



令和3年8月20日

報道機関 各位

東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター

強磁性トンネル接合素子の障壁材料として
二次元物質(六方晶窒化ホウ素)に期待

- 1,000%のTMR比と界面垂直磁気異方性の誘起を予測 -

【発表のポイント】

- CoとNの原子の相対位置関係により、二次元物質(*h*-BN)と強磁性金属(Co,Fe)の界面の混成軌道による界面垂直磁気異方性が強化されることを発見
- *h*-BNをトンネル障壁とした強磁性トンネル接合素子において、1,000%のトンネル磁気抵抗比が現れることを予測
- ファンデルワールス力による“ゆるやか”な化学結合は、強磁性トンネル接合素子における設計に自由度を付与
- 二次元物質の高い面内移動度と面直方向のトンネル伝導を利用することにより、面内/面直伝導を組み合わせたハイブリッド集積回路に期待

【概要】

情報機器でのエネルギー消費増大問題を解決するために、計算機用の高性能な不揮発性メモリの開発が求められています。東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センターはケンブリッジ大学との共同研究により、二次元物質(*h*-BN)と強磁性金属(Co,Fe)の界面の混成軌道による界面垂直磁気異方性がCoとNの原子の相対位置関係によって強化されることを発見し、不整合性の高い原子配置関係のときに1,000%のTMR比が現れることを明らかにしました。二次元物質である*h*-BNは将来のMTJの障壁材料の1つの選択肢として有望であり、二次元物質の高い面内移動度と組み合わせた面内/面直伝導を二次元物質が担うハイブリッド型集積回路が期待されます。

本研究成果は、米国物理学会発行の科学誌 Applied Physics Review の editor's choice となり2021年8月5日にOnline掲載されました。

【背景】

年々増大する情報機器でのエネルギー問題を解決するためには、計算機用の不揮発性メモリを開発することが重要です。東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センターでは、CoFeB/MgO/CoFeBの Δ_1 コヒーレントトンネリングと界面垂直磁気異方性を利用した強磁性トンネル接合(MTJ)構造により1Xnm世代に適合した不揮発性磁気メモリの研究開発に成功しています。MgOは1nmまで極薄化してもコヒーレントトンネリングと界面垂直磁気異方性が観測される有望な

トンネル障壁材料であり、スケーリングにおける高い信頼性を実証しています。本研究では、新たな選択肢を模索する上で、最近、多くの研究成果が報告されている二次元材料に着目しました。二次元材料は面内伝導において移動度が高く、実用面では電界効果を利用したトランジスタ応用の研究が多くあります。しかし、面直方向のトンネル伝導について調べた報告は少なく、界面垂直磁気異方性が MgO と同様に現れるかなどの理論的な検討はグラフェン以外には殆どありません。将来、トランジスタ材料に二次元材料が用いられる時代が到来するときに備えて、MTJ のトンネル障壁として二次元材料の有用性を検討することは重要であります。本研究では、二次元材料として六方晶窒化ホウ素(*h*-BN)を選択し、不揮発性磁気メモリとして重要な材料物性であるトンネル磁気抵抗効果および界面垂直磁気異方性について第一原理計算により予測しました。

【研究内容】

不揮発性磁気メモリに用いられる垂直磁化型 MTJ 素子には、高いデータ保持特性のための高い界面磁気異方性が、読み出し信号および高効率のスピンの移行トルクのための高い TMR 比が必要です。GGA バンドエラーを補正した第一原理計算により、Co を強磁性金属、*h*-BN をトンネル障壁材料とした Co/*h*-BN を基本構造として、いくつかの Co と N の相対的な原子位置関係における、スピン分極バンド構造、TMR 比、および軌道混成を考慮して界面垂直磁気異方性について調べました。また、*h*-BN トンネル障壁材料の性能を理解するために MgO トンネル障壁と比較検討をしました。MgO トンネル障壁の界面における 4 回対称性は、*h*-BN と(111)強磁性金属面にみられる六方晶系の対称性とは対象的です。六方晶系の 3 回対称は、異なる軌道対称性の Evanescent 状態を混成する可能性があり、障壁全体の Evanescent 状態の減衰率が高くなるため、立方晶系の 4 回対称の Δ_1 モードの減衰率は最も低く、一般に *h*-BN などの 3 回対称の界面では不利であると考えられます。しかし、3 回対称でも 1 つの Δ_1 波は s^* 状態で構成されており、減衰率も低くなることがわかりました。計算によると、TMR 比はバンドギャップ全体のエネルギーに強く依存し、ファンデルワールス系の場合はフェルミエネルギーを固定する異常な要因がありました。

