

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 4 月 30 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2011

課題番号：21246001

研究課題名（和文）垂直磁化トンネル接合の創製とスピン注入磁化反転

研究課題名（英文）Fabrication of perpendicular magnetized tunnel junction and magnetization reversal by spin injection

研究代表者

宮崎 照宣 (MIYAZAKI TERUNOBU)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・教授

研究者番号：60101151

研究成果の概要（和文）：

将来の高密度磁気メモリ対応のメモリセル材料を開発することを目的とし、単結晶 Mn_xGa_{1-x} ($0.5 \leq x \leq 0.75$) 合金薄膜について、メモリセルとして必要な磁気特性（飽和磁化 M_s 、垂直磁気異方性 K_u およびギルバードダンピング定数 α ）を調べた。 M_s は x の増加に伴って 600 emu/cc から 200 emu/cc に直線的に減少した。これに対して K_u の減少はわずかで、15 Merg/cc から 10 Merg/cc の変化である。ダンピング定数 α は $Mn_{1.54}Ga$ ($Mn_{2.12}Ga$) の組成で 0.08 (0.015) であった。これ等の特性はメモリ材料として要求される特性を満足している、

更に、Mn-Ga 合金膜を電極としたトンネル接合を作製し、10 K と 300 K で磁気抵抗効果 (TMR) を調べた。Mn-Ga 電極とトンネル障壁 (MgO) の間に僅かの Fe (Co) を挿入することにより、室温で 60 (40) % の TMR 比を得た。この値については更に向上させる必要がある。

研究成果の概要（英文）：

In order to develop a memory cell material which is applicable to high density magnetic random access memory (MRAM), the composition dependence on saturation magnetization M_s , perpendicular magnetic anisotropy constant K_u and Gilbert damping constant α have been investigated in epitaxial Mn_xGa_{1-x} ($0.5 \leq x \leq 0.75$) alloy films. The M_s values decrease linearly from approximately 600 to 200 emu/cc with increasing x , where as the K_u values decrease slightly from 15 to 10 Merg/cc with increasing x . The damping constant α is 0.08 (0.015) for $Mn_{1.54}Ga$ ($Mn_{2.12}Ga$) film. These magnetic properties satisfy the requirement for memory cell.

Furthermore, by using Mn-Ga alloy films as the electrode of tunnel junction, we investigated the magnetoresistance ratio at 10 K and 300 K. With an insertion of Fe (Co) between Mn-Ga electrode and tunnel barrier the maximum TMR value up to 60 (40) % is obtained at room temperature. An increase of TMR value is necessary for MRAM memory cell.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	26,700,000	8,010,000	34,710,000
2010年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
2011年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
年度			
年度			
総計	36,700,000	11,010,000	47,710,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学工学基礎・応用物性学結晶工学

キーワード：スピントロニクス、磁気メモリ、トンネル接合、TMR 比

1. 研究開始当初の背景

約 7 年前にスピンを直接注入することにより磁化を反転することが可能になり、これを大容量メモリに応用しようとする研究が始められた。また、磁化反転の際の電流密度を下げるため、磁化を膜面内から面に垂直にした、垂直磁化トンネル接合の研究が約 3 年前から始まった。多くの研究者が従来から知られている垂直磁化膜を用いた研究をはじめたのにたいし、申請の研究では新しい垂直磁化メモリセル材料の開発に取り組んだ。

2. 研究の目的

飽和磁化が 800 Gauss 以下、垂直磁気異方性が 1×10^7 erg/cc で将来 1 Gbit 程度の大容量メモリに対応できる材料を開発することである。特に、反転電流密度を下げるために、ダンピング定数 α および飽和磁化の小さな材料に着目した。

3. 研究の方法

材料の探索では従来全く調べられていない Mn-Ga 系とある程度データのある Co-Cr 系について、スパッタ法により薄膜を作製し、磁化、磁気異方性並びにダンピング定数について測定した。更に、これらに磁性体を電極としたトンネル接合を作製し、磁気抵抗比 (TMR 比) を調べた。

