

8 インチ Si ウェーハ上へのフルエピタキシャル MTJ の形成

薬師寺啓、杉原敦、湯浅新治
(産総研)

Development of fully-epitaxial MTJs on an 8-inch Si wafer

K. Yakushiji, A. Sugihara and S. Yuasa
(AIST)

はじめに

既存の STT-MRAM は MTJ が多結晶ベースで形成されており、メモリサイズの縮小を行う際には多結晶 MTJ の膜質バラツキやラフネスがメモリ特性のバラツキとして顕在化してしまい、それが開発障壁のひとつとなっている。もし MTJ の単結晶化が実現すれば、薄膜中に結晶粒が存在しないために膜質バラツキは究極的に小さく、また平坦性は原子層レベルにフラットであり、さらに単結晶ベースの高性能材料の利用が視野に入ってくるなど、ブレークスルーがもたらされると期待される。しかしながら、これまでは研究室レベルの数 cm の小片基板上への報告があるものの、量産時に用いる大径 Si ウェーハ上へのエピタキシャル MTJ の形成は誰も為し得ていなかった。本研究では、大径 Si ウェーハ上へのエピタキシャル MTJ 形成を試みた。

実験方法

ウェーハには 8 インチ径の単結晶(100)配向 Si を用いた。1%DHF (希釈フッ酸) 自動洗浄機により表面の自然酸化膜を除去し、すみやかに成膜装置 (キャノンアネルバ C-7100) に導入した後、550°C でフラッシングすることで清浄表面を得た。バリア材料としてはスピネル系 Mg-Al-O¹⁾を用いた。

実験結果

図 1 に Mg-Al-O バリア表面の RHEED 像を示す。明瞭なストリークが現れており、高品位なエピタキシャル成長がなされていることが示唆される。MR 比は最大で 230% であり、RA=10 Ω μm² の低 RA でも 140% 程度の高い値を示した。今回、Ni-Al シード層²⁾の最適チューニングと Mg-Al-O 開発が鍵となり、汎用性の高い技術で世界で初めて大径 Si ウェーハ上にエピタキシャル MTJ (面内系) の形成を実現するに至った。今後は垂直系への展開と、3次元積層技術³⁾を用いたエピタキシャル MTJ と CMOS 回路とのインテグレート技術開発を進めていく。

本研究は ImPACT プログラム「電圧駆動 MRAM のプロセス技術およびメモリアレイの開発」の一環で行われた。

参考文献

- 1) H. Sukegawa et al., Appl. Phys. Lett. 96 (2010) 212505.
- 2) J. Chen et al., APL Mater. 4 (2016) 056104.
- 3) K. Yakushiji et al., Appl. Phys. Exp. 10 (2017) 063002.

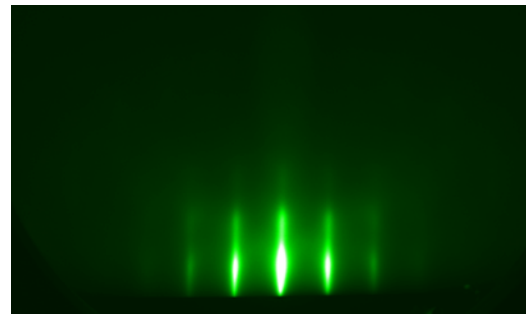


図 1 Mg-Al-O バリア表面の[100]方向 RHEED 像

多結晶 CoFeB/MgAl₂O₄/CoFeB 型強磁性トンネル接合における 大きなトンネル磁気抵抗効果

Ikhtiar, °介川裕章, Xiandong Xu, Mohamed Belmoubarik, Hwachol Lee, 葛西伸哉, 宝野和博
(物材機構)

Large tunnel magnetoresistance effect in polycrystalline CoFeB/MgAl₂O₄/CoFeB magnetic tunnel junctions

Ikhtiar, °H. Sukegawa, X. Xu, M. Belmoubarik, H. Lee, S. Kasai, and K. Hono

(NIMS)

