

高エントロピー酸化物で低抵抗・高性能 TMR 素子を実現

～大容量磁気ストレージでスマート社会を支える新材料～

NIMS は、複数の金属元素を組み合わせた高エントロピー酸化物を TMR（トンネル磁気抵抗）素子のバリア層に応用し、強い垂直磁化、高い TMR 比（抵抗変化率）、そして低電気抵抗の同時実現に成功しました。HDD（ハードディスク）や MRAM（磁気抵抗メモリ）のさらなる小型化と大容量化・高性能化につながると期待されます。本研究成果は、2025 年 7 月 6 日付で国際科学誌『Materials Today』に掲載されました。

研究成果の概要

■ 従来の課題

TMR 素子は、磁性体の間にある極薄の絶縁層を電子が量子トンネル効果で通過することで動作します。この絶縁層には、現在主に酸化マグネシウム（MgO）が使用されています。MgO は、磁気状態による抵抗の変化率（TMR 比）が高く、磁気状態の検出性能に優れている一方で、電子が通りにくい「バリア高さ」が高いため、トンネル電流が抑制され、素子全体の電気抵抗が大きくなるという課題がありました。このため、トンネル効果を維持しながらバリア高さを下げ、トンネル電流を増加させられる新たなバリア材料の開発が強く求められていました。

■ 成果のポイント

NIMS は、5 金属元素からなる高エントロピー酸化物「LiTiMgAlGaO」を開発し、原子レベルで均一に分散した高品質なバリア層の作製に成功しました [図 1(a)]。このバリアは、垂直磁気異方性 [図 1(b)] と 80% 超の高 TMR 比に加え、バリア高さを MgO の半分以下に抑えることに成功し、トンネル電流の増加によって電気抵抗の大幅な低減を可能にしました。本成果は、次世代 MRAM や HDD の高速・大容量化に貢献するものです。

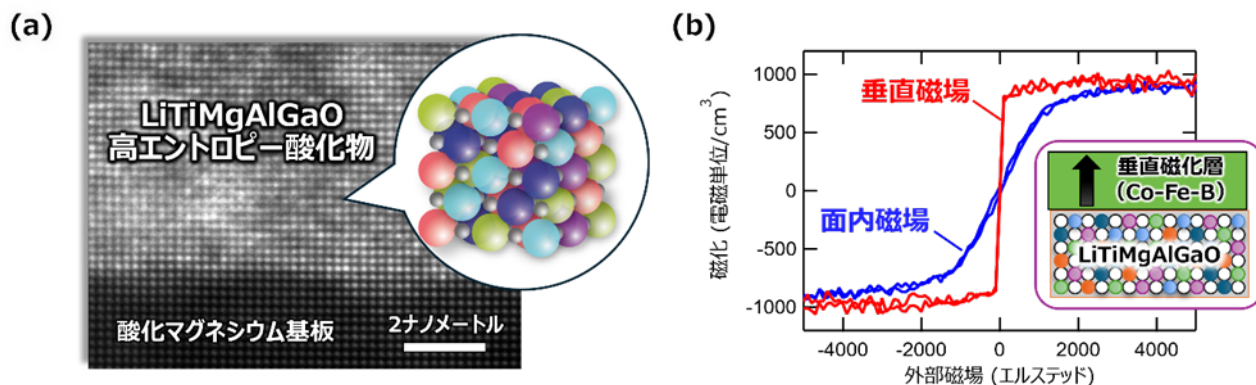


図 1 : (a) 均一な元素分布を示す LiTiMgAlGaO バリア層の断面構造。(b) バリア層により磁性層に強い垂直磁気異方性を付与。

■ 将来展望

今後は、元素の組合せや組成比の最適化により、低抵抗かつ高 TMR 比を両立する理想的なバリア材料の開発を目指します。あわせて、機械学習などのデータ駆動型手法を活用して材料設計の加速と実用化を推進し、MRAM や HDD のさらなる大容量化・高性能化に貢献します。

