

学位論文題名

Giant tunnel magnetoresistance in epitaxial magnetic tunnel junctions with Heusler alloy Co_2MnSi thin film due to half-metallicity and coherent tunneling

(ホイスラー合金 Co_2MnSi 薄膜を用いたエピタキシャル強磁性トンネル接合における
ハーフメタル特性とコヒーレントトンネリングによる巨大トンネル磁気抵抗)

学位論文内容の要旨

This dissertation is a summary of research achievements of giant tunnel magnetoresistance in epitaxial magnetic tunnel junctions with Heusler alloy Co_2MnSi thin film due to half-metallicity and coherent tunneling.

In recent decades, an emerging electron device technology called spintronics that utilize the spin degree of freedom of the electron attracted much interest because spintronic devices are expected to provide new functions such as nonvolatility and reconfigurable logic functions along with ultralow power consumption. A highly efficient spin source is essential for these spintronic devices. Half-metallic ferromagnets (HMFs) are one of the most suitable materials for spintronic devices because HMFs are characterized by an energy gap for one spin direction, providing complete spin polarization at the Fermi level (E_F). One Co-based Heusler alloy, in particular, Co_2MnSi , has attracted interest for magnetic tunnel junctions (MTJs) and giant magnetoresistance (GMR) devices because of its theoretically predicted half-metallic nature, with a large energy gap of 0.42 eV to 0.81 eV for its minority-spin band, and because of its high Curie temperature of 985 K. Furthermore, it has been theoretically predicted that coherent tunneling through the Δ_1 Bloch states of Co_2MnSi is dominant in an MTJ with Co_2MnSi electrodes and a MgO barrier.

T. Ishikawa *et al.* from our research group recently investigated the effect that defects possibly associated with nonstoichiometry in Co_2MnSi thin films had on spin-dependent tunneling characteristics and found that fully epitaxial $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}/\text{Co}_2\text{MnSi}$ MTJs with sputter-deposited, Mn-rich Co_2MnSi electrodes grown on a MgO-buffered MgO(001) substrate exhibit high tunnel magnetoresistance (TMR) ratios of 1135% at 4.2 K and 236% at 290 K, exceeding those of MTJs with Co_2MnSi electrodes having an almost stoichiometric composition. The observed higher TMR ratio for MTJs with Mn-rich Co_2MnSi electrodes was explained by suppressed Co_{Mn} antisites, which caused a reduced density of minority-spin in-gap states around E_F . There are still rooms to further develop the MTJs with Co_2MnSi electrodes and a MgO barrier according to the theoretically work.

The broad purpose of this research is to fully utilize the potentially half-metallic nature of Co_2MnSi as a highly spin-polarized spin source. In more specific, the purpose in this dissertation is to further clarify the key factors that influence the spin-dependent tunneling characteristics of fully epitaxial Co_2MnSi -based MTJs with a MgO barrier. We clarified the improvement in the structural properties in terms of the misfit dislocation densities at the interfaces with a MgO tunnel barrier significantly enhances the tunnel magnetoresistance ratio of Co_2MnSi -based MTJs with a MgO barrier. We also

demonstrated a Co_2MnSi electrode indirectly facing a MgO barrier via an ultrathin $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ (CoFe) insertion layer works as a half-metallic spin source without the lowering of the exchange constant of Co atoms in the Co-planes in the Co_2MnSi layer, resulting in a giant TMR ratio up to 450% at RT.

This dissertation consists 5 chapters. The content in each chapter is as follows,

Chapter 1 provides a brief introduction of the present research, including the background and the motivation of the research.

Chapter 2 describes highly spin-polarized tunneling in epitaxial magnetic tunnel junctions with a Co_2MnSi electrode and a MgO barrier with improved interfacial structural properties. Magnetic tunnel junctions consisting of (from the lower side) CoFe/MgO/ Co_2MnSi or CoFe-buffered Co_2MnSi /MgO/CoFe showed almost identical, high TMR ratios of 335% at 290 K (1049% at 4.2 K) and 340% at 290 K (879% at 4.2 K), respectively. In contrast, MTJs consisting of MgO-buffered Co_2MnSi /MgO/CoFe showed a lower TMR ratio of 173% at 290 K (448% at 4.2 K). The higher TMR ratios for CoFe/MgO/ Co_2MnSi MTJs and CoFe-buffered Co_2MnSi /MgO/CoFe MTJs can be ascribed to the enhanced contribution of coherent tunneling that originated from decreased misfit dislocation densities at the lower and upper interfaces with a MgO barrier.

