

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：電圧駆動 MRAM 開発タスクフォース

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成 2 9 年 度

研究開発課題名：

電圧効果の物理機構解明と高効率化のための指針確立

研究開発機関名：

公益財団法人 高輝度光科学研究センター

研究開発責任者

鈴木 基寛

I 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

前年度までに開発した高精度 X 線分光測定装置を活用し、大きなスピン軌道相互作用をもつ重金属元素による磁気異方性増大効果や DMI 相互作用に着目し、これまで取り組んできた Pt に加え、Pt 以外の重元素を含む試料についても X 線分光研究を展開する。3d 磁性元素である Fe, Co 系についても、より高精度な磁気分光測定によって電圧効果による XMCD 信号の微弱な変化の検出を目標とする。また、集光 X 線ビームを用いた微小試料の X 線分光測定の開発や温度可変環境での計測を実現する。

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

(1) Ir における電圧磁気効果の X 線磁気分光解析

大きな電圧磁気異方性効果を示す材料として産総研グループから提案された、Fe/Ir/MgO 多層膜試料について、Ir の XMCD 測定および XMCD スペクトルの電圧変化を測定した。Ir の磁気モーメントとしておよそ $1 \mu_B$ の値が得られ、Ir が磁性に寄与していることを明らかにした。また、試料作製時のアニール処理によって FeIr 合金に近い状態となっていることが示唆され、透過電子顕微鏡での観察や第一原理計算の結果を補強する有用なデータを提供することができた。一方で、電圧印加による Ir の XMCD スペクトルの変化は実験精度内で観測されなかった。

(2) Co における電圧磁気効果の X 線磁気分光による検出

BL25SU ビームラインでは前年度までの開発によって、軟 X 線 MCD スペクトル測定の統計精度が格段に向上し、XMCD 信号の 0.2% の変化まで検出可能となった。この測定系を Fe/Co/MgO 接合試料に適用し、電圧印加による Co の XMCD 信号を初めて検出することに成功した。Co の磁気モーメントが電圧印加によって変調されることを実証し、磁気異方性変化が軌道磁気モーメントの電圧変化が起源であることを示した。

(3) 集光 X 線ビームによる X 線磁気分光測定

BL39XU ビームラインにおいて、集光サイズ 1 ミクロンの硬 X 線ビームを用いて、直径 80 ミクロンに加工された Fe/Pt/MgO 接合素子の XMCD および元素選択的磁化曲線を電圧印加条件下で取得し、従来の非集光ビームよりもバックグラウンドの小さい、良好な S/N 比のデータを得ることができた。現在の装置を用いて集光ビームサイズは 100 nm まで縮小することが可能であるため、より小さい素子についても測定が可能と考えられる。

(4) 温度可変環境下での FePt 試料の硬 X 線 MCD 測定

BL39XU ビームラインにおいて、温度可変環境下での XMCD 測定装置を構築した。5 K から 500 K の温度領域で Pt や Ir といった 5d 元素の XMCD および EXAFS 測定を可能とした。Fe/Pt/MgO 接合試料について、5 K, 300 K, 500 K での XMCD および元素選択的磁化曲線を測定し、磁気モーメントの温度依存性を解析するに耐えうる精度のデータを取得した。

