

結晶MgOトンネル障壁の 巨大トンネル磁気抵抗効果

湯浅 新治、片山 利一



独立行政法人
産業技術総合研究所

技術を社会へ – Integration for Innovation

共同研究者 および スポンサー

産総研

福島 章雄
長浜 太郎
久保田 均
A. A. Tulapurkar
片山 利一
薬師寺 啓
安藤 功兒

キヤノンアネルバ

D. Djayaprawira
恒川 孝二
前原 大樹
長嶺 佳紀
長井 基将
山形 伸二
渡辺 直樹

大阪大基礎工

鈴木 義茂
松本 利映
A. Deac

東芝

與田グループ
の方々



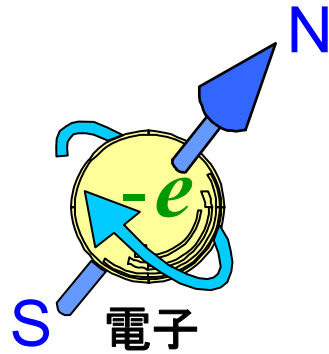
新エネルギー・産業技術総合開発機構

内容

- (1) スピントロニクス と 磁気抵抗効果
- (2) トンネル磁気抵抗効果 (TMR効果)
- (3) 巨大TMR効果
- (4) XAS と XMCD による界面状態の研究
- (5) 巨大TMR効果のデバイスへの応用

スピントロニクスと磁気抵抗効果

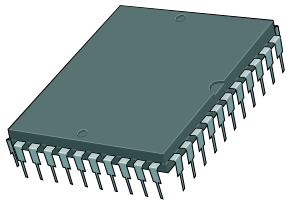
負の電荷



スピン (小さな磁石)

エレクトロニクス

- ・信号の増幅
 - ・論理演算
- ただし揮発性



シリコンLSI

磁気工学

- ・磁気記録
- 不揮発性



HDD

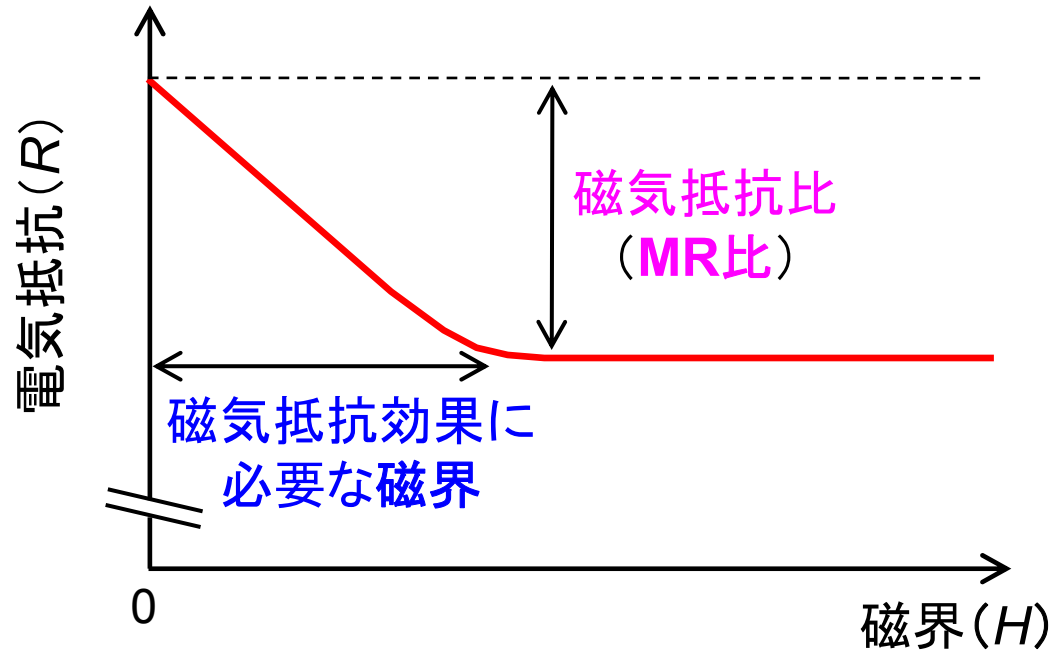
磁気抵抗効果
& スピン・トルク

スピントロニクス

電子の電荷とスピンの
両方を活用する新しい
エレクトロニクス分野

磁気抵抗効果 (Magneto-Resistance (MR)) とは？

磁界を印加すると、固体・素子の電気抵抗が変化する現象



磁界信号・磁気状態を電気信号に変換

室温かつ低磁界 (~1 mT) のMR比が、応用上重要

1 mTの低磁界で変化するの、強磁性体の“磁化の方向”のみ

強磁性体の磁化反転に起因した磁気抵抗効果を室温で実現することが必要

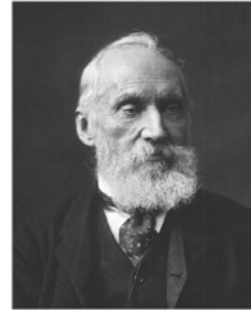
磁気抵抗効果
MR比 (室温・低磁界)

西暦

1857

AMR効果
MR = 1 - 2 %

Lord Kelvin



1985

GMR効果
MR = 5 - 15 %

P. Grünberg, A. Fert
(ノーベル賞 2007)



1990

1995

TMR効果
MR = 20 - 70 %

宮崎照宣, J. Moodera



2000

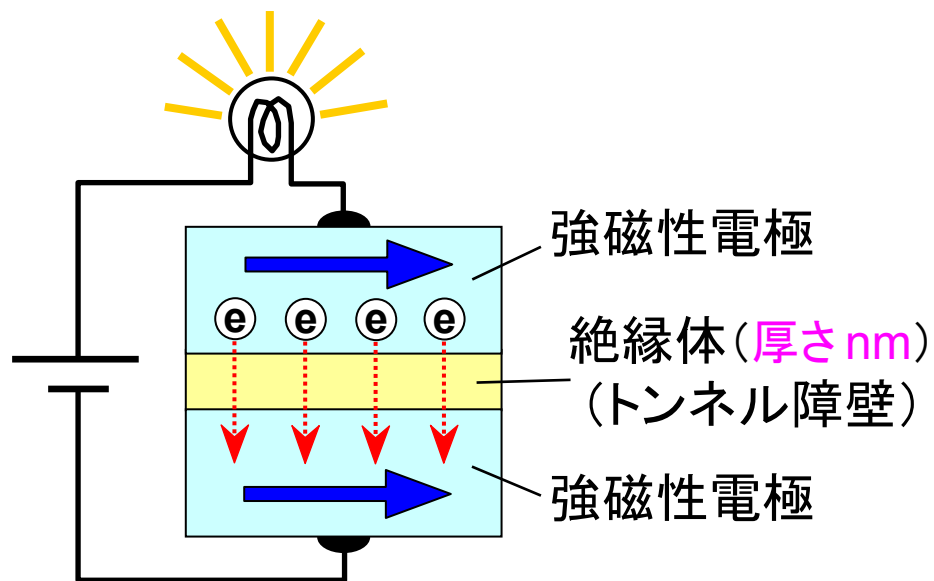
2005

2010

内容

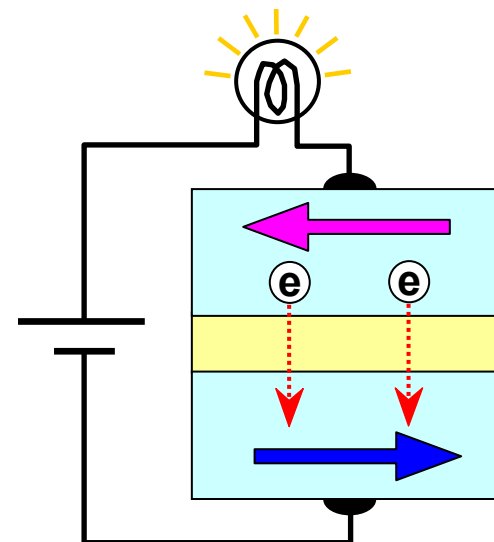
- (1) スピントロニクス と 磁気抵抗効果
- (2) トンネル磁気抵抗効果 (TMR効果)
- (3) 巨大TMR効果
- (4) XAS と XMCD による界面状態の研究
- (5) 巨大TMR効果のデバイスへの応用

磁気トンネル素子(MTJ素子)のトンネル磁気抵抗効果(TMR効果)



平行磁化(P)状態

電気抵抗 R_P : 低い



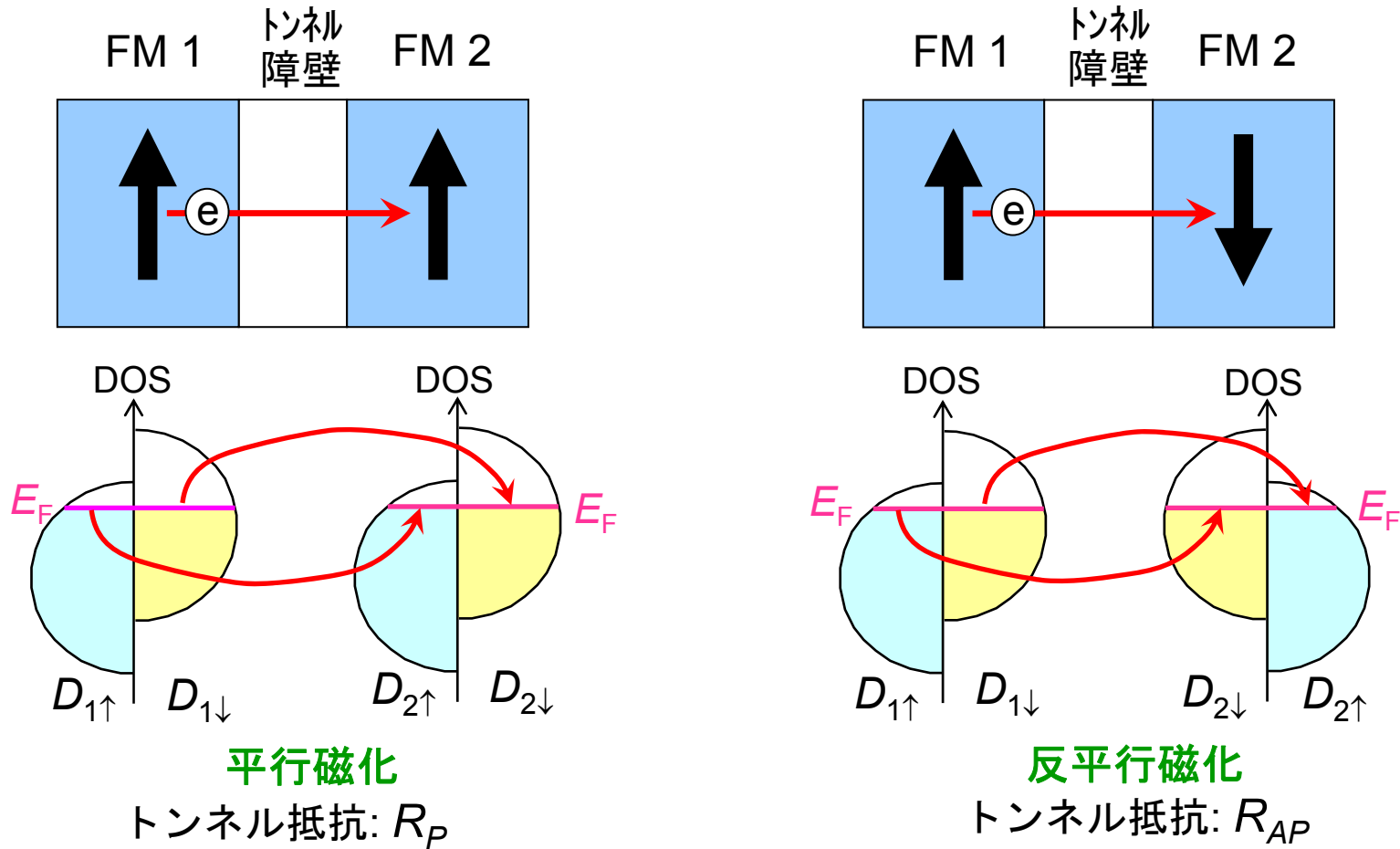
反平行磁化(AP)状態

電気抵抗 R_{AP} : 高い

$$\text{MR比} \equiv (R_{AP} - R_P) / R_P \times 100 (\%) \text{ (応用上の性能指数)}$$

TMR効果の機構

Julliereモデル(1975)



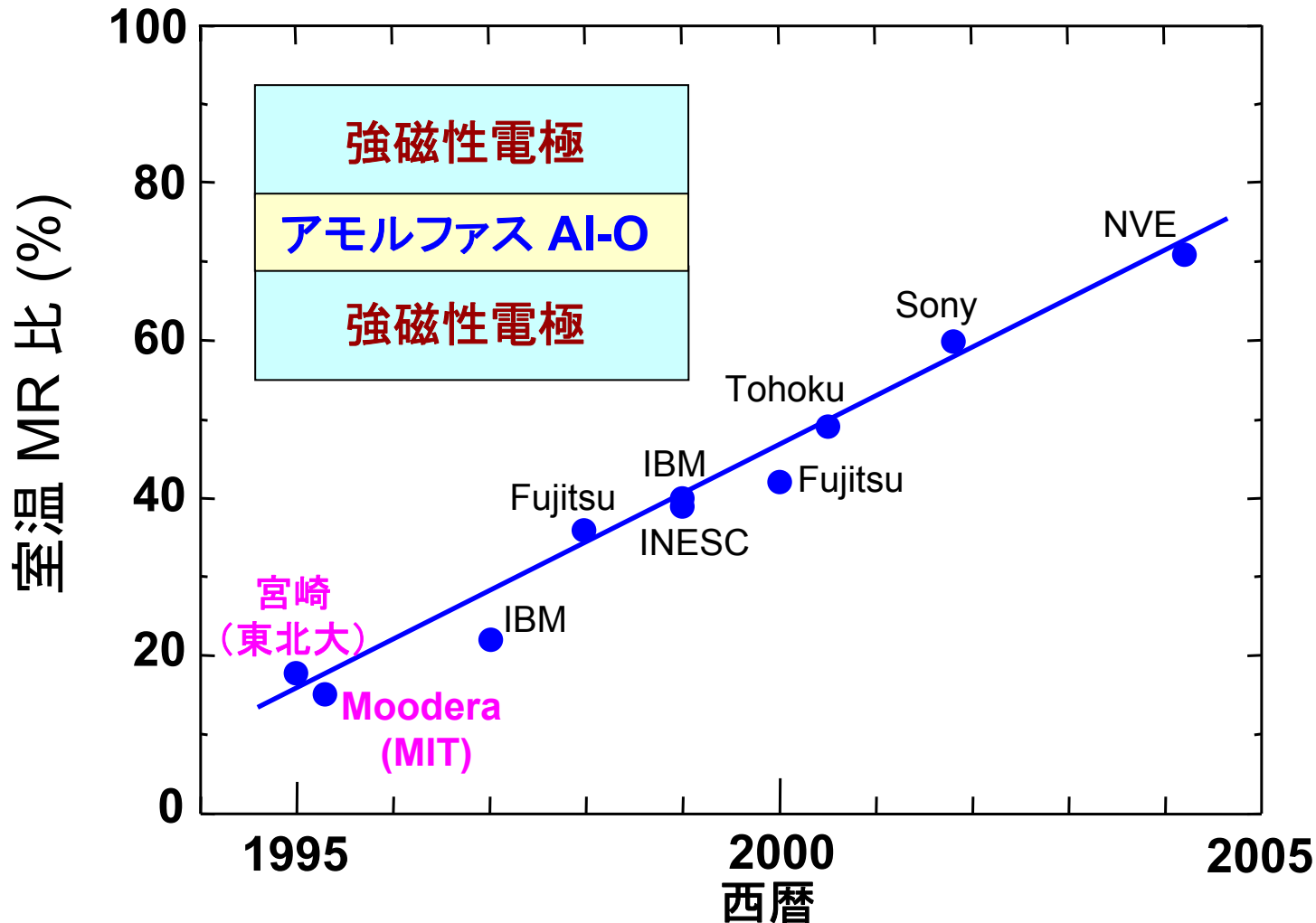
$$\text{MR} \equiv (R_{AP} - R_P) / R_P = 2P_1P_2 / (1 - P_1P_2), \quad P_\alpha = \frac{(D_{\alpha\uparrow}(E_F) - D_{\alpha\downarrow}(E_F))}{(D_{\alpha\uparrow}(E_F) + D_{\alpha\downarrow}(E_F))}, \quad \alpha = 1, 2.$$

