

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 26 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656024

研究課題名(和文)新規酸化物成長法によるパーマロイ用コヒーレントトンネルバリアの創製

研究課題名(英文)Preparation of new coherent tunnel barriers for permalloy by modifying oxidation procedures

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) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性トンネル接合は、ハードディスクの読取ヘッドや磁気ランダムアクセスメモリに用いられており、スピントロニクスの中核的素子となっている。コヒーレントトンネル効果はその性能向上に寄与してきたが、適用可能な材料系がbcc-Fe系電極とMgO(100)バリアに限られていた。本研究では、新たにNiFe(111)電極等と組合せ可能なコヒーレントトンネルバリアの開発を目指し、NiFe(111)等の上で世界で初めてMgAlO系バリア材料を結晶化させ、エピタキシャル成長させることに成功した。従来のAlOバリアと比較すると、画期的な結果である。

研究成果の概要(英文)：Ferromagnetic tunnel junctions (MTJs) are the major device in spintronics, which are used for read heads of hard disk drives (HDDs) and magnetic random access memories (MRAMs). The coherent tunnel effect is of particular importance in enhancing the performance of MTJs, but the electrode and barrier materials usable for the coherent tunneling have been limited. In this study, for the first time we have successfully developed crystalline MgAlO and AlO barriers that are grown epitaxially on NiFe(111). It is expected that the new barriers bring about the coherent tunnel effect and resulting high magnetoresistance for MTJ structures with the unconventional crystallographic orientation.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：スピントロニクス 強磁性トンネル接合 コヒーレントトンネル パーマロイ 磁気メモリ素子

1. 研究開始当初の背景

強磁性トンネル接合は、現在の情報通信技術を支えるハードディスクの読取りヘッドに使用されており、また、次世代の重要なメモリデバイスとして期待されているスピン注入書込み磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) の中心素子である。その特性は、トンネル接合のエピタキシャル成長技術によってもたらされたコヒーレントトンネル効果によって格段に向上した。

コヒーレントトンネル効果は、結晶の対称性に一致した波動関数を持つ電子だけがトンネルする効果であり、結晶性 MgO バリアを用いた強磁性トンネル接合において見いだされた (Yuasa et al., Nature Mater. 3, 868 (2004))。これにより、室温で 100% を越える大きさのトンネル磁気抵抗効果 (TMR) が実現され、磁気記録や STT-MRAM に技術革新をもたらすとともに、学術的にも意義深く、結晶や波動関数の対称性がスピン依存トンネル効果に及ぼす効果の理解が進展してきた。しかし、コヒーレントトンネル効果による大きな TMR や関連する現象は、国内外のいずれの研究においても、Fe や FeCo、若しくは結晶化した FeCoB の bcc(100) 面と MgO(100) 面がエピタキシャルに積層した場合にしか得られておらず、研究開発対象となる物質系が極端に限定されているため、真にコヒーレントトンネルを理解したと言える段階には至っていない。理論的には、コヒーレントトンネルは bcc-Fe(100)/MgO(100) 系などに限られるものではなく、NiFe(111) や Co(111) に対してもエピタキシャル成長した結晶性トンネルバリアを作製できさえすれば、その観測、効果の確認は可能であると思われるが、そのようなトンネルバリアを作製する方法が見いだされていない。

研究代表者らは、最近、独自の成長条件を開発することにより MgAl₂O₄ (スピネル) や γ -Al₂O₃ が強磁性金属上にエピタキシャル成長し、コヒーレントトンネルによる大きな TMR が発現することを見いだした (Sukegawa et al. Appl. Phys. Lett. 96, 212505 (2010) & Sukegawa et al., in preparation)。これらの結果は、従来の常識を超えた新規酸化物や結晶方位を有する結晶性トンネルバリアの創製が可能であることを示唆している。

2. 研究の目的

結晶化スピネルトンネルバリア (MgAl₂O₄(100)) の研究を通じて独自に開発した酸化物超薄膜の成長法を利用・改良して、NiFe(111) (パーマロイ) や Co(111) などの上にスピネル系酸化物材料を中心とするコヒーレントトンネルバリアを成長させることを行う。(111) 面は(100)面と相当に異なる電子構造 (当該面に垂直方向の電子のエネルギーと

波数に関する分散関係が大きく異なる) を有するとともに、(111) 配向強磁性トンネル接合では、GMR 型磁気ヘッドの開発によって培われた(111)積層に関する種々の技術・知見を活用することができる。また、実験結果をもとに、その成長プロセス、エピタキシャル成長関係について学術的基礎を構築することにも注力する。TMR 等の輸送特性の評価を行い、従来全く想定されていなかった fcc(111)系におけるコヒーレントトンネル効果を考究することを狙う。