4. 研究成果

(1) Mn-Ga 規則合金単結晶薄膜の作製と磁気特性の解明

① 2×10^7 erg/cm³ の大きな垂直磁気異方性を有する $L1_0$ Mn-Ga 合金の単結晶薄膜の作製に成功した。

② Mn-Ga 単結晶薄膜が高い垂直磁気異方性を保ちつつ、飽和磁化を組成を変えることで 200-600 emu/cm³ の範囲で調整可能な材料であることを磁気特性の組成依存性より見出した。

③ $L1_0$ および $D0_{22}$ -Mn-Ga 合金単結晶薄膜の磁化のダイナミクスをポンプ・プローブ法によって調べ、それぞれの合金の磁気摩擦定数 α が 0.008 および 0.02 と従来の垂直磁化材料の 1/10 程度と非常に小さいことを明らかにした (図 1, 2)。

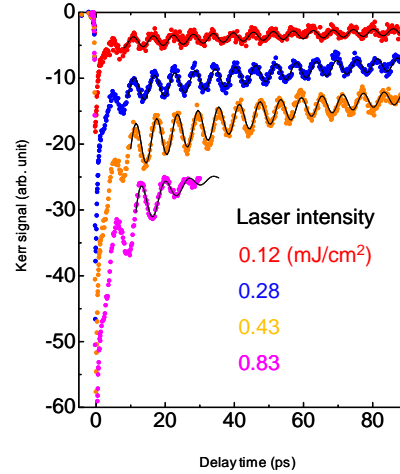


図 1. $Mn_{3-\delta}Ga$ ($\delta = 1.46$) 単結晶膜 (膜厚: 100 nm, 垂直磁気異方性定数 $K_u = 15 \text{ Merg/cc}$) の Kerr 信号の時間変化。10.4 kOe の磁界を膜面垂直方向から 80° の方向に印加して測定。

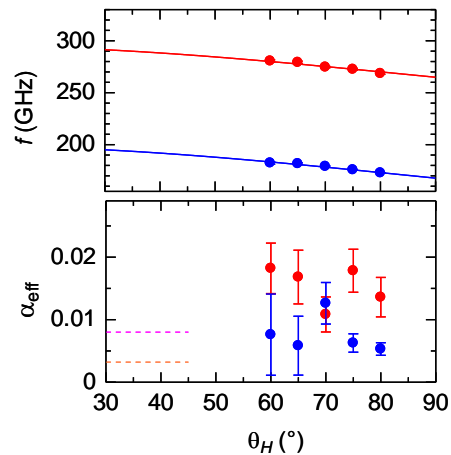


図 2. $Mn_{3-\delta}Ga$ 膜 $\delta = 0.88$ (赤)、1.46 (青) のスピンの才差運動の周波数の θ_H 依存性 (上図) と対応するダンピング定数 α の θ_H 依存性 (下図)。 θ_H は膜面法線方向と印加磁界 (10.4 kOe) のなす角度。

(2) 垂直磁化 Mn-Ga 電極/MgO 障壁層を有するトンネル接合における磁気抵抗効果の観測

① 世界で初めて Mn-Ga/MgO/CoFe トンネル接

合(MTJ)におけるトンネル磁気抵抗効果の観測に成功した。TMR比は室温9.8%, 低温22%である(図3)。

② Mn-Ga/MgO/CoFe MTJにおけるトンネル磁気抵抗変化率のMn-Ga組成依存性を調査し、Mn ~ 60 at.%近傍の組成が高熱処理耐性を有する素子作製に最適であることを明らかにした(図4)。

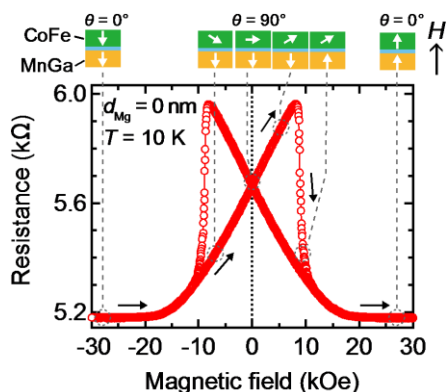


図 3. MgO(100) 基板 /Cr(40)/Mn_{2.4}Ga(30)/Mg(d_{Mg})/MgO(2.0)/CoFe(2.5)/Ta(10) (括弧内は膜厚 nm) トンネル接合の MR カーブ。TMR 比は室温、10K でそれぞれ 7%, 17.5%。上図はそれぞれの磁性層の磁化の向きを模式的に示した。膜面に垂直に磁界を印加している。

