

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 2 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：8 2 6 2 6
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2009～2011
 課題番号：2 1 5 6 0 7 0 7
 研究課題名（和文） 強相関酸化物強磁性トンネル接合の低電流スピン注入磁化反転機能の開拓
 研究課題名（英文） Study on spin tunnel junctions using strong correlated oxide films for spin torque transfer
 研究代表者
 佐藤 弘（SATO HIROSHI）
 独立行政法人産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・研究チーム長
 研究者番号：5 0 3 5 7 1 4 1

研究成果の概要（和文）：スピン注入磁化反転素子の開発においては、サブミクロン寸法素子を作製するための作製技術開発を行った。電極材料には、強相関酸化物である $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ を、パルスレーザー蒸着法にて、 SrTiO_3 基板上に成膜した薄膜(50nm)を用いた。電子ビーム直接描画法でレジストパターンを形成、その後、Ar イオンエッチングでメサ構造への加工を行ない、 $200\text{nm} \times 160\text{nm}$ 程度のパターンを得ることに成功した。また、本研究のパターン作製技術の一部を、電気二重層キャパシターを強相関酸化物に適用したモットトランジスタ開発に適用し、世界で初めて、電界制御にて室温でのモット転移に成功した。

研究成果の概要（英文）：We have developed fabrication process for the tunnel junctions with sub-micron dimensions using strong correlated oxide films toward the spin torque transfer. $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3(50\text{nm})$ was deposited on the SrTiO_3 substrate was patterned into $200\text{nm} \times 160\text{nm}$ by electron beam direct writing method and by Ar ion milling. We applied the pattern fabrication method to the electrolyte-gated field effect transistor (FET) using $\text{Nd}_{0.4}\text{Sm}_{0.6}\text{NiO}_3$ thin films. Fabricated transistors showed the Metal-Insulator Transition by changing electric field at room temperature.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2010 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：無機材料・物性

キーワード：強相関酸化物、ハーフメタル、磁性トンネル接合、スピン注入磁化反転

1. 研究開始当初の背景

電子の電荷・スピン両方の自由度を積極的に

利用したスピントロニクスに注目が集まっており、既に、スピントネル(TMR)素子は、

ハードディスクのヘッドに利用されている。この TMR 素子は、不揮発メモリー応用も期待されており、その際の、高密度化・省電力化技術として、通常の金属強磁性体を用いた、スピン注入磁化反転が注目されていた。

スピン注入磁化反転素子の注入電流密度低減には、材料性能の向上、電極構造の最適化、が重要と考えている。強相関酸化物磁性体は、ハーフメタル材料で、実際の TMR 素子においてもスピン分極率ほぼ 100%が得られており、スピントロニクス材料として適した特性を有している。これを電極に用いることで、スピン注入磁化反転効率の向上が期待される。

これまで我々のグループでは、ペロブスカイト型 Mn 酸化物など、強相関強磁性酸化物を対象に、TMR 素子の開発を進めてきた。高性能なスピントネル素子を再現性よく作製するには界面磁性の設計・制御技術、素子作製プロセス技術の確立が不可欠である。このため、提案者は強相関強磁性酸化物の素子作製プロセスの開発、電極・バリア材料選択のための界面エンジニアリング手法の開発等を開発してきた。これら技術を活用し、on/off 比 8,300%(10K)を示す TMR 素子の試作にており、ペロブスカイト Mn 酸化物が、分極率 99%のハーフメタル的特性を示すことを明らかにした。また、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}$ スピントネル接合を用いたスピン注入磁化反転に対する予備的な実験にも着手し、8V 以上の電圧パルス (1msec) で、スピン反平行状態から平行状態への反転に相当する抵抗変化現象を観測している。スピン注入反転電流密度については、非線形な I-V 特性のため明確ではないが、 $10^{-6}\text{A}/\text{cm}^2$ 程度であると見積もられていた。

2. 研究の目的

低い電流密度で反転するスピン注入磁化反転素子機能を開拓するため、以下の到達目標を設定する。

① <作製技術> 通常のリソグラフィ技術を用いた、強相関酸化物磁性体微細加工プロセスに対し、電子ビーム直接描画技術を用いた、サブミクロン電極加工技術を開発する。同時に、サブミクロン実デバイス作製の基礎プロセスを確立する。