3. 研究の方法

(100) 方位のスピネルバリアを用いた研究によって蓄積した技術を用いて、NiFe(111) 面上等にエピタキシャル成長したトンネルバリア層の形成を行う。技術開発のみならず、金属上の酸化物超薄膜の低温プロセスによるエピタキシャル成長という観点で学術的理解を深めることも行う。強磁性トンネル接合構造も作製し、その磁気および磁気伝導特性を詳細に調べる。具体的には、以下のような項目を中心に研究を展開する。

- (1) スパッタ装置のガスラインや真空排気系を改めて整備し、酸化環境を精密に制御できるトンネル接合膜作製装置を用意する。
- (2) サファイヤ等の基板を用いることによって、(111) 面が高配向した NiFe 電極層を作製する。Mg_{1-x}Al_x (x=0 - 1) 系合金をスパッタして、NiFe(111) 上に MgAl 極薄層を形成し、それを酸化することによって MgAlO バリア層を成長させる。
- (3) 反射高速電子線回折 (RHEED) 像のその場観察により、成長させたバリア層の構造 (結晶性、配向) を評価する。
- (4) 成膜後熱処理による構造変化についても系統的に調べ、最適なバリア層の作製プロセスを考究する。
- (5) 上部強磁性電極層および反強磁性体によるピン層をバリア上に成長させることによって強磁性トンネル接合構造を完成させ、その磁気特性を振動試料型磁力計によって、TMR 等の磁気伝導特性を CIPT 法等によって評価



Fig.1. 強磁性トンネル接合試料の構造例。

する。バリア成長条件にフィードバックさせることによって一層の最適化を図る。必要に応じて適切なバッファ層についても検討を行う。Fig.1 に強磁性トンネル接合試料の一例を示した。

4. 研究成果

(1) スピネルバリアの形成過程

本研究の基盤となる Fe(100)層上のスピネルバリア (MgAlO) の成長過程について詳しく調べた結果、その挙動はかなり複雑であった。恐らく使用する装置にも依存すると思われる。科学的観点から一般的な傾向について言及すると、成長時の基板温度はあまり重要ではなく、反応性スパッタのように成長時の酸素供給が有効である傾向が得られた。ただし、過剰な酸素はターゲット表面の酸化をもたらす、アモルファスバリアの成長や電極層の酸化につながるため、ごく微量の酸素の導入が効果的であると考えられる。

また、結晶性の改善には成膜後のポストアニーリングがたいへん効果的であった。

(2) サファイヤ基板上的 NiFe/Spinel-barrier のエピタキシャル成長

エピタキシャル成長によって高品位のバリア層を得る際、下地となる電極層の結晶性が重要な因子になると考えられる。したがって、結晶性とその配向度に優れる強磁性電極層を得るために、単結晶サファイヤ基板 (A 面) を用いて NiFe 強磁性電極層を作製した。NiFe の酸化が生じないレベルのチャンバー背圧と成膜速度を選択した他に、基板の温度も室温より多少高い温度とした (装置の制約上、制御はしていない)。

Fig.2(a) にサファイヤ基板に得られた NiFe(111) 薄膜の RHEED 像を示す。非常に鋭いストリーク像が得られており、高い結晶性と高配向が得られていることが分かる。Fig.2(b) には、その上に形成したスピネル系バリアの例として、AlO の結果 (Mg=0) を示す。従来の常識では AlO は常にアモルファスになると考えられていたが、結晶化が確認できるとともに、よく配向した成長が実現されている。結晶方位の確認は出来ていないが、(111)面がエピタキシャル成長しているものと考えられる。なお、 γ -AlO の結晶構造はカチオン位置に空孔を含むスピネル構造である。

(111)積層における結晶性バリアの成長は、従来の常識を覆す世界初の結果であるが、研究の幅広い展開や応用まで考えた場合には、サファイヤのような単結晶基板ではなく、シリコン基板上に同等の構造を形成する必要がある。Fig.3(a) は、熱酸化シリコン基板上に、Ta バッファ層を用いて成長させた NiFe(111) 薄膜の RHEED 像である。サファイヤ基板の場合と比較すると結晶性は劣っているが、高配向した結晶が成長していることが分かる。Fig.3(b) はその上に成長させた AlO バリア層の RHEED 像である。驚くべきことに、

