

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 12 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22686001

研究課題名(和文) 1000%以上の磁気抵抗比を有する二重トンネル接合素子の磁気抵抗メカニズムの解明

研究課題名(英文) Investigation of large tunnel magnetoresistance of 1000% in double tunnel junctions

研究代表者

永沼 博 (Naganuma, Hiroshi)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60434023

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,900,000円、(間接経費) 5,970,000円

研究成果の概要(和文)：二重トンネル接合素子の磁気抵抗効果について明らかにするためにゲートバイアス電圧依存性および界面の極微構造について系統的な調査を行った。ゲートバイアスはトンネル接合部位の横方向から印加できる素子を新たに作製した。その結果、ゲートバイアス電圧によりクーロンブロックが変調できている可能性が示唆される結果を得た。しかし、その変調効果は弱く、ゲート間距離を短くしてバイアス効果を高める必要があることがわかった。また、高分解電子顕微鏡観察から原子拡散と歪みが印加されていることがわかった。本研究によりゲート変調による磁気抵抗比の増大は得られたものの増大量は理論予測よりかなり低いことがわかった。

研究成果の概要(英文)：Gate bias voltage dependence and systematic investigation of microscopic structure at the interface was carried out in order to clarify the magnetoresistance effect of the double magnetic tunnel junctions (DBMTJs). Gate bias was made a noble element by the side-gate system in the DBMTJs. As a result, Coulomb blockade tunneling was modulated by the side-gate bias voltage. However, the modulation effect is weak, and it was found that it is necessary to increase the bias voltage effect by decreasing the distance between the two side-gates. Further, atomic diffusion and strain was observed by high resolution transmission electron microscopy observation. Increase of the magnetoresistance ratio due to gate modulation was obtained by the present study; however, the enhancement was found to be significantly lower than the theoretical prediction.

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：磁気抵抗 トンネル素子 MgO障壁

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクス分野では、磁気ヘッドの高感度化および不揮発性磁気メモリのスピン注入効率を高めるために高い磁気抵抗比を得ることが必要となっている。これまでにハーフメタルのホイスト合金、LaSrMnO<sub>3</sub> ペロブスカイト酸化物などを強磁性電極として、MgO を障壁層としたトンネル接合素子において高い磁気抵抗比が報告されている。しかし、従来型の強磁性電極の二枚を MgO 障壁で挟んだトンネル磁気抵抗素子では磁気抵抗比の増大には限界が見えており、従来型の磁気抵抗素子とは異なる新しいメカニズムによる磁気抵抗比の増大を戦略的に検討する必要性もある。また、新しい革新的な機構としてトンネル磁気抵抗効果をゲートバイアスで制御したスピントランジスタの創製など新しい出バイアスの創出がスピントロニクス分野では望まれている背景がある。トンネル障壁を2つ有した二重トンネル接合素子においては、中間の強磁性層が連続膜の場合において共鳴トンネル効果、強磁性層がナノ粒子状態となっているときはクーロンブロック効果が見られることが理論的に予測され、高い磁気抵抗比が得られることが期待されている。実験としては一部、現象は確認されているが、高い磁気抵抗比を得るまでには至っていない。二重障壁強磁性トンネル接合素子をベースとして高い磁気抵抗効果およびトンネル伝導をゲートバイアスにより制御することにより高スピン分極電流を自由に制御できることが期待されている。しかし、二重障壁強磁性トンネル接合素子のトンネル伝導にバイアス電圧を印加するためには、膜厚および界面構造を高度に制御した製膜技術、高度で複雑な微細加工技術の双方が必要となるため、これまで殆ど研究が行われてこなかった。

2. 研究の目的

本研究課題では高い磁気抵抗効果が期待されている二重トンネル接合素子を作製し、トンネル電子にゲートバイアス電圧を印加させるために、接合部位の横方向から電圧を印加する構造を作製して、スピン依存のトンネル伝導を制御することを試みた。