スピン分極率

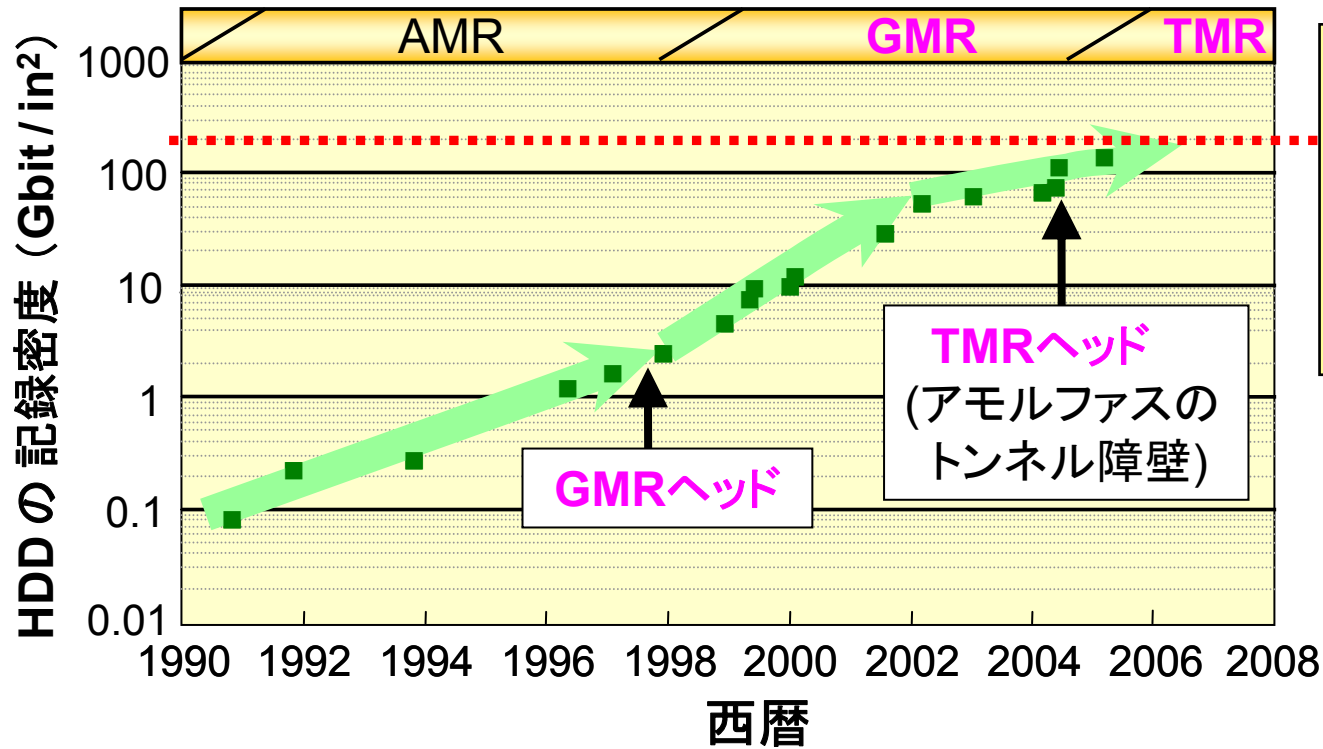
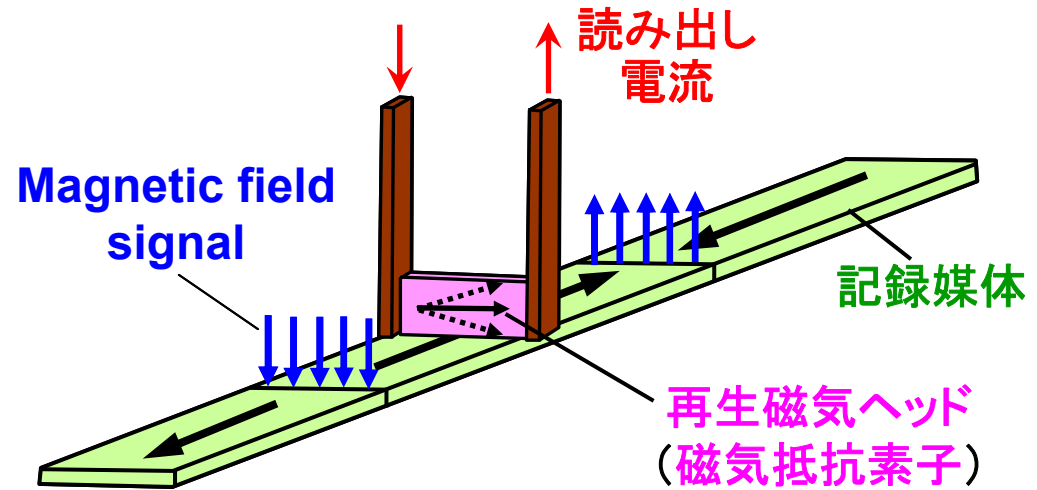
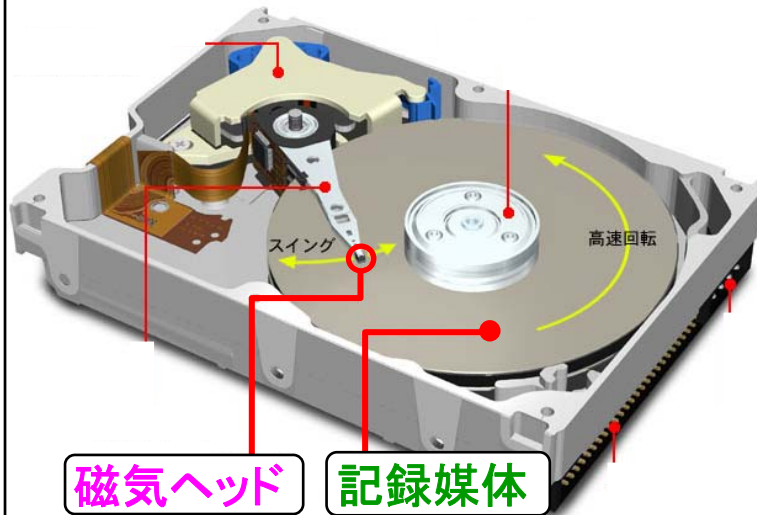
TMR効果の研究開発の経緯

低温でTMR効果が発現することが1975年から知られていたが、室温では実現されなかったため、その後あまり注目されず

→ GMR効果の発見が契機となり、TMR効果が再び脚光を浴びる

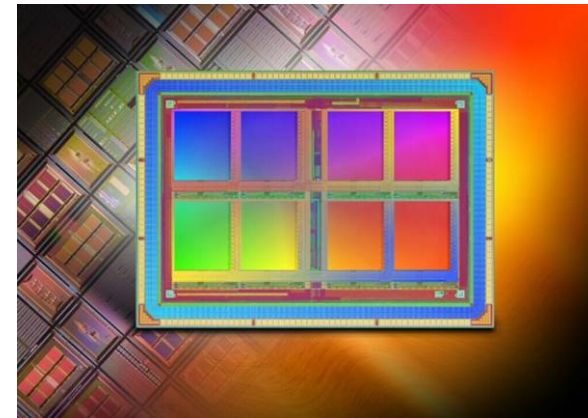
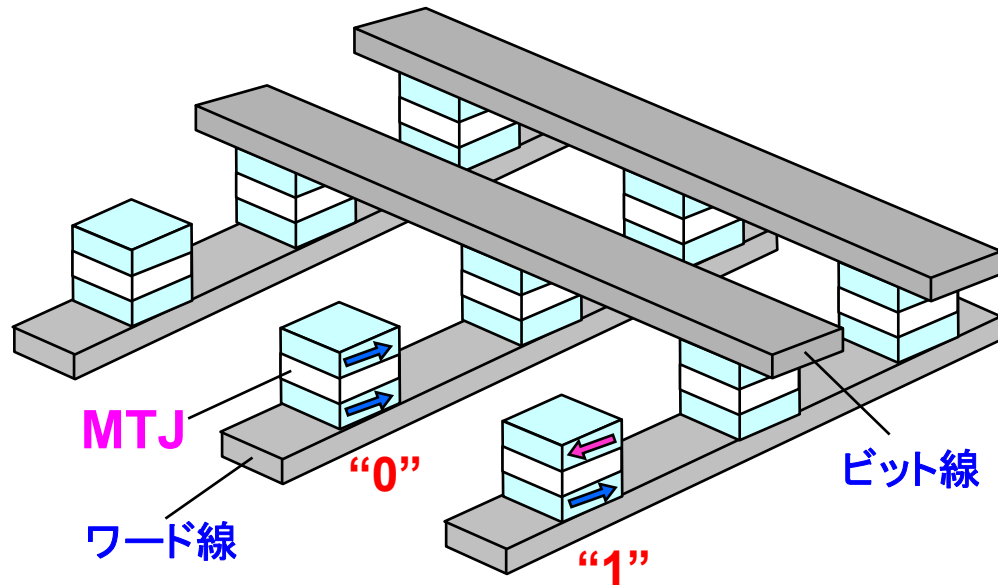


HDD の再生磁気ヘッドへの応用



ただし、**200 Gbit/inch²** を超える超高密度HDD実現のために、さらに**大きなMR比**が不可欠

新しい不揮発性メモリ MRAM



米国フリースケール社の
MRAM (4 Mbit)
2006年から製品化

<MRAMの利点>

不揮発性、高速動作、書き換え耐性 $> 10^{16}$

<MRAMの問題点>

大容量化が困難 (128 Mbit 程度が上限)

Gbit級の大容量 MRAM を実現するには、

- ① 150%を超えるMR比 と ② スピン・トルク書き込み の実現が必要

西暦
(年)

磁気抵抗効果
MR比(室温・低磁界)

デバイス応用

1857

AMR効果
MR = 1 ~ 2 %

HDDヘッド

インダクティブ
ヘッド

1855

GMR効果
MR = 5 ~ 15 %

1990

TMR効果
MR = 20 ~ 70 %

AMRヘッド

1995

GMRヘッド

2000

TMRヘッド

メモリ

2005

MRAM

2010

より高集積で高性能な次世代デバイスを開発するためには、
より大きなMR比の実現が不可欠

内容

- (1) スピントロニクスと磁気抵抗効果
- (2) トンネル磁気抵抗効果 (TMR効果)
- (3) 巨大TMR効果
- (4) XASとXMCDによる界面状態の研究
- (5) 巨大TMR効果のデバイスへの応用

結晶性の酸化マグネシウム MgO(001) に関する理論予測

Fe(001)

MgO(001)

Fe(001)

<理論予測> 第一原理計算

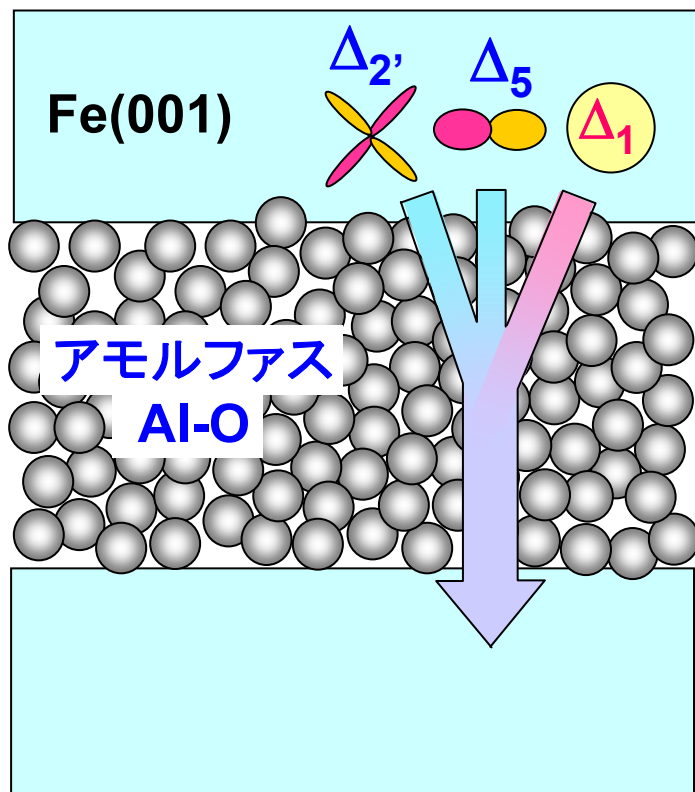
- Butler *et al.*, *Phys. Rev. B* **63**, 056614-1 (2001).
- Mathon & Umerski, *Phys. Rev. B* **63**, 220403-1 (2001).

