

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 2 6 年 度

研究開発課題名：

電圧効果ダイナミクス解明と新材料の開発

研究開発機関名：

大阪大学 大学院・基礎工学研究科

研究開発責任者

鈴木義茂

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

1-1 当該期間の達成目標

本研究開発では、H26 に以下の目標を達成する。

1. 金属強磁性体/絶縁体界面を 3d 強磁性金属、3d 強磁性金属と貴金属および希土類金属との合金などについて形成する。
2. 金属強磁性体/絶縁体界面における電圧効果ダイナミクスをスピン波を用いて測定する方法を確立する。
3. 上記界面の電圧効果と、界面状態および電子状態との関係を放射光を用いて調べる方法を確立する。
4. Well defined な界面形成のために新規に分子線エピタキシャル装置を設計・発注する。

1-2 当該期間の研究実施内容

本研究開発課題では高度な分子線エピタキシー技術を用いて界面電子状態の制御された強磁性金属/絶縁体接合構造を作製する。H26 においては、以下の系を制御性よく作る。

- I. 理想に近い系として
MgO/Fe/Au エピタキシャル接合
- II. スピン軌道相互作用の大きな系として
MgO/Pt/FePt/Pd 接合
Fe/MgO/FeGd 接合

さらに、これらの物質についてスピン波の観測および X 線蛍光分光測定を行い電子状態や電圧効果に関する知見を得る。スピン波の観測では電界の磁気異方性への影響のみでなく反対称的交換相互作用への影響を調べる。X 線蛍光分光測定は SPring-8 のグループとの共同で Spring-8 にて行う。また、イオン液体に利用について検討する。

これらの物質から Well defined な界面を探索的に作製するために本課題では専用の分子線エピタキシャル成長装置を導入する。H26 はそのための設計と発注を行う。

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

研究開発は全般にとっても順調に推移し、予想以上の成果を上げることができた。

まず、産総研などの協力を得て MgO/Fe/Au エピタキシャル接合、MgO/Pt/FePt/Pd 接合、および Fe/MgO/FeGd 接合試料の作製を行った。特に MgO/Pt/FePt/Pd 接合においては接合界面を Pt にした試料と Fe にした試料の作り分けに成功するなど大きな成果を得た。

次いで、これらの系についてその電圧トルクダイナミクスの研究を行った。MgO/Fe/Au 系におけるスピン波の電圧トルクダイナミクスの研究からは電圧による磁気異方性の変化量が膜厚に反比例することを見出すとともに、磁気異方性のみでなくジャロシンスキー・守屋相互作用(DMI)も電圧で制御できることを世界で初めて見出した。

Spring-8 の鈴木基寛博士の全面的な指導・協力のもとに MgO/Pt/FePt/Pd 系の電圧効果の X 線蛍光分光による測定法の開発を行った。その結果、試料構造や蛍光検出法などの工夫により、非常に薄い Pt 膜からの蛍光信号を効率的に得ることに成功した。この結果、測定法を既にほぼ確立するに至ったのみでなく、電圧による Pt の電子状態の変化について予備的なデータを得ることに成功するという予定以上の成果を得ることができた。

イオン液体の利用について検討したが、軌道放射光にさらすと数秒で焦げてしまうという結果を得た。イオン液体の利用について更なる工夫が必要である。

Well defined な試料の作製のために新規の分子線エピタキシャル装置の設計・発注を行った。

2-2 成果

2-2-1 電圧効果ダイナミクス解明

(1) スピン波を用いた電圧効果の観測

本研究ではスピン波を用いて「電圧誘起磁気異方性および反対称的交換相互作用(ジャロシンスキー守谷相互作用 = DMI)の電圧変調」を目指している。具体的には分子線エピタキシー法を用いて MgO(001) 単結晶基板上に MgO(10 nm)/Cr(5 nm)/Au(50 nm)/Fe(2-23 nm)/MgO(10 nm)の単結晶多層膜を用意した。その後、微細加工により図 1 にあるようなスピン波素子を作成した。スピン波の諸特性はベクトルネットワークアナライザを用いて S パラメータ測定により評価した。電圧は直流電圧源により印可した(図 1)。

まず Fe 膜厚に対するスピン波の共鳴周波数シフトの依存性と信号雑音比依存を測定した。共鳴周波数シフト量から電圧誘起磁気異方性磁場を計算し、各 Fe 膜厚に対しプロットしたものが図 2 である。黒点は測定結果、赤線は Fe 膜厚に対する反比例フィッティング曲線である。ここから電圧誘起磁気異方性磁場は Fe 膜厚 7-20 nm の幅広い領域で Fe 膜厚に対して反比例に変化することがわかった。この結果は電圧効果が界面効果であること強く示唆している。

