

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 4 日現在

機関番号：55501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2014

課題番号：23760295

研究課題名(和文) 反強磁性障壁層の挿入によるスピントロニクス型強磁性トンネル接合の磁気抵抗比の改善

研究課題名(英文) Study on magnetoresistance in spin filter tunnel junctions with an antiferromagnetic layer

研究代表者

仙波 伸也 (Senba, Shinya)

宇部工業高等専門学校・電気工学科・准教授

研究者番号：40342555

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性絶縁体EuSを障壁層とした磁気トンネル接合においてはスピントロニクス効果によって磁気抵抗効果が発現すると期待できる。本研究では、強磁性EuS、Ge<sub>1-x</sub>MnxTe層に反強磁性MnTe層を付与した接合構造を提案し、分子線エピタキシー法を用いた作製条件を明らかにした。また、EuSにTeを添加することによって磁化特性を調整することができた。さらに提案した構造の強磁性/反強磁性層間には明瞭な交換バイアスが生じないことが分かった。

研究成果の概要(英文)：A magnetic tunnel junction with ferromagnetic (FM) insulator EuS is expected to show a tunneling magnetoresistance induced by a spin-filtering effect. Growth conditions for fabricating a junction structure composed of EuS, FM semiconductor Ge<sub>1-x</sub>MnxTe and antiferromagnetic (AF) semiconductor MnTe by molecular beam epitaxy method were investigated. We also successfully manipulated a magnetic property of EuS by substituting Te for S. Results of magnetization measurements indicated that no exchange bias occurred on an interface between FM and AF layers in the proposed junction.

研究分野：電気・電子材料

キーワード：電気・電子材料 分子線エピタキシー スピントロニクス

### 1. 研究開始当初の背景

近年、電子のもつ電荷とスピンを融合させた機能が注目され、巨大磁気抵抗 (GMR) 効果やトンネル磁気抵抗 (TMR) 効果に関する基礎的、応用的研究が精力的に進められてきている。中でも MgO 結晶性絶縁層を用いた磁気トンネル接合 (MTJ) の磁気抵抗比増大の進展は大きい。MTJ は 2 層の強磁性層で非磁性絶縁体を挟み込んだ構造をもち、両強磁性層のスピン分極を活用した機能性をもつ。一方で、強磁性絶縁体を障壁層に用いると、そのスピン依存したトンネル確率によりスピン偏極電流を得ることが期待できる (スピンフィルター効果)。さらに強磁性電極との接合によりそのスピン分極した状態密度との掛け合わせによって磁気抵抗効果を発現できる (図 1)。

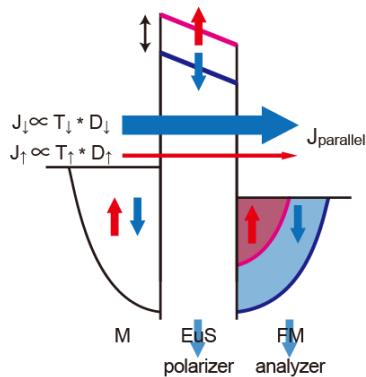


図 1 スピンフィルター効果

これまでに我々は、キャリア誘起強磁性体  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  と強磁性絶縁体 EuS を組み合わせたフルエピタキシャル・スピンフィルター型強磁性トンネル接合 (SF-MTJ) の作製方法とその機能性について研究を進め、小さいながらも TMR 効果の発現に成功してきている。TMR 比の低下については、強磁性電極と強磁性障壁との間の直接的な交換結合が影響しているものと考えられる。

### 2. 研究の目的

強磁性電極  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  と強磁性障壁 EuS を組み合わせたフルエピタキシャルな SF-MTJ における機能性の解明に向けて、反強磁性層を挿入した構造を提案し、その効果について調べることを課題とした。そこで、フルエピタキシャル且つ構成元素の制約条件から反強磁性層として MnTe 半導体を候補とし、ヘテロエピタキシャル接合の実現可能性を探るとともに、強磁性層 - 反強磁性層間の交換バイアスについて調べることを、また、提案した MTJ における磁化スイッチングの実現性向上を狙い、強磁性絶縁体 EuS の保磁力変調を試みることを目的とした。

