

TMR のバリア膜厚振動に対する理論研究

増田啓介¹, Scheike Thomas¹, 介川裕章¹, 小塚裕介¹, 三谷誠司¹, 三浦良雄^{1,2}

(NIMS¹, 京都工繊大²)

Theoretical study for the TMR oscillation as a function of the barrier thickness

K. Masuda¹, T. Scheike¹, H. Sukegawa¹, Y. Kozuka¹, S. Mitani¹, and Y. Miura^{1,2}

(NIMS¹, KIT²)

はじめに

トンネル磁気抵抗 (TMR) 比が絶縁バリア膜厚の関数として振動する現象は TMR 振動として知られている。この現象は湯浅らによって Fe/MgO/Fe(001) 磁気トンネル接合 (MTJ) の巨大 TMR 効果の発見に付随する形で見出され [1], その後も類似の結晶性 MTJ においてユニバーサルな約 3Å の周期を持つ振動現象として再現されてきた [2,3]。その一方でこの TMR 振動の発現機構は依然として解明されていない。Fe/MgO/Fe(001) MTJ の高い TMR 比はいわゆる Δ_1 コヒーレントトンネル機構によって説明されるが、この機構に付加的な効果 (異なるエバネセント波の干渉や非鏡面トンネルの効果など) を考慮した過去の理論研究 [4,5] は平行磁化状態と反平行磁化状態の両方において生じる抵抗振動を十分に説明することができなかった。TMR 振動の発現機構を明らかにすることは TMR 効果に留まらず量子トンネル自体に対する知見を深める上で極めて重要であると考えられる。

方法・結果

本研究では Fe/MgO/Fe(001) MTJ における TMR 振動の発現機構を理論的に提案する [6]。我々のアイデアの鍵は、トンネル問題において異なるスピン状態に属し異なる Fermi 波数を持つ 2 つの波動関数の重ね合せ状態を考慮することにある。このような重ね合せ状態はこれまでの TMR の研究でしばしばその存在が指摘されてきた MTJ 界面でのスピン反転散乱によって正当化される。我々は多数スピン Δ_1 状態と少数スピン Δ_2 状態の重ね合せ状態をトンネル問題の透過波において考慮し、左右 Fe 電極の平行磁化状態、反平行磁化状態の両方についてトンネル問題を解き、解析的に透過率を導出した。その結果、両磁化状態における透過率、及びこれらから計算される TMR 比が約 3Å の周期で絶縁バリア膜厚と共に振動することがわかった。これは過去の実験結果と整合する結果である。得られた解析的な表式から TMR 振動の周期は多数スピン Δ_1 状態と少数スピン Δ_2 状態の Fermi 波数の差分によって決まることが明らかになった。我々はさらに高品位な単結晶 MTJ を作製し、これについて得られた TMR 振動の結果と今回得られた計算結果を直接比較した。その結果を図 1 に示すが、計算結果 [図 1(a)] は実験で得られた TMR 振動の特徴的なこぎり波的な形状 [図 1(b)] を良く再現していることがわかる。本研究は JSPS 科研費 (22H04966, 23K03933, 24H00408) 及び文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業 (JPMXP1122715503) の支援を受けて行われたものである。

参考文献

[1] S. Yuasa *et al.*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004). [2] R. Matsumoto *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 252506 (2007). [3] T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021). [4] W. H. Butler *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001). [5] X.-G. Zhang *et al.*, Phys. Rev. B **77**, 144431 (2008). [6] K. Masuda *et al.*, arXiv:2406.07919.

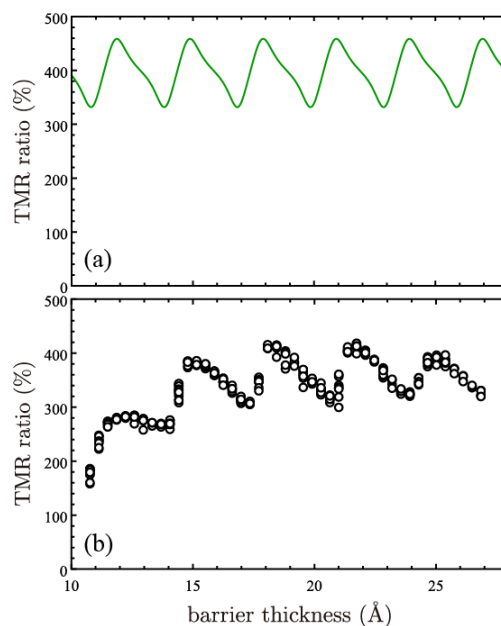


Fig. 1 (a) Theoretically calculated and (b) experimentally obtained TMR ratios as a function of the insulating barrier thickness. From Ref. [6].