MR 比 > 1000%

トンネル障壁の対称性とトンネル過程

アモルファス Al-O トンネル障壁

対称性なし

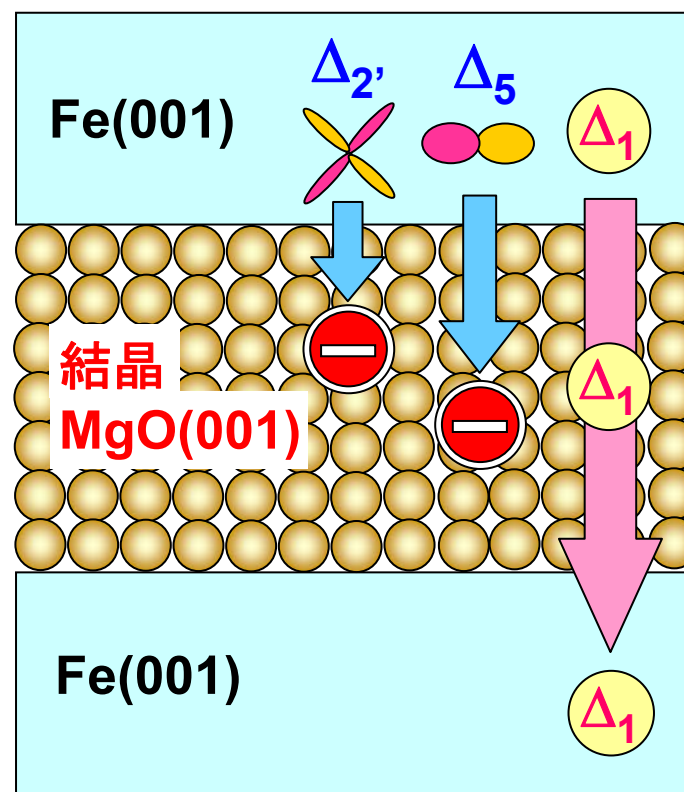


電極中の種々のブロッホ状態が混ざり合ってトンネルしてしまう

MR比が100%を越えられない

結晶 MgO(001) トンネル障壁

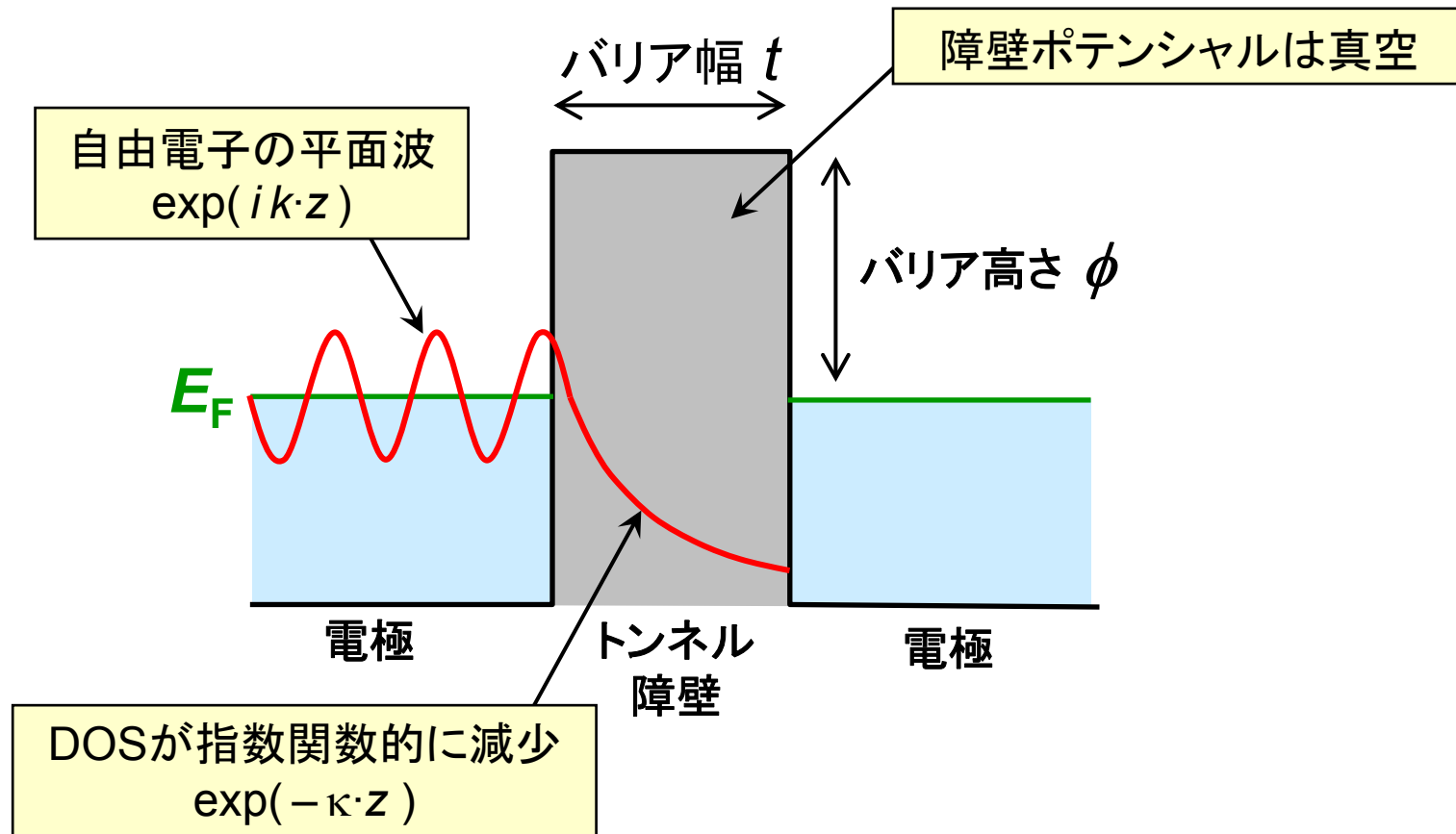
4回転対称



高対称 Δ_1 ブロッホ状態が支配的にトンネル伝導する

MR比 > 1000% (第一原理計算)

