

界面修飾した強磁性トンネル接合の作製と磁気抵抗効果

大学院工学研究科
大学院工学研究科

安藤康夫 (ando@mlab.apph.tohoku.ac.jp)
大兼幹彦、永沼博

1. 背景

ホイスラー合金を電極に用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) は、現行の MTJ と比較して抵抗変化率が大きいものが得られる可能性があるため、将来の磁気メモリ、磁気センサ等において応用されることが期待されている。しかしながら、低温においては大きなトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が得られている一方、TMR 比の温度依存性が大きいこと[1]、室温においてはおおきな TMR 比が得られていない。この主な原因は、大きく分けて以下の3つが考えられる。

(1) ギャップ内準位の形成

ギャップ内に準位が生成される要因の一つに、界面準位が考えられている。これにより、特に磁化反平行状態時に熱揺らぎ、または、マグノン励起による界面準位を介したスピントリプル散乱 (非弾性トンネリング) が生じてしまう。界面準位は、界面における Non-bonding states が軌道の対称性を崩し、エネルギーギャップを作っている結合性軌道のエネルギー準位が小さくなることによってできる。三浦らは近年、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ 、 $\text{Co}_2\text{MnAl}/\text{MgO}$ 、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/(\text{Co}_2\text{MnAl})_{1\text{ML}}/\text{MgO}$ の界面状態を計算し、界面が MnAl-term の場合、ハーフメタル性が保持できる計算結果を示した[2]。

(2) 界面磁化の揺らぎによるマグノン励起

$\text{Co}_2\text{MnAl}(\text{Si})/\text{MgO}$ 接合における磁気モーメントと交換エネルギー定数 J_0 が計算され[3]、 Co_2MnSi の界面第一層の Co の J_0 が非常に小さい値 (19meV) であることが分かっている。 J_0 が小さい、つまり界面の磁化が揺らぎやすくなり、マグノン励起確率が増大する。そしてこのマグノン励起によりスピントリプル散乱 (非弾性トンネリ

ング) が生じてしまう。これは、界面第一層が MnSi の場合でも同様である。

(3) 格子ミスマッチなどに起因する欠陥等

我々の作製している MTJ において、MgO と CoFe 及び Co_2MnSi の格子ミスマッチは、それぞれ 5.0, 5.4% となっており、 Co_2MnSi の方が MgO との格子ミスマッチが大きい。山本らは、 Co_2MnSi を薄くすることにより Co_2MnSi の格子定数が CoFe のそれに引きずられて増大し、結果的に、 Co_2MnSi と MgO の格子ミスマッチが小さくなり、この Co_2MnSi と MgO 界面の格子ミスマッチ (5.4%) の改善による格子欠陥の減少により TMR 比が増大しているとする論文をだしている[4]。

以上を背景として、本研究は、ホイスラー合金電極 MTJ における、TMR 比の大きな温度依存性の改善及び室温における TMR 比の向上を目指し、界面修飾した強磁性トンネル接合の作製と評価を行った。

2. 極薄 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 挿入時の磁気抵抗効果

作製した極薄 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ を挿入した MTJ の構成は、 $\text{MgO-substrate}/\text{Cr}(40)/\text{Co}_2\text{MnSi}(50)/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(0.0-0.8)/\text{MgO}(2.3)/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}(5)/\text{IrMn}(10)/\text{Ta}(2)$ である (作製の詳細は文献[1]を参照のこと)。10 K と 310 K での TMR 比の $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 挿入膜厚依存性を図 1 に示す。10 K での TMR 比は $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ を挿入することにより若干増大し、900% 程度の高い値が得られている。310 K では、 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 挿入膜厚 0.5 nm 程度で最大 350% の TMR 比が得られた。この TMR 比は Co_2MnSi 単層電極の TMR 比よりも非常に高い値が得られている。

TMR 比の温度依存性の指標として、 $\text{TMR}_{310\text{K}}$

$/TMR_{10K}$ でプロットした結果を図 2 に示す。 $Co_{50}Fe_{50}$ を挿入することにより、 Co_2MnSi 単層 MTJ に比べ TMR 比の温度依存性が若干改善される。低温 10 K、磁化平行状態におけるいくつかの $Co_{50}Fe_{50}$ 挿入膜厚でのコンダクタンスの印加バイアス電圧依存性を図 3 に示す。全ての結果はゼロバイアスでコンダクタンスを規格化して示している。

