

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月3日現在

機関番号：32641

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2011～2012

課題番号：23860047

研究課題名（和文） 大容量MRAM対応のL10型規則合金とMgOの極薄積層膜形成技術に関する研究

研究課題名（英文） Research on preparation of ultra thin multilayer film consisting of L10 ordered alloy and MgO for MRAM application

研究代表者

大竹 充 (OHTAKE MITSURU)

中央大学・理工学部・助教

研究者番号：60611415

研究成果の概要（和文）：次世代磁気抵抗メモリ（MRAM）のための硬磁性  $L1_0$  型規則合金層と酸化マグネシウム層と組み合わせた磁気トンネル接合（MTJ）の形成技術の研究を行った。ヘテロエピタキシャル成長により原子レベル構造を制御した。平坦表面を持つ  $L1_0$  型規則合金膜を形成する手法として、低温製膜後に高温熱処理を施す2段階法を提案した。また、2段階法をMTJ形成に適応することにより、ギガビット級MRAM対応のエピタキシャルMTJが形成可能であることが分かった。

研究成果の概要（英文）：The formation technique of magnetic tunnel junction (MTJ) consisting of ferromagnetic  $L1_0$  ordered alloy and MgO layers is investigated for future magnetoresistive random access memory (MRAM) devices. The structure is controlled in atomic level through hetero-epitaxial growth. A two-step method of low-temperature deposition followed by high-temperature annealing is proposed to prepare  $L1_0$  ordered alloy film with flat surface. Epitaxial MTJ applicable to Gbit-scale MRAM is prepared by employing the two-step method.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 ・ 電子・電気材料工学

キーワード：スピントロニクス、ナノ材料、結晶工学、エピタキシャル、超格子

## 1. 研究開始当初の背景

マルチメディア関連の急激な情報量の増加を背景に、高速かつ大容量の不揮発性メモリの開発が求められており、スピン注入書き込み方式を取り入れた磁気抵抗メモリ（MRAM）が注目を集めている。MRAMの主要構成要素である磁気トンネル接合（MTJ）は強磁性材料の電極と絶縁体材料のトンネルバ

リアーの三層構造の薄膜から形成され、電極の磁化容易軸は膜面に垂直である必要がある。

ギガビット（Gb）級の大容量化に向けてナノメートル・スケールで微細化されたMTJ素子においても特性均一化は必須であり、結晶方位と原子レベル構造を高度制御したエピタキシャル単結晶薄膜によるMTJの形成が有力候補である。また、微細化による電極体積

( $I$ ) の減少に伴い、 $I$  と電極材料の一軸異方性エネルギー ( $K_1$ ) との積で表せる磁気エネルギー ( $IK_1$ ) も減少してしまい、電極の記録磁化が不安定になる (不揮発性が消失する) 現象が問題になる。そのため、電極材料として、 $10^7 \text{ erg/cm}^3$  オーダーの高  $K_1$  を持つ硬磁性  $L1_0$  型規則合金を用いることが有効となる。一方、絶縁体材料としては、高磁気抵抗変化率の実現に適した酸化マグネシウム ( $\text{MgO}$ ) が有力である。

## 2. 研究の目的

本課題では、硬磁性  $L1_0$  型規則合金と  $\text{MgO}$  を組み合わせたエピタキシャル三層膜を形成する技術の研究を行う。以下の (1) ~ (3) の問題を検討する。

- (1)  $L1_0$  構造へ規則化させるためには、形成時に、加熱プロセスが必要となる。しかしながら、高基板温度で膜形成を行うと、表面および層界面の平坦性が失われてしまう。そこで、合金材料の規則化温度を調べ、比較的低温で  $L1_0$  構造へ規則化させることができる材料を検討する。また、磁化容易軸である  $c$  軸を膜面に対して垂直に向かせることにより、垂直磁気異方性を持つ  $L1_0$  型規則合金層を形成する。
- (2)  $L1_0$  型規則合金層上にエピタキシャル  $\text{MgO}$  層を形成する技術を調べる。熱処理温度を変えることにより、結晶化促進および配向制御を行う。
- (3)  $L1_0$  型規則合金と  $\text{MgO}$  を組み合わせた三層膜を形成し、数年後以降の実現が期待される Gb 級 MRAM 対応の MTJ 形成技術を調べる。