### 3. 研究の方法

分子線エピタキシー法を用いて、積層構造を作製した。この時、基板として格子整合性を考慮の上、 $\text{BaF}_2(111)$  基板、 $\text{SrF}_2(111)$  基板、 $\text{InP}(100)$  基板を使用した。成長温度、各原料の照射条件を変え、単層膜、積層膜を堆積した。反射高速電子回折 (RHEED)、X 線回折 (XRD)、原子間力顕微鏡 (AFM)、異常ホール効果 (AHE) 測定、SQUID 測定により、各試料の結晶性、表面モフォロジー、磁化特性を評価した。さらにリソグラフィー、ドライエッチングを用いて素子化し、輸送特性の評価を行った。図 2 に設計・製作した素子化のためのマスクパターンを示す。

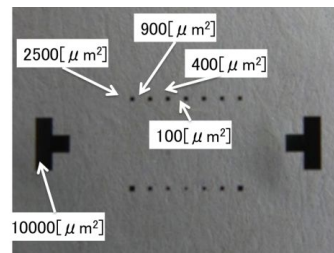


図 2 設計したマスクパターン

さらに、並行して磁化特性評価の高効率化を図るため、光弾性変調器 (PEM) を導入した準直入射型の磁気光学縦カー効果測定装置の設計を行った。

### 4. 研究成果

図 3 に  $\text{BaF}_2(111)$  基板上に成長した MnTe 単層膜の XRD スペクトルを示す。成長温度は 400 であり、Mn と Te の蒸気圧比を (a) Mn:Te=1:2、(b) Mn:Te=1:4 とした。試料 (a) では NiAs 型 MnTe と閃亜鉛鉱 (ZB-) 型 MnTe が混在するが、(b) では ZB-MnTe のエピタキシャル膜が得られている。RHEED パターンも明瞭なストリークを示した。

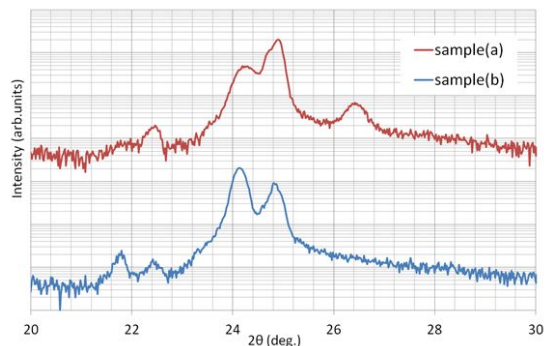


図 3  $\text{BaF}_2(111)/\text{MnTe}$  の XRD スペクトル  
(a) Mn:Te=1:2、(b) Mn:Te=1:4

成長温度、原料の供給比に結晶性が大きく依

存はするが、条件を最適化することにより単相膜を得られることが分かった。作製した ZB-MnTe の光学バンドギャップはおよそ 3.0 eV となり、単相膜の品質は良好であった。なお、NiAs 型単相膜の堆積にも成功している。引き続き ZB-MnTe 上に  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  を堆積した積層膜を作製したところ、エピタキシャルな積層膜を得るための作製条件を見出すことができた。その XRD スペクトルを図 4 に示す。