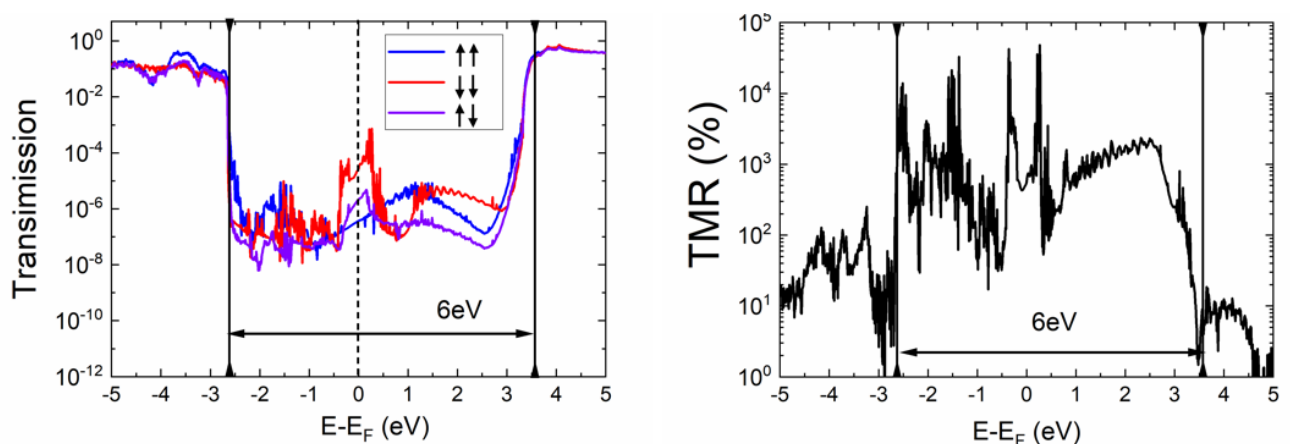


図 1 *h*-BN をトンネル障壁材料としたときの Evanescent 状態とスピン状態を考慮したときの透過率と、その TMR 比。Co と *h*-BN の相対原子位置を最適化することにより、1,000%の TMR 比を得ることが計算により明らかとなった。

図1にCoと h -BNのスピント過率とTMR比を示します。Coの最上部層と h -BN層が物理吸着すると想定したときの比較的長い原子間距離のときにTMR比は最も高くなり、1,000%のTMR比が理論的に得られることがわかりました。論文ではいくつかの原子位置とTMR比の関係について報告しておりますが、相対的な原子配置関係がTMR比に大きく影響することがわかりました。従って、高いTMR比を得るためには高度な結晶成長技術により原子位置関係を制御する必要があります。

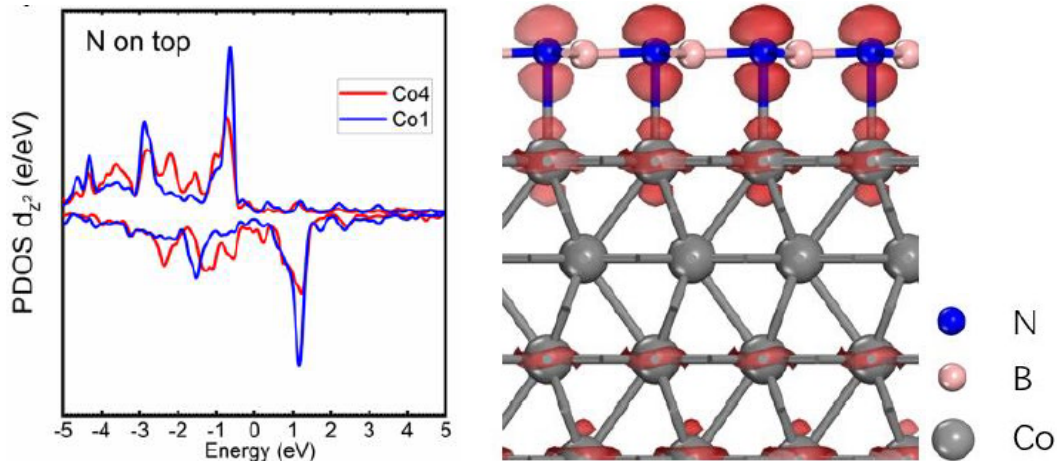


図2 Coの d_z^2 軌道とNの p_z 軌道の混成軌道による状態図。ここでは、Coの上にNが位置した原子関係における計算を示します。論文では3種類の原子位置関係について報告しています。

グラフェンとCoの間には界面垂直磁気異方性が誘導されることがわかっており、界面垂直磁気異方性は原子位置関係に敏感であることがグラフェンにおいて理論的に報告されています。Coと h -BNの界面構造をつくる時に3種類の原子位置関係を設定し、界面垂直磁気異方性について調べました。図2はCoがNの直上に配置されたときのエネルギー状態図を示します。FeまたはCo上の h -BNは混成軌道により界面垂直磁気異方性が誘起されることがわかりました。この混成軌道では、Co層の d_z^2 軌道とN p_z 軌道との軌道が混成し、空のダウンスピンCo d_z^2 状態が上方にシフトします(およびN p_z 状態が下向きにシフトします)図2に示すように、表面層の満たされたN p_z 状態を安定化させて界面垂直磁気異方性が誘起されます。図2の計算からCoの直上にNが配置されたときの相互作用により、Co層の空のPDOSダウンスピンバンドが+1 eV上方にシフトし、混成が起こっていることがわかります。これは、N p_z の占有結合状態の相互の下方シフトがあり、従って、占有状態の結合が増加し、界面垂直磁気異方性が得られることを意味します。

