

SrTiO₃ を用いた(111)配向磁気トンネル接合の理論研究

増田啓介¹, 伊藤博介², 園部義明³, 介川裕章¹, 三谷誠司¹, 三浦良雄¹
(物質・材料研究機構¹, 関西大システム理工², 早大ナノ・ライフ研究機構³)

Theoretical study for (111)-oriented magnetic tunnel junctions with SrTiO₃ barriers

K. Masuda¹, H. Itoh², Y. Sonobe³, H. Sukegawa¹, S. Mitani¹, and Y. Miura¹

(NIMS¹, Kansai Univ.², Waseda Univ.³)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) への応用のため, 磁気トンネル接合 (MTJ) は高いトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) と大きな垂直磁気異方性 (PMA) を有する必要がある. このような主眼から, 我々はこれまで fcc 強磁性体の [111] 方向を積層方向とした新規 (111) 配向 MTJ について理論研究を行ってきた [1,2]. 我々はトンネル障壁として MgO を用いた MTJ について解析を行い, 2000% を超える高い TMR 比と L1 強磁性合金の電子構造に由来する大きな垂直磁気異方性が両立することを実証してきた [1,2]. しかし (111) 配向 MTJ のトンネル障壁は MgO に限られたものではなく, その他の物質について検討することは新規 MTJ の更なる可能性を開拓する上で重要である. そこで本研究では, トンネル障壁として歴史的に重要な役割を果たしてきた SrTiO₃ を取り上げ, これを用いた (111) 配向 MTJ の TMR 効果について理論検討を行う [3].

解析方法・結果

本研究ではトンネル障壁として SrTiO₃, 強磁性電極として fcc Co (Ni) を用いた (111) 配向 MTJ [Fig. 1(a)] を採用する. これらの MTJ に対し, 密度汎関数理論に基づく第一原理計算と Landauer 公式を適用することで TMR 比を計算した [3].

解析の結果, Co を用いた MTJ で 534%, Ni を用いた MTJ で 290% という比較的高い TMR 比が得られた. このような高い TMR 比の起源を知るために電気伝導度の面内波数 (k_{\parallel}) 依存性を解析したところ, 少数スピン状態におけるコンダクタンスの Γ 点 [$\mathbf{k}_{\parallel}=(0,0)$] にブロードなピークが確認された. これは強磁性電極 Co, Ni のバルクのバンド構造が TMR 効果に主要な寄与を与えていることを示している. そこでこれらのバンド構造を詳細に調べた. Fig. 1(b) に Co の Λ 線 (Γ 点から k_z 方向に伸びる高対称線で [111] 方向に対応) 上のバンド構造を示すが, Λ_1 状態からなるバンドがハーフメタル性を有していることがわかる. このハーフメタル性は, Co と SrTiO₃ の面内格子周期の不一致により, Co でバンドが折り畳まれることにより生じる. また SrTiO₃ の複素バンド構造の解析から, Λ_1 状態はトンネル障壁中で小さな減衰率を持ち, トンネル伝導で主要な役割を果たすことが確認された. 以上の結果から, 今回得られた高い TMR 比は強磁性体の Λ_1 状態におけるハーフメタル性によって誘起されていると結論づけることができる [3]. 本研究は JSPS 科研費 (JP20H02190, JP20K14782, JP21H01750, JP22H04966, JP23K03933) 及び JST CREST (JPMJCR21C1) の支援を受けて行われたものである.

参考文献

- 1) K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020).
- 2) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **103**, 064427 (2021).
- 3) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **106**, 134438 (2022).

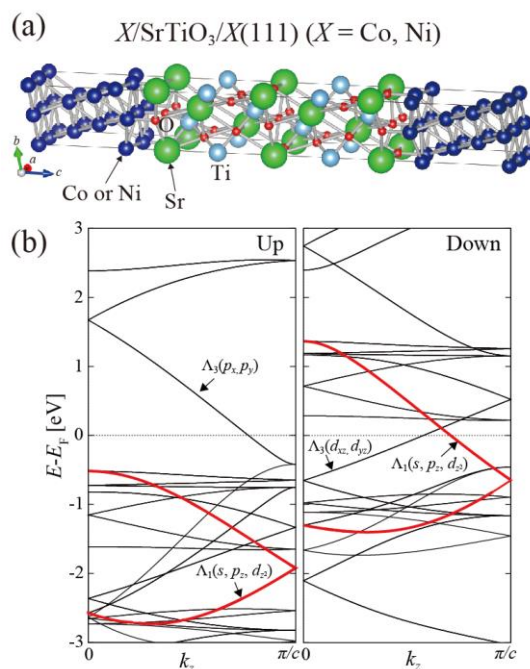


FIG.1. (a) Supercell of $X/\text{SrTiO}_3/X(111)$ ($X = \text{Co}, \text{Ni}$). (b) Up- and Down-spin band structures along the Λ line of fcc Co for the unit cell with four atoms in each plane. From Ref. [3].