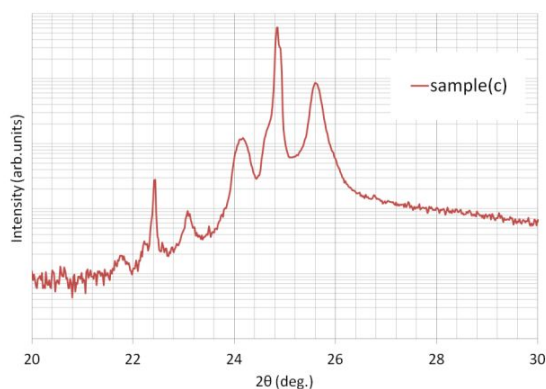


図 4 BaF<sub>2</sub>(111)/MnTe/Ge<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te の XRD スペクトル

この試料に対して測定温度 11K で AHE 測定を行った結果、 $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  の強磁性に起因した明瞭なヒステリシス特性を観測することができた。さらに ZB-MnTe との交換結合を調べるために室温からの磁界中冷却を行ったところ、AHE 特性はほぼ重なり、観測可能な交換異方性は発現しないことが明らかになった。交換シフトに関して生じていない可能性が高いが、断定できる結果は得られていない。NiAs 型 MnTe との積層膜に対しても同様に実験を行い、明瞭な交換バイアスが発現しないことを確認した。

次に EuS と Te の供給比を変えて共蒸着して堆積した  $\text{EuS}_{1-x}\text{Te}_x$  の XRD スペクトルを図 5(a) に示す。(222) 面による回折ピークには明確なシフトが生じていることから供給比によって Te 組成  $x$  の制御を行うことができることが分かる。図中に示した Te 組成  $x$  はそれぞれの回折角に対してベガード則を適用して算出した値である。図 5(b) に SQUID 測定による磁化特性を示す。Te 組成  $x$  の増加に伴い保磁力が若干増加していることが分かる。挿入図は磁化の温度特性である。Te 組成の増加によりキュリー温度が低下するとともに磁化の減少がなだらかな変化に変わっている。これは Te の混入により長距離的な強磁性秩序が崩れたことを示している。Te を混入させることで保磁力を調整できる可能性を見いだせた。 $\text{EuS}/\text{MnTe}$  積層膜に対しても SQUID 測定による磁化測定を行ったところ、EuS に起因するヒステリシス特性を確

認することができた。

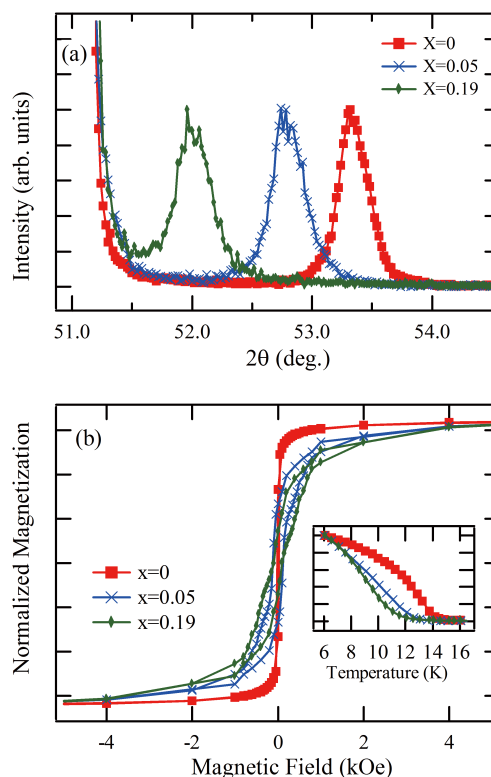


図 5  $\text{EuS}_{1-x}\text{Te}_x$  の XRD スペクトル

$\text{EuS}$  障壁層とした SF-MTJ 積層膜に対して、図 2 に示したマスクを用いてリソグラフィ加工を施し素子化を行った。リフトオフで In 電極を形成し、銀ペーストで配線を行い、輸送特性を調べた。トンネル伝導に関する電流 - 電圧特性は Simmons の式で表され、非線形特性となることが知られている。図 6 に本研究で設計したトンネル障壁に対する電流 - 電圧特性の計算結果を示す。