はじめに

スピネルは MgAl₂O₄ で表される立方晶の複合酸化物であり、強磁性トンネル接合 (MTJ) のトンネルバリアとして用いることで室温において 300%を超える大きなトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が報告されている^{1,2)}。とりわけ、Mg-Al 組成調整されたスピネルバリア (Mg-Al-O) では、CoFe やホイスラー合金等と格子整合性が良く、高品位の界面構造を実現できる。このため、良好な TMR のバイアス電圧依存性が得られることから高い素子出力が得られるという利点がある。しかし、高品位な MgAl₂O₄ 結晶バリアを得るためには単結晶基板上にエピタキシャル成長が必要であるため、下地の制約なしに作製可能な多結晶素子化が望まれる。本研究では CoFeB 電極とスピネルバリアの間に薄い MgO テンプレート層を導入することで、CoFeB/MgAl₂O₄/CoFeB 型の高配向多結晶 MTJ を実現し、同時に大きな TMR 比が観測されたことを報告する³⁾。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化膜付 Si 基板上に Ta (5)/Ru (10)/Ta (5)/Co₂₀Fe₆₀B₂₀ (CoFeB) (5)/Co₇₅Fe₂₅ (CoFe) (1)/MgO (0-0.7)/Mg-Al-O (1.2)/CoFeB (3)/Ta (5)/Ru (5)、(厚さ nm) を室温で成膜した。Mg-Al-O 層は組成が異なる焼結体ターゲット (Mg₂Al-O_x および MgAl₂-O_x) を用いて高周波スパッタによって作製した。成膜した多層膜は電子線リソグラフィを用い 200×400 nm² サイズの楕円状に微細加工した後、真空中で 5 kOe の磁場中において 500°C で熱処理を行った。

実験結果

MgO 挿入が非常に薄い (<0.1 nm) 場合、TMR 比は数十%程度と小さく、結晶バリアが得られないことがわかった。一方、MgO 膜厚の増大と共に TMR 比が向上し 150%以上の TMR 比がいずれの組成においても安定に得られた。MgO (0.5 nm)/Mg₂Al-O_x 構造において、最大 260%の TMR 比が実現された。これは、MgO 挿入層が Mg-Al-O バリア結晶化のためのテンプレートとして有効に働いたためと考えられる。また、単結晶スピネル MTJ と同様に良好な TMR 比のバイアス依存性も観察された。断面 STEM 像 (Fig. 1) から (001) 配向した CoFeB/Mg-Al-O/CoFeB 構造が得られていることが確認され、バリア界面の格子不整合も非常に小さいことがわかった。以上の結果から、極薄 MgO 挿入層の利用によって、高出力のスピネル MTJ を実用に適した多結晶素子として得られることがわかった。本研究の一部は革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) により科学技術振興機構を通じた委託により、また JSPS 科研費 (16H03852) の助成により行われた。

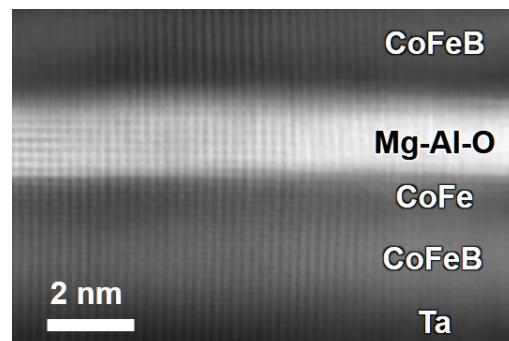


Fig. 1. Cross-sectional STEM image of a CoFeB/CoFe/MgO (0.7 nm)/MgAl₂-O_x (1.2 nm)/CoFeB MTJ.

参考文献

- 1) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012). 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Express **9**, 053004 (2016).
- 3) Ikhtiar *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 022408 (2018).

