル接合構造であった(コヒーレントトンネル効果の利用)。また、共鳴トンネル効果のための薄い強磁性電極層では次世代磁気メモリ等に有用な大きな垂直磁気異方性が得られ、更に垂直磁気異方性と共鳴トンネル効果が共存可能であることを示すこともできた。最もインパクトのある成果としては、Co₂FeAl と MgAlO バリアを用いた強磁性トンネル接合において、ほとんどミスフィット転位の無い文字通り完全格子整合と言える構造が得られた。以下に、各成果を列挙する。

(1) 準安定相 bcc-Cu 層を用いた擬2重トンネル接合の作製とスピン依存共鳴トンネル効果の観測

はじめに Cr/Fe/MgO/Fe という積層構造を有する擬2重トンネル接合において共鳴トンネル効果とコヒーレントトンネル効果の間に明瞭な正の相関が存在することを明らかにした。これに基づき、コヒーレントトンネル効果が期待され、その結果非磁性体量子井戸でもスピンに依存した共鳴トンネル効果が発現すると期待される bcc-Cu 層を用いた擬2重トンネル接合 (Fe/bcc-Cu/MgO/Fe 積層) を作製し、スピン依存トンネル効果の測定・評価を行った。エピタキシャル成長や結晶構造については、反射高速電子線回折 (RHEED) のその場観察によって確認した。

Fig.1 はその結果であり、非磁性体電極を用いてもトンネル磁気抵抗効果が得られることを実証する興味深いデータになっている。更に、膜厚に対する振動的振舞から量子井戸状態の形成が見て取れる。その量子井戸状態を共鳴準位とする共鳴トンネル効果がスピン依存することで有限のトンネル磁気抵抗効果が得られていることが分かる。全く異なる結晶系を用いた Yuasa らによる先駆的な研究 (Science 297, 234 (2002)) との共通部分および対比される点が興味深く、重要な成果である。

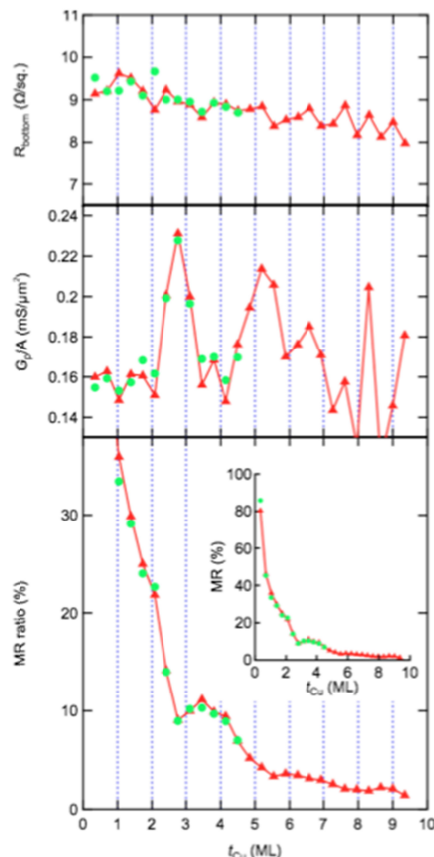


Fig.1. Fe/bcc-Cu/MgO/Fe 擬2重トンネル接合のスピン依存共鳴トンネル効果.

(2) Fe 超薄膜層の巨大な界面垂直磁気異方性と共鳴トンネル磁気抵抗効果

本研究において、明瞭な共鳴トンネル効果の発現に必要な量子井戸層の厚さは数原子層程度であり、そのような超薄膜層では際立った界面物性が発現する可能性がある。実際、5原子層(5ML)のFeとMgOの界面において、巨大な垂直磁気異方性を見出した。Fig.2は、巨大な垂直磁気異方性が得られる界面の成長に吸着層の関与が考えられることを示すRHEED像である(試料構造は、MgO基板/Crバッファー/5ML-Fe)。Fe層に吸着構造を示す 2×2 表面構造が明瞭に見られる方の試料において、永久磁石並みの 1.4 MJ/cm^3 という巨大な垂直磁気異方性が得られた。なお、Fig.3に示した透過電子顕微鏡(TEM)による断面像からは、何か異相の界面層が形成されているわけではないことを示している。原子レベルの平坦性と優れた結晶性が実現していることも分かる。