## 3. 研究の方法

薄膜形成には超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いた。また、本研究で使用するスパッタリング装置には、反射高速電子回折装置が取り付けられており、製膜時にその場で、原子層レベルでの膜成長機構に関する有力な知見が得られる。 $L1_0$  構造への規則度評価には X 線回折 (XRD) 法を用いた。積層膜の表面および層界面の平坦性を原子間力顕微鏡 (AFM) および X 線反射率法により評価した。磁気特性を試料振動型磁力計により調べた。

## 4. 研究成果

### (1) $L1_0$ 型規則合金単層膜形成技術

- ①  $L1_0$  型規則合金材料として、バルク状態で、 $10^7 \text{ erg/cm}^3$  オーダーの  $K_1$  を持つ  $\text{FePt}$ 、 $\text{CoPt}$ 、および、 $\text{FePd}$  合金に注目した。図 1 に  $\text{MgO}(001)$  基板上に、室温から  $600 \text{ }^\circ\text{C}$  の間の一定基板温度で形成したこれらの合金薄膜の規則度を示す。 $\text{FePd} < \text{FePt} < \text{CoPt}$  の順により低い規則化温度を実現できることが分かった。

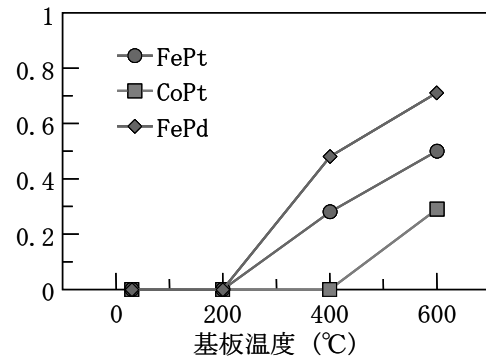


図 1  $\text{MgO}(001)$  基板上に形成した  $\text{FePt}$ 、 $\text{CoPt}$ 、および、 $\text{FePd}$  合金膜の規則度の基板温度依存性。

- ②  $L1_0$  型規則合金材料 ( $\text{FePt}$ 、 $\text{CoPt}$ 、 $\text{FePd}$ ) と基板材料 ( $\text{MgO}$ 、 $\text{SrTiO}_3$ 、 $\text{LaAlO}_3$ ) の組み合わせを変えることにより、 $c$  軸配向制御を試みた。 $\text{MgO}$  および  $\text{SrTiO}_3$  基板上に形成した  $\text{FePd}$  合金膜は  $c$  軸が膜面垂直に向いた  $L1_0(001)$  結晶 (図 2 (a)) のみから構成されたが、 $\text{LaAlO}_3$  基板上に形成した  $\text{FePd}$  合金膜、および、いずれの基板上に形成した  $\text{FePt}$  と  $\text{CoPt}$  合金膜中には、 $L1_0(001)$  結晶に加え、 $c$  軸が膜面内に存在する  $L1_0(100)$  結晶 (図 2 (b)) も含まれていることが分かった。以上の結果より、 $\text{FePd}$  合金膜は、より低い規則化温度を持ち、 $c$  軸配向の制御も容易であることから、 $L1_0$  型規則合金材料として有用であることが分かった。