■ その他

- 本研究は、NIMS 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の SIHOMBING Rombang Rizky (シオンビン ロンバン リズキ) ポスドク研究員、介川裕章グループリーダーを中心に、同グループの SCHEIKE Thomas (シャイケ トーマス) 客員研究員、温 振超 (ウェン ジェンチャオ) 主任研究員、三谷誠司上席研究員、技術開発・共用部門 材料創製・評価プラットフォーム 電子顕微鏡ユニットの埋橋 淳主幹エンジニア、同プラットフォーム 表面・バルク分析ユニットの安福秀幸主幹エンジニア、ならびに磁性・スピントロニクス材料研究センターの大久保 忠勝副センター長らで構成される研究チームによって実施されました。
- 本研究は、文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト (JPMXP1122715503)、日本学術振興会 科学研究費補助金 (22H04966、24H00408)、および文部科学省 次世代 X-nics 半導体創生拠点形成事業 (JPJ011438) の支援を受けています。
- 本研究成果は、2025 年 7 月 6 日に国際科学誌「Materials Today」オンライン版に掲載されました。

研究の背景

TMR 素子は、パソコンやクラウドサービスの情報を記録・保存するハードディスクの再生ヘッド (TMR ヘッド) や、モバイル機器などに使用される MRAM⁽¹⁾ の記録素子として広く用いられています。TMR 素子は、図 2 に示すように、2 つの磁石の薄膜 (磁性層) で非常に薄い絶縁層 (バリア層) を挟んだ 3 層構造となっており、このバリア層が素子性能を大きく左右します。現在は、主に MgO がバリア層に使われています。TMR 素子では、磁性層の磁化の向き (N-S 極の方向) が平行または反平行となることで電気抵抗が変化します。この抵抗変化率 (TMR 比) が高いほど、磁気状態をより正確に読み取る性能が高まります。一方で、記録密度を上げるため素子の小型化が進み、電気抵抗も低く抑える必要が出てきました。

ところが、MgO は絶縁性が非常に高いため、バリア層の厚みを 1 ナノメートル以下 (原子数個分) に抑える必要があります。このことが素子の品質維持を難しくし、高い TMR 比を安定的に確保できないという課題に直面しています (図 3)。そのため、より低抵抗でかつ安定した TMR 特性を持つ新しいバリア材料の開発が強く望まれています。

NIMS でもこれまでに、低抵抗バリア材料の候補としてマグネシウムガリウム酸化物 (MgGa_2O_4) を開発してきましたが、バリア層と磁性層の原子が混ざりやすく、十分な性能を得られませんでした。こうした背景から、低抵抗と高い TMR 比の両立を可能にする新しいバリア材料の開発は、社会的にも学術的にも非常に重要な課題となっています。

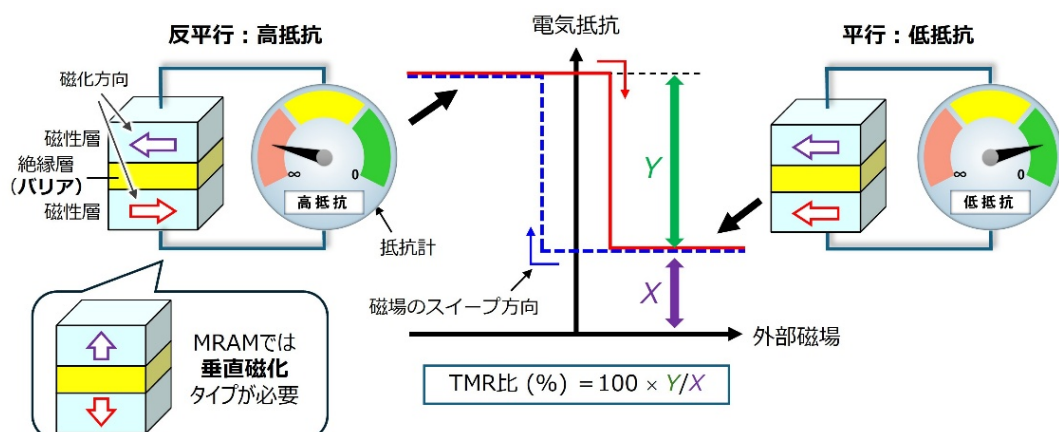


図 2：トンネル磁気抵抗（TMR）素子の動作原理。磁性層の磁化方向が平行か反平行かによって、素子全体の電気抵抗が変わる TMR 効果が現れます。図は、磁場の变化によって抵抗値が切り替わる様子を示しています。TMR 比（抵抗変化率）は、平行時の抵抗値（ X ）に対する反平行時の抵抗増加量（ Y ）の比率（ Y/X ）として定義され、%で表されます。MRAM 用途では、磁性層に垂直磁化を持たせる必要があります。