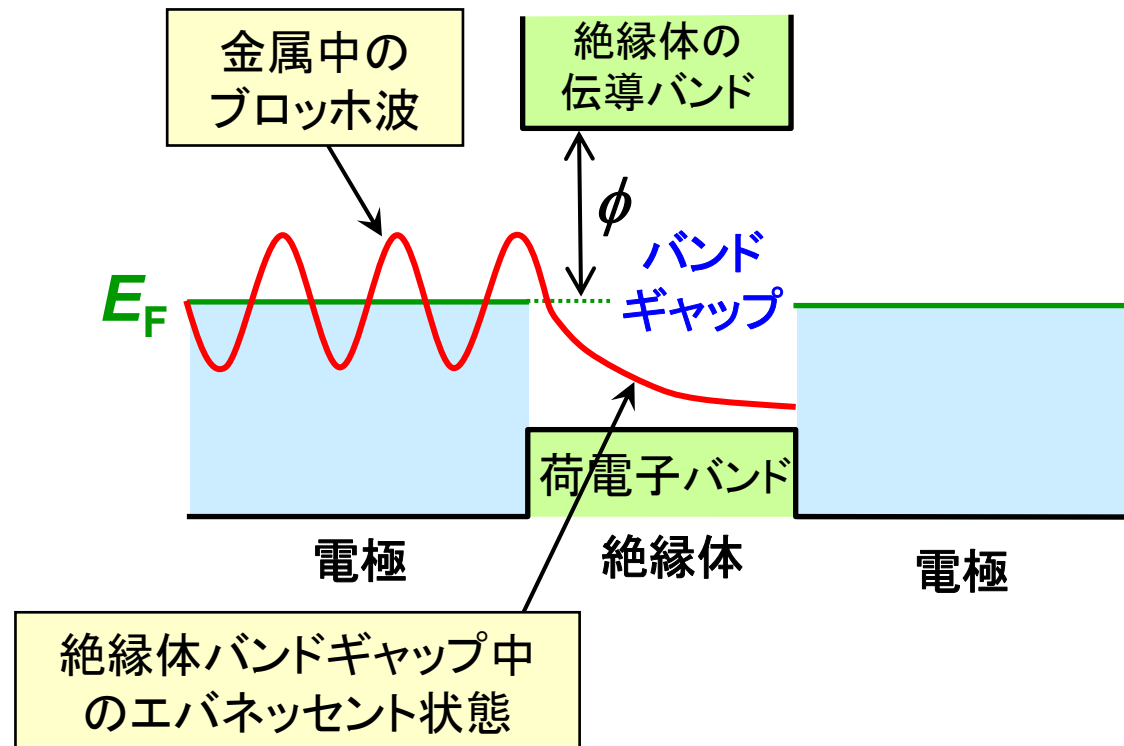
量子力学の教科書に書いてあるトンネル描像



トンネル障壁幅 t を厚くすると、トンネル透過率 T は指数関数的に減少する

$$T \propto \exp(-\sqrt{8m\phi/\hbar^2} \times t) \quad m: \text{電子の有効質量}$$

現実の絶縁体トンネル障壁の電子トンネル

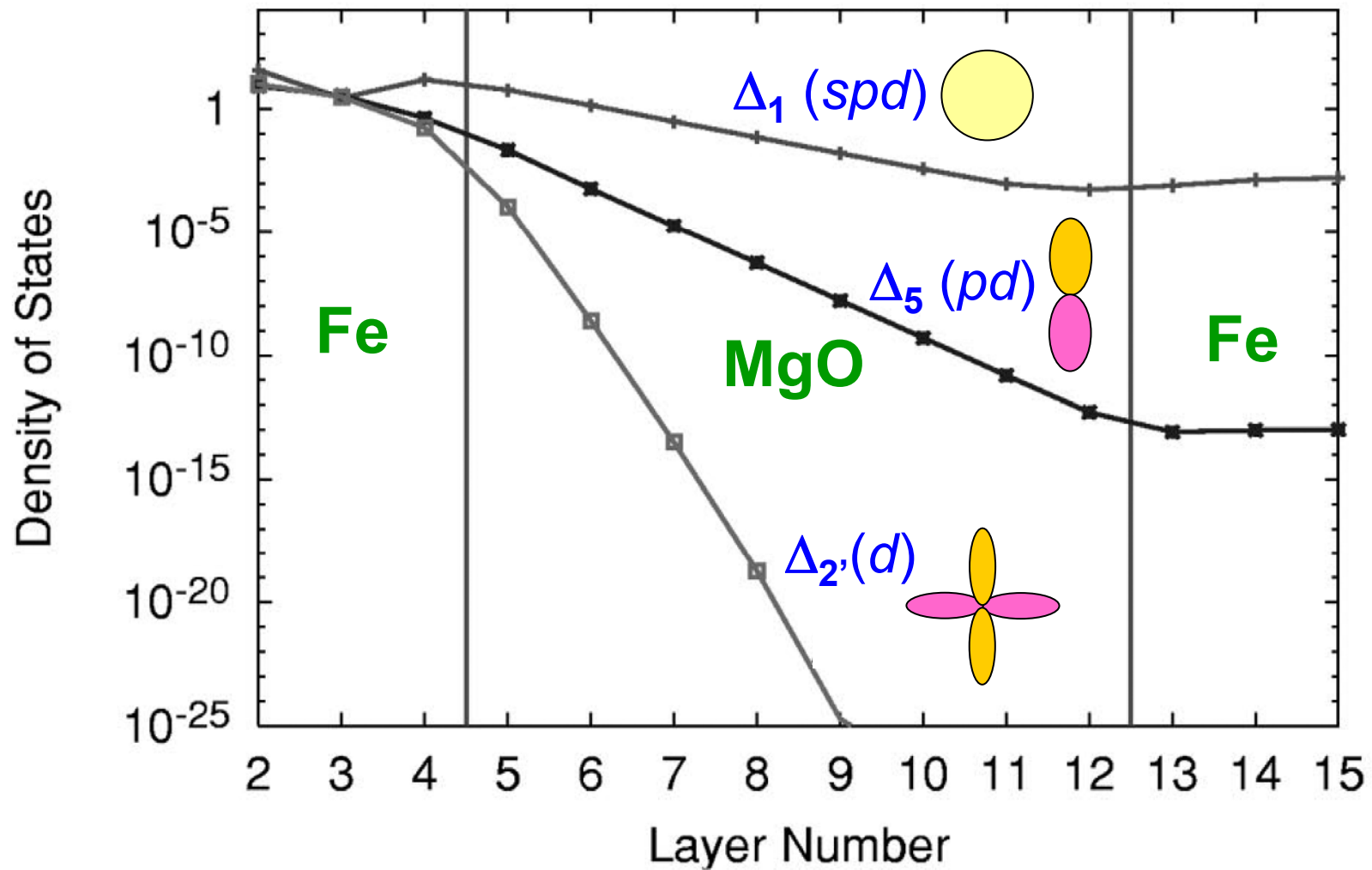


ブロッホ状態 や エヴァネッセント状態は、
(i) 特有の波動関数の軌道対称性 と (ii) 特有のバンド分散 を持っている

ブロッホ状態とエバネッセント状態の界面における接続も重要

MgO障壁内のエヴァネッセント状態の減衰長

Majority Density of States for Fe|MgO|Fe

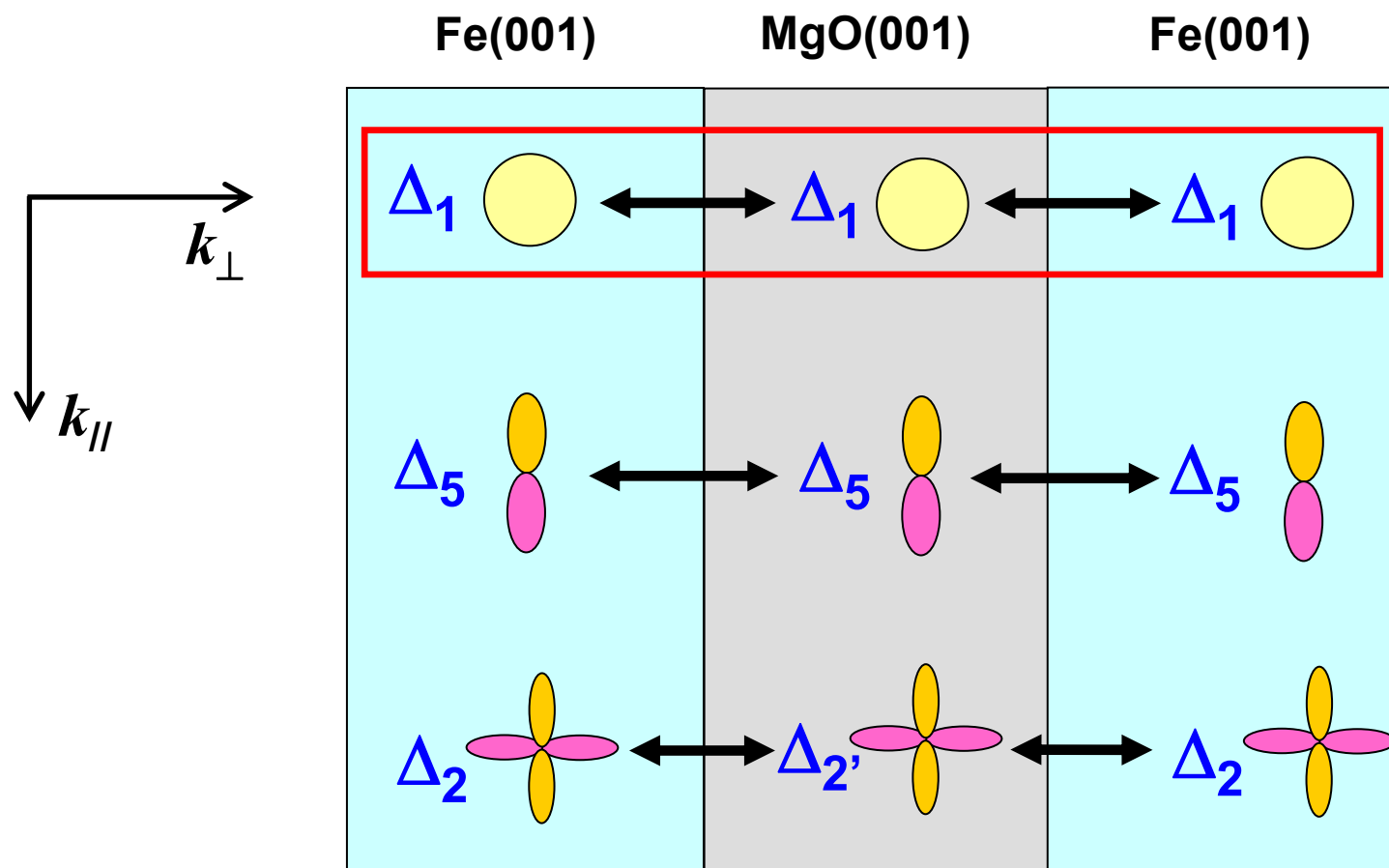


$$\Delta_1 : s + p_z + d_{2z^2 - x^2 - y^2}$$

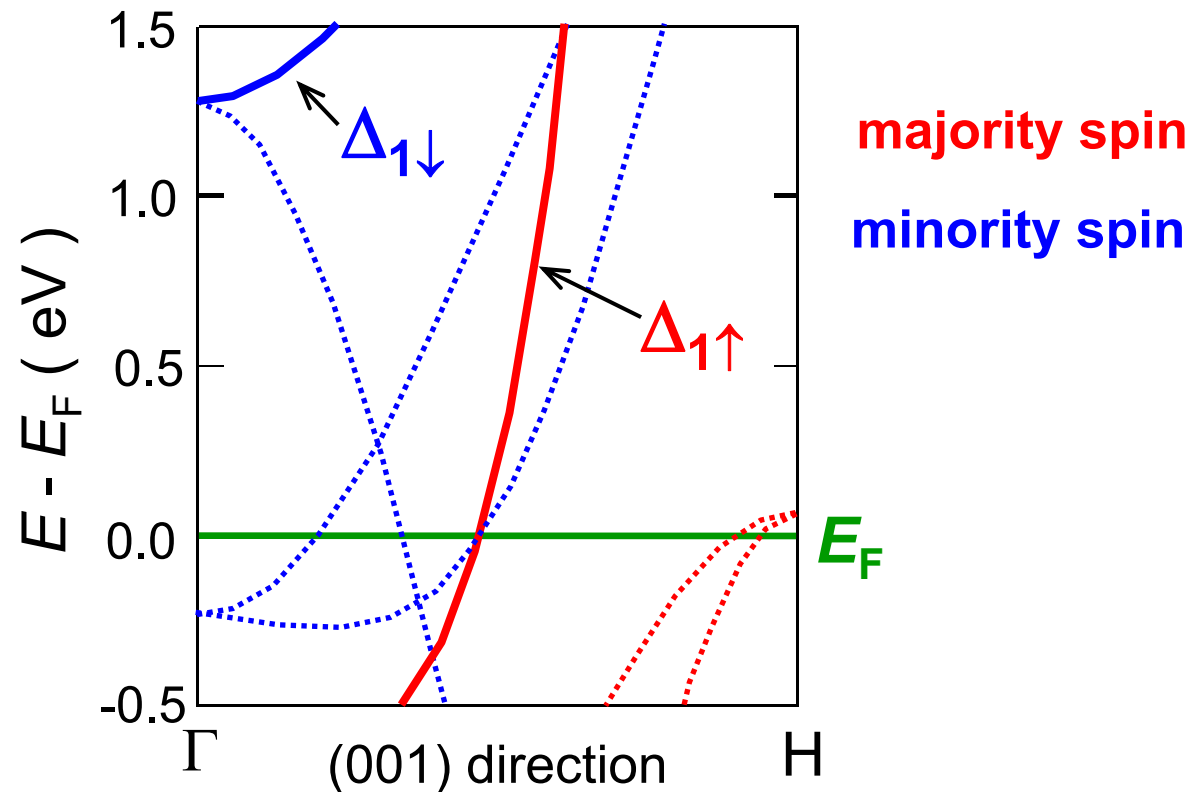
Butler (2001).

ブロッホ状態とエヴァネッセント状態の波動関数の接続

波動関数の対称性が保存されるコヒーレントなトンネルの場合



Fe(001) のバンド構造 ($k_{\parallel}=0$ 方向)



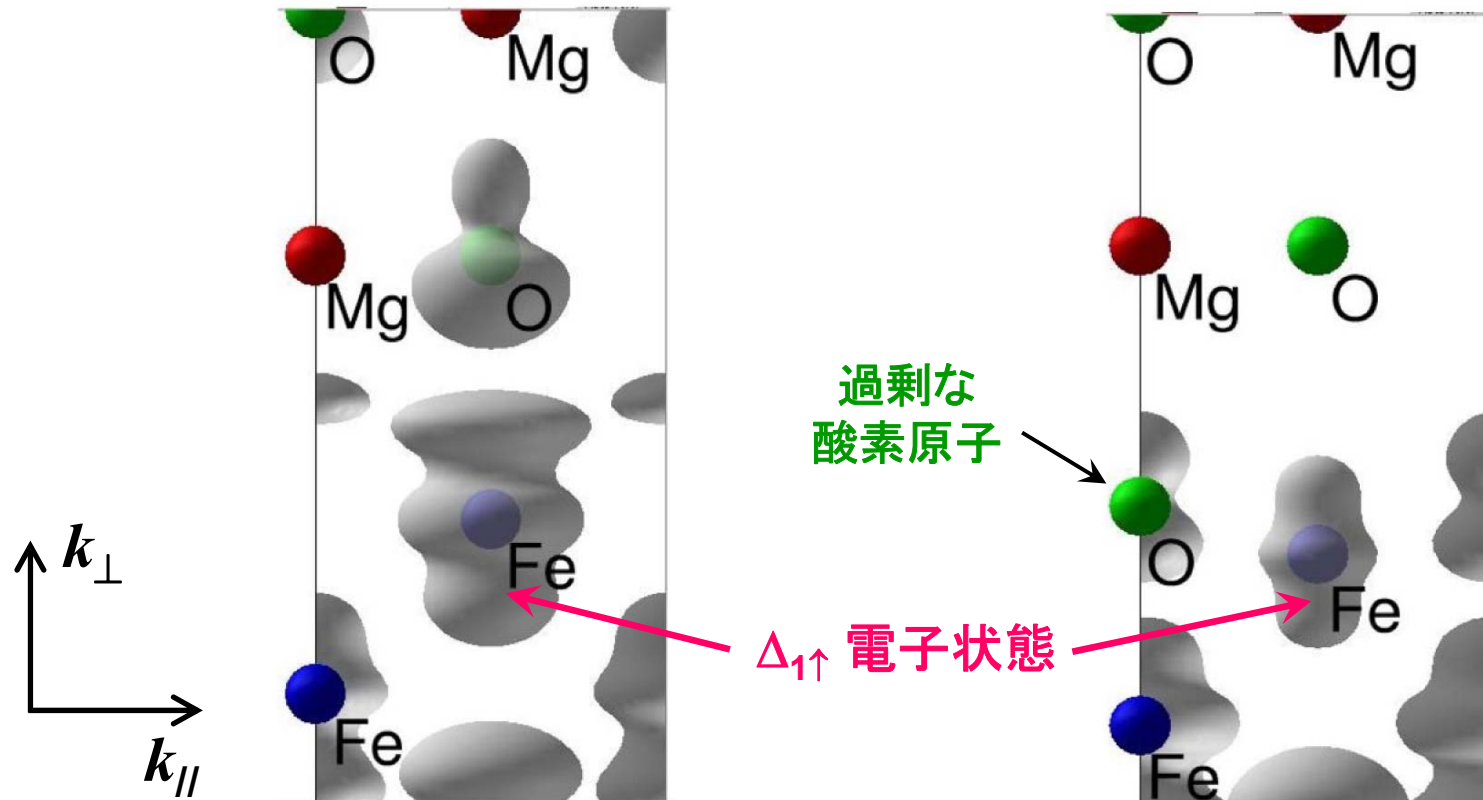
完全にスピンの分極した Δ_1 バンド ($P=1$)

⇒ 巨大なTMR効果 が理論的に期待される

Δ_1 バンドが完全にスピンの分極しているのは bcc Fe に限った話ではなく、
Fe や Co を主成分とする bcc強磁性合金は類似のバンド構造を持つ
(例) bcc Fe-Co, ホイスラー合金など

界面の重要性

(理論計算) Zhang, et al.: *Phys. Rev. B* **68**, 092402 (2003).



Fe- $\Delta_{1\uparrow}$ 状態は $k_{\parallel} = 0$ 方向で
MgO- Δ_1 に接続

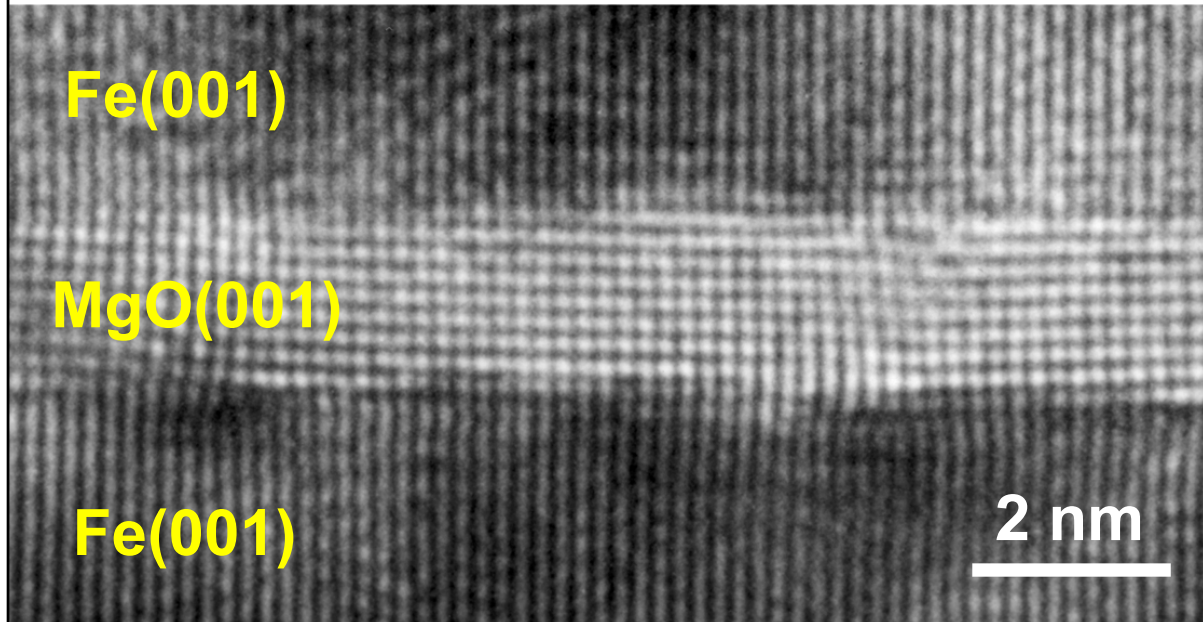
MR 比 > 1000%

Fe- $\Delta_{1\uparrow}$ は $k_{\parallel} = 0$ 方向で
MgO- Δ_1 に接続できない

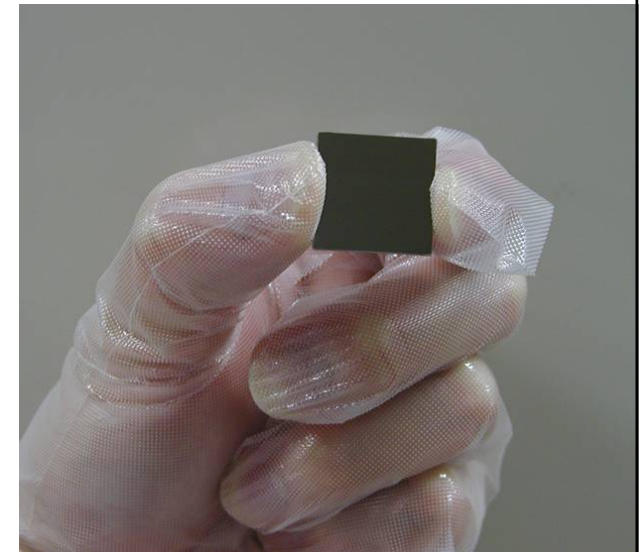
MR 比 < 100%

MBE成長による エピタキシャルMgO-MTJ素子の作製

産総研、JSTさきがけ



断面の電子顕微鏡(TEM)写真



特殊な単結晶基板

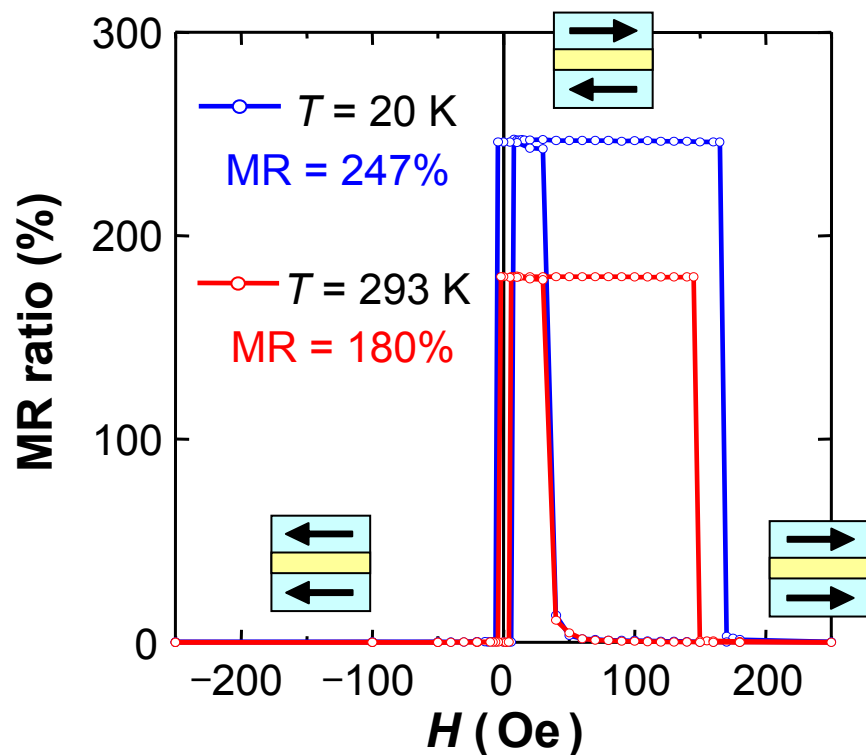
1日1枚

Yuasa *et al.*, *Nature Materials* **3**, 868 (2004).

