

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24年5月17日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560322

研究課題名（和文）強磁性トンネル接合界面における波動関数の対称性を測る

研究課題名（英文）Measuring symmetry of wavefunctions at an interface in a magnetic tunneling junction

研究代表者

櫻井 浩 (SAKURAI HIROSHI)

群馬大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：80251122

研究成果の概要（和文）：Fe/MgO 磁気トンネル接合（MTJ）界面における波動関数の対称性を磁気コンプトンプロファイル測定で調べた。さらに、DV-X α 法により MTJ 界面の理論計算と測定結果を比較した。その結果、MTJ 界面の Fe と層内部の Fe の波動関数の対称性は同じであった。一方、MTJ 界面の Fe が酸化すると波動関数の対称性が変化する。

研究成果の概要（英文）：Symmetry of wavefunctions at Fe/MgO magnetic tunneling junction (MTJ) interfaces was measured by magnetic Compton profile (MCP) measurements. Theoretical calculations by the DV-X α method for Fe/MgO MTJ were compared with the MCP measurements. The symmetry of wavefunctions is conserved at the MTJ interfaces. Fe oxidization at the MTJ interface deforms the symmetry of wavefunction.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：磁気工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：電気・電子材料，スピントロニクス，放射線・X線・粒子線

1. 研究開始当初の背景

MTJにおけるコヒーレントTMR効果と Δ 対称な波動関数

磁気トンネル接合（MTJ）では、トンネルコンダクタンスのspin依存性に基づいたトンネル磁気抵抗効果（TMR効果）が発現する。室温で18%という大きな磁気抵抗効果を実現した宮崎らの報告（T. Miyazaki and N. Tezuka, J. Magn. Mater. **139**, L231 (1995)）をきっかけに、磁気ランダムアクセスメモリー（MRAM）、再生磁気ヘッドなどTMRを利用したデバイスの研究が進展し、spin

エレクトロニクスという新しい分野が生まれ出されている。最近、Fe/MgO/Fe構造で180%のコヒーレントTMR効果（室温）が報告されており（S. Yuasa et al. JJP43, L588 (2004)），デバイス応用への期待が高まっている。

コヒーレントTMR効果の本質を理解するためには界面の電子状態を知ることが重要である。Fe/MgO/Fe接合では接合界面の波動関数の対称性が重要であり、 Δ 1対称の波動関数（磁気量子数 $|m|=0$ の対称性。4s, 4p電子の p_z , 3d電子の $3z^2-r^2$ ）のコヒーレントなトンネ

ル効果が大きなTMR効果のメカニズムであることが理論的に指摘された (W. H. Butler et al. PRB63, 054416 (2001))。したがって、MTJ界面の磁性電子の波動関数の対称性やコヒーレントトンネル状態にある電子を直接観測できれば有効な情報となる。

磁気コンプトンプロファイルによる波動関数の対称性の観測

波動関数の有力な観測手段としてコンプトンプロファイル, $J(p_z)$, がある。コンプトンプロファイルはエネルギースペクトラムを散乱に寄与した電子のX線散乱ベクトルに沿った運動量成分 p_z の関数に変換したスペクトラムで、バンド理論で表現すると以下の式で表される。

$$J(p_z) = \iint \rho(\mathbf{P}) dp_x dp_y, \rho(\mathbf{P}) = \sum_i^{occ} |\chi_i(\mathbf{P})|^2$$

$$\chi_i(\mathbf{P}) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi\hbar}} \right)^3 \int \psi_i(\mathbf{r}) \exp(-\frac{i\mathbf{P}\mathbf{r}}{\hbar}) d\mathbf{r} \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{P}=(p_x, p_y, p_z)$ は固体中の電子の運動量、 $\rho(\mathbf{P})$ は運動量密度、 $\chi_i(\mathbf{P})$ 、 $\psi_i(\mathbf{r})$ はそれぞれ運動量空間、実空間の一電子波動関数を表す。 Σ は電子によって占有されている状態すべてについて和をとることを意味する。コンプトンプロファイルは運動量密度の2重積分であるが、 p_z 方向を変えて異方性の測定をすれば、運動量密度分布の「形状」が観測できる。したがって、運動量密度を通じて運動量空間における波動関数 $\chi_i(\mathbf{P})$ の対称性を観測できる。高エネルギー円偏光X線を利用すると、以下の式で表される磁気コンプトンプロファイル, $J_{mag}(p_z)$, が観測される。

$$J_{mag}(p_z) = \iint (\rho_{maj}(\mathbf{P}) - \rho_{min}(\mathbf{P})) dp_x dp_y \quad (2)$$

