

令和元年5月23日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2018～2018

課題番号：18H05947

研究課題名(和文) コランダム酸化物を用いた三回対称軸配向強磁性トンネル接合における巨大電圧効果

研究課題名(英文) Large voltage effect in 3-fold axis oriented magnetic tunnel junctions with corundum oxides

研究代表者

一ノ瀬 智浩 (Ichinose, Tomohiro)

東北大学・材料科学高等研究所・学術研究員

研究者番号：20826953

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,100,000円

研究成果の概要(和文)：磁気ランダムアクセスメモリの低消費電力化を実現するために、磁気特性に対する巨大電圧効果を得ることが重要である。電圧効果を増大する方法のひとつとして大電圧の利用が考えられる。本研究では高耐電圧が期待できるコランダム酸化物を障壁層に用いて磁気トンネル接合を作製し、高電圧を印加した時の輸送特性を調べた。コランダム構造を有するCr2O3は室温で成膜した場合でも(001)方位に配向して結晶成長し、プラズマ酸化を施すことで5 MV/cm程度の耐電圧が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

室温で成膜した場合においてもCr2O3が(001)配向することを見出し、3回対称軸方向に配向した磁気トンネル接合の作製について端緒を開いた。これにより立方晶系(001)配向以外の対称性を有する材料に対して可能性が開け、材料選択の幅が広がると考えられる。また、電気磁気効果を示す反強磁性体であるCr2O3を障壁層に用いることで磁気トンネル接合に新たな機能を付与できる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：Large voltage effect on the magnetic properties is the crucial issue to reduce the energy consumption in the magnetic random-access memories. The use of large voltage is the one of the routes to increase the voltage effect on the magnetic properties. In this work, magnetic tunnel junctions using corundum oxide expected to be high dielectric breakdown strength material were prepared, and its transport properties under the high voltage were investigated. Cr2O3 with corundum structure crystallized with (001) orientation even it was deposited at room temperature. Magnetic tunnel junctions with Cr2O3 barrier oxidized by using oxygen plasma showed the high dielectric breakdown strength of ~ 5 MV/cm.

研究分野：磁性材料

キーワード：スピントロニクス コランダム酸化物 磁気トンネル接合 トンネル磁気抵抗効果

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) は不揮発性メモリの中でも高速、高密度、高書き換え耐性といった特長を有する有望な次世代 RAM であり、低消費電力なシステムの構築に有用である。現在、MRAM の書き込み方式にはスピン注入磁化反転方式が用いられているが、10 年間記録を保持できる高磁気異方性材料の磁化を反転するためには大電流が必要となり、消費電力が増大する課題がある。[1] 一方で、電圧印加による磁気異方性変調を利用した磁化反転方式では電流を流す必要がないため低消費電力化が可能である。しかし、磁気異方性の変調量が小さいために高磁気異方性材料の磁化反転が難しい。変調量を増大させる方法のひとつとして素子に大電圧を加えることが挙げられるが、高耐電圧素子の開発は未開拓である。本研究ではバンドギャップが大きいことで知られるコランダム Al_2O_3 に着目した。

2. 研究の目的

大電圧を加えることで磁気特性に対する巨大電圧効果を得るためにコランダム酸化物を用いた磁気トンネル接合を作製し、その電圧印加に対する挙動を調べることを目的とした。

3. 研究の方法

大電圧を加えるためには高耐電圧の材料を用いてトンネル障壁を作製する必要がある。本研究ではバンドギャップが大きく高耐電圧が期待できる Al_2O_3 に着目した。 Al_2O_3 には多くの結晶多形が存在するが、熱力学的に最も安定な構造は菱面体晶系に属するコランダム構造である。しかし、通常、コランダム構造に結晶化させるには例えば 1000 度程度の高温にする必要がある。 Al_2O_3 はスピントロニクス研究が始まった当初から用いられている材料であるが、上記の理由によりコランダム構造に結晶化した Al_2O_3 の磁気トンネル接合 (Magnetic Tunnel Junction, MTJ) は作製された例がない。その一方で、 Al_2O_3 と同様にコランダム構造をとる Cr_2O_3 を下地層とした場合には 400 度程度の比較的低温でコランダム Al_2O_3 結晶が得られることが報告されている。[2] そこで本研究では、高耐電圧が期待できる Al_2O_3 と、結晶化が容易で Al_2O_3 のテンプレート材料となり得る Cr_2O_3 を用いて MTJ を作製し、高耐電圧 MTJ の実現を目指した。

