

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04569

研究課題名（和文）超高密度メモリデバイスを実現する反強磁性異方性トンネル接合素子の創製

研究課題名（英文）Fabrication of tunnel junction devices using antiferromagnetic materials for the realization of ultra-high-density memories

研究代表者

温 振超（WEN, Zhenchao）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：40784773

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：超高密度の非揮発性メモリ実現のために、反強磁性材料の開発は特に重要である。本研究課題では、トンネル接合素子用の反強磁性材料の開発と、それらの磁気抵抗効果の解明を目指した。反強磁性FeRhと111-テクスチャのMn75Ir25を用いたトンネル接合素子の2つのケースが探求された。FeRhベースの素子では、界面のFe濃縮終端層と界面共鳴トンネリングが役割を果たし、通常と異なるバイアス依存性でトンネリング磁気抵抗比が実現された。Mn75Ir25ベースの素子では、常温でトンネリング異方性磁気抵抗が観測された。さらに、反強磁性Mn75Ir25とRuO2のエピタキシャル成長の達成などの成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トンネル接合素子に向けて、様々な反強磁性材料を研究し、磁気抵抗輸送に関連する多岐にわたる結果を得た。これにより物理学の理解が深まり、高密度なメモリデバイスの実現が潜在的に可能となる。特に、反強磁性体界面における現象である界面軌道共鳴トンネルやトンネル異方性磁気抵抗などに着目し、高いトンネル磁気抵抗やトンネル異方性磁気抵抗を実現した。これらの研究成果は、スピントロニクス分野に限らず、材料科学や物理学など幅広い分野に影響を与え、学術的な価値が高い。また、これらの成果は、低消費電力動作や高速・大容量情報処理を実現するためのスピントロニクスデバイスの基盤技術として、社会的にも重要な意義を持っている。

研究成果の概要（英文）：The development of antiferromagnetic material-based tunnel junction devices is of particular importance for scaling down bit sizes for ultrahigh-density non-volatile memories. This research focuses on developing antiferromagnetic materials/heterostructures for tunnel junctions and elucidating their magnetoresistance effects. Two cases are explored: antiferromagnetic FeRh and 111-textured noncolinear antiferromagnetic Mn75Ir25. Relatively high tunneling magnetoresistance ratios are achieved with an unusual bias dependence in FeRh-based tunnel junctions, where the interface Fe-rich termination layers and interface resonance tunneling play important roles. The Mn75Ir25-based tunnel junctions show room-temperature tunneling anisotropic magnetoresistance. Epitaxial growth of antiferromagnetic Mn75Ir25 and RuO2 films is also achieved. The findings provide valuable insights into the realization of ultrahigh-density memory devices and spintronic applications using antiferromagnetic materials.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：Tunnel junctions Antiferromagnetic

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超高密度・不揮発性メモリデバイスの実現は、ビッグデータ時代のモノのインターネット (IoT) や人工知能 (AI) ネットワークなど、将来の超スマートシステムにとって最も重要な技術の1つである。新興メモリの中でも、磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) は、不揮発性、高耐久性、高速書き込み/読み出しプロセス、省エネルギーなどの利点から、有力候補とされている。MRAMのビットセルとして、トンネル障壁で絶縁された2つの強磁性体層からなる磁気トンネル接合 (MTJ) が重要な部品となっている。テラビットMRAMなどの超高密度MRAMを実現するためには、MTJセルの直径が数ナノメートルまで微細化されることになる。その場合、従来の強磁性材料では、磁気異方性が比較的小さく、迷走磁界の干渉を受けるため、この要求を満たすことができない。近年、反強磁性材料は、外場摂動に強く、浮遊磁場がないため、メモリビットサイズの微細化に有望視されている。しかし、最近開発された反強磁性体メモリは、CuMnAsやMn₂Auなどの単一の反強磁性体層を持つ8端子デバイスが主流である。また、反強磁性体メモリの読み出し信号は、磁気抵抗比が1%以下と非常に小さい異方性磁気抵抗効果 (AMR) に起因している。磁気抵抗出力を高めるために、CoFeB/MgO-MTJなどの従来のMTJでは、トンネル磁気抵抗 (TMR) が報告されている。しかし、反強磁性材料系トンネル接合におけるTMRの報告はない。最近、反強磁性体層を用いたトンネル接合において、超低温で比較的大きなTAMRが実証された。現在までに、超高密度メモリデバイスの実現に向けて、新規な反強磁性材料/ヘテロ構造、および反強磁性材料を用いたトンネル接合デバイスにおける磁気抵抗効果の深い理解が強く望まれている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、将来の超高密度メモリやスピントロニクスデバイスに向けた、トンネル接合デバイス用の新しい反強磁性材料/ヘテロ構造の開発と、反強磁性材料を用いたトンネル接合における磁気抵抗効果のメカニズムを明らかにすることである。