エピタキシャル fcc-CoFe/MgO/CoFe(111)型強磁性トンネル接合におけるナノ結晶ドメインの形成と磁気抵抗比への影響

Cong He¹, 増田啓介¹, Jieyuan Song^{1,2}, Thomas Scheike¹, Zhenchao Wen¹, 三浦良雄¹,
大久保忠勝¹, 宝野和博¹, 三谷誠司^{1,2}, 〇介川裕章¹
(NIMS¹, 筑波大²)

Nano-crystal domains and their impact on magnetoresistance in epitaxial
fcc-CoFe/MgO/CoFe(111) based magnetic tunnel junctions

Cong He¹, Keisuke Masuda¹, Jieyuan Song^{1,2}, Thomas Scheike¹, Zhenchao Wen¹, Yoshio Miura¹,
Tadakatsu Ohkubo¹, Kazuhiro Hono¹, Seiji Mitani^{1,2}, and 〇Hiroaki Sukegawa¹
(NIMS¹, Univ. Tsukuba²)

はじめに

強磁性トンネル接合 (MTJ) におけるトンネル磁気抵抗 (TMR) 効果は、不揮発性磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) をはじめとするスピントロニクスデバイス応用に向けて広く研究されてきた。これまでに、Fe/MgO/Fe や CoFeB/MgO/CoFeB などの bcc(001)型 MTJ では大きな TMR 比が多数報告されており実用素子として用いられてきた。この大きな TMR 比はバルク Δ_1 状態を介したコヒーレントトンネルによって説明されている。最近、新しい結晶配向をもつ fcc(111)型 MTJ が理論提案され¹⁾、その中でも Co/MgO/Co(111)、CoPt/MgO/CoPt(111)等では 2000%を超える大きな TMR 比が予測されている。これら(111)型 MTJ の巨大 TMR 機構は界面共鳴効果を介したトンネルによるものと予測されている¹⁾。実験ではこれまで Co₉₀Fe₁₀ (CoFe)/MgO/CoFe(111)フルエピタキシャル接合の実現と室温 TMR 比 (35%) が観測されている²⁾。一方、実験 TMR 比は理論予測よりも相当小さく、この乖離の原因を解明する必要がある。本研究では作製した(111)MTJ 断面を原子分解能走査透過電子顕微鏡 (STEM) 観察により系統的に調べた結果、3つの異なるナノ結晶ドメインを持つこと、さらに、そのうちのドメインの一つが TMR 比の低下にかかわっている可能性を見出した³⁾。

実験方法

観察した(111)MTJ は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて作製され、積層構造としてサファイア Al₂O₃(0001)単結晶基板上に Ru バッファ/Co₉₀Fe₁₀ (CoFe) (20)/バリア/CoFe (5)/Ru (0.75)/Co₅₀Fe₅₀ (2.2)/IrMn (10)/Ru (10)、(膜厚: nm) を用いた²⁾。バリア層は Mg 層を 0.5 nm スパッタ成膜後、Mg リッチスピネル (Mg₄Al-Ox)⁴⁾を電子線蒸着により成膜した。素子断面の微細構造観察には、収差補正走査透過電子顕微鏡 (FEI Titan G2 80-200 ChemiSTEM) を用いた。観測された新しいドメイン構造 (Type-3 ドメイン) の情報を用いて、密度汎関数理論に基づく第一原理計算と Landauer 公式を適応し TMR 比を計算した。