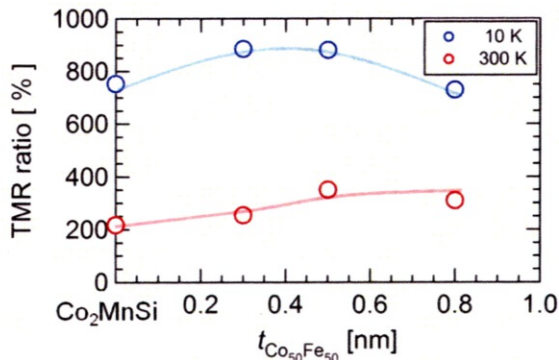


図 1 10 K および 300 K での TMR 比の $Co_{50}Fe_{50}$ 挿入膜厚依存性。

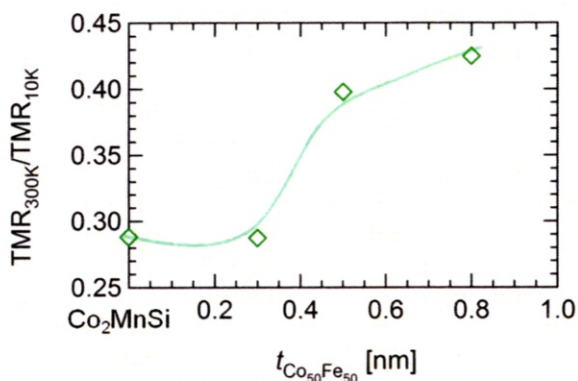


図 2 TMR_{300K}/TMR_{10K} の各 $Co_{50}Fe_{50}$ 挿入膜厚依存性。

低磁場領域の拡大をみると、 $CoFeB/MgO/CoFeB$ - MTJ には及ばないものの、 $Co_{50}Fe_{50}$ 挿入膜厚を増やすに従い、ゼロバイアス近傍のカーブの傾きが小さくなっており、非弾性トンネリングの減少が確認できた。以上から、 $Co_{50}Fe_{50}$ の挿入の効果についてまとめると、 $Co_{50}Fe_{50}$ を挿入していくことで室温の TMR 比が向上していき、非弾性トンネリングは減少し、温度依存性が改善していくことが分かっている。

Parallel, $T = 10K$

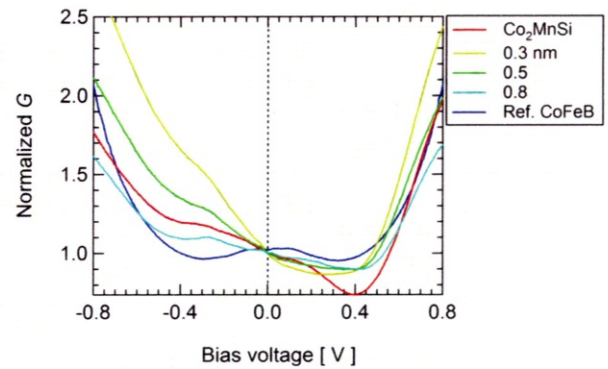


図 3 低温 10 K、磁化平行状態におけるいくつかの $Co_{50}Fe_{50}$ 挿入膜厚でのコンダクタンスの印加バイアス電圧依存性。

3. Co_2MnSi , $Co_{50}Fe_{50}/MgO$ 界面の磁化の温度依存性

Co_2MnSi 単層膜において、磁化の温度依存性を測定したところ、温度に因らず角型性の良いカーブが得られ、いくつかの磁場における飽和磁化の温度依存性も、磁場の大きさに因らず、飽和磁化の温度依存性がないことを確認した。そこで、 Co_2MnSi 及び $Co_{50}Fe_{50}$ ハーフトンネル接合のバルク (Inner layer) 及び強磁性体/MgO 界面の磁化を調べた。

図 4 (a)-(d) は、 $Co_{50}Fe_{50}$ ハーフトンネル接合における Co の XAS/XMCD スペクトルを示す。(a) は室温界面第一層、(b) は室温インナーレイヤー、(c) は低温界面第一層、(d) は低温インナーレイヤーのスペクトルである。XAS スペクトルから、室温低温の界面第一層インナーレイヤー全てにおいて、スペクトルの形状の変化は小さかった。MCD スペクトルから、室温低温共に磁化が界面においてあまり減少しないことが分かった。また、磁化の温度依存性も小さいことが分かった。これらの結果は、 $Co_{50}Fe_{50}$ などの通常の強磁性体を用いた MTJ において TMR 比の温度依存性が小さいことから考えて期待される結果である。

図 5 (a)-(d) は、 Co_2MnSi ハーフトンネル接合における Co の XAS/XMCD スペクトルである。(a) は室温界面第一層、(b) は室温インナーレイヤー、(c) は低温界面第一層、(d) は低温インナーレイヤーのスペ