磁気トンネル接合 $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ における磁気抵抗効果の印加電圧依存性
: 第一原理計算によるアプローチ

増田啓介, 三浦良雄
(物材機構)

Bias voltage dependence of magnetoresistance ratio in $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ junction
: First-principles theoretical approach
Keisuke Masuda and Yoshio Miura
(NIMS)

2004年の巨大磁気抵抗比の報告 [1,2] 以来, MgO トンネルバリア層を用いた磁気トンネル接合 (MTJ) について数多くの研究がなされてきた. その一方, MgO と格子不整合が大きい強磁性体について, MgO 以外のトンネルバリア層を用いて同様の高い磁気抵抗比 (MR 比) を得ようとする試みが精力的に進められている. スピネルバリア MgAl_2O_4 を用いた MTJ, $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ に関する研究はそのような試みの 1 つであり, これまでに室温で 300% 程度の高い MR 比が得られている [3]. この MTJ には, 界面での格子不整合が非常に小さい (0.1% 程度) ことや, MR 比が良好な電圧依存性を持つことなど様々なメリットが存在する. $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ と $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$ の相違点を詳細に比較検討することは MTJ の磁気伝導特性をより深く理解する上で重要である.

本研究では, 第一原理計算を用い $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ の MR 比の印加電圧依存性について解析し, $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$ の場合との差について考察を行った. 我々は構造を最適化した $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ と $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$ の超格子に対し密度汎関数法と非平衡 Green 関数法を適用することで, それぞれの系の MR 比の電圧依存性を計算した. まず $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$, $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$ の場合に共通した結果として, MR 比が印加電圧とともに単調に減少しある臨界電圧 V_c で 0 となる振る舞いが得られた. さらにこの臨界電圧 V_c について, $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ の V_c が $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$ のそれに比べ顕著に大きいことがわかった. このような臨界電圧 V_c の差の起源を明らかにするため, 我々は両 MTJ について透過率のエネルギー依存性及び電極のバンド構造の詳細な解析を行った. スピネル構造を持つ MgAl_2O_4 バリアの面内格子定数は bcc Fe の面内格子定数の 2 倍であるため, $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ においては電極のバンド構造が単純な bcc Fe のバンド構造を面内で折りたたみ構造を持つ (バンド折りたたみ効果) [4,5]. 我々の解析の結果, このようなバンド折りたたみ効果によって生み出される Fe の付加的な多数スピンバンドが $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ における大きな臨界電圧 V_c の起源であることがわかった [6].

本研究の一部は TDK 株式会社, 科研費基盤 S (16H06332), 基盤 B (16H03852), 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の援助を受け行われたものである.

- 1) S. S. P. Parkin *et al.*, Nat. Mater. **3**, 862 (2004).
- 2) S. Yuasa *et al.*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004).
- 3) M. Belmoubarik *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 132404 (2016).
- 4) Y. Miura *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 024426 (2012).
- 5) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012).
- 6) K. Masuda and Y. Miura, Phys. Rev. B **96**, 054428 (2017).

強磁性トンネル接合における電圧誘起磁気キャパシタンス効果

海住英生、三澤貴浩、長浜太郎*、小峰啓史**、北上 修***、
藤岡正弥、西井準治、Gang Xiao****

(北大電子研、*北大工、**茨大工、***東北大多元研、****ブラウン大学)

Voltage-induced Magnetocapacitance Effect in Magnetic Tunnel Junctions

H. Kaiju, T. Misawa, T. Nagahama*, T. Komine**, O. Kitakami***,
M. Fujioka, J. Nishii and G. Xiao****

(Hokkaido Univ. RIES, *Hokkaido Univ. Eng., **Ibaraki Univ. Eng.,
Tohoku Univ. IMRAM, *Brown Univ. Rhys.)

はじめに

近年、強磁性トンネル接合(MTJ)におけるトンネル磁気キャパシタンス(TMC)効果は、静的なスピン蓄積や動的なスピンドायナミクスに関する新たな学術的知見を与える一方、高感度磁気センサや磁気メモリへの応用も期待されていることから国内外で大きな注目を集めている[1-4]。TMC効果の興味深い特徴の一つとして、電圧に対するロバスト性が挙げられる。例えば、TMCの $V_{1/2}$ (=ゼロバイアス付近のTMC比が半分になるときの電圧)はトンネル磁気抵抗(TMR)と比較して2倍程度大きいことが報告されている[5]。このようなロバスト性に関連して、本研究では、電圧に対してTMCが増大する新しい現象を見出したので報告する。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化Si基板上にTa/Co₅₀Fe₅₀/IrMn/Co₅₀Fe₅₀/Ru/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/Ta/Ruから構成されるMTJを作製した。強磁性層Co₄₀Fe₄₀B₂₀の膜厚は3 nm、絶縁層MgOの膜厚は2 nmとした。微細加工にはフォトリソグラフィとイオンミリング法を用いた。接合面積は1800 μm^2 とした。TMCおよびTMR効果の測定には、室温磁場中交流4端子法を用いた。