ここで、 $\rho_{maj}(\mathbf{P})$ ($\rho_{min}(\mathbf{P})$) はマジョリティースピン (マイノリティースピン) の運動量密度を表す。したがって、磁気コンプトンプロファイルはアップスピンの運動量密度とダウンスピンの運動量密度の差を観測する。磁気コンプトンプロファイルの異方性の測定によって運動量空間におけるスピンの依存した波動関数の対称性が観測できる。

(“X-ray Compton Scattering” eds. M. J. Cooper, P. E. Mijnarends, N. Shiotani, N. Sakai and A. Bansil, Oxford University Press, New York, 2004)

そこで本研究では、磁気コンプトンプロファイル測定を利用し、MTJ界面の磁性電子の波動関数の対称性やコヒーレントトンネル状態にある電子の直接観測を試みる。なお、データの解析にあたり、DV-X α 法による理論計算と比較を行う。

2. 研究の目的

①DV-X α 法を用いた磁気コンプトンプロファイルシミュレーターの開発②Fe/MgO人工格子などの試料作製と界面の波動関数の対称性の観測③コヒーレントトンネル電子の波動関数の $\Delta 1$ 対称性の直接的観測への挑戦

3. 研究の方法

①公開されているソースコード (「はじめての電子状態計算 ~DV-X α 法分子軌道計算への入門~」、三共出版株式会社、足立裕彦監修、小和田善之、田中功、中松博英、水野正隆共著。)を基に、コンプトンプロファイルを計算するアルゴリズムとソースコードを開発した。

②PFスパッタリングによって、Alフォイル基板上にFe(xnm)/MgO(1nm)、 $x=10, 4, 2.5$ の3種類の多層膜と界面を意図的に酸化させたFe(4nm)/MgO(1nm)多層膜を作製した。参照試料として、Fe(xnm)/Al₂O₃(1nm)多層膜、Fe薄膜を作製した。多層膜の厚さは1 μ m、Fe薄膜の厚さは5 μ mであった。X線回折測定から、Fe多層膜は(100)配向、Fe薄膜は(110)配向であった。振動試料型磁力計 (VSM) によって磁化測定を行った。磁気コンプトンプロファイルはSpring-8-BL08Wにて行った。印可磁場は2.5Tで膜面に垂直である。

③磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性測定では測定磁場はAT ($0 < K < 2.5$)とした。