更にこの大きな垂直磁気異方性を利用した擬2重強磁性トンネル接合も作製し、その伝導特性を調べた。Fig.4はCr/5ML-Fe/MgO/CoFeBという積層の擬2重トンネル接合の dI/dV 特性であり、ゼロバイアス部分に共鳴トンネル効果によるピークが観測される。この試料のトンネル磁気抵抗効果は95%であり、これらの結果から界面垂直磁気異方性とスピン依存共鳴トンネル効果の共存は十分可能であることが分かる。トンネル接合における界面垂直磁気異方性は一般論としてスピンのミキシングをもたらすが(その結果、スピン依存共鳴トンネル効果は非常に小さくなるのでは?という考えも浮かぶが)、実際にはミキシングの効果は限定的であることを示している。超高密度磁気メモリ用の垂直磁化強磁性トンネル接合の次世代技術として期待される。

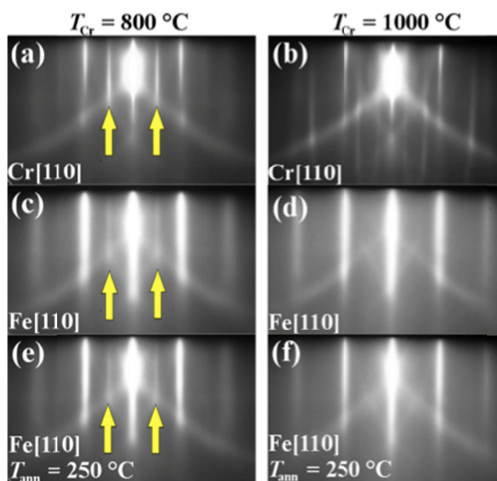


Fig.2. 熱処理温度に依存して変化するMgO(001)/Cr/5ML-Feの表面構造(RHEED像)。Crの熱処理条件による違いを表す。

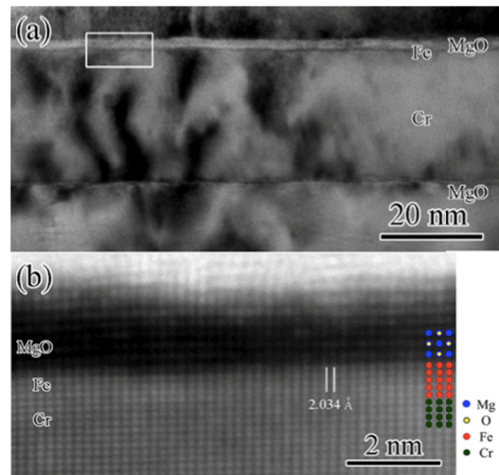


Fig.3. 大きな垂直磁気異方性を示すCr/Fe/MgO積層膜の断面TEM像。

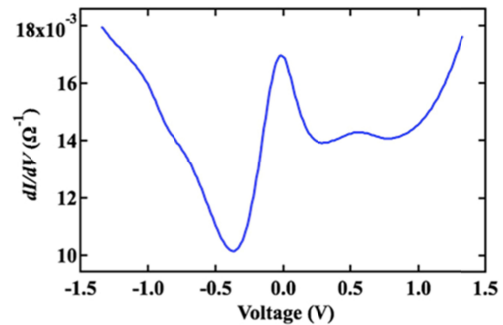


Fig.4. Cr/5ML-Fe/MgO/Fe擬2重トンネル接合における共鳴トンネル効果(dI/dV)。

(3) ホイスラー合金電極及びMgAlO新規バリア材料を用いた完全格子整合強磁性トンネル接合の創製

共鳴トンネル効果を得るための基盤研究として、いかにして欠陥の少ないトンネル接合を作成するかに注力した。標準的な材料であるCoFeBとMgOを用いたトンネル接合では、その界面に一定のミスフィット転位(1次元欠陥)が残存し、トンネル伝導のコヒーレンスを乱していると考えられているためである。Fig.5は成長条件最適化の後に得られた格子整合性のよい $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgAlO}/\text{CoFe}$ トンネル接合試料の断面TEM像である。ホイスラー合金の中では比較的格子定数の大きな Co_2FeAl を強磁性電極層に、そしてそれに格子定数がほぼ一致するMgAlOスピネル系トンネルバリアを用いたことがポイントである。Fig.6はFig.5の像にフィルターをかけた格子像である。フィルタリングによって格子欠陥の有無が明瞭になるが、この試料にミスフィット転位がほぼ全くないことが分かる。

