

平成27年3月31日

プログラム名： 無充電で長期間使用できる究極のエコIT機器の実現

PM名： 佐橋 政司

プロジェクト名： 電圧トルクMRAMプロジェクト

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 ( 成 果 )

平成26年度

研究開発課題名：

電圧効果ダイナミクス の 解明 と 高性能化

研究開発機関名：

千葉大学 大学院・融合科学研究科

研究開発責任者

山田 豊和

## 当該年度における計画と成果

### 1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

ナノ磁石へ電界をかけた際、磁気異方性の変化とともに原子・電子構造変化や化学反応が起こりうる。原子分解能を有する走査トンネル顕微鏡 (STM) を駆使することで、電界によるナノ磁石制御プロセスでの磁気・原子・電子・化学構造を原子スケールでその場観察し、ナノ磁石の電圧効果の原理解明を実施できる。磁性金属表面を測定対象とし、電圧トルク MRAM 実現に向けた原理解明と新材料探索を重点的に行う。

### 2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

#### 2-1 進捗状況

トンネル磁気抵抗素子を用いた次世代磁気メモリ開発において、Fe/MgO(001)界面は現状最も実用化に近い系であり、近年、爆発的に研究開発が進められてきている。この Fe/MgO 系の Fe 超薄膜に電界を印加することで Fe/MgO 界面での磁気異方性の制御が試みられている。そもそも、金属には伝導電子があるため電界は金属中には侵入しない。しかし数原子層レベルまで薄くすることで金属であっても電界を印加できる。しかし、この超薄膜化により新たな問題が生じた。鉄と固定磁石の向き (矢印) が平行であれば電流が流れ、反平行であれば電流は流れない。理想的に原子レベルで平坦な Fe/MgO 界面ができれば、磁気抵抗比 1000%以上が予測される。しかし現実には半分にも及ばない。原因として 2013 年 Fan 博士達が面白い報告をした。Fe 膜が MgO の酸素と結合し反強磁性 FeO パッチを形成、これが周りの Fe の磁化を固定し磁気抵抗比を下げるというのだ [Nature Nanotechnology, 8 (2013) pp.438]。さらに、電界による磁気異方性制御は、実は Fe でなく FeO パッチが電界応答し磁気異方性に影響を与えているという報告もある。

Fe/MgO 界面で見えられた数百%に及ぶ磁気抵抗比の発見以降、Fe/MgO 薄膜ジャンクションは主としてスパッタ製膜され研究がおこなわれてきた。2014 年現在になり、Fe/MgO を利用した電界による磁気異方性制御の研究が盛んになるにつれ、Fe/MgO 界面の不完全性がデバイス全体の特性を左右しかねない問題としてクローズアップされるようになり、原因の特定と制御が緊急の課題である。原子レベルで平坦な理想的な Fe/MgO 界面ができていると透過電子顕微鏡像から判断されてきたが、透過電子顕微鏡像はあくまで対称性の良い部分の情報を反映しているにすぎず、局所的な欠陥は見過ごされてきた。本研究で我々は、欠陥の無い原子レベルフラットな Fe/MgO(001)界面の作成を、超高真空 STM / STS で探った。これにより理論予測されるような 1000%を超える磁気抵抗比が発現する可能性がある。

#### 2-2 成果

Fe/MgO 界面の乱れの原因は、Fe(001)が活性のため、酸素と吸着し酸化鉄を形成することがある。一方で、MgO/Fe(001)-p(1x1)O 界面でも高い磁気抵抗比が観測されることが報告されている [PRB 80, 104437 (2009)]。原子レベルで平坦な界面を作成する重要な鍵の一つが鉄の活性を抑えることと考える。化学気相成長させた高純度の Fe(001)-whisker 単結晶を基板として使用した。

Fe-whisker を超高真空中で、Ar スパッタ ( 1 K V ) at 700 K for 12 hours.スパッタ後さらに 900K で五分間アニールした。全ての試料処理は超高真空準備槽で行い、その後、真空を破ることなく STM 装置に試料をセットし STM 観察した。表面には幅 100nm 以上の原子テラスを確認した。原子像は bcc-(001) p(1x1)配列をしめした。原子像から不純物物量は 1 %程度であった。

清浄化した Fe(001)-whisker 表面を超高真空中で酸化した。酸化条件として、酸素暴露量、基板温度、アニール温度がある。

【 1 】高い基板温度で ( 400-600K ) 酸素を導入し、その後 650-880K(5min.)アニールした。原子像観察より、1L の場合、Fe(001)フラット領域と 3D 島が確認された。2L-6L では、多くの表面に 3D 島が確認された。基板温度が高い条件では、表面の 50-80%が 3D 島で覆われた。原子レベル平坦な界面は作成できないことが分かった。

【 2 】低い基板温度で ( 320-340K ) 酸素を導入し、その後 850-900K(7min.)アニールした。STM 観察より表面に占める 3 D 島は 13-21%に減衰した。図に一例を示す。フラット領域は、原子像が示すように O-p(1x1)/Fe(001)を確認した。3 D 島上には[100][010]方向に 1 D チェインが確認された。1 D チェインの方向は一原子層毎に 9 0 度変化する。島は Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> と考えられる。

【 3 】アニールの効果を確認した。基板温度 300K で 2L-O 導入した。表面には不規則な原子配列 ( 原子凸凹 100-150pm ) を確認した。540K(5min.)アニールで基板 Fe(001)ステップが STM で見えにくくなった。Fe(001)表面が荒れ始めた。740K(5min.)で表面は規則化し始めるが、p(1x1)でない新たな超構造(約 2x20)を有する。3 D 島も僅かに(6%)発生する。これらの結果より、原子レベルで平坦な O-p(1x1)/Fe(001)界面を得るためには、低い基板温度で、2L 以上酸素を導入し、その後 850K アニールにより、再現よく、80-90%が O-p(1x1)/Fe(001)となった(10-20%の規則化 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-islands)。

これにより Fe(001)表面を不活性にする(insensitive)にできた。結果、この界面上に 0.9ML Mg を基板温度高め(700K)で吸着すると、Mg は層状に吸着し STM 原子像から Mg-p(1x1) / O-p(1x1)/Fe(001)を確認した。この表面をさらに酸化することで MgO 単原子膜が作成できる。また、bulk-Mg は hcp 構造(a=0.321nm, c=0.521nm)、bulk-Fe は bcc 構造(a=0.287nm)である。表面エネルギーは Fe 2550 [mJ/m<sup>2</sup>], Mg 790 [mJ/m<sup>2</sup>]である。圧倒的に表面エネルギーの違いから、Lattice mismatch は大きくても、Mg は Fe(001)上に基板温度であっても、layer-by-layer 成長する。基板温度 700K では 0.1-29ML まで層状成長することを確認した。

### 2-3 新たな課題など

原子レベルで平坦な Fe(001)表面を作成しても、それを僅かに酸化させ基板温度を上昇するだけで、数十原子層厚さのナノ島が発生、界面を大きく乱すことが判明した。基板温度、酸素暴露量、アニール温度を変え、ようやく平坦な界面作製条件を求めた。酸素単原子膜に Mg をのせた際に膜の平坦性が保持できるかが次に課題となる。

## 3 . アウトリーチ活動報告

特に無し。