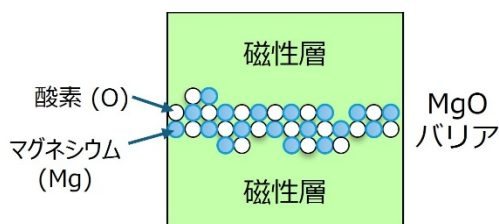


図 3：現行の MgO バリア層における課題。原子数層以下の厚さ（1 ナノメートル未満）までバリアの薄膜化が進んでいますが、これ以上の薄膜化では、膜の品質が急激に低下し、TMR 比が得られなくなるという限界があります。

研究内容と成果

NIMS の研究チームは今回、低抵抗バリア材料として、リチウム、チタン、マグネシウム、アルミニウム、ガリウムの 5 種類の金属元素を含む「高エントロピー酸化物⁽²⁾」 LiTiMgAlGaO を開発しました。図 4 左に示すように、リチウム・チタンの酸化物（ LiTiO ）とマグネシウム・アルミニウム・ガリウムの酸化物（ MgAlGaO ）を原料とし、原子レベルの厚さ（0.3～0.5 ナノメートル）でスパッタリング法⁽³⁾による精密な積層を行いました。高速かつ自動制御が可能な成膜装置 [図 5] を用いて最適な成膜プロセスと熱処理の条件を効率的に探索した結果、2 つの酸化物層同士の混合が促進され、5 元素が原子レベルで均一に混ざり合った、岩塩型結晶構造を持つ高品位な単結晶薄膜の作製に成功しました（図 4）。