3. 研究の方法

二重トンネル接合素子用の多層膜は超高真空下まで排気したチャンバーにおいて、マグネトロンスパッタ法で作製した。基板には熱酸化膜付き Si 基板を用いた。試料の多層構造は次のとおりである。IrMn (6.0)/ Co75Fe25 (2.0)/ Ru (0.8)/ CFB (2.0)/ MgO (2.5)/ island-shaped CFB ( $t = 0.6, 1.0, 1.2$ ) / MgO (3.2)/ CFB (2.0)/ Ru(0.8)/ Co75Fe25(3.0)/ IrMn (8.0)。[数字は nm 単位] 試料の微細加工には Photo リソグラフィー法と電子線リソグラフィー法を併せて使い、複数回の加工を経てゲートバイアスを横方向へ印加できる素子を作製した。バイアス電圧は独立に印加できるように引き出し電極パッドを設けている。試料の構造は X 線回折実験、透過型電子顕微鏡観察実験、原子間力顕微鏡、走査型電子顕微鏡(SEM)により包括的に評価した。磁気特性は振動試料型磁力計および超電導量子干渉計に

より評価した。トンネル伝導および磁気抵抗効果を直流四端子法により評価した。測定は6 Kから室温の間で行った。

4. 研究成果

図1にトンネル接合部とバイアス電圧印加部の平面SEM写真を示す。トンネル接合のサイズは100 nm程度でゲートバイアス電圧を印加するための電極パッドが精度高くトンネル接合素子へ配置されていることがわかる。パッドおよびトンネル接合の部分についてはトポレジストをもちいて電子線リソグラフィーにより作製した。(レジストの種類、電子線描画の条件の最適化を行っているが、本報告では割愛する)

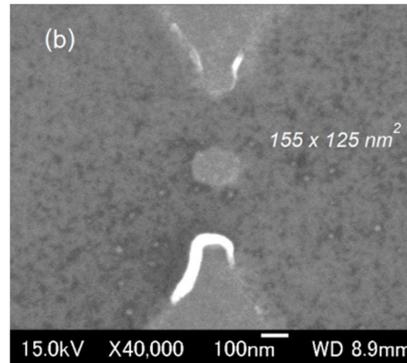
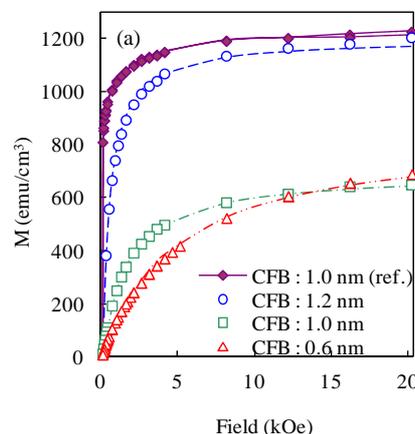


図1 電子線リソグラフィーにより作製したトンネル接合部と、それに平行に配置されたバイアス電圧用電極パッド

次に、トンネル接合の中間層にクーロンブロック伝導をもたらすため、ナノ粒子になるための成膜条件を最適化した。平均粒子サイズは磁化曲線をフィットすることにより算出した。図2に中間層の設計膜厚を変化させたときの磁化曲線を示す。尚、中間層は設計膜厚が1.5 nm以下のとき、連続膜から分断された粒子状になった。磁化曲線から算出した粒子分布から、設計膜厚の低下と共にナノ粒子が微小化していることがわかり、中間層だけナノ粒子化させることに成功した。横方向のゲート電圧の印加できる二重障壁強磁性トンネル接合素子の磁気抵抗効果を示す。図3に6 Kと300 Kで測定した磁気抵抗曲線を示す。この磁気抵抗曲線は横