3. 研究の方法

本研究では、マグネトロンスパッタリング装置を用い、in-situ/post annealing プロセスで反強磁性体 (AFM) 膜を作製した。膜の組成は Ar の圧力と成膜速度で制御することができる。基板は、MgO(001)基板とサファイア基板を使用する。また、高秩序な膜を得るために、スパッタリングパワーやアニール温度など、その他のスパッタリングパラメータも最適化することである。AFM膜の成膜後、反射高速電子回折 (RHEED) およびX線回折 (XRD) により、AFM膜の表面およびバルク構造特性をそれぞれ調査した。さらに、透過型電子顕微鏡 (TEM) により、試料およびヘテロ構造の微細構造および断面を確認した。接合デバイスは、電子ビームリソグラフィ (EBL) およびリフトオフ技術を用いたUVリソグラフィによって作製した。磁気輸送特性は、プローブステーションを用いて測定した。

4. 研究成果

(1) 反強磁性 FeRh を用いたトンネル接合。

FeRh(001)はトンネル接合にしばしば使われる MgO(001)バリアとの格子整合性が良好なため、まず最初に反強磁性特性を持つ FeRh 薄膜の成膜条件を最適化した。薄膜は化学量論的な Fe₅₀Rh₅₀ スパッタリングターゲットを用いて成膜した。面外 X 線回折パターンと TEM 微細構造の解析から、FeRh 膜は B2 構造に秩序化しており、表面は著しく平坦であることが確認された。図 1(a) は、1T の外部磁場における抵抗率の温度依存性を示しており、FeRh の AFM 相と強磁性相の間の磁気相転移と一致する抵抗率の明確な変化を示している。室温では、FeRh 膜のバルク状態は、反強磁性相が支配的であった。図 1(b) は、電流と Neel ベクトルの配置が平行と直角の 2 種類を

考慮した場合の AMR の変化を示している。抵抗値に顕著な違いが見られる。トンネル接合を作製するために、図 2 に示すような層状構造を成膜した。微細加工を施すことで、図 2 の挿入図に示すような抵抗-面積積-磁場の特性ループを得ることに成功した。興味深いことに、RA-H ループは、2 つの異なる