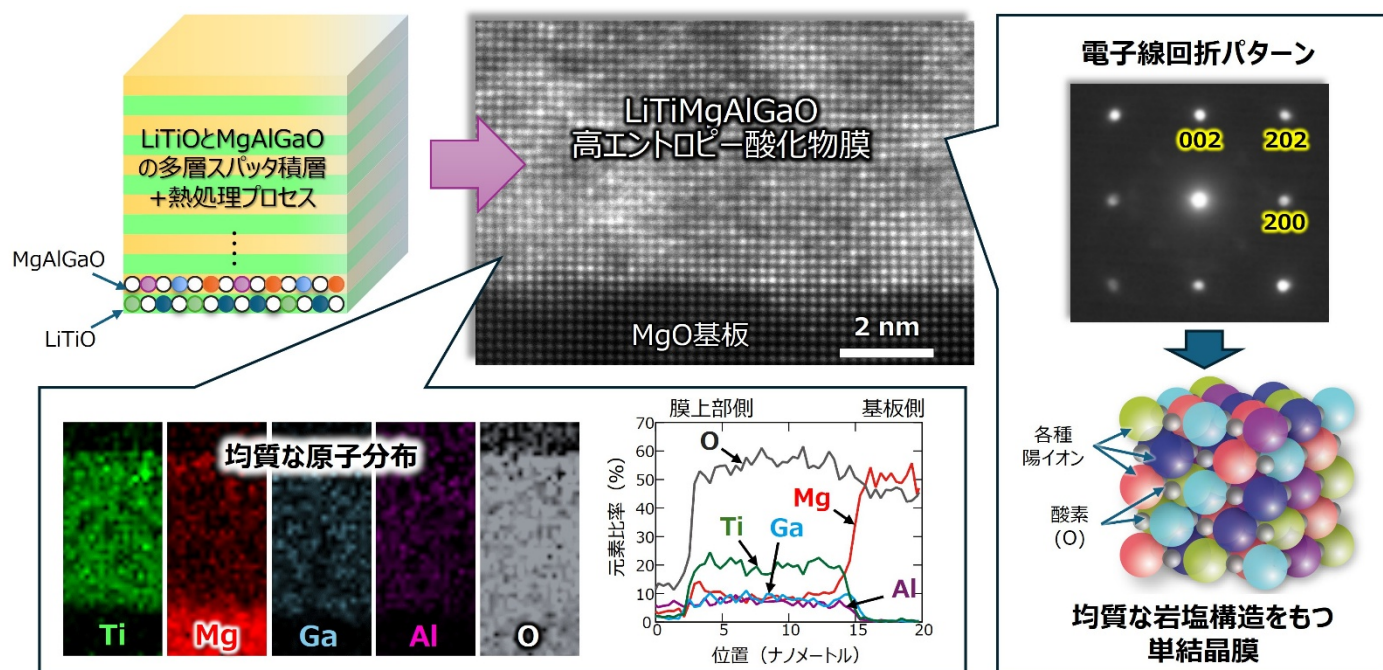


図 4：高エントロピー酸化物 LiTiMgAlGaO 薄膜の作製と断面構造。リチウム・チタン酸化物（ LiTiO ）とマグネシウム・アルミニウム・ガリウム酸化物（ MgAlGaO ）を原子レベルの厚さで交互に積層し熱処理を行うことで、高エントロピー酸化物 LiTiMgAlGaO 薄膜を作製しました。電子顕微鏡像（中央上）と電子回折パターン（右上、電子線を材料にあてたときに現れる結晶構造の情報を持つ特徴的な点配置、パターン内の数字は面指数を表す）から、全域で均質な岩塩構造を持つ単結晶薄膜が形成されていることが確認されました。また、エネルギー分散型 X 線分光のプロファイルから各元素が膜内で均一に分布している様子も明瞭に示されています（中央下）。



図5：薄膜作製に用いた高スループット成膜装置（写真：石川典人）。

この LiTiMgAlGaO の表面に、コバルト・鉄・ホウ素磁性層 (CoFeB) を成膜し（図 6 左）、約 300°C で熱処理を行ったところ、強い垂直磁化を示す良好な磁性膜が得られました（図 6 右）。これは、 LiTiMgAlGaO が原子レベルで平坦な表面を持ち、磁性層と安定した界面を形成できたためです。この結果は、MRAM 素子に求められる大きな垂直磁気異方性の実現可能性を示すものです。

さらに、この LiTiMgAlGaO バリアを用いて、上下を強磁性体で挟んだ TMR 素子〔図 7(a)〕を作製したところ、84%という高い TMR 比が観察されました〔図 7(b)〕。これは、 LiTiMgAlGaO バリアにおいても「コヒーレントトンネル効果⁽⁴⁾」が有効に発現しており、優れた TMR 性能が得られること示しています。加えて、従来の MgO バリアとは異なり、電圧印加時に電気抵抗が大きく低下する特性も観測されました。図 7 (c) に示すように、1 ボルトの電圧を印加すると、抵抗値は無電圧時の数十分の一まで下がります。これは、「バリア高さ（電子が乗り越えるエネルギー障壁）⁽⁵⁾」が MgO の半分以下に低減されており、 LiTiMgAlGaO が低抵抗化に適した材料であることを示しています。さらに、このバリア材料は極薄でも構造的に安定であり、高い耐電圧特性も併せ持つことがわかりました。

以上の結果から、 LiTiMgAlGaO は、極薄かつ均質な層構造、磁性層への優れた垂直磁化の付与、高い TMR 比、低いバリア高さ、高耐電圧性といった、従来材料の限界を超える複数の特性を同時に実現できるバリア材料であることが明らかになりました。この材料の開発は、HDD や MRAM のさらなる小型化・大容量化といった磁気ストレージの高度化に大きく貢献することが期待されます。また本成果は、これまで主にバルク材料として機能性が注目されてきた高エントロピー酸化物が、薄膜電子デバイス材料としても有望であることを示しており、その材料開発と応用の可能性を大きく広げるものです。

