

平成22年 6月 1日現在

研究種目：若手研究(スタートアップ)  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20840023  
 研究課題名(和文) MgO(001)単結晶基板を用いたトンネル型スピフィルター素子の実現  
 研究課題名(英文) Realization of tunneling-spin filter devices using MgO(001) substrates  
 研究代表者  
 田中 雅章(TANAKA MASAOKI)  
 名古屋工業大学・大学院工学研究科・助教  
 研究者番号：50508405

研究成果の概要(和文)：強磁性絶縁体  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  のトンネル型スピフィルター効果を検証した。 $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板上に作製した  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  と強磁性金属  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  によるトンネル磁気抵抗素子に対して磁気抵抗測定を行った結果、50 K で約 9%、110 K で約 4% のスピフィルター効果の検出に成功した。

研究成果の概要(英文)：Tunneling-spin filtering effect of ferromagnetic insulator  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  was studied. Magnetoresistance measurements were carried out for magnetic tunnel junctions using  $\text{Au}/\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  and ferromagnetic metal  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  electrodes fabricated on  $\text{SrTiO}_3(001)$  substrates. The spin filtering efficiency through  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  estimated from the tunnel magnetoresistance ratio was about 9% at 50 K and 4% at 110 K.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,320,000	396,000	1,716,000
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,520,000	756,000	3,276,000

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, トンネル型スピフィルター効果

## 1. 研究開始当初の背景

電子の持つ電荷だけでなく、電子のスピ情報も利用した「スピントロニクス」分野は、すでに実用化されているハードディスクの読み取りヘッドだけではなく、磁気ランダムアクセスメモリーなど次世代の情報処理デバイスへの応用が期待されている。スピントロニクスの要素技術として、スピ情報を持つ電子(スピ偏極電子)の異種材料への効

率的な注入法の開発が重要である。現在実用化されているスピ偏極電子の注入源はすべて強磁性金属である。強磁性金属をスピ偏極電子の注入に用いた場合、電気伝導度の違いが大きな材料ではスピ情報がほとんど消失するため、半導体分野へのスピントロニクス技術の応用を目指す上で大きな問題となっている。この問題に対して、いくつかの解決策が提案されており、その一つが強磁

性絶縁体を用いたトンネル型スピフィルター効果である。トンネル型スピフィルター効果とは、強磁性絶縁体層でのポテンシャルバリアの高さがトンネル電子のスピンの向きによって異なるため、特定の向きのスピンを持つ電子のみが選択的に通過する効果である。強磁性絶縁体によるトンネル型スピフィルター効果の研究はいくつかの研究グループで行われていたが、室温に近い温度での大きな効果の観測例はなかった。

## 2. 研究の目的

本研究ではキュリー温度が 280 K と比較的高く、良質な単結晶薄膜の作製が容易なダブルペロブスカイト構造のフェロ磁性絶縁体  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  をトンネルバリアに用い、できるだけ室温に近い温度で動作するトンネル型スピフィルター素子の実現を目指した。 $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  のトンネル型スピフィルター効果に関する先行研究では、150 K で 0.06% のスピフィルター効率が観測されたのみである。本研究では、まず  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  をトンネルバリアに用いて、高いスピフィルター効率を持つトンネル型スピフィルター素子の作製を目指した。次に高価な  $\text{SrTiO}_3(001)$  ステップ基板ではなく比較的安価な  $\text{MgO}(001)$  単結晶基板を用いて高いスピフィルター効率を示す  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  のトンネル型スピフィルター素子の作製を目指した。

## 3. 研究の方法

本研究では  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  のトンネル型スピフィルター効果の効率を評価するために、 $\text{SrTiO}_3(001)$  ステップ基板上に  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  層と強磁性金属である  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層を用いた磁気トンネル素子を用意した。磁気トンネル素子に対して  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  層と

$$TMR \text{ ratio} = \frac{2PP_{\text{ref}}}{1 - PP_{\text{ref}}} \quad (1)$$

$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層との平行・反平行磁化配置で生じるトンネル磁気抵抗(TMR)効果を測定した。この構造では、 $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  層をトンネルした電子のスピンの分極率を  $P$ 、 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層での伝導電子のスピンの分極率を  $P_{\text{ref}}$  とした場合、TMR 比とスピンの分極率  $P$ 、 $P_{\text{ref}}$  との関係は式(1)のように表される。