実験結果

図1にTMRとTMCのバイアス依存性を示す。TMR比はバイアス電圧の上昇とともに減少することがわかる。一方、TMC比については低バイアスにおいてやや減少するが、高バイアスでは増大する興味深い現象が観測された。これらの実験結果を説明するため、理論計算による解析を行った。TMRの計算にはZhangモデルを用いた[6]。TMCの計算には4次関数バリア近似(QBA)とスピン依存ドリフト拡散(SDD)モデル[2]を取り入れたDebye-Fröhlichモデルを用いた。その結果、図2に示すように、実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかった。これはスピンキャパシタンスが電圧誘起TMC効果に大きな影響を及ぼすことを意味する。講演ではより詳細な実験・計算結果について報告する。

参考文献

- [1] H. Kaiju *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **107**, 132405 (2015). [2] T.-H. Lee *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015).
[3] S. Parui *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **109**, 052401 (2016). [4] H. Kaiju *et al.*: *Sci. Rep.* **7**, 2682 (2017).
[5] A. M. Sahadevan *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **101**, 162404 (2012). [6] S. Zhang *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).

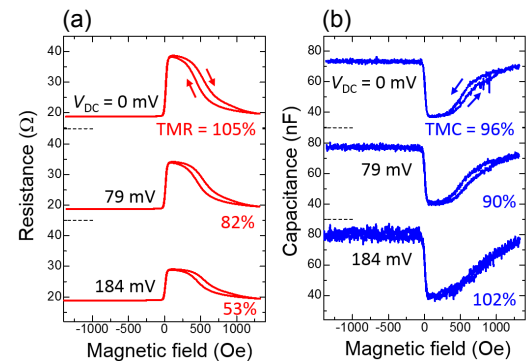


図1: (a) TMRと(b)TMCのバイアス電圧依存性

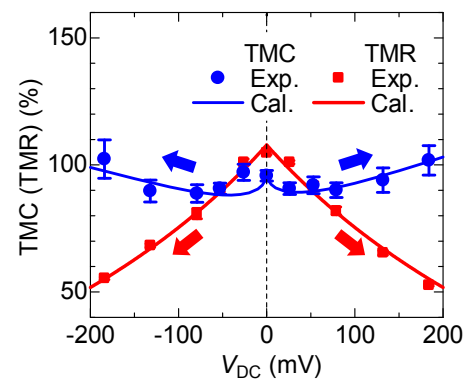


図2: TMR比とTMC比のバイアス電圧依存性

スピントルク発振素子のパルス電圧応答

鈴木大貴^{1,2}, 常木澄人², 薬師寺啓², 福島章雄², 湯浅新治², 安川雪子¹, 久保田均²
(千葉工大 1, 産総研 2)

Response of pulse input in spin torque oscillator

Daiki Suzuki^{1,2}, Sumito Tsunegi², Kay Yakushiji², Akio Fukushima², Shinji Yuasa²,
Yukiko Yasukawa¹, Hitoshi Kubota²
(ChibaTech1, AIST2)

はじめに

スピンドYNAMIXの高速性を利用した磁気メモリやスピントルク発振素子は、次世代の機能性デバイスとして注目されている。これらのデバイスに加えて、近年ではスピンドYNAMIXの過渡的な振る舞いを利用した演算器¹⁾にも注目が集まっている。スピンドYNAMIXの過渡的な振る舞いに関しては、磁化反転において反転が始まらない付帯時間があること²⁾などが議論されているが、その実験的な検証はまだ少ないのが現状である。特に、パルス電圧の入力に対するダイナミクスの実時間測定はほぼ未踏の領域である。本研究では、スピンドYNAMIXの過渡的な振る舞いを調べるために、スピントルク発振素子にパルス電圧を入力しその応答を調べた。