4. 研究成果

①DV-X α 法を用いた磁気コンプトンプロファイルシミュレーターの開発

DV-X α 法による分子軌道計算を用いてコンプトンプロファイルを計算するソースコードを開発した。交換エネルギー

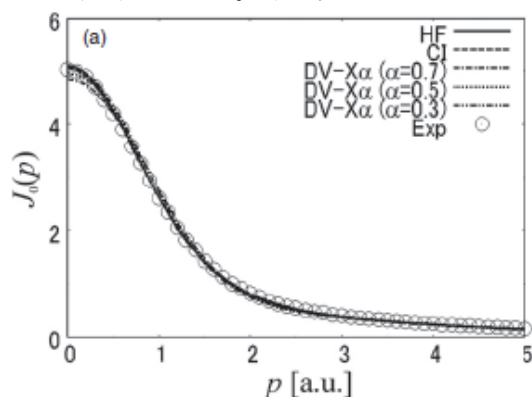


Figure 1

の寄与を評価するために、窒素ガスについてコンプトンプロファイルの α 依存性計算した。結果をFigure 1に示す。

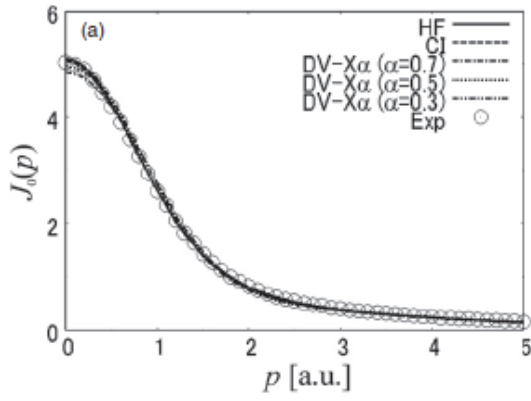


Figure 1

Figure 1 に示すように、いずれのいずれの α の値でも 2%程度の差で実験とほぼ一致している。そこで、 α の値として、従来から用いられている $\alpha=0.7$ を採用することとした。なお、高次の電子相関効果を考慮すると (CI 法) より実験結果を再現することがわかった。これらの研究成果は英国物理学会英文学術誌 J. Phys. B 編集者によって優れた論文として選出された。(雑誌論文①、②他。学会発表①、③他。その他①、⑤)

②Fe/MgO 人工格子などの試料作製と界面の波動関数の対称性の観測

界面の寄与を抽出するため Fe 層の厚さをかえた Fe(x nm)/MgO(1nm)、 $x=10, 4, 2.5$ の 3 種類の多層膜と界面を意図的に酸化させた Fe(4nm)/MgO(1nm) 多層膜の磁気コンプトンプロファイルの異方性を測定した。結果を Figure 2 に示す。なお、 $x=10$ の場合は界面

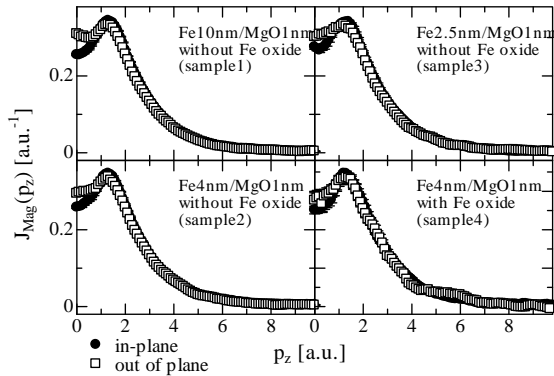


Figure 2

の寄与が少なく、bulk の Fe と考えてよい。 $x=2.5$ の場合は界面の寄与が大きい。この結果を解析し、Fe 層における波動関数の対称性を分離した。結果を Table 1 に示す。界面の寄与の割合をかえても、Fe3d 電子の磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ の割合 (波動関数の対称性) はあまりかわらない。以上から、Fe/MgO 界面では波動関数の対称性は変わっていないことが示された。一方、界面の Fe 層が酸化すると、 $|m|=0$ の寄与が減少し $|m|=1$ の寄与が増大して

いる。これは、界面の酸化によって波動関数

Table 1

	$ m =0$ $\pm 1.0\%$	$ m =1$ $\pm 1.2\%$	$ m =2$ $\pm 0.6\%$
Fe 10nm/MgO 1nm non-oxide	25%	30%	45%
Fe 4nm/MgO 1nm non-oxide	26%	30%	44%
Fe 2.5nm/MgO 1nm non-oxide	24%	32%	44%
Fe 4nm/MgO 1nm with oxide	21%	36%	43%

の対称性が変わることを示す。Table 2 に DV-X α 法によって理論的に計算した Fe3d 電子の $|m|=0, 1, 2$ の割合である。Fe/MgO 界面で

Table 2

	$ m =0$	$ m =1$	$ m =2$
Fe/MgO Fe-3d	24.0%	36.5%	39.5%
bcc Fe Fe-3d	23.2%	35.8%	41.0%
Fe/FeO Fe-3d in Fe	21.6%	40.7%	37.7%
Fe/FeO Fe-3d in FeO	20.3%	37.0%	42.7%

は磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ の割合が bulk Fe (bcc Fe) と同様である。一方、界面が酸化すると (FeO 形成されると)、 $|m|=0$ の寄与が減少し $|m|=1$ の寄与が増大する。これらの結果は、実験で観測された Table 1 の結果と一致する。以上から、①Fe/MgO 界面では Fe 層内部の Fe と同じ波動関数の対称性を有している。②界面の Fe 層が酸化すると、波動関数の対称性が変わることが示された。さらに、垂直磁気異方性を有する磁気多層膜の波動関数の対称性に着目した同様の研究がプレスリリースされ、リサーチフロンティア等に選出された。(雑誌論文④、⑥他。学会発表⑧、⑨、⑩、⑪、⑫他。その他⑦、⑪、⑫、⑬。)