結晶 MgO トンネル素子の “巨大TMR効果” の実現

<産総研>

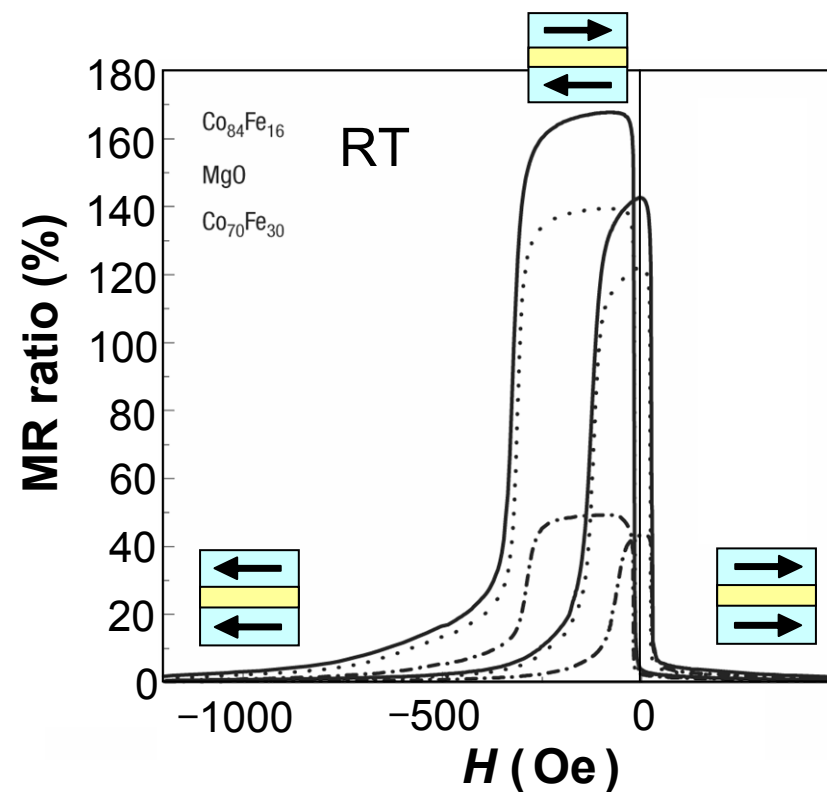
エピタキシャルMgO-MTJ素子



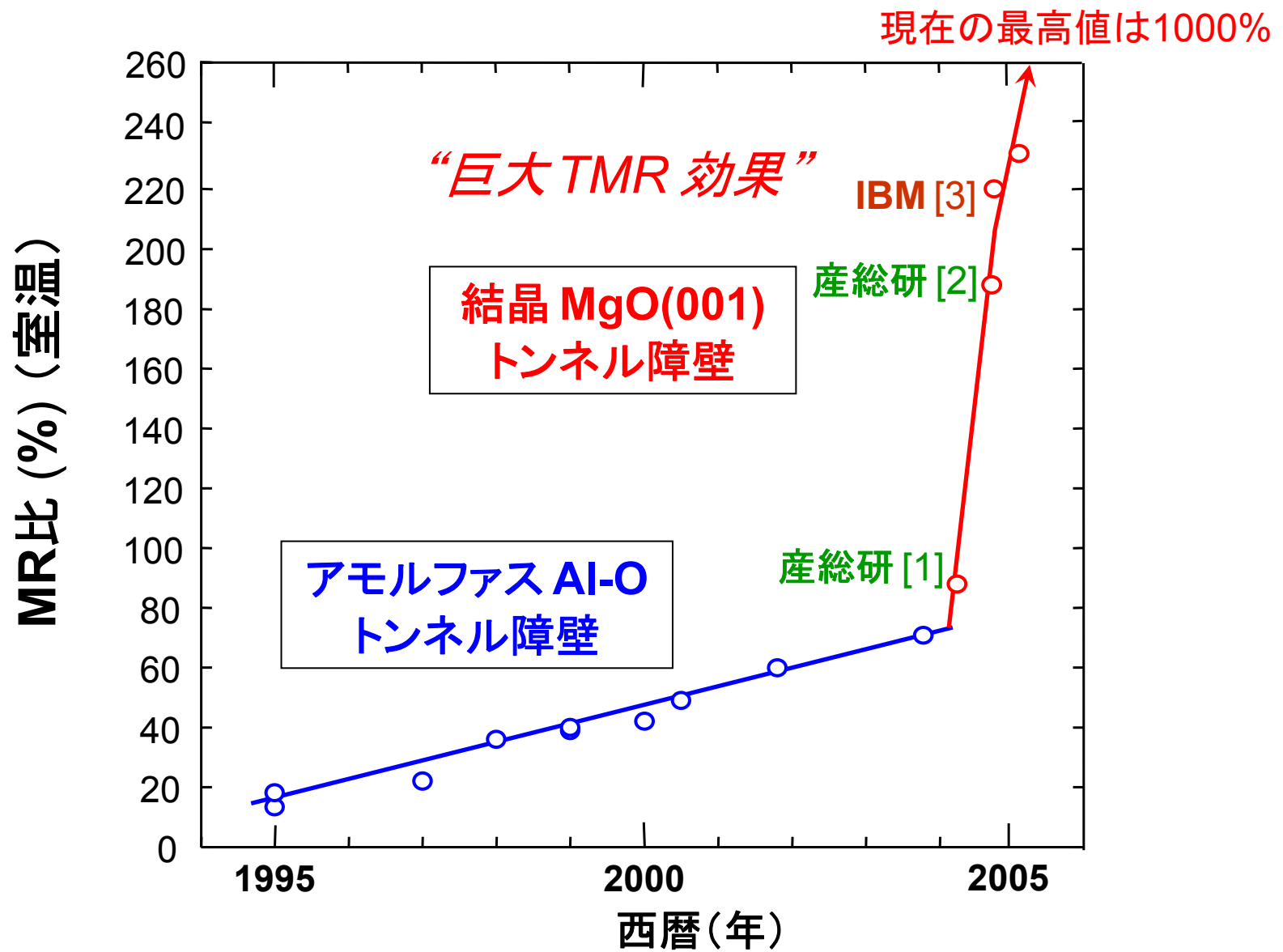
Yuasa et al., *Nature Mater.* **3**, 868 (2004).

<米国 IBM>

配向性多結晶MgO-MTJ素子



Parkin (IBM), *Nature Mater.* **3**, 862 (2004).



[1] Yuasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, L558 (2004). [2] Yuasa, *Nature Mater.* **3**, 868 (2004).
 [3] Parkin, *Nature Mater.* **3**, 862 (2004).

内容

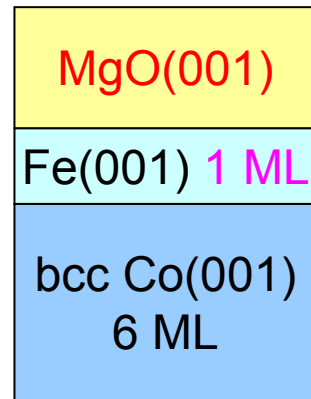
- (1) スピントロニクス と 磁気抵抗効果
- (2) トンネル磁気抵抗効果 (TMR効果)
- (3) 巨大TMR効果
- (4) XAS と XMCD による界面状態の研究
- (5) 巨大TMR効果のデバイスへの応用

XAS: X-ray Absorption Spectroscopy (X線吸収スペクトル)

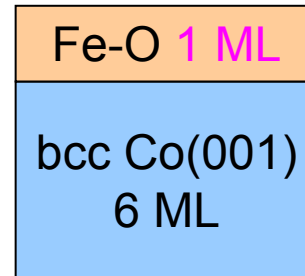
XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism (X線円磁気二色性)

Fe(001) / MgO(001) 界面の研究

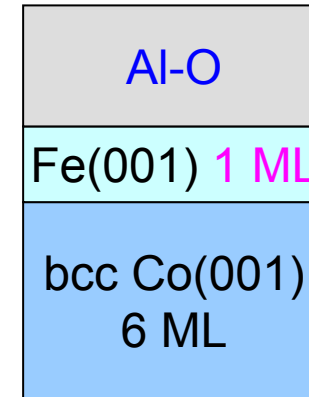
放射光を用いた XAS と XMCD の測定 (KEK-PF)



(a)



(b)



(c)

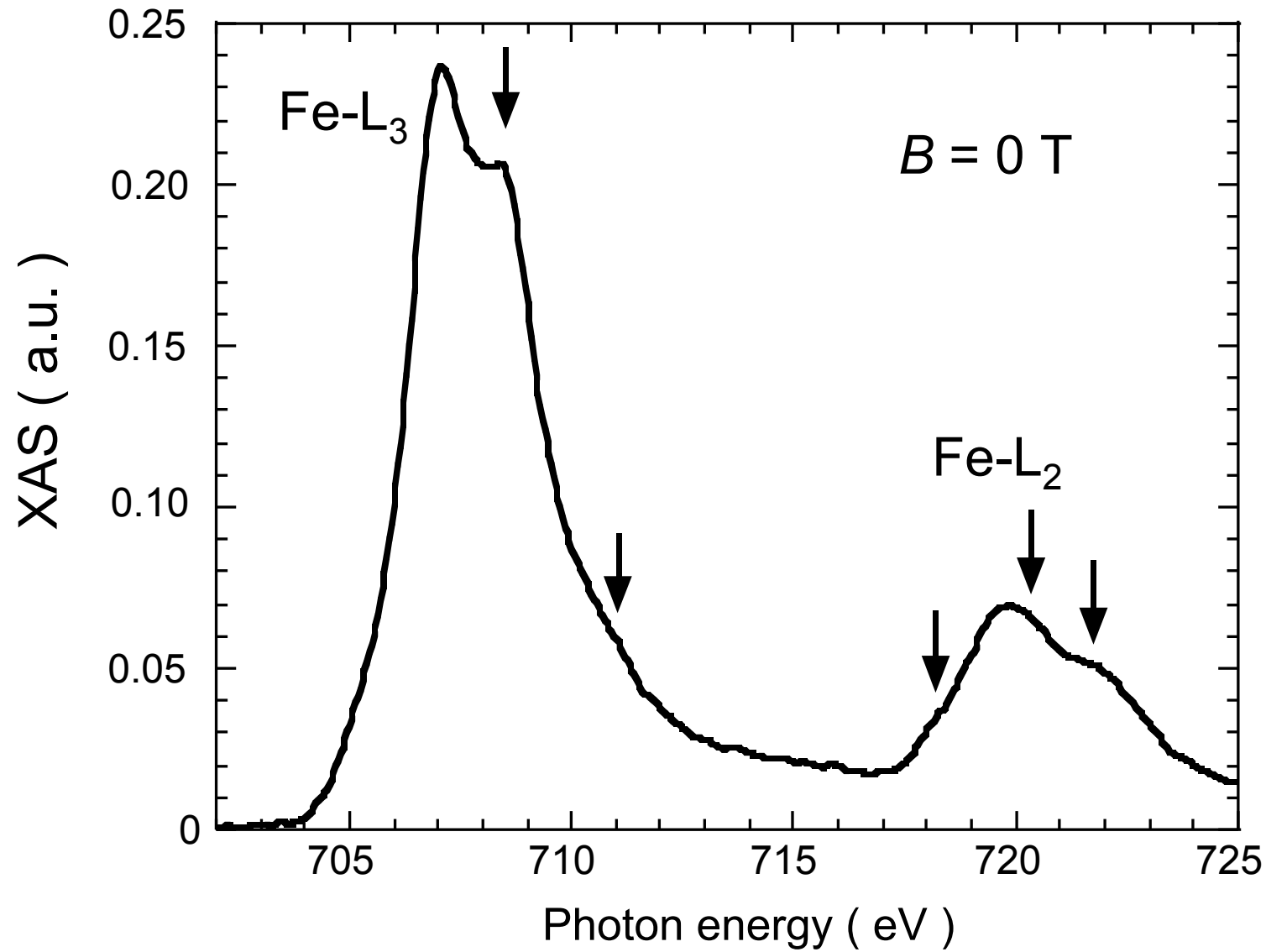
Fe - L_{2,3} 吸収端を用いて、**界面1原子層のFe**を調べる

XAS ⇒ 酸素原子との結合

XMCD ⇒ 磁気モーメント

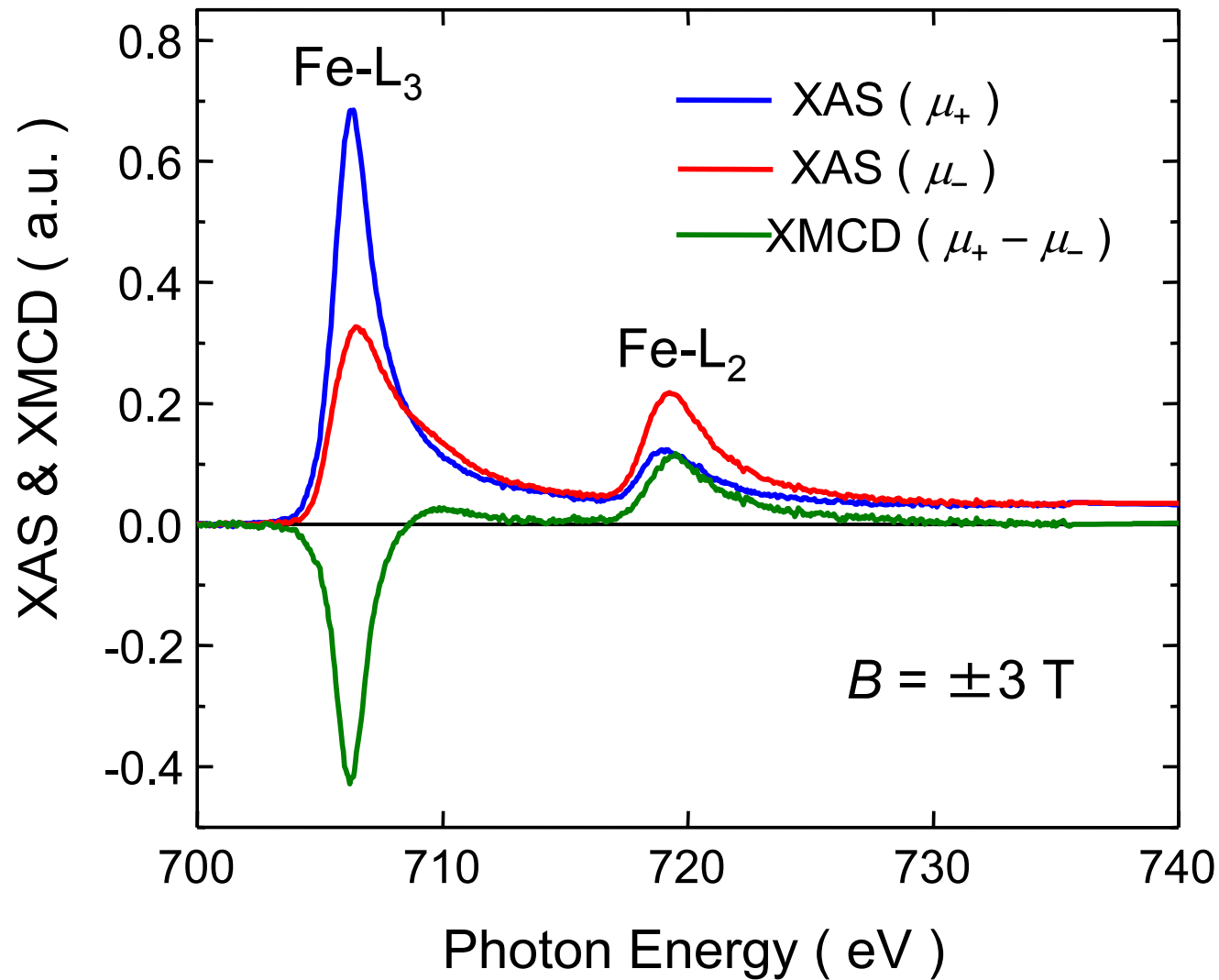
Miyokawa *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** Part II, L9 (2005).