ここで用いている強磁性金属  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層は、理想的には、 $P_{\text{ref}} \sim 1$  であることが知られているため、TMR 測定からトンネル電流のスピンの分極率(スピン注入効率)  $P$  を計算することができる。

次に  $\text{MgO}(001)$  単結晶基板を用いたスピフィルター素子の作製を行った。素子構造は  $\text{SrTiO}_3(001)$  基板上のものと同じであり、パルスレーザー堆積法による  $\text{MgO}(001)$  基板上へ

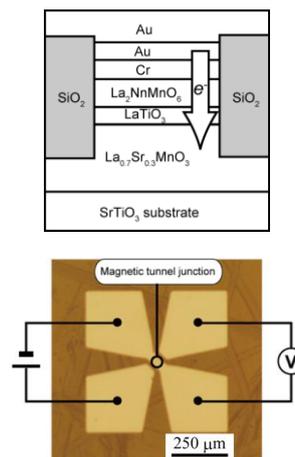


図 1 磁気トンネル接合素子の断面構造と光学顕微鏡像

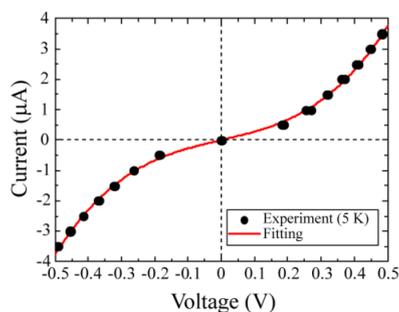


図 2  $I$ - $V$  曲線(5 K)とフィッティング曲線

の  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  の成膜条件を調べた後にスピフィルター構造の多層膜を作製した。

## 4. 研究成果

本研究では、まず  $\text{SrTiO}_3(001)$  基板上に、図 1 のような  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3 / \text{LaTiO}_3$  (0.8 nm) /  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  (3.2 nm) / Cr(2 nm) / Au(5 nm) 積層膜を作製した。酸化薄膜の作製にはパルスレーザー堆積法を用い、Cr, Au の成膜には電子ビーム蒸着法を用いた。ここで  $\text{LaTiO}_3$  は TMR 測定での磁化の平行・反平行状態を実現するために挿入している。積層膜中の各酸化層の成膜は基板温度 600 °C、酸素分圧 300 mTorr で行った。成膜後は、トンネル電流を縦方向に流すために、図 1 のような数  $\mu\text{m}$  程度の楕円形のピラーを、フォトリソグラフィとアルゴンイオンミリング、マグネトロンスパッタ法で作製した。

作製した MTJ 素子において理想的なトンネルバリアが形成されているかを確認するために  $I$ - $V$  測定を行った。図 2 の 5 K での  $I$ - $V$  曲線では、トンネル伝導特有の非線形性を示した。トンネル障壁層のバリアポテンシャルに対して印加電圧が小さく、ホッピング伝導が無視できる温度領域では、トンネル電流  $I$  と印加電圧  $V$  の間で式(2)に示す関係式が成

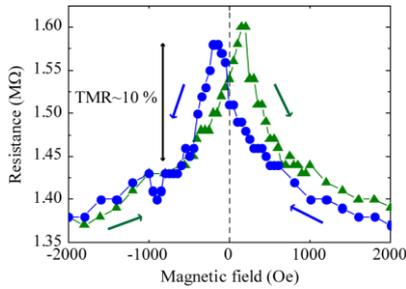


図 3 110 K でのトンネル磁気抵抗効果

$$I = \alpha \left[ V + \left( 0.0115 \frac{d^2}{\phi} - 0.0315 \frac{d}{\phi^{3/2}} \right) V^3 \right] \quad (2)$$

り立つことが知られている。

ここで、 $\alpha$  は比例定数、 $d$  (Å) はトンネルバリアの幅、 $\phi$  (eV) はバリアポテンシャルの高さである。式(2)を用いて  $I-V$  曲線をフィッティングすることで、 $d$  と  $\phi$  を見積ることができる。 $I-V$  曲線のフィッティング結果を図 2 に示す。 $d$  を計算したところ、トンネルバリアの幅は、 $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  の設計膜厚より小さくなり、設計値より薄い部分が生じている可能性があることがわかった。