次に得られた高品位トンネル接合試料のトンネル磁気抵抗効果などの特性を評価した。

Fig.7 にはトンネル磁気抵抗効果の大きさ等を界面 CoFe 挿入層を用いた場合の結果とともに示した。室温で 200%以上の磁気抵抗比が得られており、高特性が得られている。素子抵抗 (RA 値) が CoFe 挿入層によって大きく変化する様子も興味深い結果である。

この研究から得られる基礎的に重要な知見は、完全格子整合が得られても磁気抵抗効果の理論値が得られないという点である。界面の化学的な急峻性の不完全性 (格子以外の構造の乱れ) が磁気抵抗効果の大きさに大きな影響を及ぼしていることを実験的に明らかにしている。

上記成果およびその他の関連成果の詳細については、事項に記載の雑誌論文に示した。

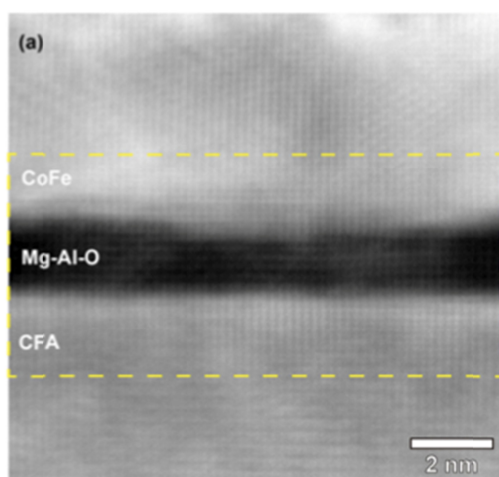


Fig.5. Co₂FeAl/MgAlO/CoFe トンネル接合試料の断面 TEM 像。

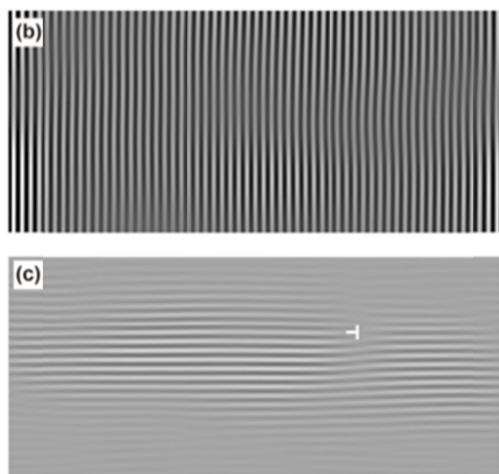


Fig.6. 上記 Co₂FeAl/MgAlO/CoFe トンネル接合試料の断面 TEM 像のフィルター像。

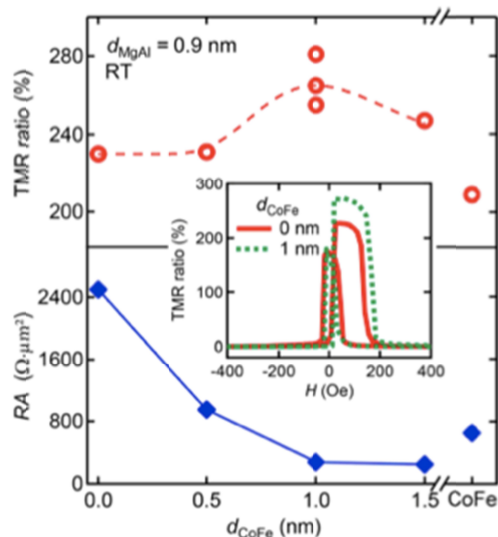


Fig.7. Co₂FeAl/MgAlO/CoFe トンネル接合試料のトンネル磁気抵抗効果と素子抵抗 (RA 値). CoFe 界面層を挿入した試料の結果も含む。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 14 件)

J. W. Koo, H. Sukegawa, S. Kasai, Z. C. Wen and S. Mitani, “Magnetotransport properties in perpendicularly magnetized tunnel junctions using an ultrathin Fe electrode”, J. Phys. D: Appl. Phys. (Fast Track Commun.) 47, 322001-1-4 (2014) (査読有り)