(b) Co(6 ML)/Fe-O(1 ML)



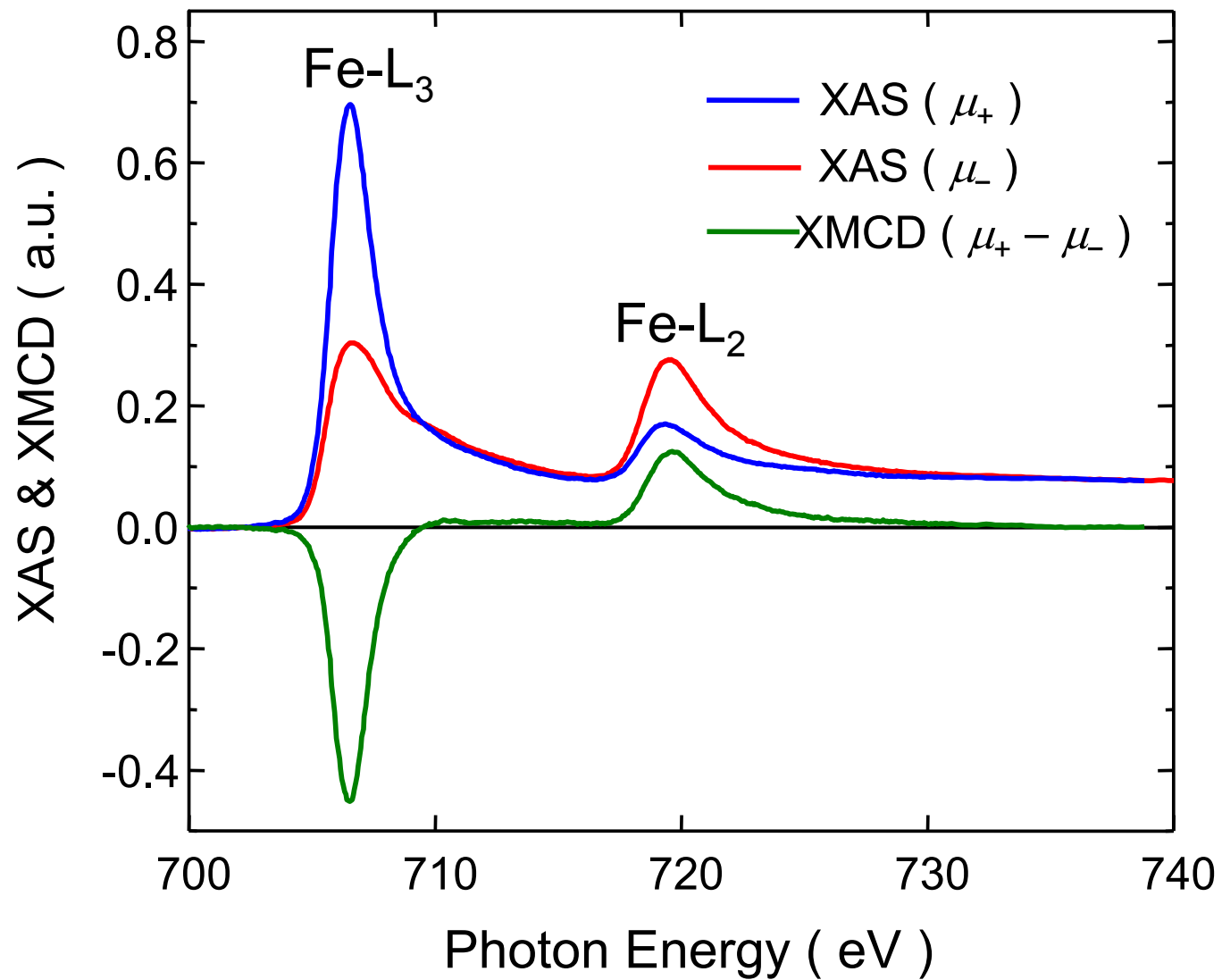
Fe-O に特有のピーク分裂を観測

(a) Co(6 ML)/Fe(1 ML)/MgO(001)



Feは酸化しておらず、大きな磁気モーメントを持っている

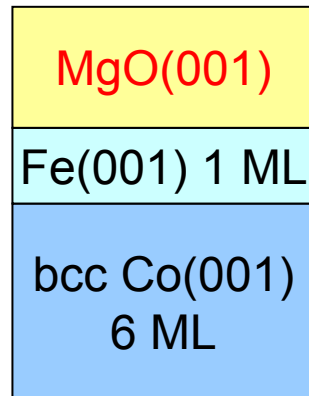
(c) Co(6 ML)/Fe(1 ML)/Al-O



Feは酸化しておらず、大きな磁気モーメントを持っている

界面の Fe 原子の磁気モーメント

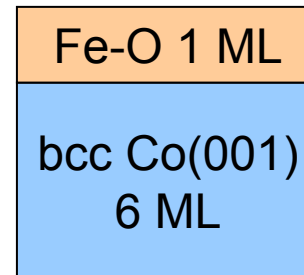
Total magnetic moment



(a)

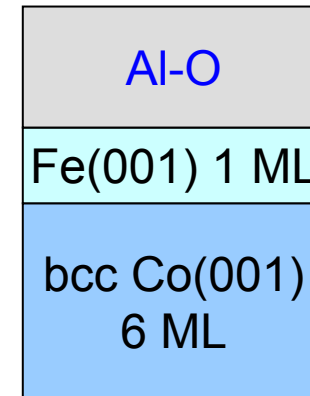
$$\mu_{\text{Fe}} = 2.6 \mu_{\text{B}}$$

$$\text{MR} = 250 \%$$



(b)

$$\mu_{\text{Fe}} = 0.3 \mu_{\text{B}}$$



(d)

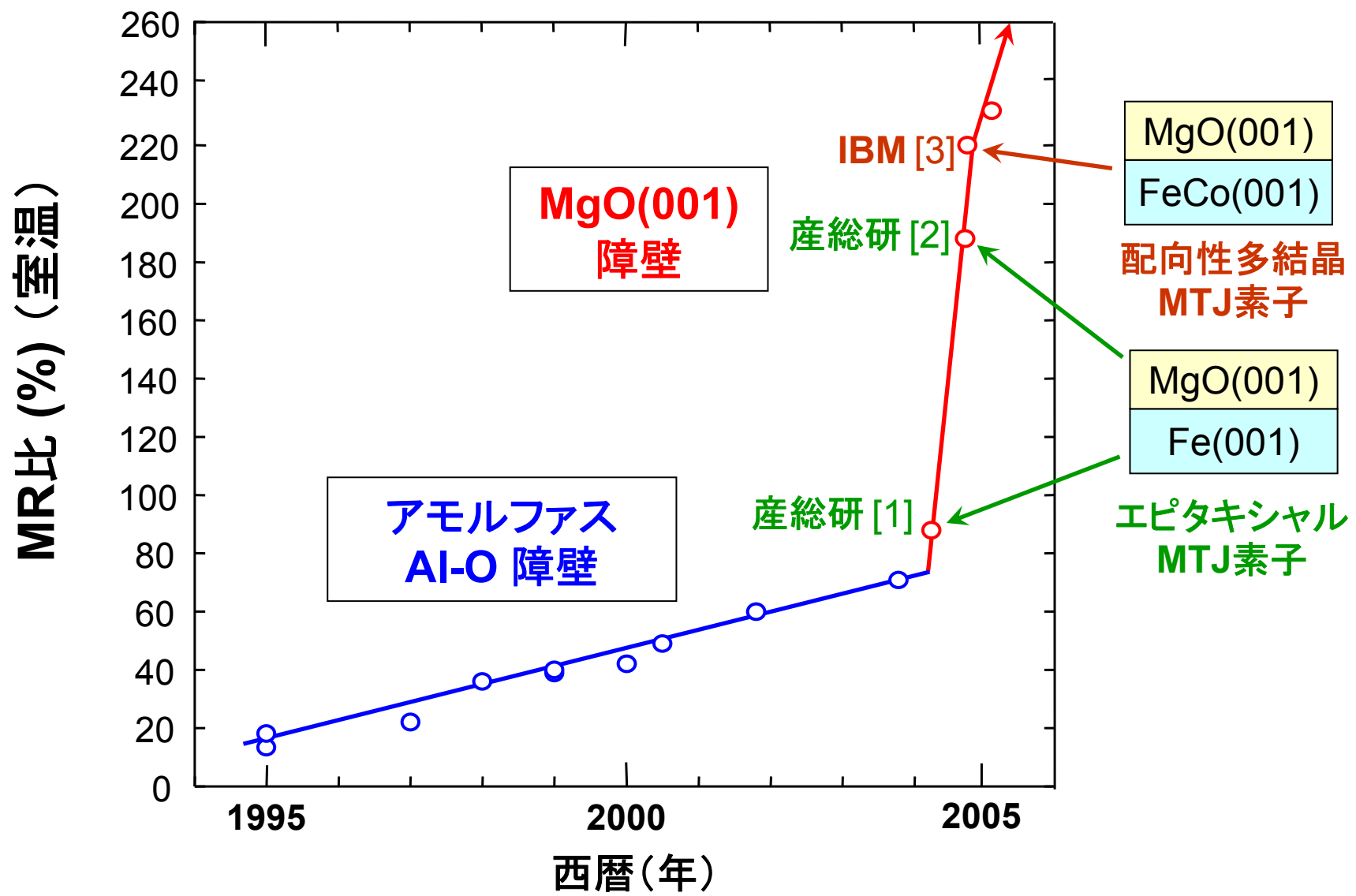
$$\mu_{\text{Fe}} = 2.9 \mu_{\text{B}}$$

$$\text{MR} = 20 \%$$

界面Feの磁気モーメントとMR比の間には、直接的な相関はない

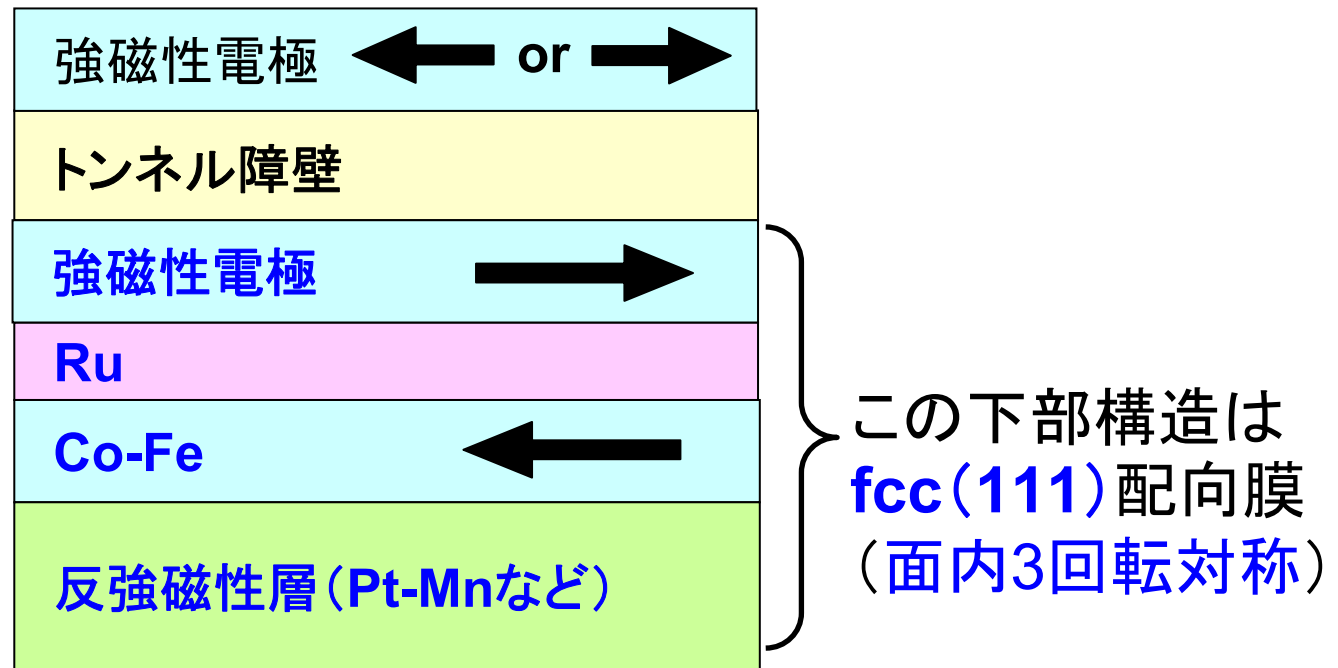
内容

- (1) スピントロニクス と 磁気抵抗効果
- (2) トンネル磁気抵抗効果 (TMR効果)
- (3) 巨大TMR効果
- (4) XAS と XMCD による界面状態の研究
- (5) 巨大TMR効果のデバイスへの応用



[1] Yuasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, L558 (2004). [2] Yuasa, *Nature Mater.* **3**, 868 (2004).
 [3] Parkin, *Nature Mater.* **3**, 862 (2004). [4] Djayaprawira, SY, *APL* **86**, 092502 (2005).