Fe₃O₄-MTJs の磁気トンネル特性のバリア材料依存性

吉野 克己¹、安井 彰馬¹、横倉 聖也²、島田 敏宏²、長浜 太郎³

北海道大学大学院総合化学院¹、北海道大学大学院工学研究院²、山口大学大学院創成科学研究科³

Dependence of magnetic tunneling properties of Fe₃O₄-MTJs on barrier material

Katsumi Yoshino¹, Shoma Yasui¹, Seiya Yokokura², Toshihiro Shimada², Taro Nagahama³

Graduate School of Chemical Science and Engineering, Hokkaido University¹

Graduate School of Engineering, Hokkaido University²

Graduate School of Science and Technology for Innovation, Yamaguchi University³

はじめに

Fe₃O₄はハーフメタル特性を持ち、MTJsの強磁性体層として期待される材料である。一方で、Fe/MgO/Feでも巨大なTMR比が観測されており、これはトンネル電子の波動関数の対称性に依存したコヒーレントトンネリングが原因であると考えられている。最近、Yasui^[1]らによってFe₃O₄を用いたMTJsにおいて100%を超える巨大なTMR比の観測がされたが、これがコヒーレントトンネリングによるものであるのか、Fe₃O₄のDOSの大きなスピン分極率を反映したものであるのか判別できていない。本研究では強磁性体層にFe₃O₄を用いたMTJsにおいて、バリア材料として結晶性MgOと非晶質AlO_xを用い、それぞれの磁気トンネル特性の比較を行った。また、発表ではFe₃O₄のバッファ層としてNiOとCoOを用いた場合の違いについても言及する。

実験方法

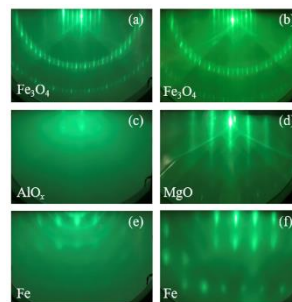
試料の作製は反応性MBE法を用いて行った。MgO(001)基盤上にMgOバッファ層を20 nm堆積させた後、交換バイアス層であるNiOを5 nm蒸着した。強磁性体層であるFe₃O₄を60 nm蒸着し、バリア材料としてMgO、またはAlO_xを2.5 nm堆積させた。上部電極にはFeを10 nm蒸着し、微細加工処理を施した。それぞれのTMR比の温度依存性、TMR比のバイアス電圧依存性を測定することで、磁気トンネル特性の比較を行った。

実験結果

Fig. 1にそれぞれのMTJsにおけるRHEED像を示す。Fe₃O₄は明瞭なストリークパターンを示したことからスピネルとして成長していることが分かった。また、バリア層であるAlO_xとMgOを比較すると、AlO_xはハローパターンを示すのに対し、MgOはストリークパターンを示すことが分かった。このことから、AlO_xは非晶質バリアとして、MgOは結晶性岩塩型バリアとして成長し、Fe₃O₄-MTJsの磁気トンネル特性をバリア材料の結晶性で比較することが出来ると考えられた。Fig. 2にTMR比の温度依存性を示す。どちらのMTJsにおいてもある温度点まではTMR比が大きくなり、その温度点を下回るとTMR比は減少に転じた。これはFe₃O₄がフェルベ点を下回ったことで構造の変化が起き、それに伴いバンド構造の変化があったためであると考えられた。またAlO_xバリアを用いたMTJsでは150 Kにおいて-41.5%、MgOバリアを用いたMTJsでは125 Kにおいて-43.4%と、得られたTMR比の最大値に大きな違いが見られなかった。以上のことからFe₃O₄-MTJsでは非晶質バリアを用いても、結晶性バリアを用いても拡散的な伝導を示すと考えられた。

参考文献

- 1) Shoma Yasui *et al.*, *Physical Review Applied* **15**, 034042 (2021)



Fe₃O₄/AlO_x/Fe Fe₃O₄/MgO/Fe
Fig. 1 RHEED image of each MTJs.