③コヒーレントトンネル電子の波動関数の $\Delta 1$ 対称性の直接的観測への挑戦

コヒーレントトンネル電子の寄与を抽出する目的で、磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性を測定した。なお、印加磁場は膜面垂直方向である。測定した試料は Fe(4nm)/MgO(1nm)、Fe(4nm)/Al₂O₃(1nm)、Fe 薄膜である。いずれも磁気コンプトンプロファイルに磁場依存性が観測された。そこで、Fe 薄膜について、磁気コンプトンプロファイ

ルからスピン選択磁化曲線を求めて解析した。Figure 3 にスピン磁気モーメントのFe3d電子の寄与、伝導電子 (Fe4s4p電子) の寄与のおよび両者の和の磁場依存性を示す。○がFe3d電子のスピン磁気モーメント、◎が伝導電子 (Fe4s4p電子) のスピン磁気モーメント、●が全スピン磁気モーメントを示す。なお、磁気飽和しているときのスピン磁気モーメントの値で規格化して表示している。Fe3d電子のスピン磁気モーメントは全スピン磁気モーメントとほぼ同様である。さらに、振動試料型磁力計 (VSM) より求めた磁化曲線とも対応している。一方、伝導電子 (Fe4s4p電子) は1T (0.5K2.0) の範囲で有意にその寄与が減少している。DV-X α 法による理論計算では、隣接する磁気モーメントが反強磁性的に配列していると、スピン磁気モーメントにおける伝導電子 (Fe4s4p電子) 寄与が減少することが示された。磁壁では隣接する磁気モーメントが平行ではないので、磁気飽和していな状態で磁壁が生じ、伝導電子の寄与が減少したと考えられる。

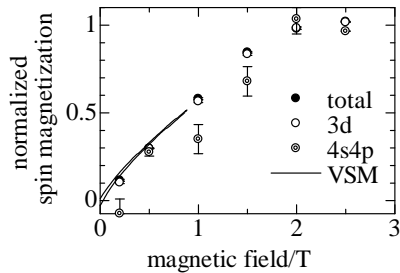


Figure 3

なお、希土類・遷移金属垂直磁化膜について本研究と同様のスピン選択磁化曲線の研究を行い、IUCr (国際結晶学連合) の highlighted article に選出され、プレスリリースされた。(雑誌論文③、⑤他。学会発表②、④、⑤、⑥他。その他②、③、④、⑤。)

以上をまとめると

- ① DV-X α 法を用いた磁気コンプトンプロファイルシミュレーターの開発に成功した。
- ② Fe/MgO磁気トンネル接合界面での波動関数の対称性はFe層内部と同じである。界面のFeが酸化されFeO層が生じると $|m|=0$ の寄与が減少し $|m|=1$ の寄与が増加する。その結果波動関数の対称性が変化する。
- ③ 磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性が見出された。コヒーレントトンネル電子の直接観測につながるかは、解析をすすめる必要がある。

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 15 件)

① Kohjiro Kobayashi, Kohei Murayama, Masayoshi Itou, Naruki Tsuji, Yoshiharu Sakurai and Hiroshi Sakurai, Analysis of autocorrelation functions calculated from Compton profiles of a N₂ molecule using the DV-X α method, J. Phys. B45, 035102 (2012). 査読あり

② Kohjiro Kobayashi, Masayoshi Itou, Tetsuo Hosoya, Naruki Tsuji, Yoshiharu Sakurai and Hiroshi Sakurai, Accurate Compton scattering measurements for N₂ molecules, J. Phys. B44, 115102 (2011). 査読あり

③ Akane Agui, Sayaka Matsumoto, Hiroshi Sakurai, Naruki Tsuji, Satoshi Homma, Yoshiharu Sakurai, and Masayoshi Itou, Microscopic Magnetization Process in Tb₄₃Co₅₇ Film by Magnetic Compton Scattering, Appl. Phys. Express, 4, 083002 (2011). 査読あり