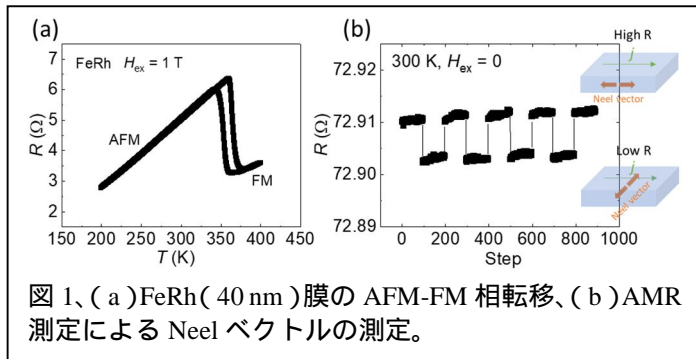


図 1、(a) FeRh (40 nm) 膜の AFM-FM 相転移、(b) AMR 測定による Neel ベクトルの測定。

電圧で反転する特徴を示した。図 2 は、TMR の包括的な電圧依存性分析であり、TMR の絶対値は電圧の上昇とともに増加する。そのメカニズムを解明するために、詳細な微細構造解析と第一原理計算を実施した。原子分解能の TEM 画像から、FeRh/MgO 界面に Fe リッチな組成の FeRh が存在し、弱い強磁性層が形成されていることが確認された。第一原理計算により、下部 FeRh 電極と上部 Fe 電極の界面軌道状態がトンネル過程に重要な役割を果たし、観測された特異な TMR 特性に寄与していることがわかった。本研究は、FeRh を用いた反強磁性トンネル接合の開発に向けた貴重な知見を提供するものである。

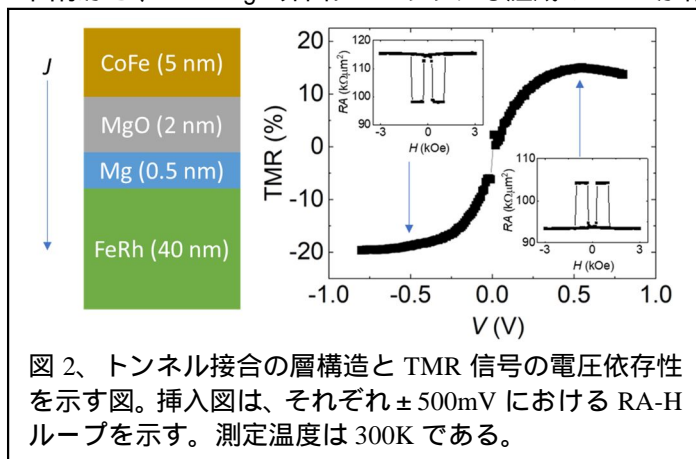


図 2、トンネル接合の層構造と TMR 信号の電圧依存性を示す図。挿入図は、それぞれ ± 500 mV における RA-H ループを示す。測定温度は 300K である。

(2) 111 配向の反強磁性体 Mn₇₅Ir₂₅ を用いたトンネル接合。

Si/SiO₂ 基板上に成膜した 111 配向の反強磁性体 Mn₇₅Ir₂₅ を用いたトンネル接合の作製にも成功した。図 3(a) に、トンネル接合の多層構造を示す。Mn₇₅Ir₂₅ の 111 配向を確立するために、FeNi (Py) 下地層を組み込んだ。図 3(b) はトンネル接合スタックの表面モルフォロジーを示しており、平均粗さ約 0.13 nm、ピーク・トゥ・バレー値 1.23 nm の極めて滑らかな表面であることがわかる。これは、トンネル接合スタックにとって理想的な平坦面であることを示している。さらに、基板、Ta/Ru/Ta バッファ、Ru キャップの他に、Py と Mn₇₅Ir₂₅ の 111 ピークがそれぞれ $2\theta = 44.2^\circ$ と 41.4° に観測され、両層に 111 配向構造が存在することが確認された。微細加工後、図 4 に示すように、トンネル接合の抵抗値を R-H ループで表し、磁場の関