4. 研究成果

(1) コランダム酸化物の作製

まず、 Cr_2O_3 をテンプレート層とした場合の Al_2O_3 の結晶化挙動を調べた。図 1 は $\text{Al}_2\text{O}_3(20)$ 、 $\text{Cr}_2\text{O}_3(20)$ 、および $\text{Cr}_2\text{O}_3(20)/\text{Al}_2\text{O}_3(20)$ を MTJ の下部電極となる $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Ta}(5)/\text{Ru}(10)/\text{Co}(4)$ の上部に作製した場合の面直 X 線回折 (XRD) $2/\text{スキャン}$ の測定結果である。() 内は nm 単位の膜厚) 成膜温度を先行研究と同様の 400 度に設定した場合において、 Cr_2O_3 の (006) 回折によるピークが観測された一方、 Al_2O_3 に起因するピークは観測されなかった。コランダム酸化物に対する粉末 XRD では、(006) 面の回折強度 I_{006} は最も強度の大きい (104) 回折 I_{104} に対して小さく、 Cr_2O_3 の場合、 $I_{006}/I_{104}=0.16$ 程度の報告値がある。[3] 基板温度 400 度で作製した Cr_2O_3 では (006) 面に起因した回折強度が最も大きく、 $I_{006}/I_{104}=8.4$ となった。これは Cr_2O_3 が (001) 方位に高配向したことを示している。先行研究[2]と比較すると、(1) Cr_2O_3 が (001) 方位に高配向した点、(2) Al_2O_3 が結晶化しなかった点が異なる。本研究で用いた成膜方法の特徴としてオフアクシスカソードを用いた点が挙げられる。オフアクシスカソードを用いた成膜では、負に帯電したカソードに加速された酸素負イオンが基板に衝突することで生じるダメージを低減できる一方、酸素が基板面に照射されないために膜中の酸素欠陥が生じやすい可能性がある。文献[4]では、 Al_2O_3 の結晶化に対して膜組成が影響を与える可能性が示唆されており、本研究で作製した Al_2O_3 では多量の酸素欠陥を含むために結晶化しなかった可能性がある。一方で、 Cr_2O_3 は室温成膜した場合でも (001) 方位に配向して結晶化し、ポストアニールによって XRD 強度が増大した。スパッタによる薄膜作製ではイオンビームを照射することで成長方位を制御している例があり、[5] 通常のスパッタと粒子の入射方向が異なるオフアクシスカソードを用いて作製したことで配向成長した可能性が考えられる。

次に結晶化に成功した Cr_2O_3 を基にして Al_2O_3 との混晶を作製することを試みた。 Cr_2O_3 に対して Al 置換を施した結果、基板温度を 400 度とした場合には Al 置換量が 15% まで回折ピークが観測された。ピーク位置から格子定数を計算すると、Al 置換量の増大に伴って Cr_2O_3 の c 軸長が減少する傾向がみられた。(図 2) このことから、Al が Cr_2O_3 に固溶していることが示唆された。