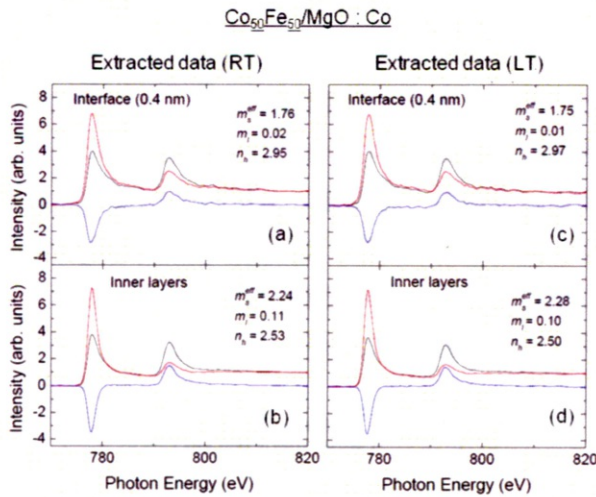


図4 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ ハーフトンネル接合におけるCoのXAS/XMCDスペクトル。(a)は室温界面第一層、(b)は室温インナーレイヤー、(c)は低温界面第一層、(d)は低温インナーレイヤーのスペクトル

クトルである。XASスペクトルから、室温低温の界面第一層インナーレイヤー全てにおいて、フォトンエネルギーが790 eV付近でショルダーが観察された。これは、 Co_2MnSi が $L2_1$ 構造を有しているときに現れるショルダーである。MCDスペクトルから、室温低温共に磁化が界面において減少している(約 $1.3 \mu_B \rightarrow$ 約 $0.5 \mu_B$)ことが分かった。しかし、磁化の温度依存性はインナーレイヤー界面第一層共に小さかった ($0.49 \mu_B(@\text{LT}) \rightarrow 0.46 \mu_B(@\text{RT})$)。これらの結果から、磁化が界面において減少することは、 Co_2MnSi がCo終端と考えた場合、Fig.1-30(a)の結果 ($1.28 \mu_B \rightarrow 0.40 \mu_B$) とよく一致しており、説明ができる。界面第一層において磁化の温度依存性が小さいことは、予想に反する結果であった。

磁化の温度依存性が小さい場合でもTMR比が大きな温度依存性を持つことへの理解は、Non-colinear磁気構造を考えるのが現在最も有力である。Non-colinear磁気構造とは、強磁性体絶縁体界面において、磁化がある角度 θ 傾いたと仮定した構造である。

このような構造をとった時に、MTJのトンネルコンダクタンスがどのように変化するか三浦氏が計算を行っている[5]。表1に、種々の原子における交換スティフネス A とスピンモーメント M を示す。

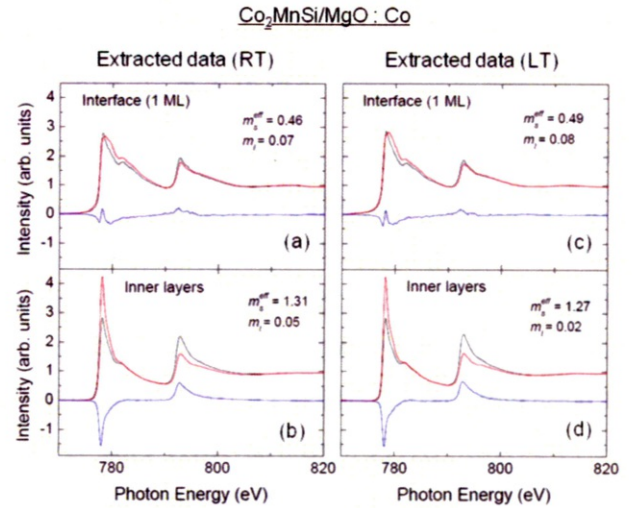


図5 Co_2MnSi ハーフトンネル接合におけるCoのXAS/XMCDスペクトル。(a)は室温界面第一層、(b)は室温インナーレイヤー、(c)は低温界面第一層、(d)は低温インナーレイヤーのスペクトル

表1 種々の原子の交換スティフネス A とスピンモーメント M

Stiffness of exchange coupling				
A [meV/u.c.a.]	Co^1	Mn^1	Fe^1	Co^2
Bulk (Co_2MnSi or Fe)	414	565	600	414
MgO interface	145	525	753	347
ΔA [meV/u.c.a.]	-269	-34	+153	-67

Interfacial local spin-moment			
M [μ_B]	Co^1	Mn^1	Fe^1
Bulk (Co_2MnSi or Fe)	0.93	3.31	2.35
MgO interface	0.54	4.06	2.98
ΔM [μ_B]	-0.39	+0.75	+0.63

交換スティフネス A は、Coが小さく、Feが大きいことが分かる。次に、 $\theta(T)$ を、ボルツマン平均を用いて算出し、その $\theta(T)$ を用いて、界面での磁化($M_{\text{int}} \cos(\theta(T))$)温度依存性をプロットしたのが、図6である。いずれのレイヤーでも磁化が温度でほとんど変化しないことが分かる。