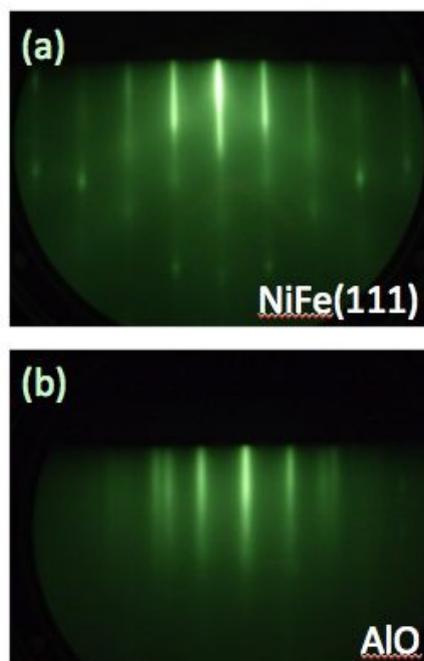


Fig.2. サファイヤ基板上に作製した (a) NiFe(111)層と (b) その上の AlO バリア層の RHEED 像。

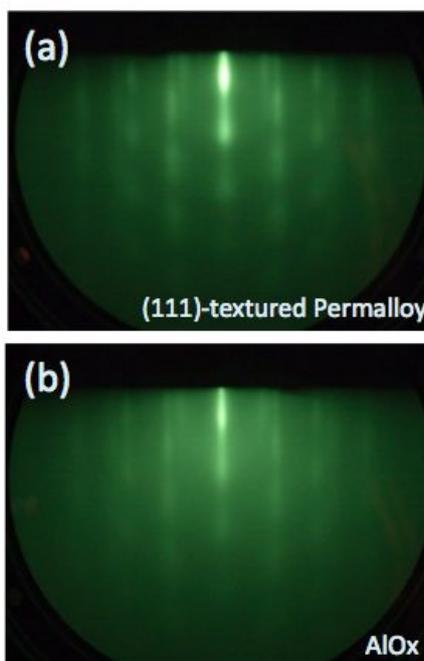


Fig.3. 熱酸化シリコン基板上に作製した (a) NiFe(111)層と (b) その上の AlO バリア層の RHEED 像。

この場合においても結晶化が生じており、また、エピタキシャル性が確認できる。バリア層の成長プロセスを適切に選ぶことによって、結晶化したバリア層が得られることを明示したデータである。また、旧来の実験においても、アモルファス構造と思っていたバリアの一部が結晶化していたような場合はあったの

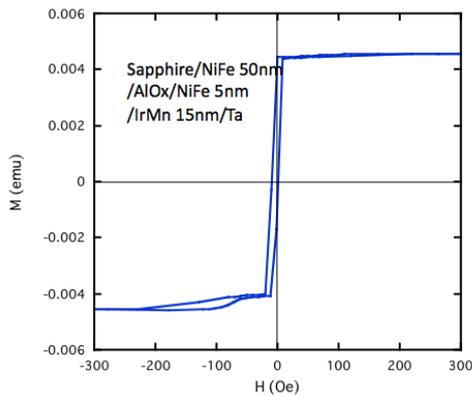


Fig.4. サファイヤ上に作製した強磁性トンネル接合構造 (NiFe/AlO/NiFe/ IrMn) の磁化曲線.

ではないかと推察される。

(3) 強磁性トンネル接合膜の作製と評価

Fig.4 は強磁性トンネル接合構造を完成させるために、サファイヤ基板/NiFe/AlO という構造の上に、上部 NiFe 層、IrMn ピン層を順次積層した試料の磁化測定の結果である。上下の NiFe 層の層厚の差が大きいため若干明瞭でない面もあるが、スピバルブ型強磁性トンネル接合に典型的な磁化曲線が得られている。

なお、TMR 効果については、成膜条件の最適化や成長機構の検討に時間を要したため、明確な実験結果を得るに至っていない。しかし、磁化の大きさからほぼ適切な積層構造が得られていると考えられるため、TMR を得るための適切な熱処理条件を確定すれば、一定の TMR 比が得られると期待される。

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0件)

〔学会発表〕(計5件)

S. Mitani, J.W. Koo, H. Sukegawa, S. Kasai and Z.C. Wen

“Perpendicular magnetic anisotropy in ultrathin ferromagnetic layer/tunnel barrier interface”

14th REIMEI Workshop on Spin Currents and Related Phenomena

Grenoble, France

February 9-13, 2014

招待講演

S. Mitani, J.W. Koo, Z.C. Wen and H. Sukegawa

“Interface perpendicular magnetic anisotropy in magnetic tunnel junctions”

International Japanese-French workshop on

Spintronics
Orsay, France
November 28, 2013
招待講演

S. Mitani, J.W. Koo and H. Sukegawa
“Preparation of epitaxial NiFe(111)/AlO ultrathin bilayers for high efficiency spin injector”
58th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials
Denver, USA
November 4-8, 2013

S. Mitani, J.W. Koo and H. Sukegawa
“Plasma-assisted crystallization of tunnel barriers: A new route for fabricating epitaxial magnetic tunnel junctions”
The 8th International Symposium on Metallic Multilayers
Kyoto ResearchPark, Kyoto
May 19-24, 2013

三谷誠司、具祐正、介川裕章
「スピネル系トンネルバリアの相変化」
応用物理学学会学術講演会、横浜国立大学
2012年9月11-14日

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕
出願状況(計0件)
取得状況(計0件)

〔その他〕
ホームページ等
<http://www.nims.go.jp/apfim/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

(3) 連携研究者

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

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