

「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する  
革新材料・プロセス研究」  
平成21年度採択研究代表者

H24 年度 実績報告
----------------

湯浅新治

産業技術総合研究所ナノスピントロニクス研究センター・研究センター長

革新的プロセスによる金属／機能性酸化物複合デバイスの開発

## §1. 研究実施体制

### (1) 産総研グループ

- ① 研究分担グループ長: 湯浅 新治 (産業技術総合研究所 ナノスピントロニクス研究センター、研究センター長) (研究代表者)
- ② 研究項目
  - ・MBE 法によるフェライトフェライト系酸化物を用いたスピフィルター素子の作製
  - ・MgO(001)表面の濡れ性改善技術の開発
  - ・電圧駆動型3端子スピントロニクス素子の設計と作製(大阪大学と共同)

### (2) キヤノンアネルバグループ

- ① 研究分担グループ長: 恒川 孝二 (キヤノンアネルバ株式会社 開発統括部門プロセス開発センター、プロセス開発第一部長) (主たる共同研究者)
- ② 研究項目
  - ・スパッタ法によるフェライトフェライト系酸化物を用いたスピフィルター素子の作製

### (3) 大阪大グループ

- ① 研究分担グループ長: 鈴木 義茂 (大阪大学大学院 基礎工学研究科、教授) (主たる共同研究者)
- ② 研究項目
  - ・高抵抗トンネル接合素子を用いた電圧誘起磁化反転
  - ・電圧駆動型3端子スピントロニクス素子の設計と作製(産総研と共同)

## § 2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

### (1) MBE 法によるフェライトフェライト系酸化物を用いたスピニフィルター素子の作製

昨年度に引き続き、原子状酸素による Fe 酸化物( $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ )超薄膜作製プロセスの最適化、およびそれを導入した新規強磁性トンネル接合素子の作製に取り組み、スピニフィルタリング効果に起因すると考えられる磁気抵抗のエンハンス効果に成功した。図 1 は Fe(50 nm)/MgO (2 nm)/ $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3(t_{\text{Fe}_2\text{O}_3})$ /Fe(10 nm)/IrMn(10 nm)トンネル接合素子における磁気抵抗(MR)比の $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 層膜厚依存性である。 $t_{\text{Fe}_2\text{O}_3}$ に依存してMR比は複雑に変化するが、スピネル構造のハーフユニットセル付近において室温で120%とMgO-MTJ ( $t_{\text{Fe}_2\text{O}_3}=0$ )と同程度のMR比が得られた。さらに、20 Kでは、 $t_{\text{Fe}_2\text{O}_3} = 0.3\sim 0.5$  nmの膜厚領域において、MgO-MTJを超える最大270%のMR比の観測に成功した<sup>4)</sup>。これらはMgO絶縁層のコヒーレントトンネリングと $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 層のスピニフィルタリングの相乗効果に起因する可能性が高く、強磁性酸化物の高いポテンシャルを示す結果である。室温におけるMR比の低下は $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 層中にわずかに残る酸素欠陥を介したホッピング伝導に起因することが明らかとなっており、さらなる酸化条件の最適化、および、よりスピニフィルタリング効果の高いNiフェライトやCoフェライトを適用することで室温においてもMgO-MTJを超える磁気抵抗効果の実現が可能であると考えられる。

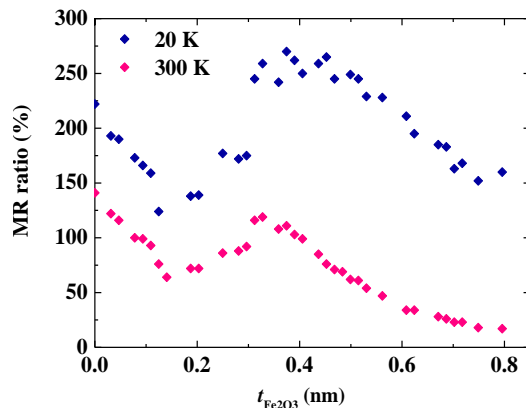


図 1 Fe/MgO/ $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ /Fe/IrMnトンネル接合素子におけるMR比の $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 層厚依存性