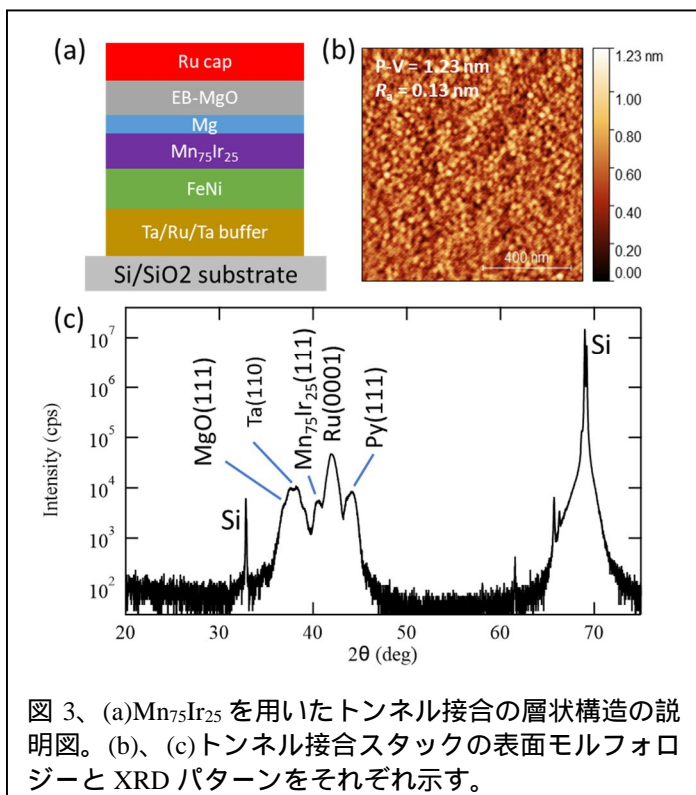


図 3、(a) Mn₇₅Ir₂₅ を用いたトンネル接合の層状構造の説明図。(b)、(c) トンネル接合スタックの表面モルフォロジーと XRD パターンをそれぞれ示す。

数として調査した。測定は室温で、印加電圧は 10mV で行った。トンネル接合は、TMR 比約 3%、抵抗-面積積約 $91\text{k} \mu\text{m}^2$ を示した。一方の電極は非磁性であるため、磁場による抵抗変化はトンネル異方性磁気抵抗に起因するものと思われる。FeNi と $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ の交換スプリング結合により、FeNi の強磁性モーメントが外部磁場の掃引に応じて $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ の反強磁性モーメントを回転させることが容易になった。反強磁性体である $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ 電極を用いたトンネル接合で室温 TMR が観測されたことは、反強磁性体を用いた革新的なスピントロニクスデバイスの開発に貢献する重要な進歩であると考えられる。

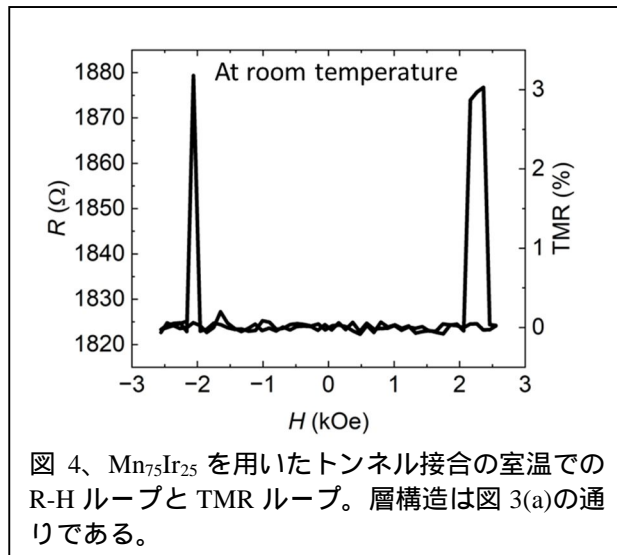


図 4、 $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ を用いたトンネル接合の室温での R-H ループと TMR ループ。層構造は図 3(a)の通りである。

(3) トンネル接合用エピタキシャル非共線反強磁性体 $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ とコリニア反強磁性体 RuO_2 の最適化。