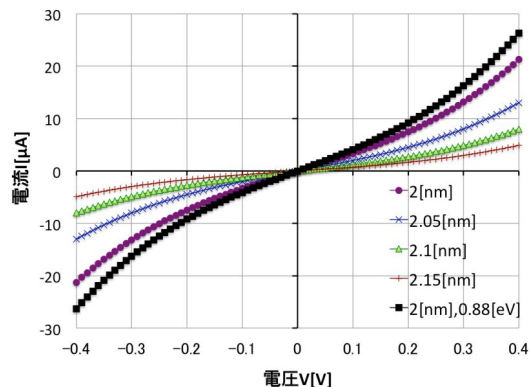


図 6 Simmons の式による計算結果

障壁高さはバンド計算を基に 0.9eV と推測

し、障壁厚を変えた結果である。障壁厚に非常に敏感であることが分かる。測定で得られた特性も非線形特性ではあったが、フィッティングによる障壁高さや障壁厚が期待される値とは大きく異なり、寄生的な障壁ができていいる可能性が高い。この原因の解明については今後の課題である。

最後に準直入射型の磁気光学縦カー効果測定システムの設計について触れる。図6は遅延変調50kHzのPEMの遅延振幅に対する光強度のシミュレーション結果である。横軸が時間、縦軸が遅延振幅である。33mdegのカー回転角をもつ試料モデルを用いている。遅延振幅に応じた高調波成分の生成が確認できる。遅延振幅を走査しながら同時にロックインアンプで高調波成分を抽出することでより精度の高い信号解析を行う測定システムの構築を進めた。

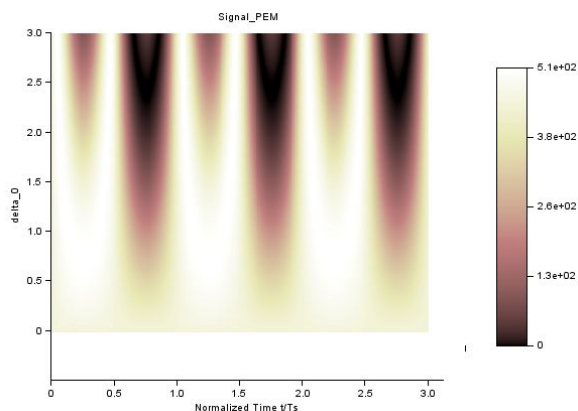


図6 光信号変調と遅延振幅の関係

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

(1) S. Senba, N. Matsumoto, M. Jomura, H. Asada, T. Koyanagi, K. Kishimoto, Y. Fukuma, "Characterization of Epitaxial EuS(111) Thin Films on BaF<sub>2</sub>(111) and SrF<sub>2</sub>(111)", Journal of the Korean Physical Society, Vol. 62, pp. 2109~2112 (2013). (査読有)

〔学会発表〕(計 3 件)

(1) 前川亮介, 冨田知大, 仙波伸也, 西村謙佑, 浅田裕法, 岸本堅剛, 小柳剛, "MBE法によるBaF<sub>2</sub>基板上への閃亜鉛鋅型MnTeの成長", 応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会, 2014年7月26日, 島根大学

(2) 今泉悠佑, 植田義幸, 松本直樹, 仙波伸也, 浅田裕法, 岸本堅剛, 小柳剛, "InP基板上へのEuS薄膜の成長と結晶性評価", 応用物理学会・日本物理学会中国四国支部学術講演会, 2012年7月28日, 山口大学

(3) 谷村英昭, 村田駿司, 松本直樹, 仙波伸也, 浅田裕法, "MBE法によるInP基板上への強磁性半導体Ge<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te薄膜の成長", 第14回化学工学会学生会宇部大会, 2012年3月3日, 宇部工業高等専門学校

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

仙波 伸也 (SENBA SHINYA)  
宇部工業高等専門学校・電気工学科・准教授  
研究者番号: 40342555

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし