

素子「界面」の高度な制御で世界最高の磁気抵抗特性を達成

～超高感度磁気センサー・超大容量磁気メモリへの期待～

配布日時：2023年4月13日14時
 国立研究開発法人物質・材料研究機構

概要

1. 国立研究開発法人物質・材料研究機構（NIMS）は、素子の「界面」を高度に制御することで、トンネル磁気抵抗（TMR）比が室温で世界最高性能となる631%を達成し、従来の最高値を15年ぶりに更新しました。最高性能を示した素子では、TMR比が振動して大きく変化する現象が表れ、その振動幅は141%に達します。この現象はトンネル磁気抵抗素子の基本技術として一層進展させるヒントとなり、この成果は磁気センサーの高感度化や磁気抵抗メモリの大容量化の筋道を拓くものです。

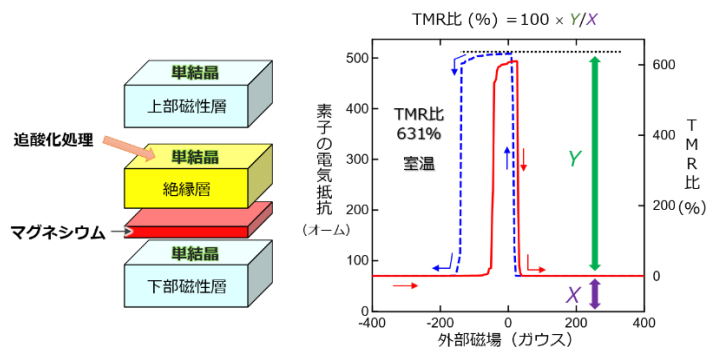
2. 磁場によって素子抵抗が変化する現象である TMR 効果は、微細で高感度な磁気センサーや省消費電力の磁気抵抗メモリ（MRAM）に利用されています。素子の抵抗変化の大きさをあらわす「TMR 比」が大きいほどセンサーの感度やメモリの集積度を高めることができます。しかし、2008 年の 604%の報告を最後に室温 TMR 比の更新は途絶え、この値に迫る報告も無かったため、磁気センサーや MRAM の性能向上は限界が近いと考えられてきました。

3. NIMS の研究チームは今回、素子の「界面」を精密に制御することでこの限界を突破しました。TMR 素子は磁性層（磁気を帯びた薄膜）と絶縁層を持つ薄膜から構成されています。素子のすべての層を単結晶で作製し、磁性層と絶縁層との境界部分である界面に非常に薄い金属マグネシウムを導入するなど、原子スケールでの改善を進めた結果、最大で 631% の TMR 比を示す素子が得られました（図下）。また、絶縁層の厚さに依存して周期的に変動する TMR 比（TMR 振動）の振動幅が 141%と大きく増幅される（従来は数%～数十%程度）ことも発見しました。振動幅と TMR 比との関係は良く解っていませんが、今後この巨大な振動現象のメカニズムを調べ、TMR 比との関係を明らかにすることでさらなる更新が期待できます。

4. 今回の成果を突破口とし、今後は医療用の超高感度磁気センサーの実現や超大容量 MRAM 開発の加速につなげます。

5. 本研究は、磁性・スピントロニクス材料研究センターのトーマス シャイケ NIMS 特別研究員、介川裕章グループリーダーらによって行われ、主に NEDO（国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構）「電圧駆動不揮発性メモリを用いた超省電力ブレインモルフィックシステムの研究開発（JPNP16007）」の委託業務の一環として得られたものです。

6. 本研究成果は、Applied Physics Letters 誌の 2023 年 3 月 15 日発行号（Vol. 122, Issue 11）にて掲載されました。



本研究で開発した積層素子の構造（図左）において、世界最高の室温 TMR 比 631%（図右）が達成されました。

研究の背景

トンネル磁気抵抗素子 (TMR 素子) はパソコンに搭載されているハードディスクの磁気ヘッドに利用されています。また、電源を切っても情報が消えない省消費電力な磁気抵抗メモリ (MRAM¹) の素子としても用いられています。TMR 素子は図 1 に示すように、2つの磁性層 (磁気を帯びた薄膜) との間に薄い絶縁層を挟んだ構造を持ち、磁性層の着磁方向 (N 極と S 極の方向) が平行の場合と反平行の場合で異なる抵抗を示します。このときの抵抗変化率 (TMR 比) が大きいほど応用の幅が広がります。しかし、604%の報告を最後に最大値の更新が 15 年途絶えていました。実用素子の TMR 比は 100~200%程度にとどまっており、TMR 素子を用いる応用デバイスの飛躍的な普及に向けて大きな課題となっています。

大きな TMR 比の実現が難しい理由として、磁性層と絶縁層の接触する部分である「界面」において理想的な構造を得ることが困難であることが挙げられます。磁性層と絶縁層は物質として大きく異なる性質を持っているため欠陥が少なく急峻な界面を得ることが困難です。このため界面の品質向上への指針が定まっておらず、安定して大きな TMR 比は得られていませんでした。

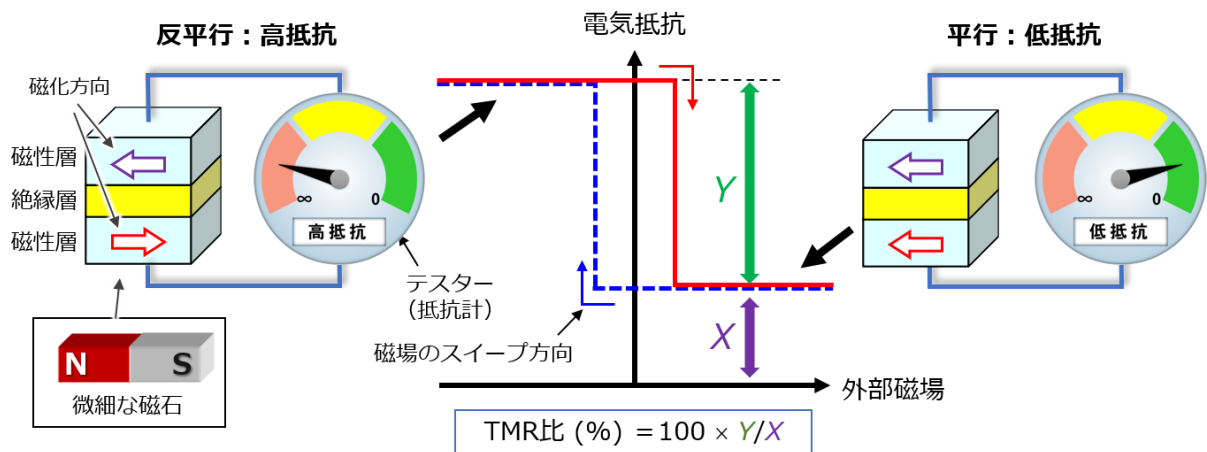


図 1 トンネル磁気抵抗 (TMR) 素子。磁性層の磁化方向が平行と反平行で絶縁層の電気抵抗が変わる TMR 効果を示します。図の中央には抵抗が磁場によって切り替わる様子を模式的に示しています。この図では磁場のスイープ方向によって抵抗変化が起こる磁場が変わる現象である磁気履歴がみられています。TMR 比は平行状態の抵抗 (X) から反平行状態に切り替わる際の増分 (Y) との比率 (Y/X) を%として定義されます。

研究内容と成果

今回、NIMS の研究チームは磁性層と絶縁層の界面を精密に制御することでこの限界を突破しました。まず「単結晶」の薄膜から素子を構成し、平坦で高品位な界面を得ました。具体的には、酸化マグネシウム単結晶材料を薄膜の基板に用いることで、その上に作製する層を単結晶で得ることができます。また、磁性層はコバルト鉄合金を材料としてスパッタリング法²で作製し、一方、絶縁層には酸化マグネシウムを材料として電子線蒸着法³という異なる手法を用いて作製しました (図 2 左)。このように材料に応じた手法を組み合わせることで、絶縁層内原子による磁性層の汚染を抑制しました。次に、絶縁層の上界面、下界面それぞれに手を加えました。下界面には、0.6 ナノメートル⁴厚の極薄の金属マグネシウムを挿入しました。上界面には、上部磁性層の積層直前に微量の酸素ガスを吹き付ける独自のプロセス (追酸化処理⁵) を開発しました。これらの制御によって上下界面における酸素の量が最適に調整され急峻な界面が実現されました。この結果、図 2 右に示す通り大きな室温 TMR 比 631%が実現し、15 年ぶりの最高値の更新に至りました。