2-2 成果

(1) Ir における電圧磁気効果の X 線磁気分光解析

大きな電圧磁気異方性効果を示す材料として産総研グループから提案された、Fe/Ir/MgO 多層膜試料について、Ir の XMCD 測定および XMCD スペクトルの電圧変化を測定した [1]。図 1 に、Ir 膜厚の異なる二種類の試料 Cr(30 nm)/Fe(1.0 nm)/Ir(t_{Ir})/MgO(2.5 nm)/ITO cap(30 nm)、 $t_{\text{Ir}} = 0.05$ nm、0.15 nm に対する Ir L 吸収端での XMCD スペクトルを示す。どちらの試料についても明瞭な XMCD 信号が観測された。L₃、L₂ 吸収端でのスペクトルの符号から、Ir の磁気モーメントは Fe の磁気モーメントと平行であることがわかった。表 1 に、磁気光学総和則によって得られた Ir の軌道磁気モーメント m_L および有効スピン磁気モーメント $m_S - 7m_T$ を示す。比較のため、バルクの FeIr 希釈合金および Fe/Ir 多層膜の文献値を併せて示す。有効スピン磁気モーメントの大きさ、および軌道磁気モーメントの符号に着目すると、 $t_{\text{Ir}} = 0.05$ nm、0.15 nm の試料ともに Fe/Ir 多層膜中よりも FeIr 希釈合金に近い電子状態・磁気モーメントの状態を有するといえる。 $t_{\text{Ir}} = 0.05$ nm の試料では有効スピン磁気モーメントは FeIr 希釈合金とよく一致している。また負の値の軌道磁気モーメントを示している。よって、 $t_{\text{Ir}} = 0.05$ nm の試料は $t_{\text{Ir}} = 0.15$ nm の試料よりもより希釈合金に近い状態であると推察される。以上から、大きな電圧磁気異方性効果を示す新材料である Fe/Ir/MgO 系中の Ir は、多層膜界面よりも希釈合金に近い電子状態を有し、アニール処理により膜内で分散して存在することが示唆された。この結果は、STEM-ESD 観察や第一原理計算の結果を支持するものである。同試料における Ir の電圧印加条件での XMCD 変化の測定を試みたが、実験誤差内で有意な差は観測されなかった。FePt 系とは異なるメカニズムが存在する可能性があり、今後のさらなる検証が必要である。

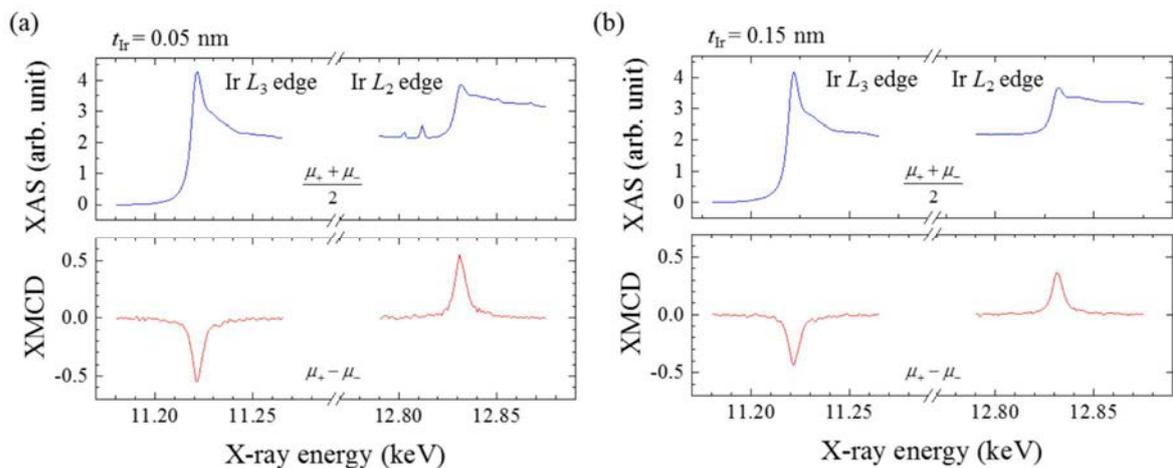


図 1 : Cr/Fe/Ir/MgO/ITO cap 試料の Ir L 吸収端での XAS および XMCD スペクトル。(a) $t_{\text{Ir}} = 0.05$ nm、(b) 0.15 nm に対する結果 [1]。

	Fe/Ir/MgO ($t_{Ir} = 0.05$ nm)	Fe/Ir/MgO ($t_{Ir} = 0.15$ nm)	Fe ₉₇ Ir ₃ 希釈合 金	Fe(1nm)/Ir(0.5nm) 多層膜
m_L (μ_B/atom)	-0.003	0.028	-0.064	0.016
$m_S - 7m_T$ (μ_B/atom)	1.01	0.72	1.00	0.17

表 1: Cr/Fe/Ir/MgO/ITO 試料の Ir の軌道磁気モーメント m_L と有効スピン磁気モーメント $m_S - 7m_T$.

[1] T. Nozaki, A. Koziol-Rachwał, M. Tsujikawa, Y. Shiota, X. Xu, T. Ohkubo, T. Tsukahara, S. Miwa, M. Suzuki, S. Tamaru, H. Kubota, A. Fukushima, K. Hono, M. Shirai, Y. Suzuki and S. Yuasa, NPG Asia Materials 9, e451 (2017).