DOI: 10.1088/0022-3727/47/32/322001

Z. C. Wen, H. Sukegawa, T. Furubayashi, J. W. Koo, K. Inomata, S. Mitani, J. P. Hadorn, T. Ohkubo and K. Hono, “A 4-fold-symmetry hexagonal ruthenium for magnetic heterostructures exhibiting enhanced perpendicular magnetic anisotropy and tunnel magnetoresistance”, Adv. Mater. 26, 6483-6490 (2014) (査読有り)

DOI: 10.1002/adma.201401959

Z.C. Wen, H. Sukegawa, S. Kasai, K. Inomata and S. Mitani, “Tunnel magnetoresistance and spin-transfer-torque switching in polycrystalline Co₂FeAl full-Heusler alloy magnetic tunnel junctions on Si/SiO₂ amorphous substrates”, Phys. Rev. Appl. 2, 024009-1-10 (2014) (査読有り)

DOI: 10.1103/Phys.Rev.Appl.2.024009

J. W. Koo, H. Sukegawa and S. Mitani, “Interface perpendicular magnetic anisotropy in Fe/MgAl₂O₄ layered structures”, Phys. Status Solidi RRL 8, 841-844 (2014) (査読有り)

DOI: 10.1002/pssr.201409340

H. Sukegawa, K. Inomata and S. Mitani, “Post-oxidized Mg-Al-O(001) coherent tunneling barrier in a wide range of resistance-area products”, Appl. Phys. Lett. 105, 092403-1-5 (2014) (査読有り)
DOI: 10.1063/1.4895104

T. Scheike, H. Sukegawa, T. Furubayashi, Z. C. Wen, K. Inomata, T. Ohkubo, K. Hono and S. Mitani, “Lattice-matched magnetic tunnel junctions using a Heusler alloy Co₂FeAl and a cation-disorder spinel Mg-Al-O barrier”, Appl. Phys. Lett. 105, 242407-1-5 (2014) (査読有り)
DOI: 10.1063/1.4904716

H. Sukegawa, Z.C. Wen, S. Kasai, K. Inomata and S. Mitani, “Spin transfer torque switching and perpendicular magnetic anisotropy in full-Heusler alloy Co₂FeAl-based tunnel junctions”, SPIN 4, 1440023-1-15 (2014) (査読有り)
DOI: 10.1142/S2010324714400232

H. Sukegawa, S. Mitani, T. Ohkubo, K. Inomata and K. Hono, “Low-resistive monocrystalline Mg-Al-O barrier magnetic tunnel junctions for spin-transfer magnetization switching”, Appl. Phys. Lett. 103, 142409-1-5 (2013) (査読有り)
DOI: 10.1063/1.4824134

J. Okabayashi, H. Sukegawa, Z. C. Wen, K. Inomata and S. Mitani, “Large anisotropic Fe orbital moments in perpendicularly magnetized Co₂FeAl Heusler alloy thin films revealed by angular-dependent x-ray magnetic circular dichroism”, Appl. Phys. Lett. 103, 102402-1-4 (2013) (査読有り)
DOI: 10.1063/1.4819915

J. W. Koo, S. Mitani, T. T. Sasaki, H. Sukegawa, Z. C. Wen, T. Ohkubo, T. Niizeki, K. Inomata and K. Hono, “Large perpendicular magnetic anisotropy at Fe/MgO interfaces”, Appl. Phys. Lett. 103, 192401-1-4 (2013) (査読有り)
DOI: 10.1063/1.4828658

Z. C. Wen, H. Sukegawa, S. Kasai, M. Hayashi, S. Mitani and K. Inomata, “Tunnel magnetoresistance in perpendicularly magnetized tunnel junctions using full-Heusler Co₂FeAl alloy”, Appl. Phys. Express 5, 063003-1-3 (2012) (査読有り)
DOI: 10.1143/APEX.5.063003

H. Sukegawa, Y. Miura, S. Muramoto, S. Mitani, T. Niizeki, T. Ohkubo, K. Abe, M. Shirai, K. Inomata and K. Hono, “Enhanced tunnel magnetoresistance in a spinel oxide barrier with cation site disorder”, Phys. Rev. B 86, 184401-1-5 (2012) (査読有り)

DOI: 10.1103/PhysRevB.86.184401

S. Mitani, “Spin-transfer magnetization switching in ordered alloy-based nanopillar devices”, J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 384003-1-8 (2011) (査読有り)
DOI: 10.1088/0022-3727/44/38/384003