④ 櫻井浩、伊藤真義、安居院あかね、磁気コンプトン散乱による磁性研究の新展開－垂直磁化膜の研究－, まぐね, 6, pp. 270-276 (2011). invited

⑤ A. Agui, H. Sakurai, T. Tamura, T. Kurachi, M. Tanaka, H. Adachi and H. Kawata, Application of magnetic Compton scattering for spin-specific magnetic hysteresis measurement, J. Synchrotron Rad. 17, pp. 321-324, (2010). 査読あり

⑥ M. Ota, M. Itou, Y. Sakurai, A. Koizumi and H. Sakurai, Perpendicular magnetic anisotropy in Co/Pt multilayers studied from a view point of anisotropy of magnetic Compton profiles, Appl. Phys. Lett. 96, 152505 (2010). 査読あり

他 9 件

[学会発表] (計 54 件)

① 櫻井浩, 小林幸次郎, 伊藤真義, 村山耕平, 辻成希, 櫻井吉晴, N₂分子のコンプトンプロファイルの精密測定 (23aJA-2), 日本物理学会秋季大会, 2011年9月23日, 富山大学

② Hiroshi SAKURAI, Shun EMOTO, Kosuke SUZUKI, Tadashi KATO, Masayoshi ITOU and Yoshiharu SAKURAI, Field dependence of magnetic Compton profile in magnetic tunneling junction, 4th International Conference on Advanced Science and Technology for Materials, Manufacturing

and Measurement, August 17-19, 2011, Seoul Technopark, Seoul, Korea.

③小林幸次郎, 細谷哲生, 辻成希, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 櫻井浩, 気体分子に対するDv-X α 分子軌道法によるコンプトンプロファイルの計算と実験の比較, 26TN5, 日本物理学会第66回年次大会, 新潟大学五十嵐キャンパス, 2011年3月26日.

④櫻井浩, 江本駿, 鈴木宏輔, 細谷溪, 加藤忠, 伊藤真義, 櫻井吉晴, Fe/MgO磁気トンネル接合膜の磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性, 26TN6, 日本物理学会第66回年次大会, 新潟大学五十嵐キャンパス, 2011年3月26日.

⑤Hiroshi Sakurai, Shun Emoto, Kei Hosoya, Kosuke Suzuki, Tadashi Kato, Masayoshi Itou and Yoshiharu Sakurai, Magnetic field dependence of magnetic Compton profiles in Fe/MgO multilayer, 2L05, 2nd International Conference on Advanced Micro-Device Engineering, Dec. 10th, 2010, Kiryu, Japan.

⑥櫻井浩, 磁気トンネル接合界面の電子状態, 大洗研究会 (アクチノイド分野), オフィス東京, 2010年11月30日.

⑦H. Sakurai, M. Ota, M. Itou, Y. Sakurai, A. Koizumi, Application of magnetic Compton profile to perpendicular magnetic anisotropy films, 7th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (IXS2010), Oct. 13th, 2010, Grenoble France.

⑧H. Sakurai, M. Ota, K. Suzuki, Y. Sakurai, M. Itou and A. Koizumi, Symmetry of chemical bonding of perpendicular magnetic anisotropy in multilayers, 3rd International Conference on Advanced Science and Technology for Materials, Manufacturing and Measurement (ICA3M 2010), Sep. 16th, 2010, Dalian, China.

⑨櫻井浩, 本間慧, 辻成希, 田村拓郎, 西野啓之, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 磁気コンプトン散乱によるFe/MgO界面の評価, 6B005, 第23回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 2010年1月6日-9日, イーグレひめじ

⑩櫻井浩, 本間慧, 西野啓之, 辻成希, 田村拓郎, 伊藤真義, 櫻井吉晴, 磁気コンプトン散乱によるFe/MgO界面の評価, 物構研シンポ

ジウム'09, つくば国際会議場, 2009年11月18日

⑪Satoshi Homma, Hiroshi Sakurai, Takuro Tamura, Naruki Tsuji, Yoshiharu Sakurai, Masayoshi Itou, and Takao Tsurui, Symmetry of Wavefunction at the Interface of Fe/MgO Magnetic Tunneling Junction, 2P10, 1st International Conference on Advanced Micro-Device Engineering, 10-11 December 2009, Kiryu, Japan.