実験結果

MTJ 断面広域の環状暗視野 (ADF) -STEM 観察とナノビーム回折を用いることですべての観察領域でフルエピタキシャル(111)積層が実現されていることがわかった。エネルギー分散型 X 線分光 (EDS) を用いた組成分析から MTJ 熱処理後にバリア層はほぼ MgO 組成となることがわかった。素子断面の広い領域の STEM 観察を行った結果、理論計算での想定である Cube-on-cube 構造¹⁾ (Type-1) に加え、MgO 面が 180°面内回転した双晶型 (Type-2)、さらには予測されていなかった面内 30°回転型 (Type-3) が共存していることが見出された。特に、Type-3 型ドメインの形成は、CoFe と MgO の大きな格子不整合 (19.6%) を緩和するように構成されていることがわかった。第一原理計算により、Type-3 ドメインを介した TMR 比は非常に小さく、格子不整合が大きい Co/MgO/Co(111)型 MTJ における小さい実験 TMR 比の要因の一つとして考えられる。これらの結果は(111)型 MTJ では原子積層の設計に高い自由度があることも示唆している。本研究は JST CREST (JPMJCR19J4)、及び JSPS 科研費 (20K14782, 21H01750, 22H04966, 23K03933) の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) K. Masuda, H. Itoh and Y. Miura, Phys. Rev. B. **101**, 144404 (2020); K. Masuda *et al.*, *ibid.* **103**, 064427 (2021).
- 2) J. Song *et al.*, arXiv.2308.04149 (2023).
- 3) C. He *et al.*, Acta Mater. **261**, 119394 (2023).
- 4) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).

MgGa₂O₄ バリア型強磁性トンネル接合のバリア界面修飾による トンネル磁気抵抗効果の増大

Rombang Sihombing^{1,2}, Thomas Scheike¹, Zhenchao Wen¹, 埴橋 淳¹,
大久保忠勝¹, 三谷誠司^{1,2}, 小介川裕章¹
(NIMS¹, 筑波大²)

Enhancement of tunnel magnetoresistance by interface modification of
MgGa₂O₄-based magnetic tunnel junctions

Rombang Sihombing^{1,2}, Thomas Scheike¹, Zhenchao Wen¹, Jun Uzuhashi¹, Tadakatsu Ohkubo¹,
Seiji Mitani^{1,2}, and 小Hiroaki Sukegawa¹
(NIMS¹, Univ. Tsukuba²)

はじめに

強磁性トンネル接合 (MTJ) は、ハードディスクドライブの磁気ヘッドや磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) の記録セルなど、幅広いスピントロニクス応用で使用されている。これらの応用では、素子微細化の要求に伴いバリア厚を維持しながら面積抵抗値 (RA) の低減が求められている。しかし、現在の主要バリアである MgO はバンドギャップが大きく大幅な低抵抗化の達成は困難である。半導体スピネル MgGa₂O₄ (MGO) をバリアとして採用したエピタキシャル Fe/MGO/Fe(001)型 MTJ において、MgO バリア MTJ に比べバリア高さを半減しつつ比較的大きい TMR 比 (室温 120%以上) が報告されており、MGO は低抵抗バリア材料として有望である¹⁾。最近、CoFeB/MGO/CoFeB 型垂直磁化型 MTJ も開発され、極薄の MgO 層を MGO 上下に挿入することによって界面磁気異方性及び TMR 比の増大が報告されている²⁾。しかし、挿入による改善のメカニズムは解明されていない。本研究では MgO 挿入による MGO 界面修飾効果を調べるために、Fe/MGO/Fe(001)型エピタキシャル MTJ を開発し、結果として挿入による著しい TMR 増大が実現したことを報告する。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(001)単結晶基板上に Cr バッファ/Fe (50)/下部 MgO 挿入/MGO (1.7)/上部 MgO 挿入/Fe (5)/IrMn (10)/Ru (10)、(カッコ内は膜厚、nm) を成膜した。MgO 及び MGO 成膜には MgO 及び MgGa₂O₄ 組成の焼結ターゲットから RF スパッタを用いた。上下 MgO 挿入層はリニアシャッターを用いてウェハ内傾斜膜として得た。また、各層は室温成膜後に結晶性と平坦性改善のためポストアニールを適宜行った。作製した MTJ ウェハは真空磁場中熱処理 (200°C、2 kOe) を行った後、μm サイズの MTJ へ微細加工を行い直流四端子法により TMR 特性を室温から低温において測定した。

実験結果

MgO 挿入層の導入により TMR 比の増大がみられた。上下ともに MgO 挿入層として約 0.3 nm 導入することで TMR 比が最大値を取り、Fe/MGO/Fe における従来報告値 121%¹⁾よりも大きい 151%の室温 TMR 比が観測された。5 K では TMR 比は 291%まで増大し従来の低温値 (165%) の約 2 倍となった。さらに MgO 挿入厚を増加すると TMR 比の低下と RA の著しい増加がみられ、界面修飾効果が弱まることがわかった。したがって、適切な MgO 界面修飾によってコヒーレントトンネル効果を増大できることを示している。MTJ 断面の走査透過顕微鏡像 (STEM 像) 及びエネルギー分散型 X 線分光 (EDS) を用いた解析により、極薄挿入した MgO により MGO 中の Ga 原子の Fe 層側への拡散が抑制されることで、Fe/MGO 界面構造が改善し結果として TMR 増大が実現していることが示唆された。

本研究は Kioxia2023 年度奨励研究、文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業 (JPMXP1122715503) 及び JSPS 科研費 (21H01750, 22H04966, 24H00408) の支援を受けて行われたものである。

参考文献

- 1) H. Sukegawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 122404 (2017).
- 2) S. Mertens *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 172402 (2021).