このように、 h -BNは1,000%のTMR比と共に界面垂直磁気異方性が誘起されることがわかりました。さらに、ファンデルワールス力によるゆるやかな結合は強磁性金属材料の選択に自由度を与えることから、MTJの材料設計において有利となります。さらに、二次元材料は高い面内移動度を利用したトランジスタ応用が検討されており、本研究により面直伝導での有用性を明らかにしたことは将来の二次元デバイスの発展において資する意義ある成果であるといえます。

【将来の展望】

本研究により、二次元材料である h -BNをトンネル障壁材料に用いたときに高いTMR比、界面垂

直磁気異方性が誘導されることがわかりました。半導体の後製造工程(back end of line: BEOL)の製造ラインに適合させるためには400°Cの温度で高品質なh-BNを形成する必要があります。また、高温時にはBが金属層に拡散する懸念もあるため低温化は必須課題であります。そのためには、低温合成が可能であるatomic layer deposition(ALD)法によりh-BNを作製する技術を確立する必要があります。既に、米国Applied Materials社では量産機向けにALD法とスパッタ法を組み合わせた装置を開発しており今後の展開が期待されます。

【研究経緯】

東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター(センター長・教授 遠藤哲郎)らは日本学術振興会研究拠点形成事業(Core-to-Core Program, 課題番号JPJSCCA20160005, 課題名「半導体集積デバイス向け二次元電子・スピン材料研究拠点」研究代表/コーディネーター 遠藤哲郎)の支援を受けて、日英仏の3国間の共同研究のもと二次元材料のトンネル障壁への応用について検討してきました。本研究はCore-to-Core Programの枠組み、および東北大学クロスアポイントメント制度による東北大学とケンブリッジ大学(John Robertson教授)の共同研究成果です。

【論文題目】

題目: Comparison of hexagonal boron nitride and MgO tunnel barriers in Fe,Co magnetic tunnel junctions

著者: H. Lu, J. Robertson, and H. Naganuma

掲載誌: Applied Physics Review

DOI: doi.org/10.1063/5.0049792

【用語説明】

*1 Δ_1 コヒーレントトンネリング: MgOは Δ_1 、 Δ_5 、 Δ_2 の3つのevanescent状態が存在し、MgOトンネル障壁を透過していくときに状態密度の減衰率は各状態の軌道対称性に大きく依存し、3つのなかで Δ_1 evanescent状態の減衰率が最も低くなる。従って、 Δ_1 の透過が主体的なときスピン依存伝導が高効率に実現し、TMR比が高くなる。

*2 強磁性トンネル接合(MTJ)素子: 強磁性/極薄絶縁層/強磁性の3層が基本構造で、1つの強磁性層を記録層、もう1つの強磁性層を固定層として磁化状態を記録する不揮発性磁気メモリへ応用されている。(磁化方向の書き換えは*3を、読み出しは*6を参照のこと)

*3 スピン移行トルク: スピン偏極した伝導電子がトンネル障壁層を透過し強磁性層のスピンと相互作用(軌道角運動量の受け渡し)するときにあられるトルクである。このトルクにより強磁性層の磁化方向を反転させることができるため、不揮発性磁気メモリの書き込みに利用されている。英語ではSpin-transfer-torque STTと表記される。

*4 二次元材料(物質): 二次元の面内方向の結合は強く、面直方向にはファンデルワールス力による弱い結合により貼り合わされている物質のこと。二次元材料としてはグラファイトの1層だけ剥がしたグラフェンに関わる研究が多く行われてきたが、近年、h-BN、WS₂など多くの二次元物質の研究が展開されている。

*5 ファンデルワールス力:原子間に働く分子間力であり、原子位置関係、結晶対称性などにより物理吸着と化学吸着の2種類が二次元物質と金属材料の間では生じるとされている。物理吸着のときの原子間力は化学吸着のときの原子間力に比べて弱く、原子間距離が長くなることが報告されている。

*6 トンネル磁気抵抗(TMR)効果:強磁性トンネル接合(MTJ)素子の2つの強磁性層の磁化が平行のときスピン偏極電子の透過率は高く、反平行のとき透過率は低くなる効果である。磁化の相対角度に応じてMTJ素子の抵抗が変化することから、不揮発性磁気メモリの読み出しの原理となっている。

【問い合わせ先】

◆研究内容に関して

東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター
研究開発部門 准教授 永沼博

TEL:022-796-3419

◆その他の事項について

東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター
支援室長 高橋嘉典

TEL:022-796-3410

FAX:022-796-3432

E-mail:support-office@cies.tohoku.ac.jp