図7は $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}(2\text{nm})/\text{Co}_2\text{MnSi}$ - MTJにおける、(a)Co-term、(b)MnSi-termでの、磁化平行および反平行状態時の面積抵抗 RA とTMR比の温度依存性を示す。 $RA_{P(AP)}$ は、ボルツマン平均を用いて得られる下記のトンネルコンダクタンスの式から算出した。

$$G_{P(AP)}(T) = \frac{g_{P(AP)}(\theta) \exp -2E(\theta)/k_B T \sin \theta d \theta}{\exp -2E(\theta)/k_B T \sin \theta d \theta}$$

Co-term、MnSi-term共に、TMR比の温度依存性が大きいことが分かる。さらにこの原因は、 RA_{AP} の減少に因るものであることが分かる。これは、実験結果と定性的に一致する。図8に、種々の界面構造をしたMTJにおけるTMR比の温度依存性を示す。Co₂MnSi/MgO界面のMTJでは、大きな温度依存性を持つのに対し、Fe/MgO界面のMTJでは、小さいことが分かる。以上から、界面磁化の温度依存性がほとんどない場合でも、TMR比の温度依存性が大きいことはあり得る。また、交換スティフネスの大きいFeなどの材料を用いれば、温度依存性を改善できることが理論計算から分かる。

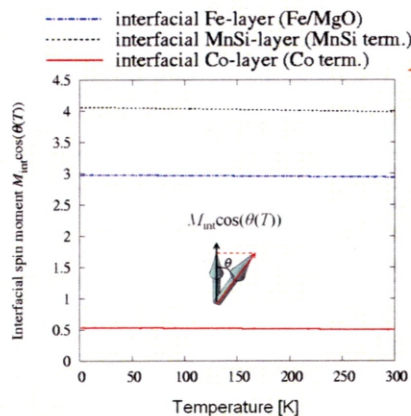


図6 界面での磁化 ($M_{int} \cos(\theta(T))$) の温度依存性

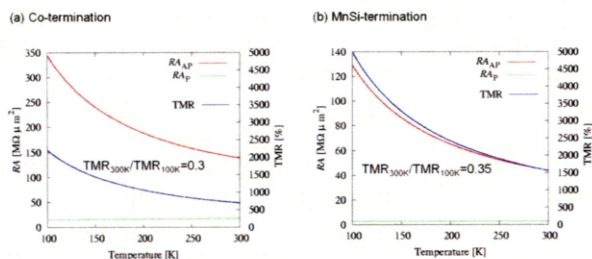


図7 Co₂MnSi/MgO(2nm)/Co₂MnSi - MTJにおける、(a)Co-term, (b)MnSi-termでの、磁化平行および反平行状態時の面積抵抗RAとTMR比の温度依存性

3. まとめ

Co₂MnSiハーフトンネル接合において、深さ分解XAS/XMCD測定を行ったところ、インナーレイヤ

一及び界面で磁化の温度依存性は小さかった。この結果とNon-colinear磁気構造を合わせて考えることにより、TMR比の温度依存性は、界面磁化の大きさのみに因るものでないことが明らかになった。今後取り組むべき課題としては、①より良好なCo_{surf}MnAl薄膜の作製、②新たな挿入材料(Fe etc.)の検討、③新たな障壁層の検討、④新たなホイスラー合金の検討、などがあげられる。

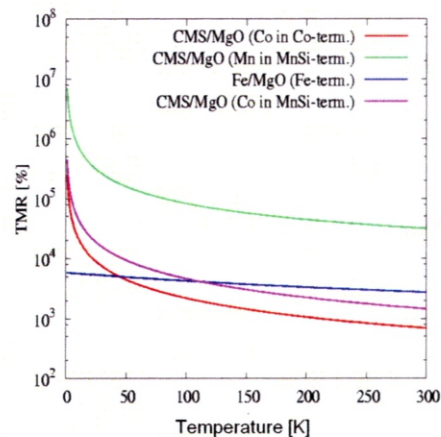


図8 種々の界面構造をしたMTJにおけるTMR比の温度依存性

謝辞

本研究で紹介した実験結果は、当時博士課程後期学生の常木澄人君と博士課程前期学生の小沢栄貴君によるものである。

参考文献

- [1] S. Tsunegi, Y. Sakuraba, M. Oogane, H. Naganuma, K. Takanashi, and Y. Ando, Appl. Phys. Lett., 94 (2009) 252503.
- [2] Y. Miura, K. Abe, and M. Shirai, Journal of Physics : Conference Series 200 (2010) 052016.
- [3] A. Sakuma, Y. Toga, and H. Tsuchiura, J. Appl. Phys. 105 (2009) 07C910.
- [4] Y. Honda, S. Hirata, H.-x. Liu, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, The 72nd JSAP Autumn Meeting, 2011, 2aS-5.
- [5] Y. Miura, K. Abe, and M. Shirai, ISAMMA2010, BX-07.