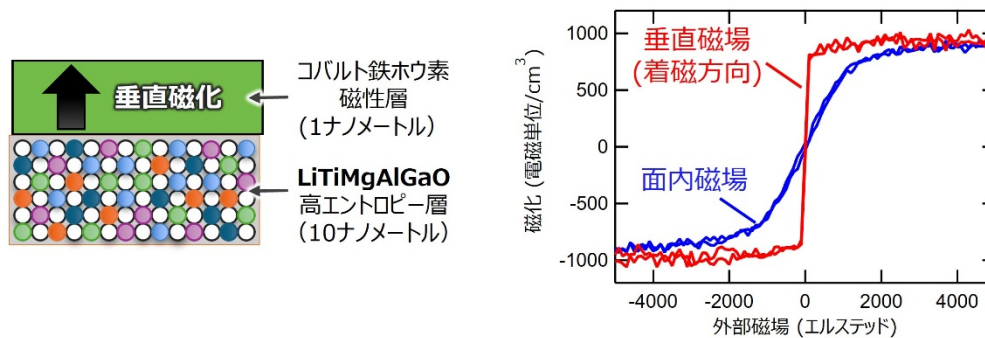


図 6：高エントロピー酸化物 LiTiMgAlGaO による垂直磁化膜の形成。LiTiMgAlGaO 高エントロピー酸化物層（10 ナノメートル）の上に、コバルト・鉄・ホウ素からなる磁性層（厚さ 1 ナノメートル）を成膜し、垂直磁化膜の形成に成功しました。右図は磁性層における膜面内および膜面直方向の磁化曲線を示したもので、垂直方向の磁場を変化させた際にゼロ磁場付近で磁化が急激に反転していることから、垂直方向への優れた着磁特性が得られていることがわかります。

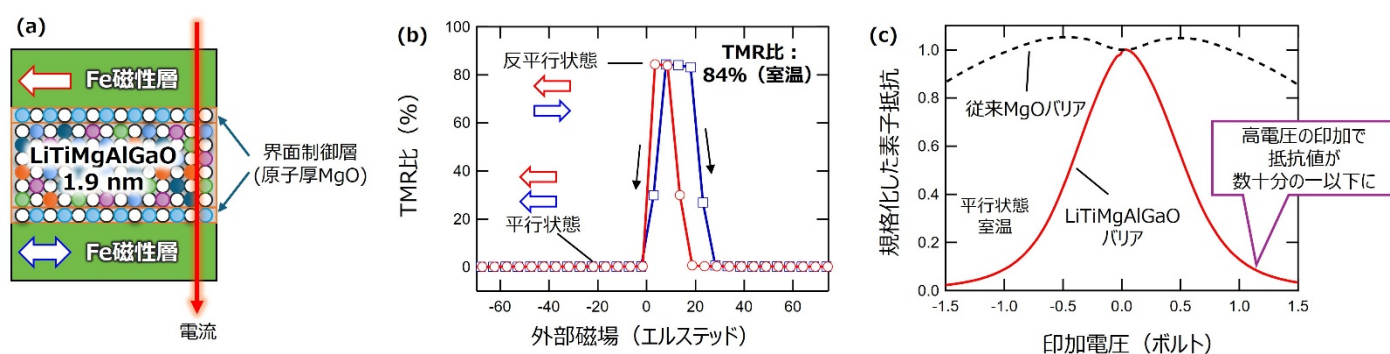


図 7：LiTiMgAlGaO をバリア層に用いた TMR 素子の性能評価。(a) TMR 素子の構造模式図。上下の磁性層に鉄（Fe）を用い、LiTiMgAlGaO バリアとの界面に原子層厚の MgO を挿入して構造を最適化しました。(b) TMR 特性の測定結果。室温で 84% という高い TMR 比を示し、優れた TMR 特性を確認しました。(c) 印加電圧と素子抵抗の関係。LiTiMgAlGaO バリアでは電圧印加により抵抗値が数十分の一まで低下しており、「バリア高さ」が低く低抵抗化に適していることが示されています。従来の MgO バリアとは対照的です。

今後の展開

今後は、本研究で得られた知見をもとに、さらに多様な組成や構造を持つ高エントロピー酸化物バリア材料の開発を進めていきます。特に、データ駆動型の材料開発手法⁽⁶⁾を取り入れることで、従来の経験則に頼らず、より高効率な材料探索を実現します。また、今回得られた材料特性や評価技術のさらに高度化を図り、HDD や MRAM といった実用デバイスへの応用展開を加速させます。これにより、大容量かつ省エネルギーな次世代データストレージの実現が期待されます。さらに、高エントロピー材料の応用範囲をスピントロニクスや薄膜デバイス分野へと広げることで、今後の電子デバイス技術の進展にも貢献していきます。