② <評価技術> スピン SEM を用いて、強磁性金属強相関酸化物電極の表面磁気構造を直接観察する。形状・寸法・膜厚を系統的に変化させ、スピン注入磁化反転素子に適した電極構造の設計指針を得る。

③ <素子試作> 上記の研究を統合して、実際にスピン注入磁化反転素子を試作、電極の磁気構造とスピン反転電流の関係を明らかにする。

3. 研究の方法

作製技術、評価技術について、並行して研究を行う。

①作製技術 これまでに蓄積した、強相関酸化物 TMR 素子向けに開発ミクロン寸法素子作製技術をもとに研究を進めた。具体的には、これまでのフォトリソグラフィ法にかえて、電子ビーム直接描画法を用いて、サブミクロン寸法を有する強相関酸化物磁性体電極構造作製技術を開発する。

②評価技術 スピン SEM を用いて、電極磁気構造を観察する。具体的には(1)微細加工を行っていない薄膜、(2)通常のリソグラフィでミクロン寸法に加工した電極構造、(3)電子ビーム直接描画法を用いたサブミクロン寸法に加工した電極構造に対して、順次、前処理プロセスを開発、観察条件の最適化を行い、電極磁気構造を観察する。さらに、開発した評価技術を用いて、電極磁気構

造を観察する。形状・寸法・膜厚を系統的に変化させ、電極磁気構造の傾向を見だし、低電流密度なスピン注入磁化反転素子に最適な電極構造を明らかにする。

開発した<作製技術>、および、<評価技術>をもとに、強相関酸化物磁性体電極を用いたスピン注入磁化反転素子を試作、スピン注入反転電流海都度を評価する。さらに、作製した素子についてもスピンSEMで評価を行い、デバイス設計・作製プロセスにフィードバックし、スピン注入電流の低電流密度化を図る。

また、本技術の対象は、強磁性金属強相関酸化物に限らないので、将来のスピン注入磁化反転素子の試作に適用するため、問題点の抽出・解決を併せて行う。

4. 研究成果

最終目標であるスピン注入磁化反転素子の開発においては、効率的な動作のため、磁化方向制御可能な、微小接合の作製が求められている。この要求を満たすために、サブミクロン寸法素子を作製するための作製技術、電極内の磁化方向やその制御を評価する評価技術が重要である。

電極材料には、強相関酸化物である $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}$ ($x=0.4$ 、以下 LaSrMnO) を、パルスレーザー蒸着法にて、 SrTiO_3 基板上に成膜した薄膜(50nm)を用いた。微細加工は、まず、電子ビーム直接描画法でレジストパターンを形成、その後、Ar イオンエッチングでメサ構造への加工を行ない、 $200\text{nm}\times 160\text{nm}$ 程度のレジストパターンを得ることができた。引き続き、このレジストパターンに対し、Ar イオンミリングを行い、メサ構造を作製できることを確認した。更に、電子ビーム直接描画法と組み合わせる、フォトマスクの検討・設計を行なった。

また、電気二重層キャパシターを強相関酸化物に適用したモットトランジスタ開発において、本研究のフォトマスク作製技術の一部を適用した。強相関酸化物薄膜として、 $\text{Nd}_{0.4}\text{Sm}_{0.6}\text{NiO}_3$ を用いた FET では、モット転移温度を電解で室温近傍に制御することに、世界で初めて成功した。