110 K における TMR 測定の結果を図 3 に示す。外部磁場を変化させることで低磁場付近に急激な抵抗の変化が見られる。これは  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  層と  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層の間の磁化配置が起因する TMR 効果によるものと考えられる。 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  固有の CMR 効果の寄与を概算して差し引いて MTJ 素子の TMR 効果を見積ったところ、TMR 比は 50 K で 19 %、110 K で 10 % となった。今回作製した  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層はハーフメタルであり、スピン分極率  $P_{\text{ref}} \sim 1$  と仮定した場合、トンネル電流のスピン分極率  $P$  を式(1)から計算すると、50 K では  $P \sim 9\%$ 、110 K では  $P \sim 4\%$  となった。この値はこれまで得られていた  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  のスピンフィルター効率の値よりもはるかに大きく、トンネル型スピンフィルター素子の作製法の改善に成功した。また本研究から、 $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  がトンネル型スピンフィルター素子のトンネルバリア層として有効であることが明らかになった。

$\text{MgO}$ (001) 単結晶基板を用いて磁気トンネル素子を作製するために、 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層のヘテロエピタキシャル成長を行った。 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層の成膜には、パルスレーザー堆積法を用い、基板温度を  $600^\circ\text{C}$  に固定して蒸着時の酸素圧を 10, 100, 300 mTorr と変えて作製した。これらの単層膜に対して SQUID 磁束計を用いて飽和磁化量及びキュリー温度を評価したところ、酸素圧を上げて成膜することで飽和磁化量が大きく、300 mTorr で単位格子あたり  $3.0\mu_B$  程度となった。これは

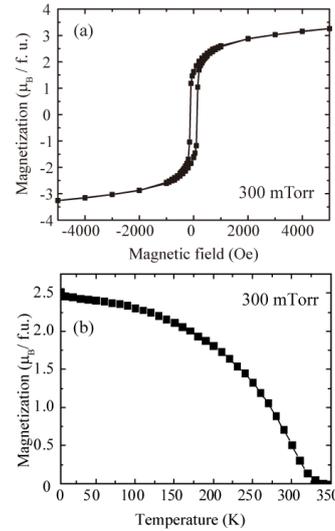


図 4 (a)  $\text{MgO}$ (001) 基板上的  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  の磁化曲線. (b)  $\text{MgO}$ (001) 基板上的  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  の磁化の温度依存性曲線

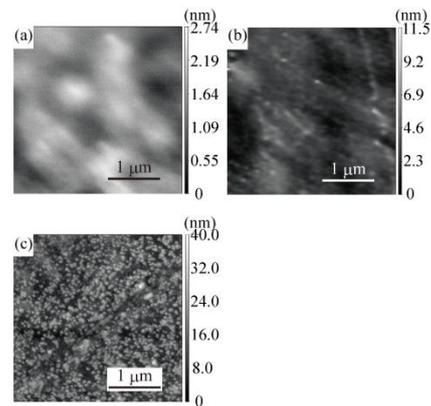


図 5  $\text{MgO}$ (001) 基板上的  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  の原子間力顕微鏡像. (a) 10 mTorr (b) 100 mTorr (c) 300 mTorr

$\text{SrTiO}_3$ (001) 基板上に成膜した  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  薄膜よりもバルク値に近い。また、キュリー温度も高い酸素圧で成膜するほど高くなり、300 mTorr で 320 K と比較的バルク値に近いことがわかった(図 4)。次に作製した単層膜の表面平坦性を原子間力顕微鏡で評価した。図 5 に示すように、表面の粗さは酸素圧が高くなるほど大きくなり、300 mTorr の試料では表面平均粗さは約 4.5 nm となることがわかった。以上の結果を踏まえて、 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  層を  $\text{MgO}$  基板上に作製し、その上に  $\text{LaTiO}_3/\text{La}_2\text{NiMnO}_6/\text{Cr}/\text{Au}$  多層膜を作製した。 $\text{LaTiO}_3/\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  層は  $\text{SrTiO}_3$ (001) 基板を用いた研究で得られた条件を用いた。X 線回折測定により、 $\text{SrTiO}_3$ (001) 基板上的多層膜と同程度の結晶構造の多層膜が得られることがわかった。磁気トンネル接合に加工を行

った。磁気トンネル接合素子に対して低温下で電気伝導評価を行ったが、研究期間内では明確なトンネル磁気抵抗効果は現れなかった。今後は、トンネルバリア層の膜厚の最適化をさらに検討する必要があると考えている。