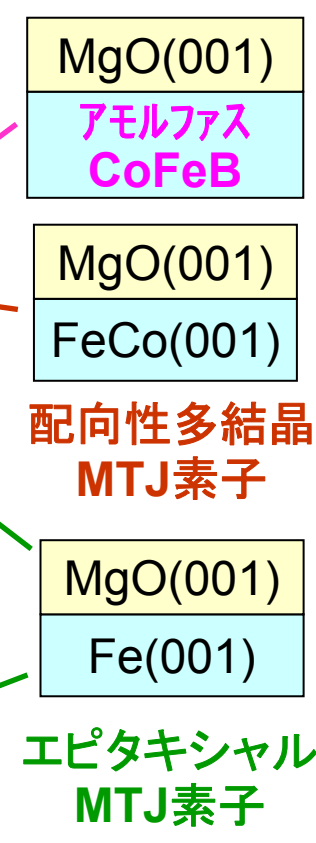
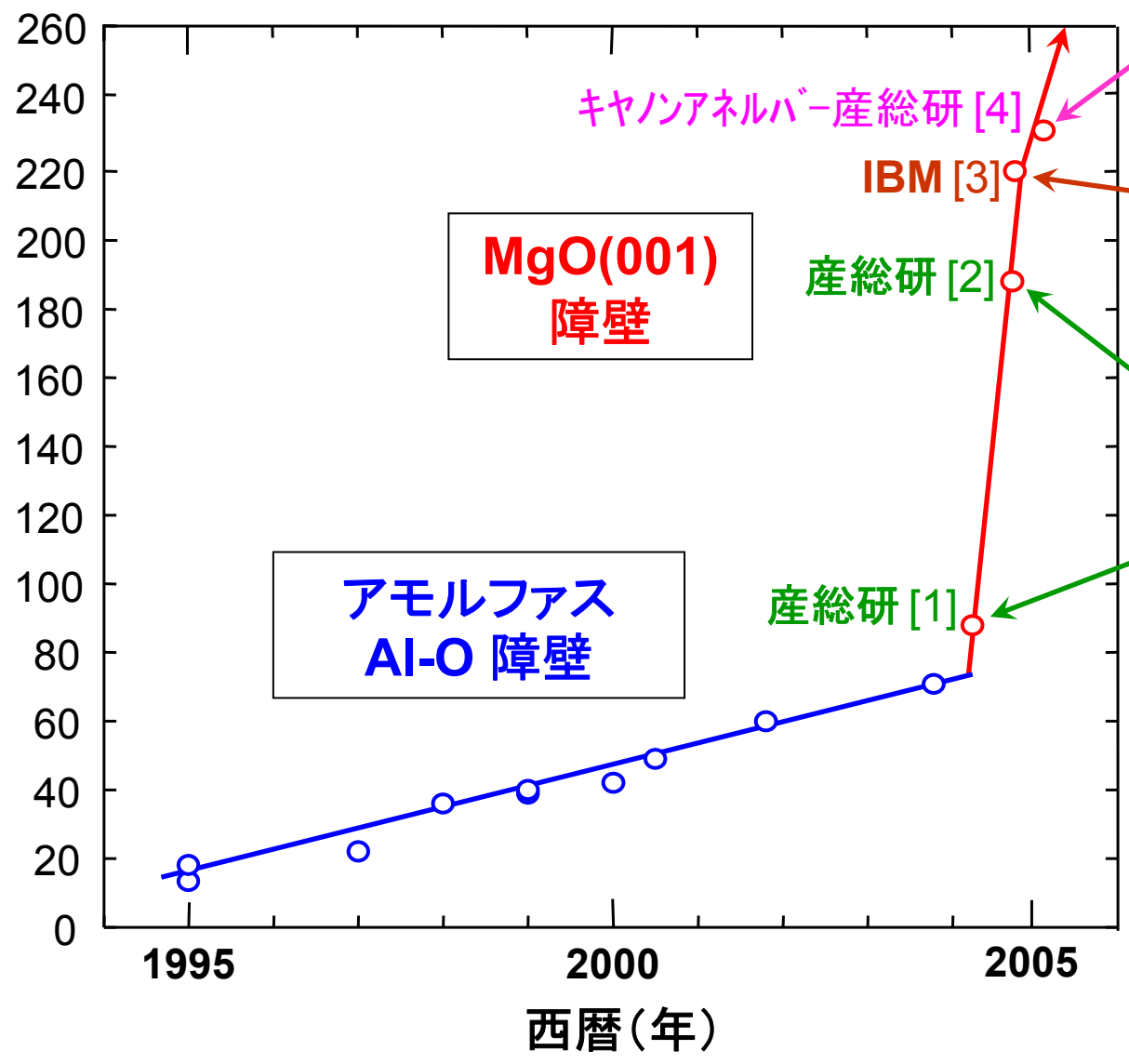
HDD磁気ヘッド や MRAM の基本構造



<問題点>

fcc(111)(3回転対称)の上に**MgO(001)**(4回転対称)を成長することは、通常は不可能

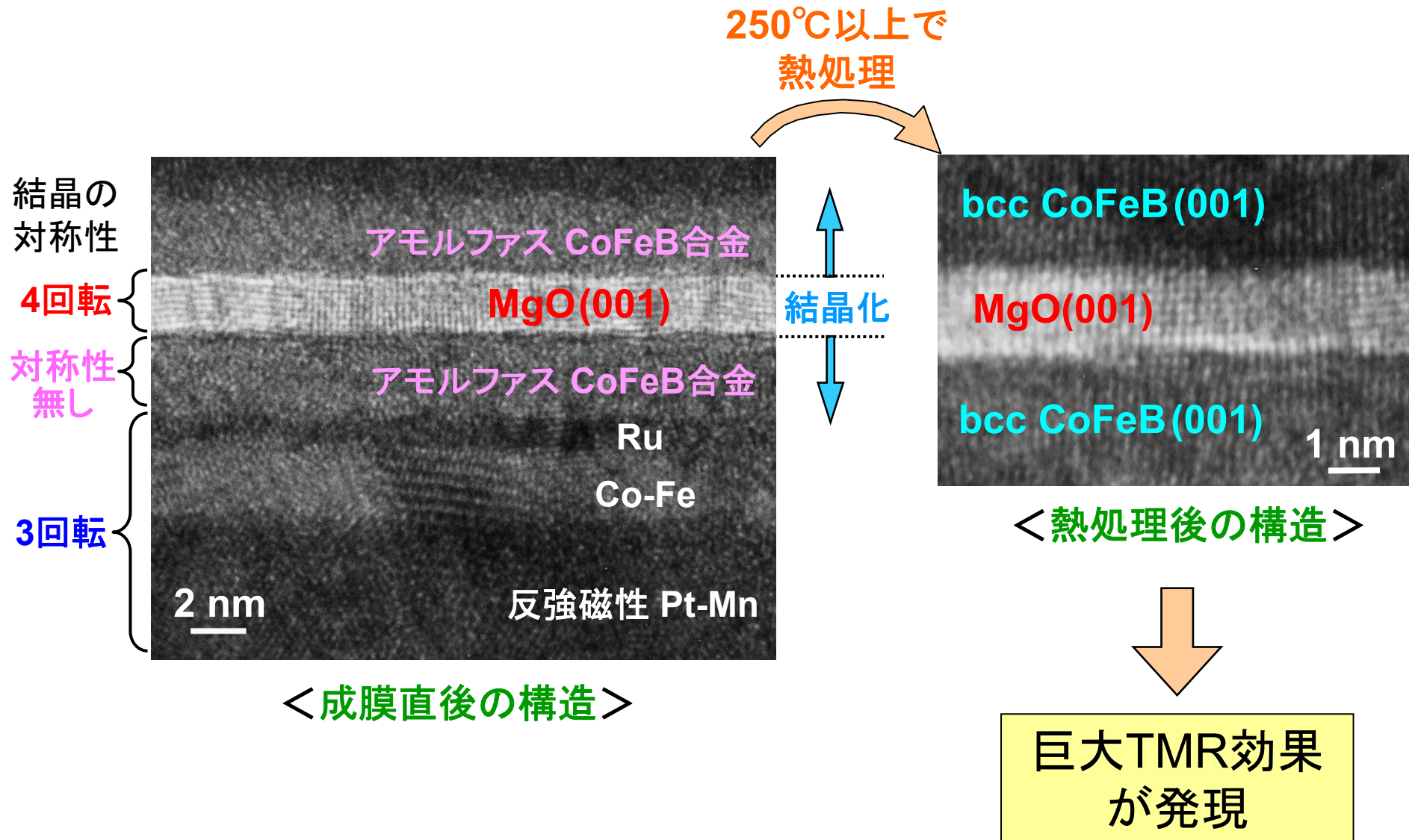
MR比 (%) (室温)



[1] Yuasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, L558 (2004). [2] Yuasa, *Nature Mater.* **3**, 868 (2004).
[3] Parkin, *Nature Mater.* **3**, 862 (2004). [4] Djayaprawira, SY, *APL* **86**, 092502 (2005).

アモルファス CoFeB合金を用いて、結晶成長の難題を解決

産総研、キヤノンアネルバ

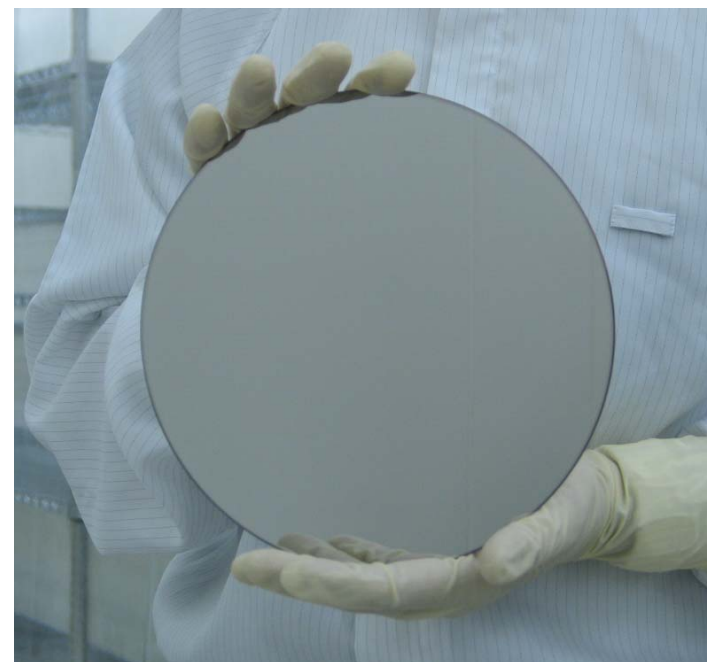


MgOトンネル素子の量産技術を開発

産総研、キャノンアネルバ



HDD産業界で世界標準の
生産用スパッタ装置



大型の Si ウエハ

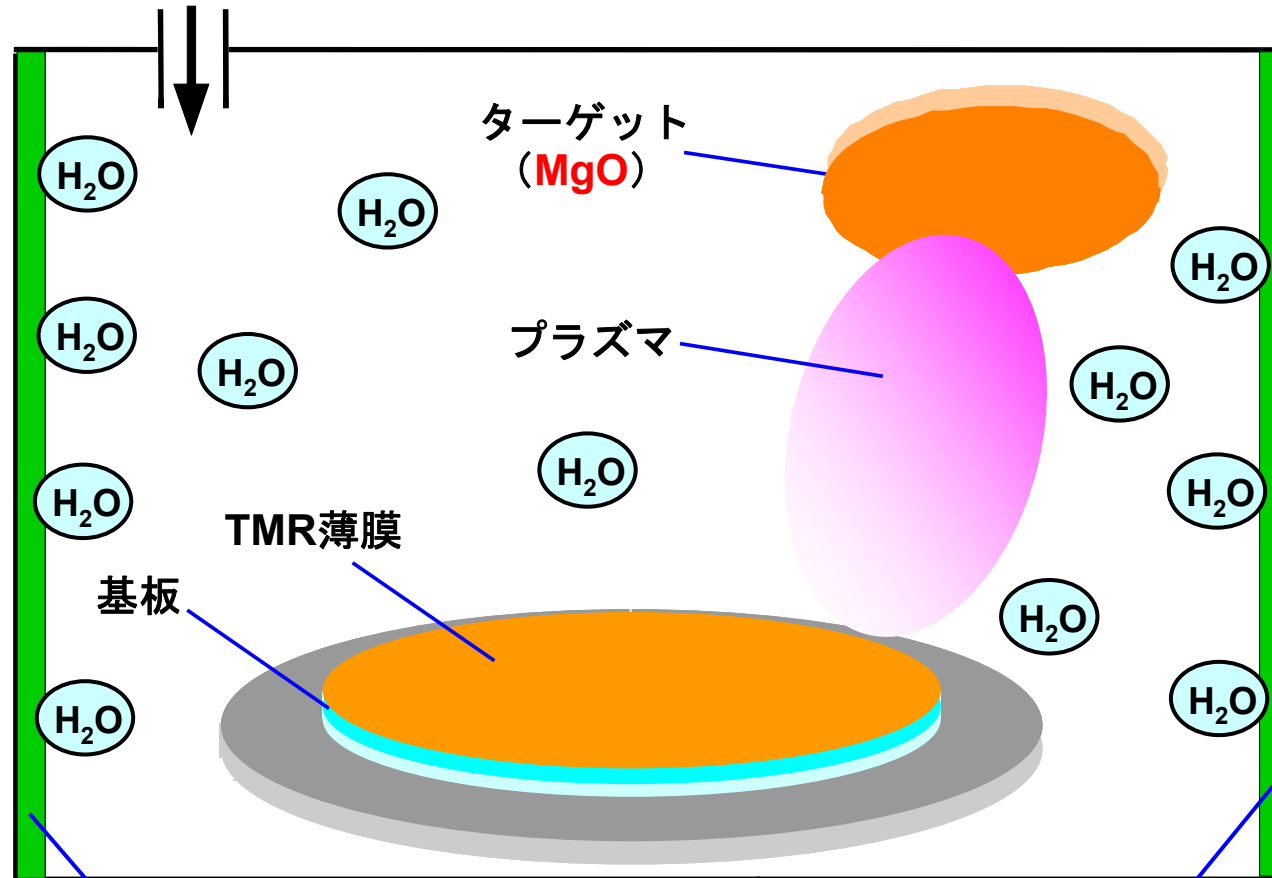
1日 100枚

現在、スピントロニクス応用の主流技術

界面制御のためのスパッタ成膜プロセスの改良

MgO成膜時に不純ガス分子(主にH₂O)を徹底的に除去

スパッタガス(Ar)



水分子を強く吸着する性質のある金属層(タンタル)

磁気抵抗効果
MR比(室温・低磁界)

産業応用

西暦

1857

AMR効果
MR = 1 - 2 %

Lord Kelvin

HDD 磁気ヘッド

電磁誘導
ヘッド

1985

GMR効果
MR = 5 - 15 %

P. Grünberg, A. Fert

MRヘッド

Legend for industrial application status:

- Yellow box: すでに製品化 (Already commercialized)
- Dashed yellow box: 研究開発中 (Under development)