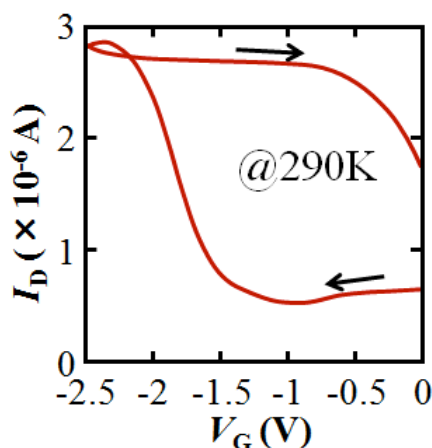


図 作製した $\text{Nd}_{0.4}\text{Sm}_{0.6}\text{NiO}_3$ における、ドレイン電流のゲート電圧依存性。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① Ping-Hua Xiang, Shutaro Asanuma, Hiroyuki Yamada, Isao H. Inoue, Hiroshi Sato, Hiroshi Akoh, Akihito Sawa, Kazunori Ueno, Hongtao Yuan, Hidekazu Shimotani, Masashi Kawasaki, Yoshihiro Iwasa, “Strain-Mediated Phase Control and Electrolyte-Gating of Electron-Doped Manganites”, *ADVANCED MATERIALS*, 査読有り、23 巻、2011、5822-5287、DOI: 10.1002/adma.201102968
- ② S. Asanuma, P.-H. Xiang, H. Yamada, H. Sato, I. H. Inoue, H. Akoh, A. Sawa, K. Ueno, H. Shimotani, H. Yuan, M. Kawasaki, and Y. Iwasa, “Tuning of the metal-insulator transition in electrolyte-gated NdNiO_3 thin films”, *Applied Physics Letters*, 査読有り、97 巻、2010、142110-1 - 142110-3、DOI: 10.1063/1.3496458

〔学会発表〕（計10件）

- ① Xiang Ping-Hua、浅沼 周太郎、山田 浩之、井上 公、佐藤 弘、赤穂 博司、澤 彰仁、上野和紀、Yuan Hongtao、下谷 秀和、川崎 雅 司 、 岩 佐 義宏、” Insulator-to-Metal Transition in Manganite by Electric Double Layer Gating”、18th International Workshop on Oxide Electronics、2011/9/26、Marriot Napa Valley Hotel and Spa (Napa, CA, USA)
- ②浅沼 周太郎、Xiang Ping-Hua、山田 浩之、佐藤 弘、井上 公、赤穂 博司、澤 彰仁、上野 和紀、川崎 雅 司 、 岩 佐 義宏、” Electric field control of the metal-insulator transition in electrolyte-gated (Nd, Sm)NiO₃ thin films”、MRS spring meeting、2011/4/26、Moscone West Convention Center (San Francisco, CA, USA)
- ③浅沼 周太郎、向 平華、山田 浩之、佐藤 弘、井上 公、赤穂 博司、澤 彰仁、上野 和紀、川崎 雅 司 、 岩 佐 義宏、電気二重層 FET によるNdNiO₃の金属-絶縁体転移の電界制御、応用物理学会、2010/9/15、長崎大学
- ④ 浅沼 周太郎、Xiang Ping-Hua、山田 浩之、井上 公、佐藤 弘、澤 彰仁、赤穂 博司、PLD 法による Nd_{1-x}Sm_xNiO₃ 薄膜の製膜と物性評価、応用物理学会、2010/3/18、東海大学

〔産業財産権〕

○出願状況（計2件）

名称：ペロブスカイト型の複合酸化物をチャンネル層とする電界効果トランジスタ及びその製造方法と、これを利用したメモリ素子
発明者：山田 浩之、向 平華、澤 彰仁、井上 公、佐藤 弘、浅沼 周太郎、赤穂 博司
権利者：独立行政法人産業技術総合研究所
種類：特許
番号：特願 2010-264199
出願年月日：2010/11/26
国内外の別：国内

名称：ペロブスカイト型の複合酸化物をチャンネル層とする電界効果トランジスタ及びその製造方法と、これを利用したメモリ素子
発明者：澤 彰仁、浅沼 周太郎、井上 公、佐藤 弘、赤穂 博司、山田 浩之、岩佐 義宏
権利者：独立行政法人産業技術総合研究所
種類：特許
番号：特開 2011-243632
出願年月日：2010/5/14
国内外の別：国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

佐藤 弘 (SATO HIROSHI)
産業技術総研究所・電子光技術研究部門・研究チーム長
研究者番号：50357141

(2)連携研究者

甲野藤 真 (KONOTO MAKOTO)
産業技術総研究所・ナノスピントロニクス研究センター・研究員
研究者番号：80425735