(2) Co における電圧磁気効果の X 線磁気分光による検出

前年度までに高精度な軟 X 線 MCD 測定の開発を進め、XMCD 信号の 0.2% の微小な変化を検出することを可能とした。この手法を用いて Fe(0.4nm)/Co(0.14nm)/MgO(2nm) 接合試料について Co および Fe の L 吸収端での軟 X 線 MCD 測定を行った [2]。図 2 (a), (b) に示すように、正負の印加電圧 ± 3.0 V (± 0.20 V/nm の電界に相当) に

対して、Co の XMCD 信号強度の有意な変化が観測された。XMCD の変化は $\pm 2\%$ 以下とわずかであったが、測定誤差以上の有意な変化を捉えることができた。一方で、Fe の XMCD の電圧変化は実験誤差以下であり観測されなかった。磁気光学総和則による解析から Co の軌道磁気モーメントの電圧による変化量を、電圧を印加しない場合の軌道磁気モーメント $0.265 \mu_B$ に対して $0.017 \mu_B$ と見積もった。この結果に Bruno モデルを適用した場合の磁気異方性エネルギー変化は 0.037 mJ/m^2 であり、強磁性共鳴測定から見積もった磁気異方性エネルギーの変化 0.033 mJ/m^2 と非常によく一致した。

一方で、有効スピン磁気モーメントの電圧変化は軌道磁気モーメントの変化よりも小さかった。以上から、Co/MgO 界面での電圧磁気異方性効果の主要な起源は軌道磁気モーメントの電圧変調によるものであり、広く知られている Bruno モデルが電圧による磁気異方性エネルギー変化についても適用できることを示した。一方で、われわれは FePt/MgO 接合において Pt の 5d 軌道の磁気双極子項の電圧変調を観測しており、3d 遷移金属とよりスピン軌道相互作用の大きな 5d 貴金属では異なる電圧磁気異方性効果のメカニズムが存在することを明らかにした。

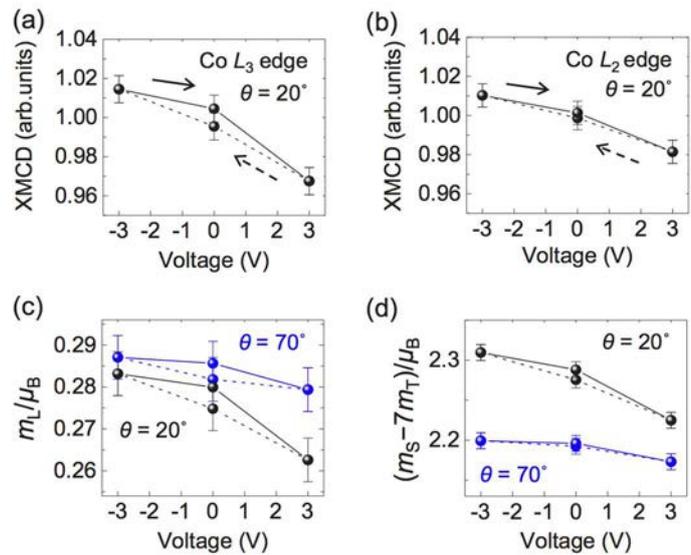


図 2 : (a) Co L3 および (b) L2 吸収端での XMCD 信号の電圧変化。(c) Co の軌道磁気モーメントおよび (d) 有効スピン磁気モーメントの電圧依存性。面直磁場 ($\theta = 70^\circ$) と面内磁場 ($\theta = 20^\circ$) 配置での結果をそれぞれ示している [2]。

[2] T. Kawabe, K. Yoshikawa, M. Tsujikawa, T. Tsukahara, K. Nawaoka, Y. Kotani, K. Toyoki, M. Goto, M. Suzuki, T. Nakamura, M. Shirai, Y. Suzuki, and S. Miwa, Phys. Rev. B 96, 220412 (2017).

2-3 新たな課題など

新たな課題には該当しないかもしれないが、本研究開発を進める上で、理論グループとの共同研究によって第一原理計算による実験結果の検証が行え、電圧効果のメカニズム理解を深化できたことは非常に有用であった。

3. アウトリーチ活動報告

平成 29 年度に、研究開発として行ったアウトリーチ活動はない。