### (2) スパッタ法によるフェライトフェライト系酸化物を用いたスピニフィルター素子の作製

上述の MBE 法を用いて得られたスピニフィルター素子技術の産業応用を目指して、生産用スパッタ装置を用いて MgO/Co フェライトの積層構造トンネル障壁を用いたスピニフィルター型素子の作製を試みた。サンプルの膜構造は酸化膜付 Si 基板/下部電極/IrMn/SAF/MgO/Co フェライト/CoFe/CoFeB/Ta/Ru である。図4に、RAのCoフェライト膜厚依存性を示す。Coフェライトの膜厚に対して素子の抵抗値は対数的に変化する。このことから、Coフェライトは良質なトンネル障壁層として機能していることが分かる。この結果から、1 nm以下の膜厚でも非常に高品質なCoフェライト膜が作製できたとと言える。つぎに、室温におけるMR比のCoフェライト膜厚依存性を図5に示す。Coフェライトが0 nmで180%以上の非常に大きなMR比が得られるのは、CoFeB/MgO/CoFeBが示す巨大TMR効果のためである。Coフェライトを挿入すると徐々にMR比が低下してしまうが、

それでもアニール温度が360°Cの場合にはCoフェライト膜厚が0.8 nm(約1ユニットセル)で130%ものMR比が得られている。このMR比は、スピネルフェライトをトンネル障壁層として用いたMTJでは世界最高の値である。今後、この技術を改良することにより、CoFeB/MgO/CoFeB-MTJ素子を超えるTMR効果の実現を目指す。

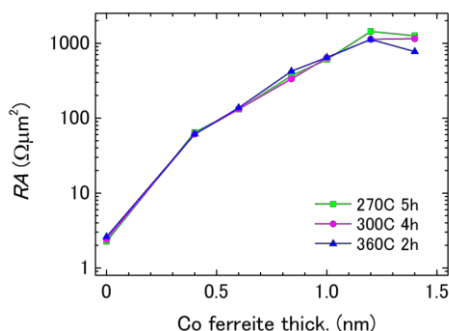


図4 規格化抵抗値(RA)のCoフェライト膜厚依存性(室温)

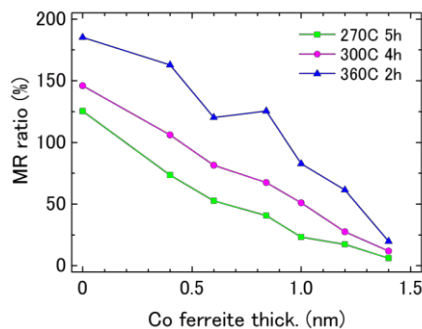


図5 MR比のCoフェライト膜厚依存性(室温)

### (3) 高抵抗トンネル接合素子を用いた電圧誘起磁化反転

これまでの報告で、磁気トンネル接合(MTJ)素子においてパルス電圧印加による高速な双方向磁化反転の観測に成功したが、MgOの膜厚が1.5 nmという薄い膜厚であるがために、電圧を加えた際スピ注入磁化反転の閾電流密度とほぼ同等の電流密度が流れてしまい、電圧駆動本来が有する低消費電力性が十分に発揮されていなかった。そこで、膜構成はほぼ同じでMgOの膜厚を2.0 nmとした素子において同様の実験を行った。この時、素子の抵抗値は前回の素子の40倍であった。

図6に示すように、高抵抗MTJ素子においても電圧を印加する毎に磁化反転が観測され、双方向磁化反転の観測に成功した<sup>3)</sup>。印加したパルス電圧の電界強度は-1.35 V/nmでパルス幅は0.65 nsである。この時流れる電流は前回の素子の1/10以下に低減することができた。このことにより、φ30 nmのピラーサイズと比較すると、今回の電圧駆動型の書き込みに必要な電力は電流駆動型のSTT-MRAMに比べて1/60以下であることを示すことに成功した。もしリーク電流もない理想的な回路ではさらに1/30程度の低消費電力化が可能となる。