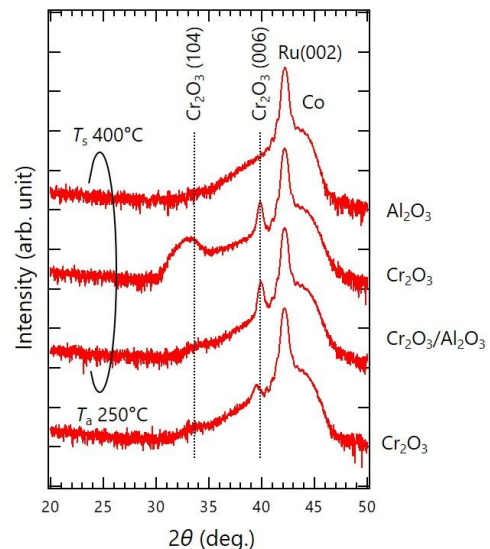


図 1. Al_2O_3 , Cr_2O_3 に対する XRD

2 / スキャン

室温成膜した場合には、15%置換した場合に回折が消失し、結晶化しないことがわかった。混晶試料の磁気特性を調べた結果、 Al_2O_3 量の増大に伴い、下部電極 Co の磁化が減少することがわかった。 Al_2O_3 の成膜に伴う Co の酸化や Al の拡散が磁化減少の原因として考えられる。 Cr_2O_3 を成膜した場合には磁化の減少はみられず、清浄な界面が形成されたことが示唆された。

(2) コランダム酸化物を用いた磁気トンネル接合の作製

コランダム構造に結晶化した Cr_2O_3 を障壁層に用いて MTJ を作製し、電気抵抗の磁場依存性を測定した結果、室温で 0.1% のトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が得られた。この素子に電圧を加えたところ、0.3 V 以上の電圧を印加した場合に徐々に抵抗が減少していく挙動が観察された。図 3 は 0.1 V, 0.2V, 0.3 V と最大印加電圧を徐々に増大させながら電流電圧特性を測定した結果であるが、0.3 V の電圧を加えた場合に抵抗が変化したことがわかる。通常の絶縁破壊であれば急峻に抵抗が減少するため、絶縁破壊とは異なる原因で抵抗が減少したものと思われる。酸化物薄膜を有する接合では、酸素欠陥の移動やそれに伴う酸化還元反応等によって素子の抵抗が変化する場合がある。[6] このことから Cr_2O_3 中の酸素欠陥がバイアス電圧に対する不安定性を誘起した可能性が考えられる。 Al_2O_3 においても酸素欠陥によって 1) 結晶化しない、2) 素子抵抗が減少する、といったことが生じた可能性のあることから、酸素欠陥の制御が素子特性に対して重要な役割を果たすことが示唆された。

Al_2O_3 を用いた MTJ ではプラズマ酸化を施すことによって素子特性が改善されることが知られている。そこでプラズマ酸化を用いて Cr_2O_3 における酸素欠陥の低減を試みた。10 秒間のプラズマ酸化を施すことで室温における TMR 比が 1% 程度に向上した。さらに、電流電圧特性を測定した結果、1 V (5 MV/cm) 程度まで電圧を印加しても絶縁破壊や抵抗変化といった素子特性の劣化が生じないことを確認した。(図 4) さらに、輸送特性の温度依存性を調べた結果、温度の低下に伴い TMR 比が増大する傾向が得られ、10 K で 4% の TMR 比を観測した。(図 5)