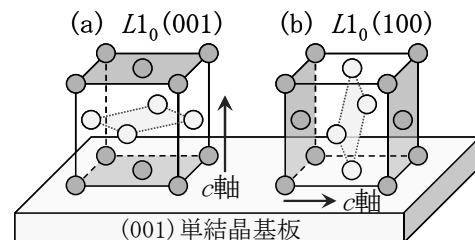


図 2 (a)  $L1_0(001)$  結晶と (b)  $L1_0(100)$  結晶の模式図。

③ 更に、従来の  $L1_0$  型規則合金エピタキシャル膜の形成手法は、高基板温度を用いることにより  $L1_0$  構造へ規則化させるものであったが、低基板温度で不規則構造のエピタキシャル単結晶膜を形成し、その後、熱処理を施すことにより、高規則度を持ち、デバイスに適応可能な超平坦表面を持つ  $L1_0$  型規則合金エピタキシャル膜を形成できる新手法を開発した。図3に基板温度 600 °C で形成した場合と 200 °C での製膜後に 600 °C の熱処理を施した場合の FePd 合金膜の AFM 像を示す。高基板温度で膜形成を行うとファセットが発達した島状構造が形成されてしまうのに対し、低温製膜後に熱処理を施す 2 段階法を用いることにより、算術平均面粗さが 0.3 nm 程度の超平坦表面が実現されていることが分かった。また、製膜温度を 200~400 °C とし、熱処理温度を 600 °C とした場合においても、表面平坦性と規則度を維持できることが分かった。この検討結果は、 $L1_0$  型規則合金層上に形成する MgO 層の形成可能条件の把握に繋げることができた。

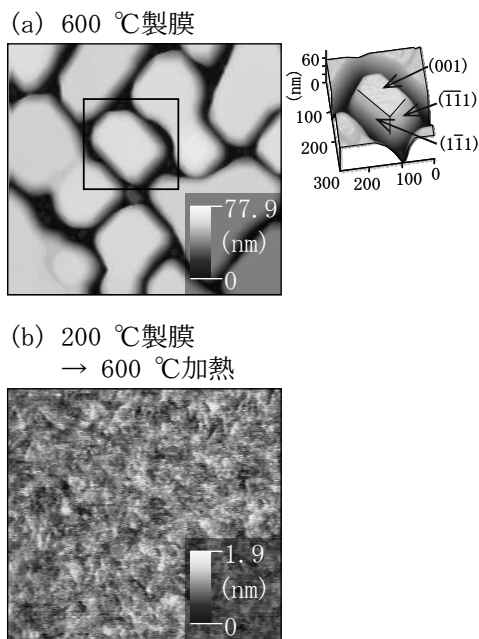


図3 (a) 基板温度 600 °C で形成した FePd 膜と (b) 200 °C での製膜後に 600 °C の熱処理を施すことにより形成した FePd 膜の AFM 像。

(2)  $L1_0$  型規則合金層上にエピタキシャル単結晶 MgO 層を形成する技術を調べた。製膜温度を 400 °C まで上昇させることにより、結晶歪が少なく、配向性がよく、更に表面平坦性が良好な単結晶 MgO 層を形成できることが分かった。

(3) (1) および (2) の技術を組み合わせ、 $L1_0$  型 FePd 合金と MgO の三層膜 (FePd/MgO/FePd) を形成し、原子レベル構造が制御された単結晶膜による MTJ を実現できることを明らかにした。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 10 件)

- ① Shouhei Ouchi, Akira Itabashi, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto 「Preparation of FePd/MgO/FePd Tri-layer Film on SrTiO<sub>3</sub>(001) Single-Crystal Substrate」 Journal of the Magnetism Society of Japan、査読有、vol.37、no.3-2、2013、pp.194-197
- ② Akira Itabashi, Mitsuru Ohtake, Shouhei Ouchi, Fumiyoshi Kirino, Masaaki Futamoto 「Structure Characterization of FePd, FePt, and CoPt Alloy Thin Films Epitaxially Grown on SrTiO<sub>3</sub>(001) Single-Crystal Substrates」 Journal of the Magnetism Society of Japan、査読有、vol.37、no.3-2、2013、pp.202-205
- ③ Akira Itabashi, Mitsuru Ohtake, Shouhei Ouchi, Fumiyoshi Kirino, Masaaki Futamoto 「Preparation of  $L1_0$  ordered FePd, FePt, and CoPt thin films with flat surfaces on MgO(001) single-crystal substrates」 EPJ Web of Conferences、査読有、vol.40、2013、pp.07001\_1-4
- ④ Akira Itabashi, Mitsuru Ohtake, Shouhei Ouchi, Fumiyoshi Kirino, Masaaki Futamoto 「Surface Roughness Reduction in  $L1_0$  Ordered FePd Alloy Thin Films Formed on MgO Single-Crystal Substrates with Different Orientations」 IEEE Transactions on Magnetism、査読有、vol.48、no.11、2012、pp.3203\_3206
- ⑤ Mitsuru Ohtake, Shouhei Ouchi, Fumiyoshi Kirino, Masaaki Futamoto 「Structure and Magnetic Properties of CoPt, CoPd, FePt, and FePd Alloy Thin Films Formed on MgO(111) Substrates」 IEEE Transactions on Magnetism、査読有、vol.48、no.11、2012、pp.3595\_3598
- ⑥ Mitsuru Ohtake, Shouhei Ouchi, Fumiyoshi Kirino, Masaaki Futamoto 「 $L1_0$