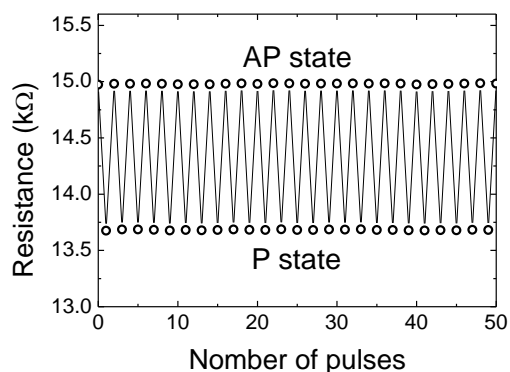


図6 パルス電圧による平行(P)状態・反平行(AP)状態への双方向磁化反転

### (4) 電圧駆動型3端子スピントロニクス素子の設計と作製

本研究題目の最終目標である3端子スピントロニクス素子として、図7-8のような素子の設計を行った。基本構造と動作原理を示す。ゲート電極層からフリー層に電圧  $V_{in}$  を加えることによりフリ

一層の磁化状態(磁気異方性)、および、その磁化の方向(角度  $\phi$ )をゲート電圧により制御する。このことによって生じるトンネル接合素子部分の抵抗変化によってソース・ドレイン端子間の電流が増減し、この電力変化量が磁化状態の制御に必要な電力より大きければ電力ゲインが、さらに、磁化制御に必要な電圧より大きな電圧変化が出力として現れれば電圧ゲインが生まれたことになる。現実的な素子パラメータを用いてシミュレーションを行った結果、この3端子素子では100を超える大きな電力ゲインが比較的容易に得られ、電圧ゲインについても理論的には約2が得られることが分かった。また、電圧ゲインが1を超えれば、100を超える大きな Fan-out が得られ、多数の素子を駆動することが可能であることも示された。