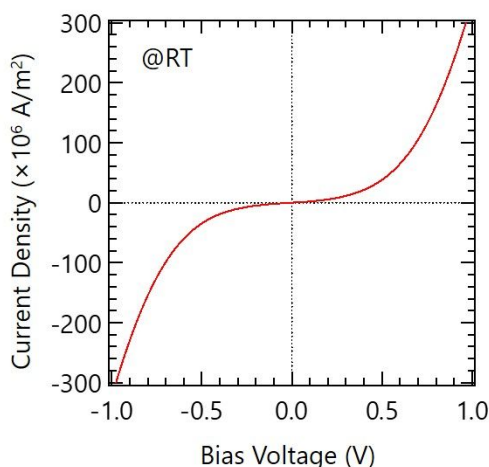


図 4. プラズマ酸化した後の Cr_2O_3 -MTJ の電流電圧特性

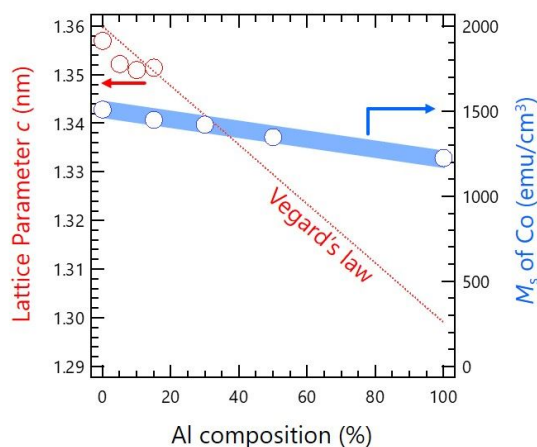


図 2. Cr_2O_3 に Al を固溶させた場合の格子定数と下部 Co の飽和磁化の変化

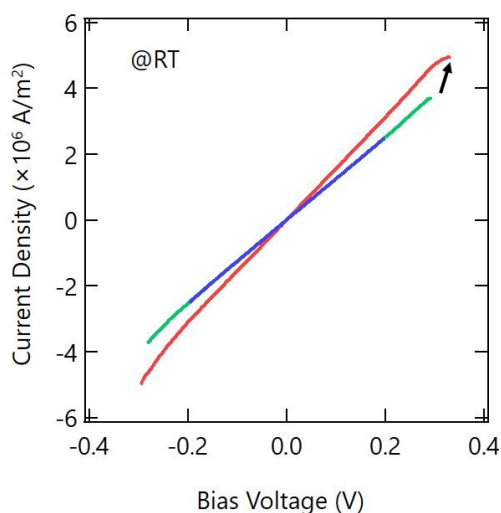


図 3. プラズマ酸化する前の Cr_2O_3 -MTJ の電流電圧特性

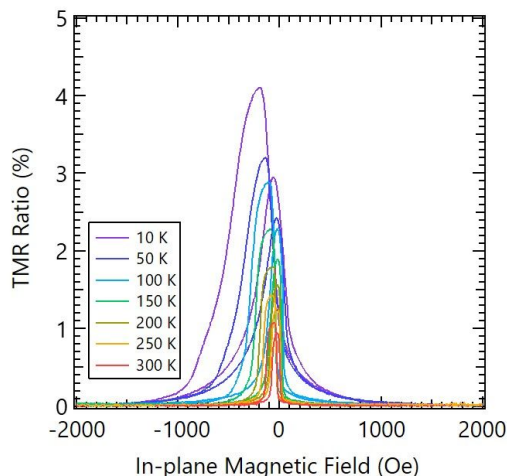


図 5. TMR の温度依存性

本研究では(001)方位に配向したコランダム酸化物を障壁層とした磁気トンネル接合を作製し、そのトンネル磁気抵抗特性と高電圧を印加した場合の輸送特性の変化を調べた。Al₂O₃が結晶化しなかった一方でCr₂O₃が室温成膜でも結晶化することを見出し、3回対称軸方向に配向した磁気トンネル接合の作製について端緒を開いた。さらにコランダム酸化物障壁層の酸素欠陥を低減させることで高耐電圧な素子を作製できる可能性を見出した。磁気特性に対する電圧効果の系統的な測定までは至らなかったが、とくに低温領域においてはCr₂O₃の反強磁性および電気磁気結合に起因した電圧効果も期待される結果が得られた。

参考文献

- [1] S. Yuasa *et al.*, IEEE IEDM **13**, 56 (2013).
- [2] P. Jin *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. A **20**, 2134 (2002).
- [3] M. Audronis *et al.*, J. Phys. Appl. Phys. **41**, 035309 (2008).
- [4] P. Jin *et al.*, Appl. Phys. Lett. **82**, 1024 (2003).
- [5] H. Liu *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **360**, 60 (2015).
- [6] D. Halley *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 212115 (2008).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami_lab/

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

(2)研究協力者
研究協力者氏名：
ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。