The effect of tetragonal distortion on magnetocrystalline anisotropy in *bcc* CoFeMn alloys: an *ab initio* study

Tufan Roy¹, Shunsuke Kubota², Masahito Tsujikawa², Masafumi Shirai^{1,2}
(¹CSIS, Tohoku Univ., ²RIEC, Tohoku Univ.)

Magnetic tunnel junctions (MTJs) with a large tunneling magnetoresistance (TMR) ratio ($>1000\%$) are required for device applications in spintronics. Rocksalt-type crystalline MgO is generally used as the barrier material, which offers predominant transmission of tunneling electrons with Δ_1 symmetry and responsible for a large TMR ratios for Fe/MgO/Fe and related MTJs at low temperature [1, 2]. However, the long-standing challenge is that the TMR ratio decreases rapidly with increasing temperature, mainly because of thermal fluctuation of interfacial magnetic moments [3]. For stabilization of the magnetic moments against thermal excitations, ferromagnetic electrode materials with large magnetic anisotropy energy (MAE) are desirable. Under tetragonal distortion, *bcc* Co is known to show large perpendicular magnetic anisotropy (PMA) [4]. Metastable *bcc* phase of Co could be stabilized by doping of Fe. A recent experimental study reports *bcc* CoFeMn/MgO/*bcc* CoFeMn MTJs to show a reasonably high TMR ratios at low temperature (1002%) and at room temperature (350%) as well [5].

In this study we investigate the electronic structure, MAE and Curie temperatures of *bcc* CoFeMn alloys by using first-principles calculations. We used coherent potential approximation to account for chemical disorder. MAE was evaluated using magnetic torque method [6].

Figure 1 shows MAE as a function of tetragonal distortion c/a and Fe composition y in *bcc* $(\text{Co}_{0.8}\text{Mn}_{0.2})_{1-y}\text{Fe}_y$ alloys. A positive value of MAE indicates PMA, and a negative in-plane magnetic anisotropy (IMA). The PMA is highest for $y = 0$ and decreases gradually with increasing Fe composition in the region $c/a < 1.0$. It is to be noted that *bcc* Fe under tetragonal distortion shows IMA [4]. In this study we discuss the role of the band filling and hybridization between local orbitals near the Fermi level on the MAE. We also present the results of magnetic moment, Gilbert damping, Curie temperature and electronic structures of the CoFeMn alloys.

The authors thank S. Mizukami for fruitful discussion. This work was partially funded by supported by CREST (Grant No. JPMJCR17J5) from JST and X-NICS (Grant No. JPJ011438) from MEXT.

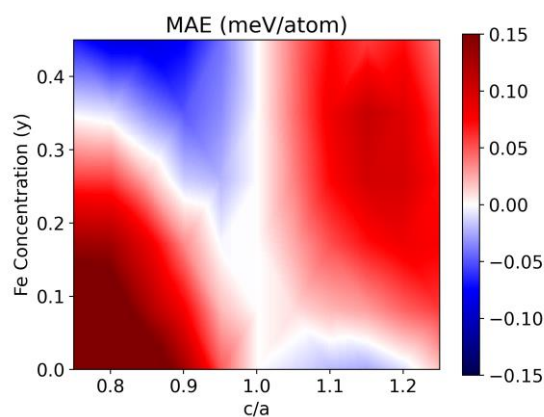


Figure 1: Magnetic anisotropy energy (MAE) as a function of tetragonal distortion c/a and Fe composition in *bcc* CoFeMn alloys.

References

- [1] W. H. Butler *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054416 (2001). [2] S. Yuasa *et al.*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004). [3] Y. Miura *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 214411 (2011). [4] T. Burkert *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 104426 (2004). [5] T. Ichinose *et al.*, J. Alloys Compd. **960**, 170750 (2023). [6] X. Wang *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 61 (1996).