⑫Hiroshi Sakurai, Takuro Tamura, Satoshi Homma, Naruki Tsuji, Yoshiharu Sakurai, Masayoshi Itou and Takao Tsurui, Symmetry of wavefunction at the interface of Fe/MgO magnetic tunneling junction, SAGAMORE XVI, August 2-7, 2009, Santa Fe (USA)

他 42 件

[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]

①ATEC 非常勤研究員・小林幸次郎博士の研究論文が英国物理学会学術誌 Journal of Physics, B: Atomic, Molecular and Optical Physics の研究ハイライト (Lab Talk) に選出工学部ニュース、平成 24 年 3 月 22 日、第 223 号

②群馬の大学研究室訪問ー群馬大・櫻井浩教授研究室訪問、上毛新聞、平成 23 年 12 月 26 日

③電子のスピン・運動軌道成分ー磁化を分離測定ー群馬大など、日刊工業新聞、平成 23 年 8 月 30 日

④電子の磁石特性「スピン」素材別に操作性測定ー群馬大や原子力機構、日経産業新聞、平成 23 年 8 月 9 日

⑤スピン成分と軌道成分を分離した磁化測定に成功ースピンエレクトロニクスデバイスの開発に指針ー (プレスリリース) 群馬大学, (独) 日本原子力研究開発機構, (財) 高輝度光科学研究センター, 2011年7月28日

⑥ Kohjiro Kobayashi, Masayoshi Itou, Tetsuo Hosoya, Naruki Tsuji, Yoshiharu Sakurai and Hiroshi Sakurai,

'Multi-excitation' for accurate description of 'the ground state', J. Phys. B, vol. 44, 115102 が編集者によって優れた論文として選出 (<http://iopscience.iop.org/0953-4075/la/46492>)

⑦ Hiroshi Sakurai, Symmetry of wavefunction in perpendicular magnetic anisotropy films, SPring-8 Research Frontiers 2010 選出 (p. 76)

⑧ 「国際結晶学連合「IUCrNewsletter」ハイライトに選出」工学部ニュース、2011年3月18日、第222号

⑨ IUCr (国際結晶学連合) Newsletter vol. 18 No. 2 Highlighted article に選出: 櫻井浩、田村拓郎他、「A. Agui, H. Sakurai, T. Tamura, T. Kurachi, M. Tanaka, H. Adachi and H. Kawata, Application of magnetic Compton scattering for spin-specific magnetic hysteresis measurement, J. Synchrotron Rad. 17, pp. 321-324, (2010) (<http://journals.iucr.org/services/newletter/newsletter-articles.html>)」

⑩ 高エネルギー加速器研究機構ハイライトに選出: 櫻井浩、田村拓郎他、「A. Agui, H. Sakurai, T. Tamura, T. Kurachi, M. Tanaka, H. Adachi and H. Kawata, Application of magnetic Compton scattering for spin-specific magnetic hysteresis measurement, J. Synchrotron Rad. 17, pp. 321-324, (2010), (<http://www.kek.jp/ja/news/highlights/2010/MagneticHysteresis.html>)」

⑪ 垂直磁気異方性と化学結合の形の関係を世界で初めて観測—高密度磁気記録開発の新たな指針— (プレスリリース) , SPring-8, 2010年4月12日

⑫ 「大容量HD原理解明」, 上毛新聞, 2010年4月13日

⑬ 「ハードディスクの高密度記録。群大など仕組み解明」日経新聞、2010年4月13日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

櫻井 浩 (SAKURAI HIROSHI)
群馬大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 80251122

(2) 研究分担者 なし
()

研究者番号:

(3) 連携研究者

櫻井 吉晴 (SAKURAI YOSHIHARU)
(財)高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・副主席研究員
研究者番号: 90205815

伊藤 真義 (ITOU MASAYOSHI)
(財)高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・副主席研究員
研究者番号: 10344392

河合 潤 (KAWAI JUN)
京都大学・工学(系)研究科(研究院)・教授
研究者番号: 60191996