ordered phase formation in FePt, FePd, CoPt, and CoPd alloy thin films epitaxially grown on MgO(001) single-crystal substrates] Journal of Applied Physics、査読有、vol. 111、no. 7、2012、pp. 07A708\_1-3

- ⑦ Osamu Yabuhara、Mitsuru Ohtake、Kosuke Tobari、Tsutomu Nishiyama、Fumiyoshi Kirino、Masaaki Futamoto 「Structural and Magnetic Properties of FePd and CoPd Alloy Epitaxial Thin Films Grown on MgO Single-Crystal Substrates with Different Orientations、Thin Solid Films」査読有、vol. 519、no. 23、2011、pp. 8359-8362
- ⑧ Mitsuru Ohtake、Osamu Yabuhara、Kosuke Tobari、Fumiyoshi Kirino、Masaaki Futamoto 「Structure and magnetic properties of FePd-alloy epitaxial thin films grown on MgO single-crystal substrates with different orientations」Journal of Applied Physics、査読有、vol. 109、no. 7、2011、pp. 07B757\_1-3

〔学会発表〕(計 2 2 件)

- ① Mitsuru Ohtake、Akira Itabashi、Fumiyoshi Kirino、Masaaki Futamoto 「 $L_{10}$  ordered FePd, FePt, and CoPt films with flat surfaces prepared on MgO(110) and MgO(111) substrates」The 57th Magnetism and Magnetic Materials Conference/The 2013 IEEE International Magnetism Conference (12th Joint MMM/Intermag Conference)、2013 年 1 月 16 日、アメリカ合衆国・イリノイ州・シカゴ
- ② 大竹充、二本正昭「エピタキシャル高  $K_u$  磁性合金薄膜の形成と構造解析」磁気記録・情報ストレージ研究会、招待講演、2012 年 12 月 14 日、愛媛大学・城北キャンパス
- ③ Mitsuru Ohtake、Shouhei Ouchi、Fumiyoshi Kirino、Masaaki Futamoto 「Structure and magnetic properties of CoPt, CoPd, FePt, and FePd alloy thin films formed on MgO(111) substrates」The 2012 IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG 2012)、2012 年 5 月 10 日、カナダ・バンクーバー
- ④ 大竹充、大内翔平、桐野文良、二本正昭「MgO 単結晶基板上における FePt, FePd,

CoPt, および CoPd 合金薄膜のエピタキシャル成長」磁気記録・情報ストレージ研究会、2011 年 12 月 15 日、愛媛大学・城北キャンパス

- ⑤ Mitsuru Ohtake、Shouhei Ouchi、Fumiyoshi Kirino、Masaaki Futamoto 「 $L_{10}$  ordered phase formation in FePt, FePd, CoPt, and CoPd alloy thin films epitaxially grown on MgO(001) single-crystal substrates」56th Annual Conference of Magnetism and Magnetic Materials (MMM 2011)、2011 年 11 月 1 日、アメリカ合衆国・アリゾナ州・スコッツデール

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)  
○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ

<http://www.elect.chuo-u.ac.jp/futamato/ohtake/achievements.pdf>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大竹 充 (OHTAKE MITSURU)  
中央大学・理工学部・助教  
研究者番号：6 0 6 1 1 4 1 5