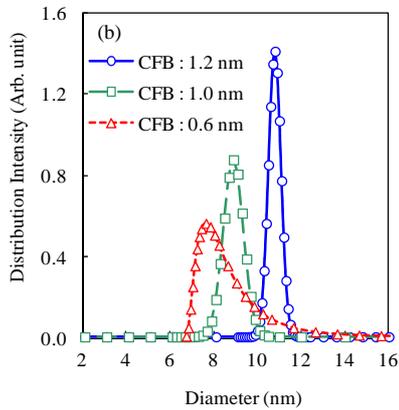


図 2 二重トンネル接合素子の中間層の設計膜厚を変化させたときの磁化曲線および磁化曲線から見積もった粒形分布

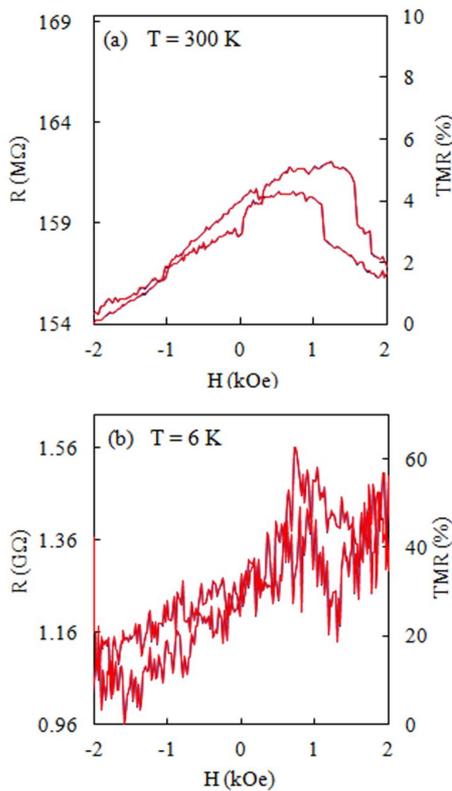


図 3 300 K および 6 K で測定した二重障壁強磁性トンネル接合素子の磁気抵抗曲線

方向のバイアス電圧を印加せずに測定した。6 K および 300 K のいずれにおいても磁気抵抗効果が観測され、低温では最大で 60%程度を得ることに成功した。これは、以前の F. Ernult らの報告と比べても高い磁気抵抗比となる。これは、本研究で作製した多層構造の界面が制御されていることが示唆された。

ナノ粒子化した中間層へのスピン電流のクーロンブロック現象を確認するため、電流のバイアス電圧依存性およびトンネル磁気抵抗比のバイアス電圧依存性を調べた[図 4]。測定は比較的高い磁気抵抗比が得られた 6 K で行った。図 4(a)の赤および青のデータ線は固定層の磁化の平行および反平行状態をあらわす。図 4(b)

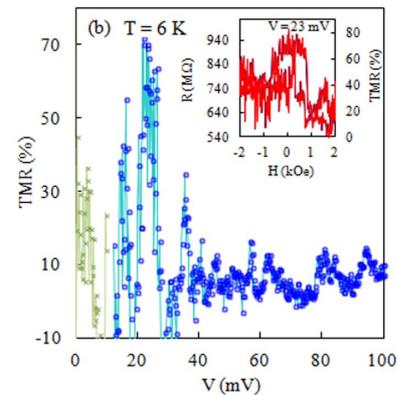
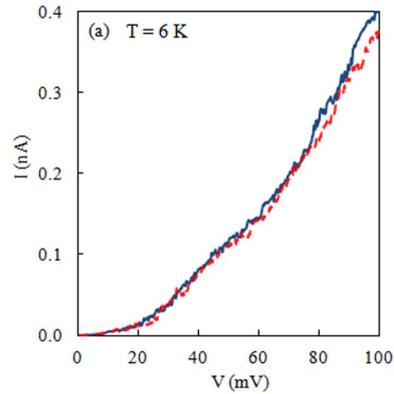


図 4 6 K で測定した電流およびトンネル磁気抵抗比のバイアス電圧依存性。バイアス電圧は垂直方向へ印加した。

は磁化の平行・反平行から算出した磁気抵抗比である。低バイアス領域において明瞭な磁気抵抗比の振動現象が観測されており、クーロンブロック現象が二重障壁強磁性トンネル接合のナノ粒子化した中間層で起こっていることが確認された。