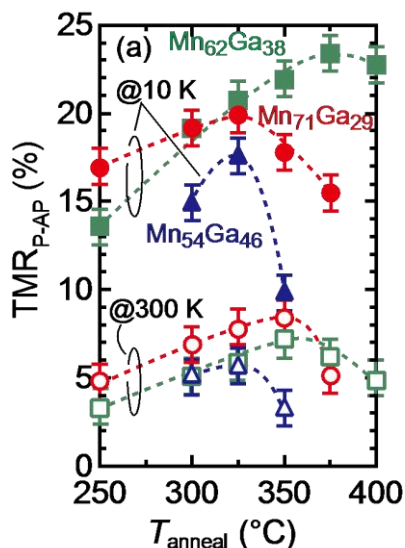


図4. MgO(100) 基板/Cr(40)/Mn-Ga(30)/Mg(0.4)/MgO(2.2)/CoFe(2.5)/Ta(5) Ru(5) (括弧内は膜厚nm) トンネル接合のTMR比のアニール温度依存性。Mn-Gaの三組成について10Kと300Kでの値を示している。

(3) MTJの障壁層界面修飾による磁気抵抗変化率の向上

① 極薄Fe層をMn-Ga/MgO界面に製膜することで室温におけるTMR比を57%まで向上させた(図5, 6)。

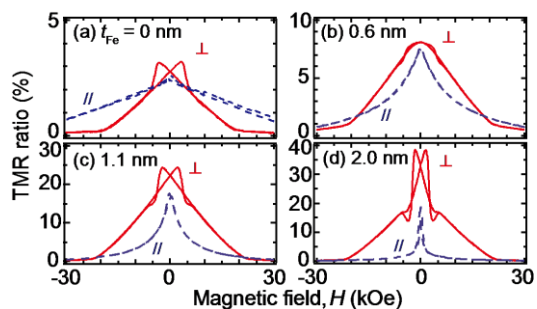


図5. MgO(100) 基板/Cr(40)/L1₀-Mn₆₂Ga₃₈(30)/Fe(t_{Fe})/Mg(0.4)/MgO(2.2)/CoFe(2.5)/Ta(5)/Ru(5) (括弧内は膜厚nm) トンネル接合のMRカーブ。赤は膜面に垂直に磁界を印加、青は膜面に印加。

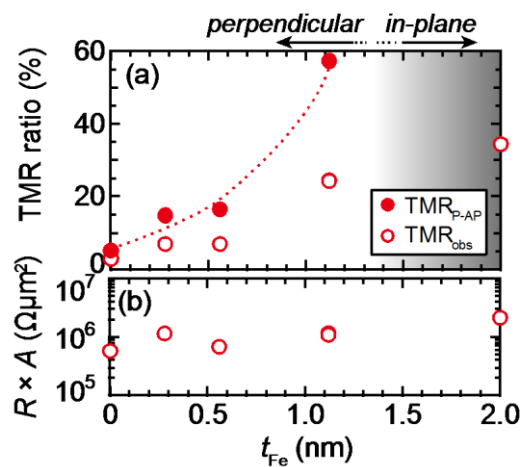


図6. 5図に示したトンネル接合のTMR比(a)とRA(b)の挿入したFe層の厚さ依存性。TMR_{obs}は実測値。TMR_{P-AP}はCoFe層とMnGa層の磁化が反平行になった場合を仮定しての値。

② 極薄Co層をMn-Ga/MgO界面に製膜することでTMR比を室温で40%まで向上させるとともに、Mn-Gaの磁化とCoの磁化とが反平行結合することを見出した(図7, 8)。