Chapter 3 represents the giant TMR ratios in fully epitaxial CoFe-buffered Co_2MnSi /MgO/ Co_2MnSi MTJs. Significantly high TMR ratios of 1995% at 4.2 K and 330% at 290 K were demonstrated for CoFe-buffered Co_2MnSi /MgO/ Co_2MnSi MTJs, which are much higher than those for the MgO-buffered Co_2MnSi /MgO/ Co_2MnSi MTJs. These obtained higher TMR ratios can also be attributed to the enhanced contribution of coherent tunneling due to the decreased misfit dislocation densities at the interfaces and half-metallic nature of Co_2MnSi electrodes.

Chapter 4 describes the highly spin-polarized tunneling characteristics in fully epitaxial MTJs of CoFe/MgO/CoFe ultrathin layer (1.1 nm)/ Co_2MnSi MTJs. Giant TMR ratios of 1135% at 4.2 K and 450% at 290 K were demonstrated. The obtained high TMR ratio at 290 K are probably due to restoration of the exchange constants of Co atoms at the Co_2MnSi /MgO interface. The $dI/dV (= G)$ vs. V characteristics for the parallel (P) magnetization configuration (G_P spectra) showed a pronounced peak structure at $V = -0.23$ V for negative V at both 4.2 K and 290 K, where the bias voltage V was defined with respect to the lower electrode. A model was proposed to explain this characteristic and to clarify that the half-metallicity of the Co_2MnSi upper electrode grown on a MgO barrier via a CoFe ultrathin layer works as a spin source.

Chapter 5 is the conclusion of this research.

Above described are the main contents of this research. These research findings suggest that preparing Heusler alloy/MgO-based heterostructures with improved interfacial structural properties: included (1) reduced misfit dislocation spacing at the interfaces with a MgO barrier for MTJs, and (2) suppressed reduction of Co spin moment at the interfacial region of Co_2MnSi /MgO, is highly effective for fully utilizing potentially half-metallic Heusler alloy thin films in spintronic devices.

学位論文審査の要旨

主査	教授	山本 眞史
副査	教授	高橋 庸夫
副査	教授	末岡 和久
副査	准教授	植村 哲也

学位論文題名

Giant tunnel magnetoresistance in epitaxial magnetic tunnel junctions with Heusler alloy Co_2MnSi thin film due to half-metallicity and coherent tunneling

(ホイスラー合金 Co_2MnSi 薄膜を用いたエピタキシャル強磁性トンネル接合における
ハーフメタル特性とコヒーレントトンネリングによる巨大トンネル磁気抵抗)

本論文は、ホイスラー合金 Co_2MnSi 薄膜を用いたエピタキシャル強磁性トンネル接合におけるハーフメタル特性とコヒーレントトンネリングによる巨大トンネル磁気抵抗に関する研究成果をまとめたものである。

電子のスピン自由度を活用するスピントロニクスデバイスが次世代の電子デバイスとして注目されている。これはスピントロニクスデバイスが、不揮発性、再構成論理機能、超低消費電力性など従来にはない機能を併せて有するからである。スピン偏極した電流の創出はスピントロニクスデバイスにとって必須であり、この点で非常に有望な材料の一つは、フェルミレベルにおいて、一方のスピン方向に対してエネルギーギャップを有し、このため、スピン偏極率が 100% となるハーフメタル強磁性体である。

本研究の目的は、ホイスラー合金 Co_2MnSi (CMS) 薄膜が潜在的に有するハーフメタル特性を、スピントロニクスデバイスに十分に活用するための指針を明らかにすることである。さらに具体的な目標は、CMS 電極と MgO バリアを用いたエピタキシャル構造の MTJ のスピン依存トンネル特性を決めている要因を明らかにすることである。本研究では、CMS 電極と MgO バリアの界面の構造を、界面でのミスフィット転位密度を減少させるという意味で改善することにより、CMS 電極と MgO バリアを用いた MTJ の TMR 比が顕著に増大することを明らかにした。さらに、極薄膜 CoFe 層を介して、間接的に MgO バリアと接する CMS 電極がハーフメタルのスピン源として働くことを実証すると共に、極薄膜 CoFe 層の挿入によって CMS 層の MgO との界面付近のスピン揺らぎが抑制され、結果として、室温で 450% に達する巨大 TMR 比を実証した。