実験

実験に用いたスピントルク発振素子は FeB を自由層とした磁気渦型スピントルク発振素子³⁾ Si/SiO₂-sub./buffer/CoFe(2.5)/Ru(0.86)/CoFeB(3)/MgO(~1)/FeB(5.0)/Ta/Ru (nm) である。自励発振を励起させるために、素子に直流磁界 550 mT を膜面垂直方向に入力し、パルス電圧を入力した。入力信号源として任意波形発生器 (Keysight 33622A) を用いた。パルスの立ち上がり(下がり)時間は 5 ns とし、パルス幅は 500 ns とした。バイアスティーの低周波ポートからパルス電圧を入力し、高周波ポートからスピントルク発振素子の出力信号をリアルタイムオシロスコープ (Keysight DSOS804A) により観測した。

結果

図 1 (a), (b) にスピントルク発振素子に印加した矩形波信号(off 時 0 mV, on 時 400 mV) と、この時のスピントルク発振素子の出力波形を示す。スピントルク発振素子に電圧が印加されるパルスの立ち上がりでは、20 ns 以上の待機時間が生じてから、徐々に信号強度が増大する様子が観察された。発振状態での振動周期は 2 ns であり、信号増大から飽和するまでに要した緩和時間は 20 ns 以上であることがわかった。一方、パルスの立ち下りでは、入力されている電圧とほぼ同じ包絡線が得られた。発表では、印加電圧依存性など、より詳細にスピンドYNAMIXの議論を行う。

参考文献

- 1) J. Torejon et al., Nature 547, 428 (2017)
- 2) H. Tomita et al., Appl. Phys. Express 1, 061303 (2008)
- 3) S. Tsunegi et al., Appl. Phys. Express 7, 063009 (2014)

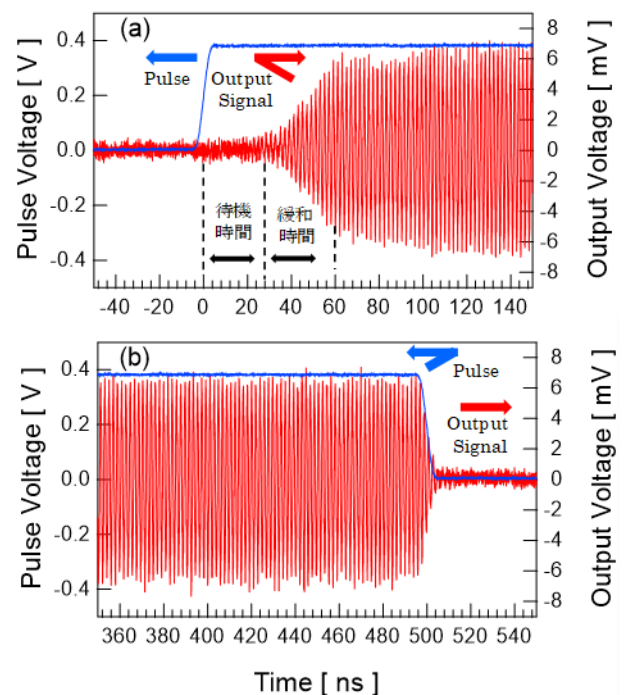


図 1 スピントルク発振素子に入力した矩形波とスピントルク発振素子の出力信号の実時間測定結果。(a)立ち上がり。(b)立ち下り。

FeB 自由層を持つ磁気渦スピントルク発振素子の同期現象

安藤拓己^{1,2}, 鈴木大貴^{1,2}, 常木澄人², 薬師寺啓², 福島章雄², 湯浅新治², 安川雪子¹, 久保田均²
(千葉工大¹, 産総研²)

Effect of interface modification on electrical synchronization in spin torque oscillator