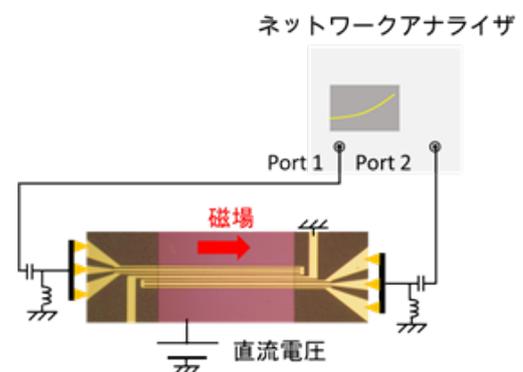


図 1: 実験セットアップとスピン波素子

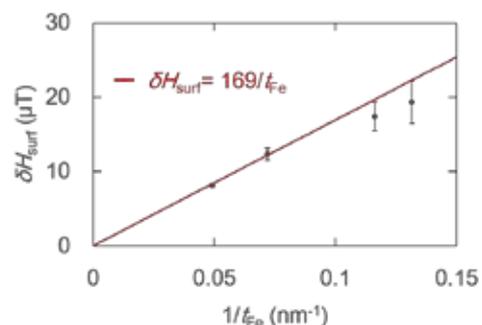


図 2: 界面磁気異方性磁場と Fe 膜厚の関係

一方で、上述の測定により Fe 膜厚を大きくすると測定の信号雑音比が向上することを見出した。図 3 はもっともよい信号雑音比が得られた Fe20 nm 膜における共鳴周波数シフトのスピ波伝搬方向依存性である。共鳴周波数シフトの伝搬方向による違いは DMI の電圧変調を示す。人工的に作ることのできる金属多層膜における DMI の電圧変調は本研究が世界初である。(Applied Physics Express, Volume 8, Number 6, 063004 (2015))

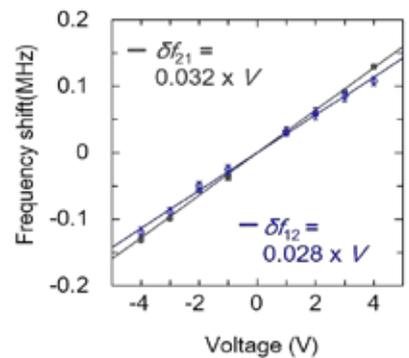


図 3: DMI の電圧変調

(2) 放射光分光による電圧トルクの機構解明

本研究では産総研の野崎グループの協力により分子線エピタキシー法を用いて FePt 原子制御膜を用意し、外部電圧を印加しながら放射光を用いた X 線磁気円二色性 (XMCD) 分光による評価を Spring-8 の鈴木基寛博士の指導・協力のもとに行った。実験で用いた FePt は Fe と Pt の単原子層を交互に積層した L10 構造を有する。FePt は大きな垂直磁気異方性及び電圧誘起磁気異方性変化を示すことで知られる。強磁性体金属における電圧誘起磁気異方性変化は薄い膜ほど大きく現れること、また FePt と電圧を印加する絶縁層との界面が Pt 層であるもの (Pt 終端 FePt と定義) は Fe 終端 FePt よりも大きな電圧効果を示すこと、以上 2 点から本研究では Pt 終端であり、Fe と Pt それぞれ 2 原子層ずつから構成される超薄膜の L1₀-FePt を用意した。この膜に電圧を印加しつつ、Pt のエネルギー吸収端における XMCD 分光を行った。測定結果から、電圧を印加すると XAS 及び XMCD が変化することがわかった。今後はこの物理機構を解明する必要がある。