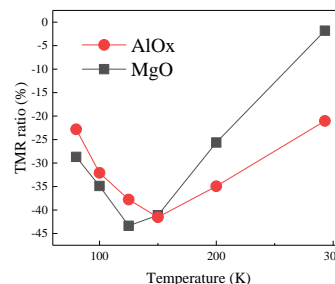


Fig. 2 Temperature dependence of TMR ratio.

CoFe/MgO/CoFe(001) magnetic tunnel junctions with giant tunnel magnetoresistance exceeding 630% at room temperature

Thomas Scheike, Zhenchao Wen, Hiroaki Sukegawa, and Seiji Mitani
National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Magnetic tunnel junctions (MTJs) are a key component for spintronics applications, such as sensors and magnetic random-access memory (MRAM). However, the resistive change of MTJs, i.e., tunnel magnetoresistance (TMR) ratio, is low even after several decades of research and development as compared to other nonvolatile competing solutions, such as resistive RAM. Recently, we have demonstrated increased room temperature (RT) TMR ratio exceeding 400% using single-crystal Fe/MgO/Fe¹⁾ and Fe/MgAlO/Fe²⁾ MTJs, doubling the previously reported ratios of Fe-based MTJs by careful optimization of several key layers. The results further emphasized the important role of interface properties, i.e., roughness and oxidation, on the transport properties. In this work, we show the effect of tuning of Mg and CoFe insertion layers at the interfaces on the transport properties leading to increased RT TMR ratios.³⁾

Epitaxial MTJ stacks were fabricated using an ultra-high vacuum magnetron sputter: MgO(001) substrate//Cr (60)/Fe (50)/CoFe (d_{bot})/Mg (d_{Mg})/wedged, electron-beam deposited MgO (1-3)/CoFe (d_{top})/Fe (5)/IrMn (10)/ Ru (12) (units in nm). Each layer except IrMn and Ru were *in-situ* post-annealed. MTJs were patterned into elliptical pillars using photolithography and ion etching followed by *ex-situ* annealing. Transport properties were evaluated using a standard 4-probe method. For low temperature measurements, a physical property measurement system was used.

The TMR curve of the optimized MTJ structure is shown in Fig. 1. A maximum RT TMR ratio of 631% was obtained using $d_{\text{bot}} = 2.24$ nm, $d_{\text{Mg}} = 0.6$ nm, and $d_{\text{top}} = 0.56$ nm, which exceeds the reported TMR record of 604% in a polycrystalline CoFeB/MgO/CoFeB MTJ.⁴⁾ The TMR ratio is strongly dependent on the MgO thickness showing a significant oscillatory behavior with a maximum peak-to-valley difference of 125% at RT. The temperature dependence of the TMR ratio is shown in Fig. 2. The TMR ratio increases monotonically with reduced temperature and reaches a maximum of 1143% at 10 K, demonstrating a high tunneling spin polarization. Our results show that TMR ratios of well-engineered interfaces of Fe/MgO/Fe-based MTJs can be even further increased, e.g., by tuning of electrode composition and thickness, etc.

The work was partly supported by JSPS KAKENHI Grant Nos. 16H06332, 21H01750, 21H01397, and 22H04966 and is partly based on results obtained from a project, JPNP16007, commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

References

- 1) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021).
- 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).
- 3) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **122**, 112404 (2023).
- 4) S. Ikeda *et al.*, Appl. Phys. Lett. **93**, 082508 (2008).

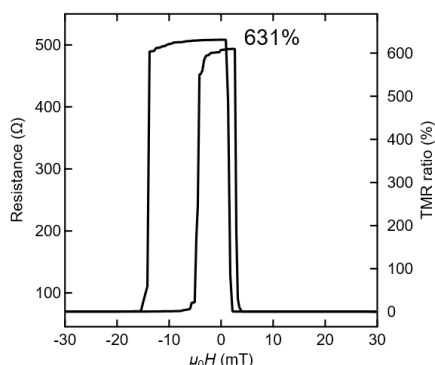


Fig. 1 TMR curve of optimized MTJ at RT.

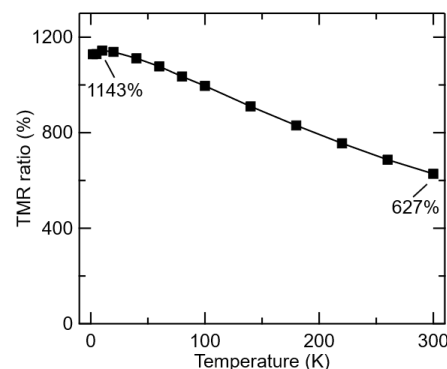


Fig. 2 Temperature dependence of TMR.