■掲載論文

題目	High entropy oxide epitaxial films with interface perpendicular magnetic anisotropy and tunnel magnetoresistance effect toward spintronic applications
著者	Rombang Rizky Sihombing, Thomas Scheike, Jun Uzuhashi, Hideyuki Yasufuku, Tadakatsu Ohkubo, Zhenchao Wen, Seiji Mitani, and Hiroaki Sukegawa
雑誌	Materials Today
DOI	10.1016/j.mattod.2025.06.025

■用語解説

(1)MRAM

磁気ランダムアクセスメモリ（Magnetoresistive Random Access Memory）の略称で、TMR 効果を利用して情報を記憶する不揮発性メモリです。TMR 素子を用いることで、従来の半導体メモリ（DRAM やフラッシュメモリなど）に比べて高速な読み書きが可能です。スマートホン、スマートウォッチ、車載機器など、今後の幅広い応用が期待されています。

(2)高エントロピー酸化物

通常、5 種類以上の金属元素を、ほぼ等量ずつ混ぜて作られる材料は「高エントロピー材料」と呼ばれます。このうち、酸素と結びついたものが「高エントロピー酸化物」です。さまざまな金属元素がランダムに混ざること、材料中のエントロピー（乱雑さ）が高まり、従来材料を超える優れた性質（例：高い耐熱性、強度、構造の安定性など）が現れることがあります。

(3)スパッタリング法

産業で広く用いられている代表的な薄膜作製手法です。薄膜化したい材料（ターゲット）にイオンビームなどを照射し、表面から原子や分子を叩き出して、それを基板上に堆積させます。均質で高密度な薄膜を作製しやすく、金属から酸化物まで幅広い材料に適用できます。

(4)コヒーレントトンネル効果

TMR 素子に使われる結晶性バリアで発現する効果です。結晶の方位がそろった MgO バリアでは、電子が軌道を保ったまま流れるトンネル効果が起き、TMR 比が飛躍的に向上します。2004 年にはこのコヒーレントトンネル効果により、TMR 比が飛躍的に向上することが報告され、従来の数十%程度から一気に 200～300%程度（室温）へと高まり、大きな注目を集めました。現在の高性能 TMR 素子には不可欠な要素となっています。

(5)バリア高さ

電子がバリア層を通る際に越えなければならない「エネルギーの壁」の高さを指します。例えば、電子が部屋から別の部屋へ移動する際に壁を越えるようなイメージです。バリア高さが低いと電子が通りやすくなり、TMR 素子の抵抗も小さくなります。ただし、低すぎると絶縁性が失われて TMR 効果が得られなくなるため、適切な高さが必要です。

(6)データ駆動型材料開発

これまで研究者の経験に頼っていた材料開発を、豊富なデータと人工知能（AI）で効率化する新しい手法です。AI が膨大なデータを解析・予測することで、最適な材料の組み合わせや作製条件を短時間で見つけられます。これにより、有望な材料の発見と革新的な機能の開発が加速すると期待されています。

本件に関するお問い合わせ先

研究内容について	NIMS 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 E-mail: SUKEGAWA.Hiroaki@nims.go.jp TEL: 029-860-4642 URL: https://www.nims.go.jp/mmu/
報道・広報について	NIMS 国際・広報部門 広報室 〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1 E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

NIMS とは？

NIMS（ニムス）は、国内で唯一、物質・材料科学の研究に特化した国立研究開発法人です。

世界を構成する様々な「物質」。その中で私たちの生活を支えているのが「材料」です。その材料も、大きくは有機・高分子材料、無機材料に分類でき、無機材料はさらに金属材料とセラミックス材料とに分けられます。石器時代から産業革命を経て現代まで、人類の発展はこの材料の進歩とともにありましたが、近年では、地球規模の環境や資源問題の解決手段のひとつとしても注目が高まっています。NIMS はその物質・材料に関する研究に特化した国立研究開発法人として、「材料で、世界を変える」をテーマに、未来を拓く物質・材料の研究に日々取り組んでいます。

【NIMS を掴む参考ページ】

NIMS はこんな研究所！ <https://www.nims.go.jp/nims/introduction.html>

NIMS ビジョン <https://www.nims.go.jp/nims/profile.html#vision>