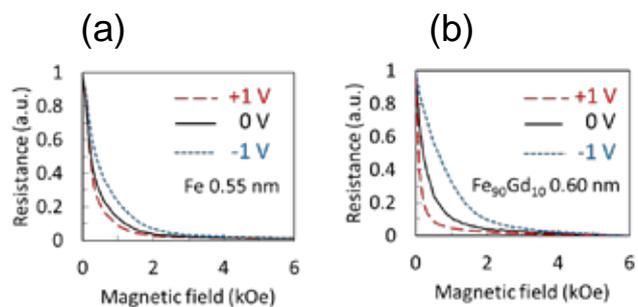


図 4 (a)(b) 電界を印加することにより磁化曲線が変化する。

2-2-2 新材料の開発

(1) FeGd の電圧効果

本研究では希土類金属に対する電圧効果の評価を試みた。まず分子線エピタキシー (MBE) 法により Fe₉₀Gd₁₀|MgO|Fe 構造を持つ多薄膜を作製した。Fe₉₀Gd₁₀ は Fe と Gd の共蒸着により製膜した。次に微細加工を行い磁気トンネル接合 (MTJ) 素子を作製した。MTJ 素子の磁気抵抗効果測定から FeGd 合金の電界誘起磁気異

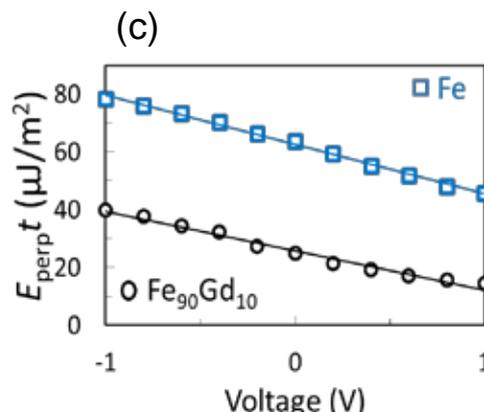


図 4 (c) Fe と Fe₉₀Gd₁₀ のエネルギーの印加電圧依存性

方性変化を評価した。測定は全て室温で行った。

図 4(a), (b) は Fe 0.55 nm と Fe₉₀Gd₁₀ 0.60 nm の磁気抵抗効果測定の結果である。これより、異方性磁場の変調が Fe に比べて Fe₉₀Gd₁₀ で 2 倍程度大きくなることがわかった。図 4(c) は Fe, Fe₉₀Gd₁₀ それぞれのエネルギー変化を計算したものであり、FeGd 合金 (19 fJ/Vm) においても Fe 同等の異方性エネルギー変化 (23 fJ/Vm) があることがわかる。今後は他の Tb や Nd 等の希土類金属合金も検討し、電界誘起磁気異方性変化に対する軌道角運動量の寄与を調べる予定である。

(2) 高電界印加を可能とするイオンジェルの開発

電圧効果の起源解明を行うには、大きな電圧効果を発現した状態でその物性を評価する必要がある。そこで本項目では大きな電圧効果を得るため、高電界印加を可能とするイオンジェルの開発を行った。物性評価は X 線を用いて行うのが効果的であるため、イオンジェルの X 線耐性の評価も行った。

VDF-HEP ポリマーにイオン液体 ([EMIM]⁺[TFSI]⁻) を含ませたイオンジェルをスピコート法により Si/SiO₂ 基板上に作成した。イオンジェルでの電界効果自体は既に知られた現象であるが [1]、本研究では X 線耐性が期待できる C=O 結合を含まないポリマーを用いた点に新規性がある。このイオンジェルを用いて SPring-8 の BL25SU にて X 線照射試験を行った。10 μm のビームサイズの X 線を照射し、その後、イオンジェルにおけるダメージ有無を光学顕微鏡で観察した。図 5 がその結果である。わずか 1 秒以下の照射時間においてもイオンジェルが焦げており、このイオンジェルは X 線耐性が乏しいことがわかった。

イオンジェルが X 線で変質した理由には熱の影響が大きいと考えられるため、今後は低温測定等の対策を計画する必要がある。

[1] K. Shimamura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 122402. (2012)

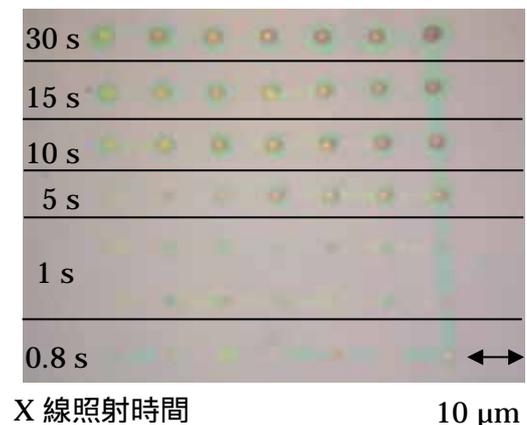


図 5 X 線照射後の光学写真

3. アウトリーチ活動報告 なし