驚異的な磁気輸送特性は、常に綿密に設計された一流の材料から生まれる。反強磁性膜のエピタキシャル成長は、反強磁性トンネル接合デバイスの優れた性能を達成する上で重要な役割を担っている。本研究では、非共線反強磁性体である $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ のエピタキシャル成長に成功した。図 5 は、 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板上に成膜した $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}(111)$ 試料の反射高速電子回折 (RHEED) パターンを示す。結晶方位が変化しても明確なストリークパターンが観察され、 $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}$ の高品質エピタキシャル薄膜の成長に成功したことを示している。さらに、コリニア反強磁性体 RuO_2 薄膜の成膜プロセスも最適化した。また、 $\text{Al}_2\text{O}_3(1\bar{1}02)$ 基板上での RuO_2 のエピタキシャル成長に成功した。このエピタキシャル反強磁性薄膜は、今後の高性能反強磁性トンネル接合デバイスの開発に大きく貢献すると考えられる。

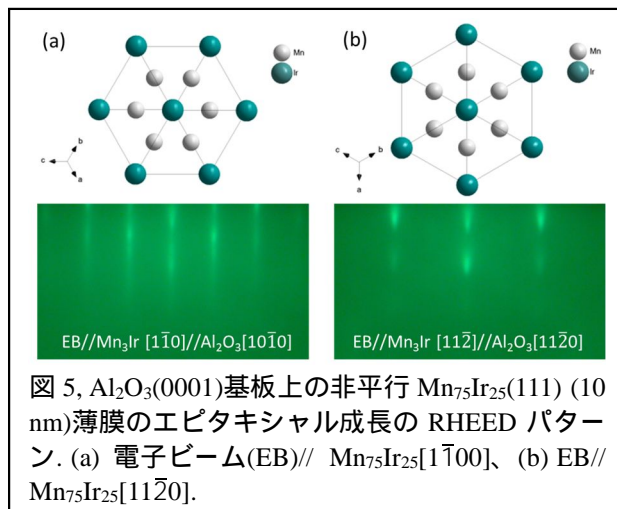


図 5、 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板上の非平行 $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}(111)$ (10 nm) 薄膜のエピタキシャル成長の RHEED パターン。(a) 電子ビーム(EB)// $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}[1\bar{1}00]$ 、(b) EB// $\text{Mn}_{75}\text{Ir}_{25}[11\bar{2}0]$ 。