最後にトンネル接合部へ横方向にバイアス電圧を印加した実験を行った。その結果、僅かながら磁気抵抗曲線の形状に変化がもたらされており、トンネル伝導が制御できていることが示唆された。しかし、その変化はかなり小さく、より効率的にバイアス電圧を印加させる必要があることがわかった。そのためには、電極パッドとトンネル接合素子の距離を近づけて電界の低減させない工夫が必要である。簡易的な計算によると、いまの横方向に配置した電極パッドは 100 nm 以上となっているが、その距離を 50 nm 以下にまで近づけることによりバイアス電圧の効率が効果的に印加できることがわかった。電子線リソグラフィーにおいて、チップマークからの電子線の移動量を減らすこと、レジストの電子線に対する感度の分散を低減することなど、微細加工技術をさらに高度かすことが課題として明らかとなった。以上のように本課題では量子化されたスピン依存伝導を制御することにより高いスピン分極電流を制御することを試みた革新的な研究であり、スピン依存伝導の制御に関わる初見の成果を得ることまで到達することに成功した。また、研

究を発展させるための実験の技術的な課題も明確化されている。

#### 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4件)

1. N. Tal, D. Mogilyanski, Andras Kovacs, Hiroshi Naganuma, Sumito Tsunegi, Mikihiko Oogane, Yasuo Ando, and Amit Kohn, Journal of Applied Physics, 査読有 114 巻, 2013, 163904

DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4826908>

2. Kosuke Fujiwara, Mikihiko Oogane, Saeko Yokota, Takuo Nishikawa, Hiroshi Naganuma, and Yasuo Ando, Fabrication of magnetic tunnel junctions with a bottom synthetic antiferro-coupled free layers for high sensitive magnetic field sensor devices, Journal of Applied Physics, 査読有 111 巻, 2012, 07C710.

DOI: 10.1063/1.3677266

3. W. X. Wang, Y. Yang, Hiroshi Naganuma, Yasuo Ando, R. C. Yu, and X. F. Han, The perpendicular anisotropy of  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  sandwiched between Ta and MgO layers and its application in CoFeB/MgO/CoFeB tunnel junction, Applied Physics Letters, 査読有 99 巻, 2011, 012502.

DOI: 10.1063/1.3605564

4. L. X. Jiang, Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, Kosuke Fujiwara, Takamichi Miyazaki, Kazuhisa Sato, T. J. Konno, Shigemi Mizukami, and Yasuo Ando, Magnetotransport properties of CoFeB/MgO/CoFe/MgO/CoFeB double barrier magnetic tunnel junctions with large negative magnetoresistance at room temperature, Journal of Physics: Conference Series, 査読有 200 巻, 2010, 052009.

DOI:10.1088/1742-6596/200/5/052009

[学会発表](計12件)

1. H. Liu, D. Li, P. Guo, Y. Yang, S. Sakul, Hiroshi Naganuma, R. Yu, and X. F. Han "Temperature dependence of tunneling conductance in the perpendicular anisotropy CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions" 12th Joint Magnetism and Magnetic Materials/Intermag Conference, Chicago USA 2013年1月15日

2. Tian Yu, Hiroshi Naganuma, D. Shi, Yasuo Ando and X. Han "Magnetic properties and magnetic domain structures evolution modulated by CoFeB layer thickness in [Co/Pd]/CoFeB/MgO/CoFeB/[Co/Pd] perpendicular MTJ films" International conference on magnetism, Vancouver Canada, 2012年5月8日

3. Thamrongsin S., Hiroshi Naganuma, Mikihiko Oogane, and Yasuo Ando "Fabrication of the

$\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  double magnetic tunnel junction with lateral electric field controlled spin transport" the 59th Spring Meeting, 2012, The Japan Society of Applied Physics, 早稲田大学, 2012年3月16日

4. 安藤 康夫, 永沼 博, 大兼 幹彦 "二重強磁性トンネル接合の磁気抵抗効" 第34回日本磁気学会学術講演会, つくば国際会議場, 2010年9月4日

5. 安藤 康夫, 永沼 博, 大兼 幹彦 "二重強磁性トンネル接合の磁気抵抗効果" 応用物理学会, 第71回応用物理学会学術講演会, 長崎大学 2010年9月14日

[図書](計0件)

[産業財産権]

出願状況(計0件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

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:

[その他]

ホームページ等

#### 6. 研究組織

(1) 永沼 博(NAGANUMA HIROSHI)  
東北大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号:60434023

(2)研究分担者 なし

(3)連携研究者

宮崎 孝道(MIYAZAKI TAKAMICHI)

東北大学・大学院工学研究科・技術職員

研究者番号:20422090