1990

1995

TMR効果
MR = 20 - 70 %

宮崎照宣, J.Moodera

GMRヘッド

2000

不揮発性
メモリ

2005

巨大TMR効果
MR = 100 - 1000 %

湯浅新治, S. Parkin

TMRヘッド

MRAM

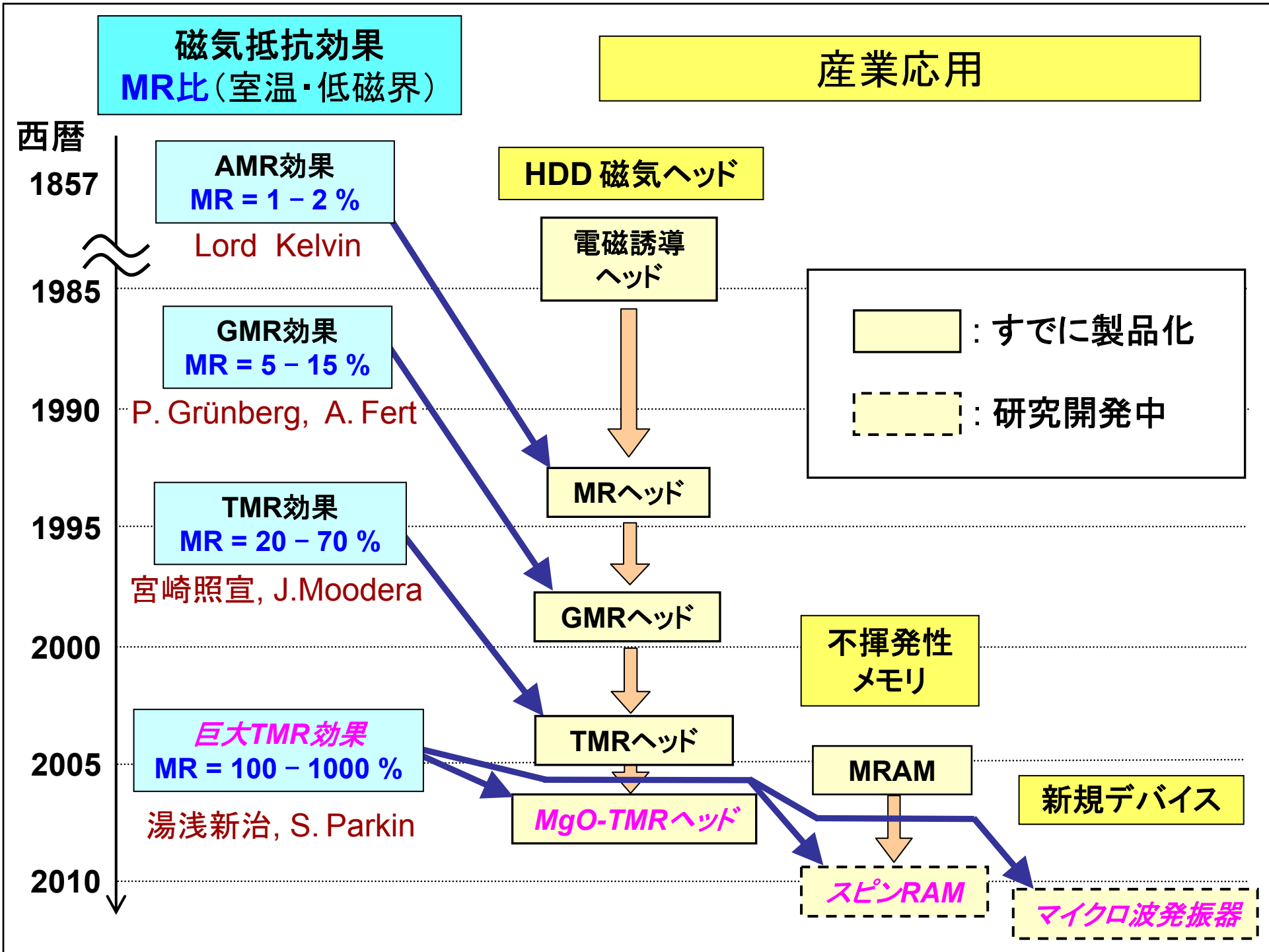
新規デバイス

2010

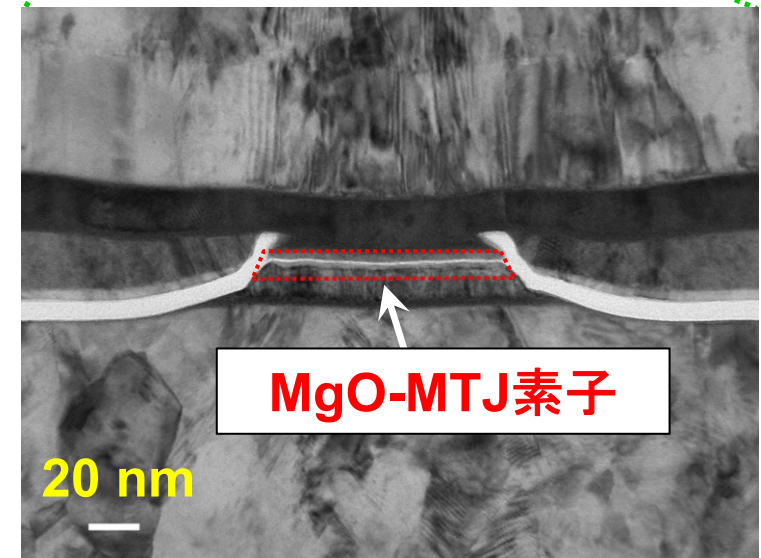
MgO-TMRヘッド

スピンドRAM

マイクロ波発振器



MgO-TMRヘッドの製品化と超高密度HDDの実現



- ◆ 2007年に製品化 (HDDメーカー各社)
- ◆ 500 Gbit/inch² の超高密度HDDが実現 (以前の3倍以上に)
- ◆ 将来的に 1 Tbit / inch² まで実現可能

電子顕微鏡写真

磁気抵抗効果
MR比(室温・低磁界)

産業応用

西暦

1857

AMR効果
MR = 1 - 2 %

Lord Kelvin

HDD 磁気ヘッド

電磁誘導
ヘッド

1985

GMR効果
MR = 5 - 15 %

P. Grünberg, A. Fert

MRヘッド

Legend for industrial application status:

- : すでに製品化
- : 研究開発中

1990

1995

TMR効果
MR = 20 - 70 %

宮崎照宣, J.Moodera

GMRヘッド

2000

不揮発性
メモリ

2005

巨大TMR効果
MR = 100 - 1000 %

湯浅新治, S. Parkin

TMRヘッド

MRAM

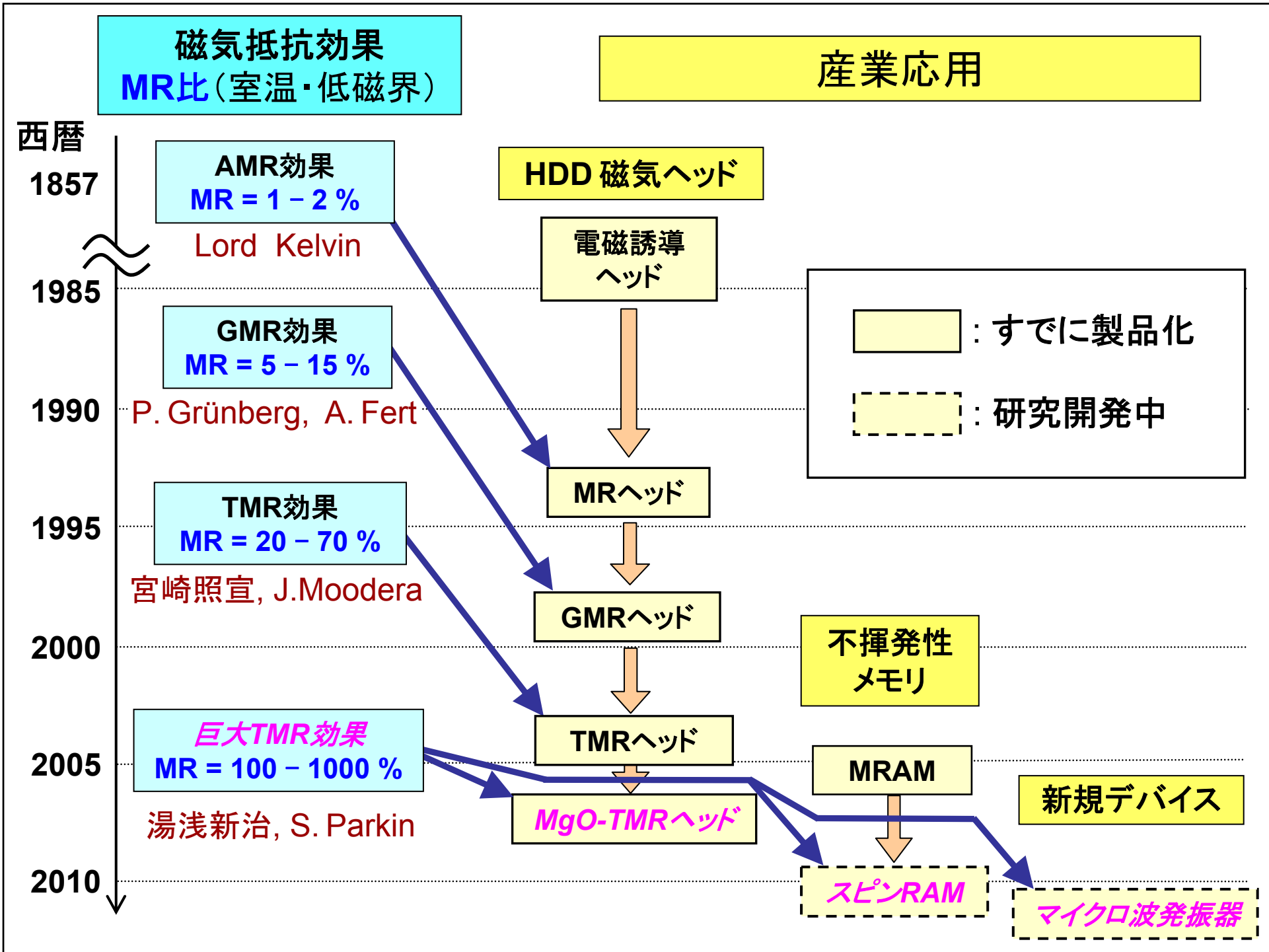
新規デバイス

2010

MgO-TMRヘッド

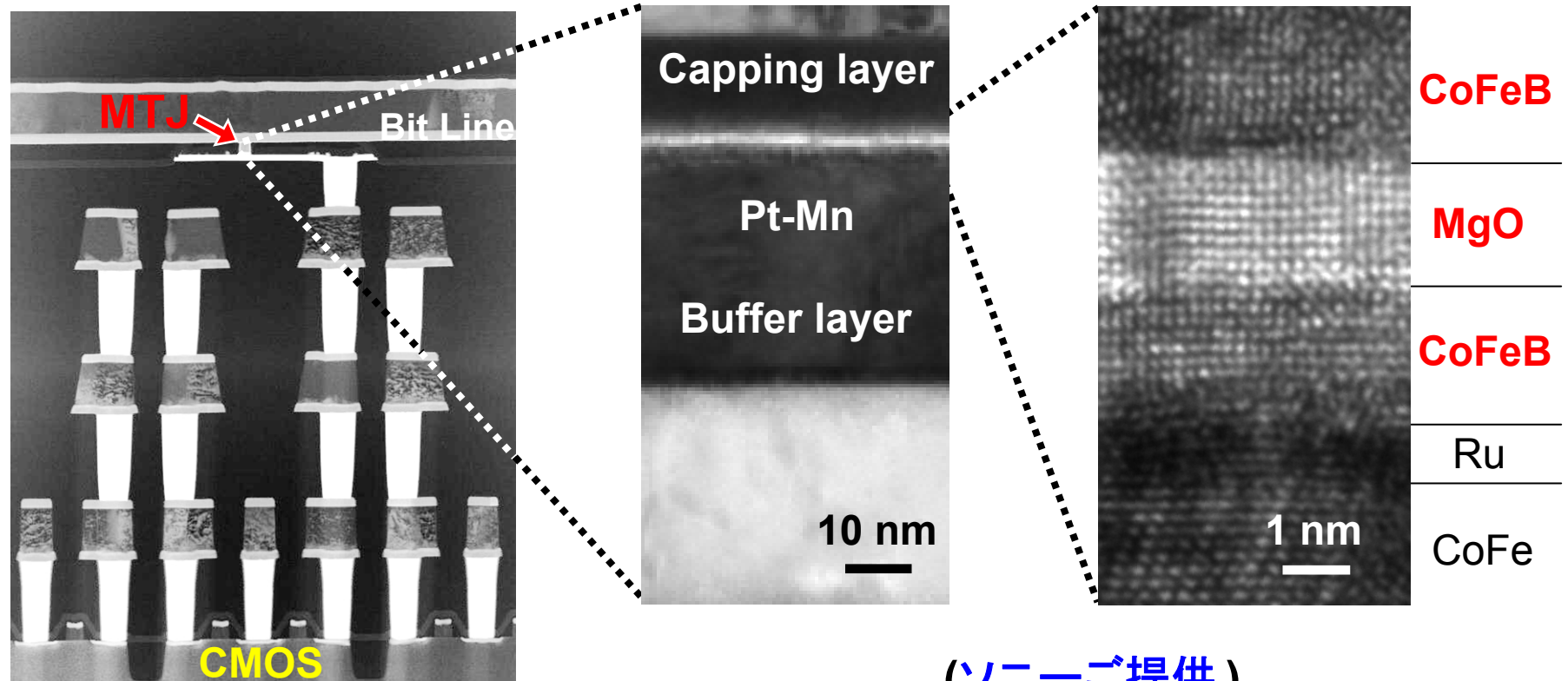
スピンドラム

マイクロ波発振器



スピン・トルク MRAM (スピンRAM)

ソニーが試作した 4 kbit のスピンRAM
(Hosomi *et al.*, *IEDM* 2005.)



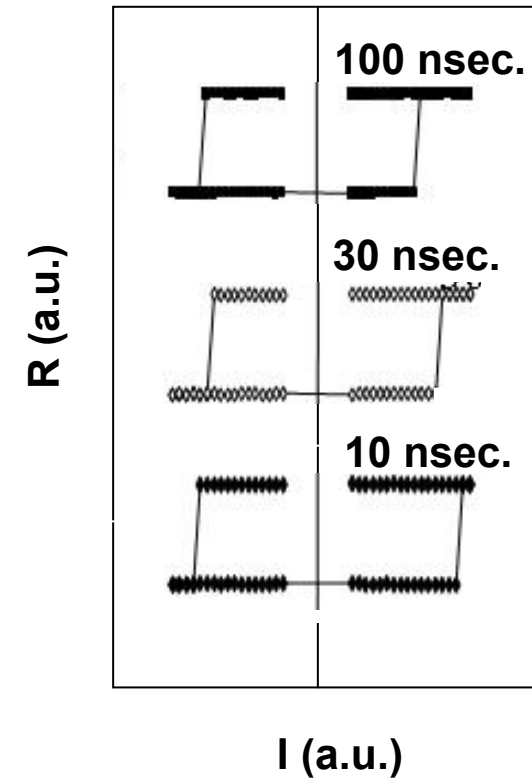
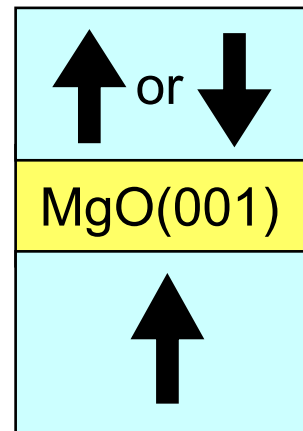
(ソニーご提供)

垂直磁化 MTJ 素子を用いたスピンRAMの開発

東芝, 産総研, 他, *IEDM* (2008) 12.6.

A TEM image of 50 nm-sized MTJ

A CMOS integrated 1 kbit MTJ array



垂直磁化MgO-MTJは、
超Gbit級スピンRAMの最有力解

磁気抵抗効果
MR比(室温・低磁界)

産業応用

西暦

1857

AMR効果
MR = 1 - 2 %

Lord Kelvin

HDD 磁気ヘッド

電磁誘導
ヘッド

1985

GMR効果
MR = 5 - 15 %

P. Grünberg, A. Fert

MRヘッド

Legend for industrial application status:

- : すでに製品化
- : 研究開発中

1990

1995

TMR効果
MR = 20 - 70 %

宮崎照宣, J.Moodera

GMRヘッド

不揮発性
メモリ

2000

2005

巨大TMR効果
MR = 100 - 1000 %

湯浅新治, S. Parkin

TMRヘッド

MRAM

新規デバイス

MgO-TMRヘッド

スピンドラム

マイクロ波発振器

2010