また、高品質な成膜技術に基づき、FM/MgO 系 MTJ で高い TMR を実現し、スピンオービットトルクに対応した CoSi や Co_2MnGa などの新材料を開発した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Tang Ke, Lau Yong-Chang, Nawa Kenji, Wen Zhenchao, Xiang Qingyi, Sukegawa Hiroaki, Seki Takeshi, Miura Yoshio, Takanashi Koki, Mitani Seiji | 4. 巻 3 |
| 2. 論文標題 Spin Hall effect in a spin-1 chiral semimetal | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review Research | 6. 最初と最後の頁 033101-1-10 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.3.033101 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Mandal Ruma, Kurniawan Ivan, Suzuki Ippei, Wen Zhenchao, Miura Yoshio, Kubota Takahide, Takanashi Koki, Ohkubo Tadakatsu, Hono Kazuhiro, Takahashi Yukiko K | 4. 巻 5 |
| 2. 論文標題 Nanoscale-Thick Ni-Based Half-Heusler Alloys with Structural Ordering-Dependent Ultralow Magnetic Damping: Implications for Spintronic Applications | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials | 6. 最初と最後の頁 569 ~ 577 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsnm.1c03378 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Scheike Thomas, Wen Zhenchao, Sukegawa Hiroaki, Mitani Seiji | 4. 巻 120 |
| 2. 論文標題 Enhanced tunnel magnetoresistance in Fe/Mg4Al10x/Fe(001) magnetic tunnel junctions | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 032404 ~ 032404 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0082715 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Tang Ke, Wen Zhenchao, Lau Yong-Chang, Sukegawa Hiroaki, Seki Takeshi, Mitani Seiji | 4. 巻 118 |
| 2. 論文標題 Magnetization switching induced by spin-orbit torque from Co2MnGa magnetic Weyl semimetal thin films | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 062402 ~ 062402 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0037178 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Scheike Thomas, Xiang Qingyi, Wen Zhenchao, Sukegawa Hiroaki, Ohkubo Tadakatsu, Hono Kazuhiro, Mitani Seiji | 4. 巻 118 |
| 2. 論文標題 Exceeding 400% tunnel magnetoresistance at room temperature in epitaxial Fe/MgO/Fe(001) spin-valve-type magnetic tunnel junctions | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 042411 ~ 042411 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0037972 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Scheike Thomas, Wen Zhenchao, Sukegawa Hiroaki, Mitani Seiji | 4. 巻 122 |
| 2. 論文標題 631% room temperature tunnel magnetoresistance with large oscillation effect in CoFe/MgO/CoFe(001) junctions | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 112404 ~ 112404 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0145873 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|---------------------------------|
| 1. 著者名 Tang Ke, Wen Zhenchao, Seki Takeshi, Sukegawa Hiroaki, Mitani Seiji | 4. 巻 9 |
| 2. 論文標題 Elemental Doping and Interface Effects on Spin-Orbit Torques in CoSi Based Topological Semimetal Thin Films | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Advanced Materials Interfaces | 6. 最初と最後の頁 2201332 ~ 2201332 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/admi.202201332 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 唐 柯 温 振超 Yong-Chang Lau 介川 裕章 Takeshi Seki 三谷 誠司 |
| 2. 発表標題 Magnetization switching induced by spin-orbit torque from Co ₂ MnGa magnetic Weyl semimetal thin films |
| 3. 学会等名 日本電子材料協会2021年度第58回秋期講演大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 シェーク トーマス 介川 裕章 向 清懿 温 振超 大久保 忠勝 宝野 和博 三谷 誠司 |
| 2. 発表標題 Giant tunnel magnetoresistance ratio and oscillation in Fe/MgO/Fe(001) and Fe/MgAlO/Fe(001) magnetic tunnel junctions |
| 3. 学会等名 2022 Joint MMM-INTERMAG conference |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 唐 柯, Yong-Chang Lau, 名和 憲嗣, 温 振超, 向 清懿, 介川 裕章, Takeshi Seki, 三浦 良雄, Koki Takanashi, 三谷 誠司 |
| 2. 発表標題 Topological Weyl semimetal CoSi thin films with spin Hall effect enhanced by d-p orbital hybridization |
| 3. 学会等名 第44回 日本磁気学会学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yong-Chang Lau, 温 振超, Keita Ito, Junichi Ieda, Tomohiro Taniguchi, Tomoko Sasaki, Takeshi Seki, Takanashi Koki |
| 2. 発表標題 Origin of field-like torque enhancement with decreasing Co thickness in X/Co/Y (X, Y = Pt, Pd) metallic trilayers |
| 3. 学会等名 The International Magnetism Conference (INTERMAG 2020) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 飯田 裕希, 向 清懿, シェーク トーマス, 温 振超, 岡林潤, 大久保 忠勝, 宝野 和博, 介川 裕章, 三谷 誠司 |
| 2. 発表標題 Perpendicular magnetic anisotropy of Fe/cubic CrO/MgO heterostructures |
| 3. 学会等名 第44回 日本磁気学会学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Thomas SCHEIKE, Zhenchao WEN, Shinya KASAI, Hiroaki SUKEGAWA, and Seiji MITANI |
| 2. 発表標題 Staircase-like tunnel resistance increase with barrier thickness in epitaxial Fe/Mg4Al-Ox/Fe(001) magnetic tunnel junctions |
| 3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Thomas SCHEIKE, Zhenchao WEN, Shinya KASAI, Hiroaki SUKEGAWA, and Seiji MITANI |
| 2. 発表標題 Giant tunnel magnetoresistance in Fe/Mg4Al-Ox/Fe(001) magnetic tunnel junctions |
| 3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|