T. Niizeki, H. Sukegawa, S. Mitani, N. Tezuka and K. Inomata, “Correlation between symmetry-selective transport and spin-dependent resonant tunneling in fully epitaxial Cr/ultrathin-Fe/MgO/Fe(001) magnetic tunnel junctions”, Appl. Phys. Lett. 99, 182508-1-3 (2011) (査読有り)
DOI: 10.1063/1.3647578

[学会発表] (計 15 件)

H. Sukegawa 他、Bias voltage dependence of tunnel magnetoresistance in spinel Mg-Al-O based epitaxial tunnel junctions、International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces、2015 年 7 月 12 - 17 日、Krakow(Poland)

T. Scheike 他、Lattice-matched Co₂FeAl/Mg-Al-O/CoFe magnetic tunnel junctions、International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces、2015 年 7 月 12 - 17 日、Krakow(Poland)

S. Mitani 他、Perpendicular magnetic anisotropy in ultrathin Fe/MgO bilayers with engineered buffer layers、International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces、2015 年 7 月 12 - 17 日、Krakow(Poland)

H. Sukegawa 他、Bias voltage dependence in magnetic tunnel junctions with a spinel Mg-Al-O barrier、応用物理学会学術講演会、2015 年 3 月 11 - 14 日、東海大学 (神奈川)

S. Mitani 他、Extended study on perpendicular magnetic anisotropy in Fe/MgO interfaces、応用物理学会学術講演会、2015 年 3 月 11 - 14 日、東海大学 (神奈川)

S. Mitani 他、Interface perpendicular magnetic anisotropy in magnetic tunnel junctions、International Conference of Asian Union of Magnetism Societies、2014 年 10 月 28 - 31 日、Hainan(China)、(招待講演)

H. Sukegawa 他、Spin transfer torque switching in an Mg-Al-O based magnetic tunnel junction、Intermag、2014 年 5 月 4 - 8 日、Dresden(Germany)

J.W. Koo 他、Controlling interface perpendicular magnetic anisotropy and large tunnel magnetoresistance in Fe/MgO/CoFeB junctions、Intermag、2014年5月4 - 8日、Dresden(Germany)

T. Scheike 他、Tunnel magnetoresistance in lattice-matched epitaxial tunnel junctions with a Co₂FeAl Heusler alloy layer and an Mg-Al-O barrier、Intermag、2014年5月4 - 8日、Dresden(Germany)

S. Mitani 他、Perpendicular magnetic anisotropy in ultrathin ferromagnetic layer/tunnel barrier interfaces、14th REIMEI Workshop on Spin Currents and Related Phenomena、2014年2月9 - 13日、Grenoble (France) (招待講演)

S. Mitani 他、Interface perpendicular magnetic anisotropy in magnetic tunnel junctions、International Japanese-French Workshop on Spintronics、2013年11月28日、Orsay (France) (招待講演)

S. Mitani 他、Static and dynamic properties of magnetic tunnel junctions using unconventional materials、Nano-scale Dynamics in Magnetism Workshop、2013年11月15 - 17日、Daejeon (Korea) (招待講演)

介川裕章他、Mg-Al-Oバリアを有する強磁性トンネル接合、日本磁気学会学術講演会、2013年9月3 - 6日、北海道大学(北海道)

S. Mitani、A new tunnel barrier material in spintronics: MgAl₂O₄、Brain Korea Workshop、2012年4月26日、Seoul (Korea) (招待講演)

新関智彦他、フルエピタキシャルFe/bcc-Cu/MgO/Fe(001)強磁性トンネル接合に置くスピン依存量子井戸、応用物理学会学術講演会、2011年9月2日、山形大学(山形市)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/mmu/spin/indexJ.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

三谷 誠司 (MITANI, Seiji)

物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・グループリーダー

研究者番号：20250813

(2)研究分担者

葛西 伸哉 (KASAI, Shinya)

物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・主任研究員

研究者番号：20378855

介川 裕章 (SUKEGAWA, Hiroaki)

物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・主任研究員

研究者番号：30462518

(3)連携研究者

林 将光 (HAYASHI, Masamitsu)

物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・主任研究員

研究者番号：70517854

新関 智彦 (NIIZEKI, Tomohiko)

物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・NIMS ポスドク研究員

研究者番号：40567749

(4) 研究協力者

温 超振 (WEN, Zhenchao)

具 正祐 (KOO, Jungwoo)

シャイカ トーマス (SCHEIKE, Thomas)