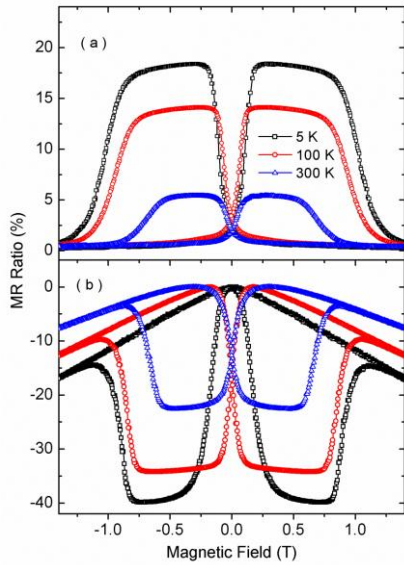


図7. MgO(100)基板/Cr(40)/L₁₀-Mn₆₂Ga₃₈(30)/Co(t=0)/Mg(0.4)/MgO(1.8)/CoFeB(1.2)/Ta(5)/Ru(7) (括弧内は膜厚nm) トンネル接合のMRカーブ。図中の温度は測定温度。磁界は膜面に垂直に印加。

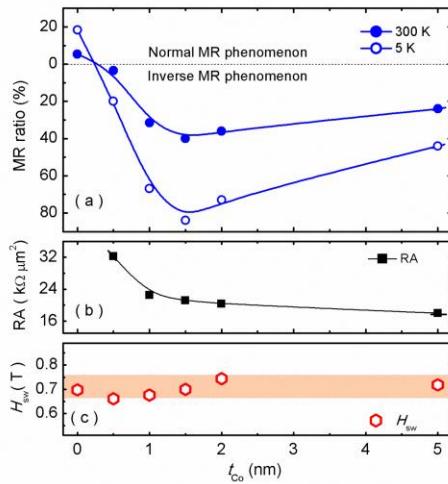


図 8. 7 図のトンネル接合で挿入した Co 厚 (t_{Co}) を変えた場合の MR 比(a), RA(b)および磁化の反転する磁界(c)の t_{Co} 依存性。Mn-Ga 合金材料において初めて見出された一連の物性に加え、開発された薄膜を用いた MTJ におけるトンネル磁気抵抗効果の観測と、磁気抵抗変化率の向上はデバイスの実用化を飛躍的に加速し得る重要な成果である。また本研究課題で見出した Mn-Ga 合金薄膜の物性は、高磁気異方性材料の磁化ダイナミクス

の解明に貢献し得る結果であり、学術的にも大きな意義を持つ成果でもある。

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)

(1) 雑誌論文 (計 26 件) 全て査読有

1. Annealing temperature and Co layer thickness dependence of

magnetoresistance effect for

L10-MnGa/Co/MgO/CoFeB perpendicular

magnetic tunnel junctions Q. L. Ma, T.

Kubota, S. Mizukami, X. M. Zhang, H.

Naganuma, M. Oogane, Y. Ando and T.

Miyazaki (accepted to IEEE). (2012)

2. Composition dependence of magnetic

properties in perpendicularly

magnetized epitaxial thin films of Mn-Ga

alloys, S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X.

Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma,

Y. Ando, and T. Miyazaki, Phys. Rev. B **85**,

014416 (2012).

3. Fabrication of L10-MnAl

perpendicularly magnetized thin films

for perpendicular magnetic tunnel

junctions, Masaki Hosoda, Mikihiro

Oogane, Miho Kubota, Takahide Kubota,

Haruaki Saruyama, Satoshi Iihama,

Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando,

J. Appl. Phys. 111, 07A324 (2012).

4. Long-Lived Ultrafast Spin Precession

in Manganese Alloys Films with a Large

Perpendicular Magnetic Anisotropy, S.

Mizukami, F. Wu, A. Sakuma, J. Walowski,

D. Watanabe, T. Kubota, X. Zhang, H.

Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T.

Miyazaki Phys. Rev. Lett. **106**, 117201 (2011).

5. Composition dependence of

magnetoresistance effect and its

annealing endurance in tunnel junctions

using Mn-Ga high perpendicular magnetic

anisotropy electrode, T. Kubota, M.

Araidai, S. Mizukami, X. Zhang, Q. Ma, H.

Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, M. Tsukada, and T. Miyazaki, Appl. Phys. Lett. **99**, 192509 (2011).