本論文は全 5 章から構成されている。各章の要旨は以下の通りである。

第 1 章では本研究の背景と目的を述べると共に、各章の概要が述べられている。

第 2 章では界面構造を改善した、CMS と CoFe を電極に用いると共に、 MgO バリアを用いる MTJ における、スピン依存トンネル特性について述べている。下部側に CoFe 電極を用いた $\text{CoFe}/\text{MgO}/\text{CMS}$ の層構造を有する MTJ に対して、290 K において 335% の高い TMR 比を実証すると共に、 CoFe バッファ層に格子整合した極薄 CMS 下部電極を用いた (下部側から) CoFe バッファ/極薄 $\text{CMS}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ の層構造の MTJ に対して、前者と同程度の 290 K で 340% の高い TMR

比を実証した。さらに、これらと対照的に、MgO バッファ/CMS/MgO/CoFe の層構造を有する MTJ は 290 K で 173% と、より低い TMR 比を示すことを明らかにした。これらの 3 種類の層構造の MTJ の TMR 比が、電極と MgO バリアとの下部および上部界面の平均のミスフィット転位密度と明瞭な相関があること、すなわち、ミスフィット転位の間隔が大きくなると共に、4.2 K および 290 K の TMR 比が大きな値を示すことを明らかにした。さらに、この結果はミスフィット転位間隔の増大によってコヒーレントトンネリングによる TMR 比の増大の寄与が大きくなるためとして説明された。

第 3 章では、MTJ 三層構造における格子不整合を低減した、下部および上部電極に CMS を用いた MTJ (CMS/MgO/CMS MTJ) におけるスピン依存トンネル特性に関して述べている。本章では、従来の MgO バッファ上の CMS 下部電極に替えて、CoFe バッファに格子整合した CMS 下部電極を導入することにより、4.2 K で 1995%、290 K で 354% に達する高い TMR 比を実証した。この高い TMR 比は、CMS 電極のハーフメタル特性と、下部・上部電極と MgO バリアの両界面でのミスフィット転位密度の低減によるコヒーレントトンネリングの寄与の増大によって説明できることを明らかにした。

第 4 章では CMS 上部電極と MgO バリアの間に CoFe 極薄層を挿入した下部側から CoFe/MgO/CoFe 極薄層/CMS の層構造からなる MTJ のスピン依存トンネル特性について述べている。CoFe 極薄層を挿入することにより、挿入しない場合の 290 K で 335% の TMR 比が、450% まで顕著に増大することを明らかにした。測定された微分コンダクタンス特性の解析より、CMS 電極からのハーフメタル的な電子が極薄 CoFe 層をバリスティックに伝導すること、すなわち、CoFe 極薄層を介して MgO バリアと接する CMS 電極がハーフメタルのスピン源として働いていることを明らかにした。また、CMS と MgO バリアとの界面付近での、有限温度でのスピンの揺らぎが大きく、この揺らぎが CoFe 極薄層の挿入により、抑制され、室温での TMR 比の増大をもたらすことを明らかにした。

第 5 章では本論文を総括し、結論が述べられている。

以上を要約すると、本論文は、 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ ヘテロ構造を用いた MTJ について、(1) ミスフィット転位間隔の増大という意味での界面構造の改善による、コヒーレントトンネリングの寄与の増大、さらに、(2) $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ 界面への CoFe 極薄層の挿入による Co_2MnSi の MgO バリアとの界面付近でのスピン揺らぎの抑制が、TMR 比の顕著な増大に対して非常に重要であること明らかにしたものである。以上、本論文は Co 基ホイスラー合金のハーフメタル特性をスピントロニクスデバイスに応用する上での有益な知見を実験的に明らかにしたものであり、これは電子デバイス工学の進展に寄与するところ大である。

よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。