界面電子構造整合の最適化を目指した組成傾斜磁気抵抗素子の作製と解析

V.K. Kushwaha, 遠山諒, 三浦良雄, 岩崎悠真, 桜庭裕弥
物質・材料研究機構

Fabrication and analyzation of magnetoresistance device with composition spread layer for optimization of interfacial electronic band matching

V. K. Kushwaha, R. Toyama, Y. Miura, Y. Iwasaki, Y. Sakuraba
National Institute for Materials Science (NIMS)

はじめに

昨今、広大な探索空間からハイスループットに高い機能性を有する新規材料や複合構造を見出す手法として、第一原理計算と機械学習を融合した手法(仮想空間 AI)が様々な分野で活用されている。磁性材料やスピントロニクス材料においては、従来知られていなかった大きな磁化やスピン分極率を有する新規材料が本手法によって予測され^{1,3)}、実験的にも実証されている¹⁾。一方、巨大磁気抵抗やトンネル磁気抵抗効果、スピン注入やスピン軌道トルクといったスピン依存輸送現象においては、材料のバルクとしての物性に加えて、磁性体/非磁性体界面の物性、特に界面電子構造に依存した輸送特性が大きな影響を与える。しかし界面を通じた伝導計算は計算コストが高く、機械学習に足る十分なデータを高速に得るのに不向きである。

従って、仮想空間 AI を、高い性能を有するスピントロニクスデバイス実現へ活用するためには、異種材料の界面の電子構造の整合性やその輸送に与える影響を、効率的に理論予測する新手法の開発が求められる。一方、仮想空間 AI による予測の検証や細かな最適化を実験的に行うためには、様々な組成や構造を有する異種材料界面を作製し、効率的に調べるための手法の確立も求められる。本研究では、このようなインフォマティクスを活用した研究の第一段階として、コンビナトリアル成膜法によって組成傾斜させた Co-Fe 合金を有する巨大磁気抵抗素子を作製し、ハイスループットに磁気抵抗特性を評価し、界面の電子バンドの整合性から簡易的に解析することを試みた。

実験方法

(001)-MgO 単結晶基板をイオンミリングによって清浄化した後、 $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ 組成傾斜膜(6nm)/Cu 膜厚傾斜膜(1-5nm)/ $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ 組成傾斜膜(6nm)/IrMn/Ta スピンバルブ構造のエピタキシャル巨大磁気抵抗素子を作製した。組成傾斜は基板の y 方向に、膜厚傾斜は x 方向にすることによって、1 基板上で Co-Fe の組成と Cu 膜厚依存性の全データを得られるよう 1725 個のデバイスパターンニングを行った。試料は自動磁場中プローバーによって高速に磁気抵抗特性を評価した。

実験結果

作製した試料について、X 線を絞り $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ 組成毎の XRD 回折を局所測定した結果、 $\text{Fe}(x=1)$ から $\text{Co}_{17}\text{Fe}_{83}(x=0.17)$ までは bcc 構造を維持し、Cu が準安定 bcc 構造を形成することで、全層が (001) 配向 bcc 構造の巨大磁気抵抗素子となっていることが確認された。図 1 に、測定した磁気抵抗比の Co-Fe 組成と Cu 膜厚に対する 2 次元プロットを示す。その結果、 $x = 0.17 \sim 1.00$ の領域では、同様の結晶性を有する全 bcc 構造と、明確な磁化反平行状態が得られているにも関わらず、 $x = 0.7$ 前後で MR 比が急激に変化する挙動を生じることが捉えられた。本結果をフェルミ準位における電子バンドの整合性の観点で検証を行った結果、 k 空間における Co-Fe と Cu のバンドの距離で定性的に説明可能であることが導かれた。

参考文献 1) Y. Iwasaki et al., *Commun. Mater.* 2, 31 (2021), 2) I. Kurniawan et al., *Phys. Rev. Mater.* 6, L091402 (2022), 3) Y. Iwasaki, et al., *STAM method* 2, 365 (2022), 3)

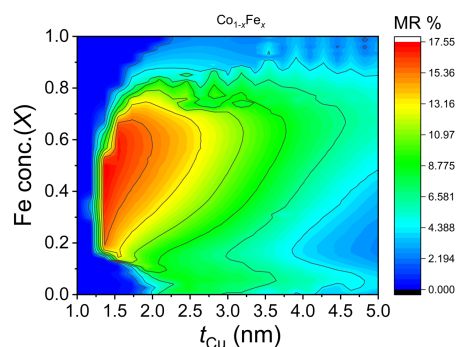


Fig.1 MR distribution of the $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ /wedge-Cu/ $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ CIP-GMR device