6. Magnetoresistance Effect in Tunnel Junctions with Perpendicularly Magnetized $\text{DO}_{22}\text{-Mn}_{3-\delta}\text{Ga}$ Electrode and MgO Barrier, T. Kubota, Y. Miura, D. Watanabe, S. Mizukami, F. Wu, H. Naganuma, X. Zhang, M. Oogane, M. Shirai, Y. Ando, and T. Miyazaki, Appl. Phys. Express **4**, 043002 (2011).

7. Gilbert Damping in Ni/Co Multilayer Films Exhibiting Large Perpendicular Magnetic Anisotropy, S. Mizukami, X. Zhang, T. Kubota, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, Appl. Phys. Express **4**, 013005 (2011).

8. Time-resolved Kerr effect for very thin films of CoCrPt Alloy, S. Mizukami, D. Watanabe, T. Kubota, X. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, IEEE Trans. Magn. **47**, 3897 (2011).

9. Influence of composition on structure and magnetic properties of epitaxial Mn-Ga films, F. Wu, S. Mizukami, D. Watanabe, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, J. Phys. Conf. Series **266**, 012112 (2011).

10. Epitaxial $\text{Mn}_{2.5}\text{Ga}$ thin films with giant perpendicular magnetic anisotropy for spintronic devices, Feng Wu, Shigemi Mizukami, Daisuke Watanabe, Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, Yasuo Ando, and Terunobu Miyazaki, Appl. Phys. Lett., **48** (2009) 122503.

(2) 学会発表 (計 58 件)

1. Tetragonal Heusler-like alloy films with perpendicular magnetic anisotropy for spin torque applications S. Mizukami and T. Miyazaki, Spring Meeting in German Physical Society (DPG spring meeting), Berlin, March 29, 2012.

2. Magnetoresistance Effect in $\text{Ll}_0\text{-MnGa/MgO/CoFe}$ Junctions, T. Kubota, M. Araidai, Y. Miura, S. Mizukami, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, M. Shirai, M. Tsukada, and T. Miyazaki, 5th International Workshop of Spin Currents, Sendai, July 27 (2011).

3. Time-resolved Kerr effect in very thin films of CoCrPt alloy, S. Mizukami, D. Watanabe, T. Kubota, X. Zhang, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, International Conference of

Magnetics 2011 (Intermag2011), April 28, Taipei, 2011.

4. Perpendicularly Magnetized Tetragonal Heusler-like Alloy Films for Spin Torque Applications, S. Mizukami, T. Kubota, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, and T. Miyazaki, 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Scottsdale/Arizona, USA, October 31, 2011.

5. Heusler alloy electrode tunnel junction, Terunobu Miyazaki, Daisuke Watanabe, Shigemi Mizukami and Feng Wu, Takahide Kubota, Sumito Tsunegi, Hiroshi Nagahama, Mikihiko Oogane and Yasuo Ando German Physical Society, Regensburg, March 22, 2010

(3) [図書] (計 1 件)

Terunobu Miyazaki and Jin Hanmin, Springer, The Physics of Ferromagnetism, (2012) (印刷中、約 250 ページ)

(4) [産業財産権]

○出願状況 (計 2 件)

名称: 組成変調型 Mn 系垂直 MTJ 材料

発明者: 加藤侑志、宮崎照宣他

権利者: 東北大学、東芝 (株)

種類: 特許

番号: 特願 2012-064344

出願年月日: 2012 年 3 月 21 日

国内外の別: 国内

名称: 磁気抵抗素子およびそれを用いたランダムアクセスメモリ

発明者: 宮崎照宣、他 13 名

権利者: 東北大学、東芝 (株)、産総研

種類: 特許

番号: 特願 2011-068868

出願年月日: 2011 年 3 月 25 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

(5) [その他]

ホームページ等

http://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/miyazaki_lab/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宮崎 照宣 (Miyazaki Terunobu)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・
教授

研究者番号：60101151

(2) 研究分担者

水上 成美 (Mizukami Shigemi)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・
准教授

研究者番号：00339269

大兼 幹彦 (Oogane Mikihiko)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：50396454