°Takumi Ando^{1,2}, Daiki Suzuki^{1,2}, Sumito Tsunegi², Kay Yakushiji², Akio Fukushima², Shinji Yuasa²,
Yukiko Yasukawa¹, Hitoshi Kubota²
(Chiba Institute of Technology¹, AIST²)

背景

スピントルク発振素子(STO)のダイナミクスの理解や高周波特性の改善を目指した研究が行われてきた。近年では、高周波特性の改善^{1,2}や連想記憶装置³などの新しい応用に向けて、STOの同期現象に注目が集まっている。STOの同期現象は磁氣的¹または電氣的²な相互作用により発現する。電氣的な相互作用を利用した同期現象は発振素子間距離に相互作用の強度が依存しないため、回路の冗長性が高い特徴がある。一方で、磁氣的な相互作用に比べて電氣的な相互作用は弱く、振動子間の周波数差が数 MHz 離れるだけで同期状態が解消されてしまうという課題がある。²この同期が維持できる周波数差(同期幅)に関しては、発振条件および材料依存性など関して系統的な実験が少なく、応用上の課題となっている。本研究では、優れた高周波特性を持つ FeB を自由層とする磁気渦型 STO⁴を基本構造として、その同期幅の系統的な評価を行った。

実験方法

本研究で用いた磁気渦型 STO の膜構成を図 1(a)に示す。自由層膜厚は 10 nm とし、直径 300 nm の STO を EB リソグラフィおよび Ar イオンミリングにより作製した。膜面垂直方向の磁界 H および直流電圧 V_{DC} を印加し自励発振を励起した。また、同期幅を評価するために基準信号源を用いた強制同期の実験を行った。この時、基準信号と STO の出力信号を完全に区別するために、基準信号の周波数 f_{AC} は STO の発振周波数 f_{STO} の 2 通倍近辺 ($f_{AC} \sim 2f_{STO}$) を用いた。STO に注入される基準信号強度 P_{AC} が -20 dBm となるように、基準信号源の出力強度を調整し実験を行った。

実験結果

図 1(b)に直流電圧 400 mV, 磁界 300 mT における STO の発振周波数 f_{STO} の基準周波数 f_{AC} 依存性を示す。この直流バイアスにおける STO の発振周波数はおおよそ 512 MHz 程度である。 $f_{AC}/2$ が 511 MHz 以下および 513 MHz 以上において基準信号の周波数に依らず STO の発振周波数は 512 MHz 程度で一定となり、この基準周波数領域では STO は信号源に対して非同期状態であることがわかった。一方で、 $f_{AC}/2$ が 511.5 MHz から 512.8 MHz においては $f_{AC}/2 = f_{STO}$ と周波数が一致していることから、STO と信号源が同期している様子が観測された。この実験から、FeB 自由層を持つ磁気渦型 STO では 1.3 MHz の同期幅を持つことがわかった。発表では、同期幅の発振条件や材料依存性についても議論を行う。

参考文献

- (1) S. Kaka, *et al.*, Nature **437**, 389 (2005).
- (2) R. Lebrun, *et al.*, Nat. Commun. **8**, 15825 (2017).
- (3) A. Kumar, *et al.*, Sci. Rep. **7**, 411 (2017).
- (4) S. Tsunegi, *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063009 (2014).

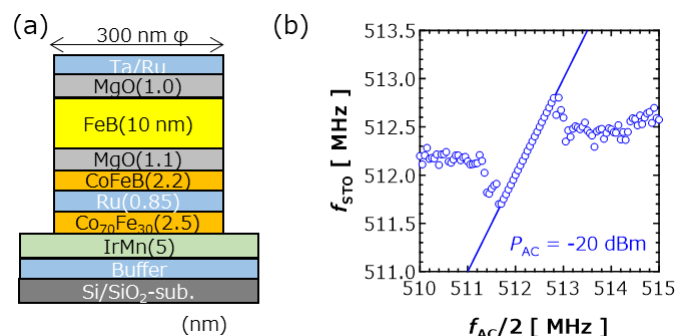


図 1(a)スピントルク発振素子(STO)の素子構造。(b)STO の発振周波数 f_{STO} の基準信号周波数 f_{AC} 依存性。