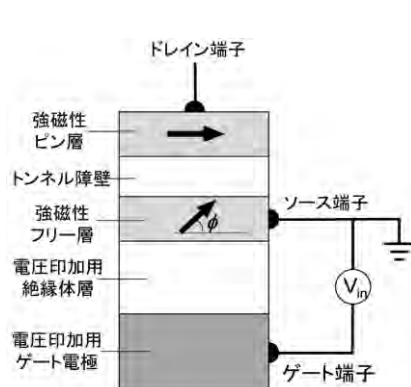


図7 電圧駆動型3端子スピントロニクス素子の基本構造図

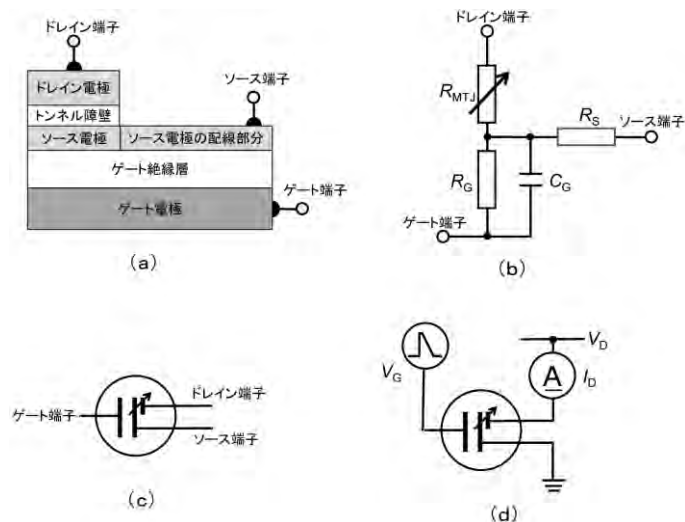


図8 3端子素子の(a)断面構造と回路要素の名称、(b)等価回路、(c)回路記号の定義、回路の最小構成単位

次に、図9のような3端子素子の試作を行った。ここで、デバイスの心臓部とは関係ない周辺部分の加工プロセスを簡略化するために、ゲート電極とソース電極の下に絶縁体層を削り残しているが、これらの部分の面積をドレイン電極面積(MTJ素子部分の面積)よりも十分大きく設定してあるため、回路上は削り残した絶縁層の寄生抵抗は無視できるほど小さい。試作した素子を上面から観察したSEM写真を図10に示す。加工プロセスの最適化を行った結果、ギャップ幅が200-300 nmの素子において、ソース・ドレイン間の抵抗及び磁気抵抗が素子設計通りの値となり、ギャップのエッチングを厚さ約1 nmの上部MgO層の中間で止めることに成功した。現在、ゲート電極に交流電圧を印加して、交流出力を検出する実験を進めている。

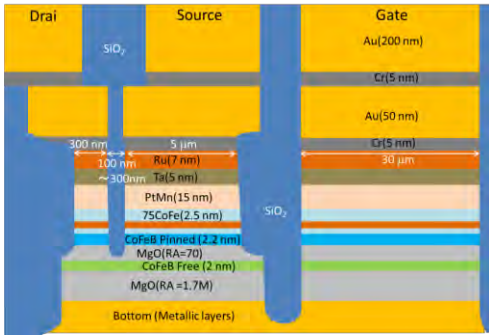


図9 試作した3端子素子の断面模式図

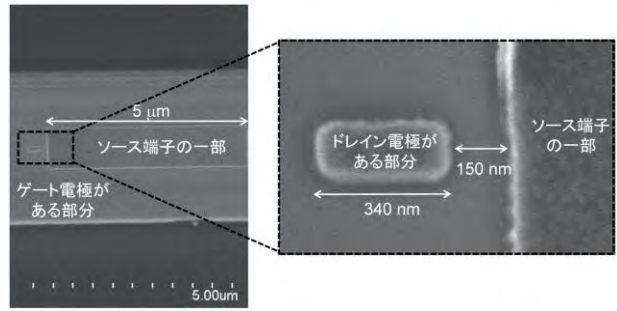


図10 試作素子を上部から見た SEM 写真

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### ●論文詳細情報

1. D. D. Lam, F. Bonell, S. Miwa, Y. Shiota, K. Yakushiji, H. Kubota, T. Nozaki, A. Fukushima, S. Yuasa, and Y. Suzuki, “Composition dependence of perpendicular magnetic anisotropy in Ta/CoxFe<sub>80-x</sub>B<sub>20</sub>/MgO/Ta (x=0, 10, 60) multilayers”, Journal of Magnetism **18**(1), 1-4 (2013) (Accepted 23 January 2013) (DOI: <http://dx.doi.org/10.4283/JMAG.2013.18.1.005>)
2. D. D. Lam, F. Bonell, S. Miwa, Y. Shiota, K. Yakushiji, H. Kubota, T. Nozaki, A. Fukushima, S. Yuasa, Y. Suzuki, “MgO overlayer thickness dependence of perpendicular magnetic anisotropy in CoFeB thin films”, Journal of The Korean Physical Society (2013) (accepted for publication)
3. Y. Shiota, S. Miwa, T. Nozaki, F. Bonell, N. Mizuochi, T. Shinjo, H. Kubota, S. Yuasa, and Y. Suzuki, “Pulse voltage-induced dynamic magnetization switching in magnetic tunneling junctions with high resistance-area product”, Appl. Phys. Lett., **101**, pp.102406\_1-4, (2012) (DOI:<http://dx.doi.org/10.1063/1.4751035>)
4. Takayuki Nozaki, Hitoshi Kubota, Akio Fukushima, and Shinji Yuasa, “Enhanced Tunnel Magnetoresistance Effect in an Epitaxial Magnetic Tunnel Junction with a Hybrid  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/MgO Barrier”, Appl. Phys. Express (2013) (accepted for publication).

#### (3-2) 知財出願

- ① 平成 24 年度特許出願件数(国内 2 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 4 件)