今回の素子では、磁性層と絶縁層には TMR 素子ではありふれた材料を用いていますが、単結晶層の作製法の改良と、原子レベルでの界面制御の最適化によって TMR 比を向上できることを示しました。磁性層、絶縁層の材料の改良が進むことで TMR 比のより大きな向上が期待されます。

さらに今回開発した素子では、絶縁層膜厚によって TMR 比が振動して変化する「TMR 振動」が極めて大きく表れることも発見しました。これまで、単結晶膜から構成される高品位な素子において TMR 振動が表れることが報告されていますが、現在もそのメカニズムはわかっていません。今回得られた室温の TMR 振動の幅は報告されている数%~数十%に比べて非常に大きく 141%にも達しています (図 3)。この

振動幅と TMR 比の最大値には強い関係があることから、メカニズム解明を進めることで一段と大きな TMR 比達成のための設計指針が得られることが期待されます。

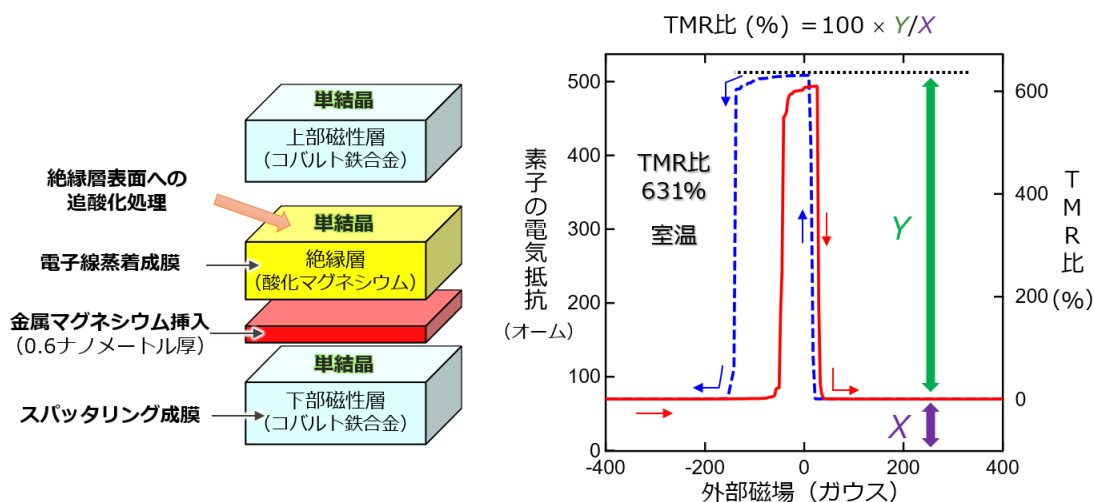


図2 (左) 成膜法と界面作製の工夫を行った積層素子の模式図。磁性層と絶縁層の界面を精密に制御することで素子の結晶品質を大きく改善しました。(右) 得られた素子において観測された抵抗の磁場による変化を示した図。履歴を示して抵抗が切り替わる様子が確認でき、TMR 比として世界最大値となる 631%が観測されました。

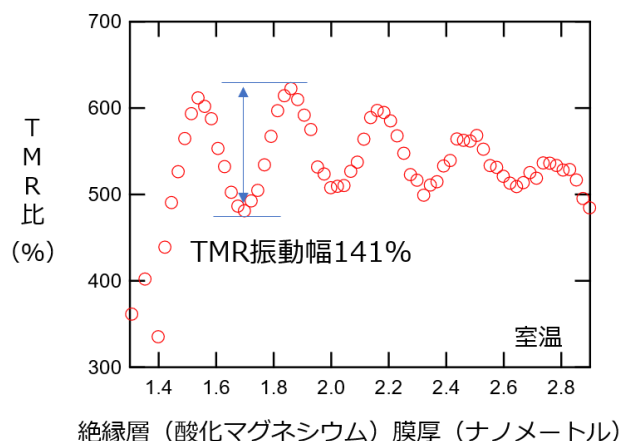


図3 見出された大きな TMR 比の振動現象。絶縁層厚さによって 141%の大きな振動幅を示しています。現在の理論では予測されていない現象のためこの解明がより大きな TMR 比実現のキーとなります。