以上のように本研究では SrTiO<sub>3</sub>(001)基板を用いて La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> をトンネルバリアに用いてこれまでよりも高いスピフィルター効率を達成することができた。本研究期間内には MgO(001)基板を用いて作製した磁気トンネル接合素子では明確なトンネル型スピフィルター効果の観測には至らなかったが、観測に必要な磁氣的性質の良い下部電極 La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> 層の作製手法を確立した。

#### 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3件)

- ① M. A. Tanaka, Y. Shiji, T. Katsuragi, Y. Miyazaki, K. Mibu, K. Kondou, S. Kasai, T. Ono 「Magnetic and transport properties of spin-filtering tunnel junctions using magnetic insulator La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub>」 Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 200, 2010, pp. 062032\_1-062032\_4.
- ② 桂木敏文, 宮崎悠也, 志治佑一, 田中雅章, 壬生攻, 近藤浩太, 葛西伸哉, 小野輝男「強磁性 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> トンネルバリアを用いたスピフィルター効果の評価」信学技報, 査読無, Vol. MR2009-65, 2010, pp. 39-43.
- ③ 田中雅章, 桂木敏文, 宮崎悠也, 志治佑一, 壬生攻, 近藤浩太, 小野輝男, 葛西伸哉「強磁性絶縁体 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> を用いたトンネル型スピフィルター素子の磁気特性及び電気伝導特性」電気学会マグネティックス研究会資料, 査読無, Vol. MAG-09-168, 2009, pp. 1-4.

[学会発表] (計8件)

- ① 桂木敏文, 宮崎悠也, 志治佑一, 田中雅章, 壬生攻, 近藤浩太, 葛西伸哉, 小野輝男「強磁性 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> トンネルバリアを用いたスピフィルター効果の評価」電子情報通信学会情報記録・情報ストレージ研究会, 2010年3月12日, 名古屋大学.
- ② 田中雅章, 桂木敏文, 宮崎悠也, 志治佑一, 壬生攻, 近藤浩太, 小野輝男, 葛西伸哉「強磁性絶縁体 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> を用いたトンネル型スピフィルター素子の磁気特性及び電気伝導特性」電気学会マグネティックス研究会, 2009年12月1日, サンヒルズ三河湾.

- ③ 桂木敏文, 宮崎悠也, 志治佑一, 田中雅章, 壬生攻, 近藤浩太, 葛西伸哉, 小野輝男「強磁性絶縁体 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> を用いたトンネル型スピフィルター素子の磁気特性および電気伝導特性評価」日本物理学会 2009年秋季大会, 2009年9月25日, 熊本大学.
- ④ Masaaki Tanaka, Yuichi Shiji, Toshifumi Katsuragi, Yuya Miyazaki, Ko Mibu, Kouta Kondou, Shinya Kasai, Teruo Ono 「Magnetic and transport properties of spin-filtering tunnel junctions using magnetic insulator La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub>」 ICM2009, 2009年7月27日, Karlsruhe, Germany.
- ⑤ M. A. Tanaka, Y. Shiji, T. Katsuragi, Y. Miyazaki, K. Mibu 「Properagation of spin-filtering- tunnel junctions using magnetic insulator La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> on MgO substrate」 MORIS2009, 2009年6月16日, Hyogo, Japan.
- ⑥ 田中雅章, 志治佑一, 桂木敏文, 宮崎悠也, 壬生攻, 近藤浩太, 小野輝男, 葛西伸哉「La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> を用いたトンネル型スピフィルター素子の磁気抵抗測定」第64回日本物理学会年次大会, 2009年3月28日, 立教大学.
- ⑦ 志治佑一, 桂木敏文, 宮崎悠也, 田中雅章, 壬生攻「強磁性絶縁体 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> を障壁層としたトンネル接合におけるスピフィルター効果の検証」IEEE Magnetics Society 名古屋支部若手研究会, 2009年3月16日, 名古屋大学.
- ⑧ 田中雅章「強磁性絶縁体 La<sub>2</sub>NiMnO<sub>6</sub> によるトンネル型スピフィルター素子」第3回多元機能・エネルギー変換セラミックス研究会, 2009年3月5日, 名古屋工業大学.

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

田中 雅章 (TANAKA MASAACKI)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・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