今後の展開

本成果である大きな TMR 比の実現によって、磁気センサーの大幅な高感度化への道が拓かれることが期待されます。例えば、心磁場・脳磁場の検出のための超高感度磁気センサーや、車載向け高感度センサーなどへの展開が期待されます。また、一つのメモリ素子に複数のデータを格納する技術である多値化⁶や、3次元積層化といった今までの TMR 比の水準では不可能だった新しい MRAM 技術の開拓も期待され、パソコンやスマートホンなどで広く利用される大容量メモリへの展開も予想されます。

掲載論文

題目：631% room temperature tunnel magnetoresistance with large oscillation effect in CoFe/MgO/CoFe(001) junctions (CoFe/MgO/CoFe(001)接合における巨大振動効果を伴う 631%の室温トンネル磁気抵抗)

著者：Thomas Scheike, Zhenchao Wen, Hiroaki Sukegawa, and Seiji Mitani

(シャイケ トーマス、温 振超、介川 裕章、三谷 誠司)

雑誌：Applied Physics Letters, vol. 122, p. 112404 (2023).

掲載日時：2023年3月15日（米国日時）

<https://doi.org/10.1063/5.0145873>

用語解説

(1) MRAM

磁気ランダムアクセスメモリー（Magnetoresistive Random Access Memory）の略称で、磁気抵抗効果を利用して情報を記憶する不揮発性メモリです。TMR素子を情報の記録に用いることで、代表的な半導体メモリであるDRAMやフラッシュメモリと比較して高速なアクセス時間を実現しています。MRAMはスマートホンやスマートウォッチなどの電子機器に広く利用されることが期待されています。

(2) スパッタリング法

産業で用いられる代表的な薄膜の作製手法です。薄膜にしたい材料のもととなる材質の塊（ターゲット）にイオンのビームなどを照射することでターゲットの表面から物質を削り取り、それを基板に沈着させる方法です。均質で高密度な薄膜を作ることが容易で、金属やセラミックスなどの広い材料に用いることができます。

(3) 電子線蒸着法

薄膜の作製方法の一つで、材料を加熱によって気化させることでその蒸気を基板へ沈着させる方法です。加熱には電子ビームを用いて行い、気化した蒸気を基板上で固体化することで薄膜を作ります。この方法はイオンビームを用いるスパッタリング法よりも薄膜の形成中のダメージを小さくできることから高品質な単結晶の膜の作製に適しています。

(4) ナノメートル

長さの単位の一つで、1メートルの10億分の1を示します。このため原子の大きさ（おおよそ0.1～0.3 nm）などの微小なものを測定するために使用されます。

(5) 追酸化処理

上部磁性層の成膜直前に酸化マグネシウム層をごく微量の酸素ガスに一度さらすことによって、その表面を弱く酸化させる処理です。酸化マグネシウム薄膜は成膜直後では酸素の欠陥が多いため、酸化強度を調整することで表面を改質できます。この処理の採用によって上部磁性層の品質を向上できました。酸化物である酸化マグネシウムをさらに酸化させるという意外なプロセスですが本成果の重要な立役者です。

(6) 多値化（メモリ技術）

メモリの情報を格納する1つのセルに複数の情報の値を格納する技術のことです。従来のメモリセルは、2つの状態（例えば0と1）のいずれかを表現することができます。多値化技術を用いることで同じセルに3つ以上の値を格納することができます。これによって、同じ面積のチップにより多くの情報を保存することができ、メモリ容量の拡大や低コスト化が可能になります。

本件に関するお問い合わせ先

（研究内容に関すること）

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センター
スピントロニクスグループ

グループリーダー 介川 裕章（すけがわ ひろあき）

E-mail: SUKEGAWA.Hiroaki@nims.go.jp

TEL: 029-860-4642

URL: https://www.nims.go.jp/mmu/index_j.html

（報道・広報に関すること）

国立研究開発法人物質・材料研究機構 国際・広報部門 広報室

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp