

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 29 年度

研究開発課題名：

電圧効果の物理機構解明と高率化のための指針確立

研究開発機関名：

国立大学法人大阪大学 大学院基礎工学研究科

研究開発責任者

鈴木 義茂

# 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

合金系や界面に重元素を挿入した系の組成・構造・電子状態と電圧効果の相関を調べることにより電子状態と電圧効果の関係を明確化する。電子状態の評価のためには SPring-8 における XAS, XMCD 測定を用いる。

これまでに Spring-8 などにおける実験と理論計算から電圧異方性変化には軌道角運動量増加による機構と磁気双極子の制御による機構があることを明らかにし、これらの寄与が相乗的に働けばこれまでの 10 倍程度の電圧効果が得られるとの指針を得た。そこで、今年度はこの知見をもとに実際に原子配列の制御された界面系や合金系を作製し大きな電圧効果の出る原理の実証を行う。

DMI の電圧による変調を実用レベルにまで増大し、DMI による双方向磁化反転の原理を実証する。

Fe/Ir/MgO 系など合金化・規則化がある新しい系について電圧による電子状態の変化を SPring-8 を用いた測定により解明し、材料設計による電圧効果の制御の指針を確立する。

これまでに SPring-8 などにおける実験と理論計算から得た知見をもとに実際に界面系や合金系を作製し、これまでの 10 倍に達する大きな電圧効果実現を可能にする原理の実証を行う。DMI の電圧による変調を実用レベルにまで増大し、DMI による双方向磁化反転の原理を実証する。

## 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. 産総研グループが見出した大きな磁気異方性及び磁気異方性変化を示す FeIr/MgO 系に注力し、磁気モーメント及び電圧磁気異方性変化を評価した。結果として、FeIr/MgO 膜における磁気異方性(変化)は Fe でなく Ir の寄与が大きいことを見出した。また、Fe/Ir/MgO 系において前年度に得た知見である化学秩序制御により磁気異方性変化が大きくなることを示唆する結果を得た。
2. Fe/Co/Pd/MgO 系に注力し、磁気異方性及び DMI の電圧変調を精査した。結果として世界最高水準の 67 fJ/Vm もの電圧誘起 DMI 変化を得た。
3.  $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x|\text{Pd}| \text{MgO}$  系における合金化・規則化がある系について電圧誘起磁気異方性変調・DMI 変調を実験的に調べた。その結果、 $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成変化に対して Co の組成増加に伴い電圧誘起磁気異方性変調・DMI 変調が増大することが分かった。特に、Co-rich 組成において約 250 fJ/Vm の電圧誘起磁気異方性変化を達成した。
4.  $\text{W}|\text{CoFeB}| \text{MgO}$  系の磁化反転を面内磁場下において行なった。その結果、面内磁場の方向に依存して異なる磁化反転過程を得ることに成功した。

以上、研究計画に沿って研究が行われ個々の目標が達成された。

### 2-2 成果

1. 産総研グループが見出した大きな磁気異方性及び磁気異方性変化を示す FeIr/MgO 系に注力し、磁気円二色性分光を用いて磁気モーメントを評価した。具体的には Cr/Fe(1.0 nm)/Ir(0, 0.05, 0.15 nm)/MgO 膜における Fe 及び Ir の磁気モーメントを X 線磁気円二色性分光で評価した。Ir 挿入膜厚 0, 0.05 nm, 0.15 nm における系の界面垂直磁気異方性エネルギーはそれぞれ 2.1, 3.8, 2.3 mJ/m<sup>2</sup> である。図 1(a)は Fe の「軌道磁気モーメント÷有効スピン磁気モーメント ( $m_L/m_S - 7m_T$ )」

の Ir 挿入膜厚依存性である。Ir 挿入により Fe の  $m_L$  が増大するが、垂直磁化と面内磁化の差で定義される  $m_L$  の異方性は増大しないことがわかった。従って、FeIr/MgO 系の垂直磁気異方性エネルギーの要因が Fe ではないと考えられる。図 2(b) は Ir の有効スピン磁気モーメント ( $m_s - 7m_T$ ) の測定結果である。なお、垂直磁化と面内磁化の差が磁気双極子  $T_z$  項 ( $m_T$ ) に相当する。従って Ir 0.05 nm では  $T_z$  項がほぼゼロであり、Ir 0.15 nm では正の  $T_z$  項があることがわかる。正の  $T_z$  項は垂直磁気異方性を抑制する方向にはたらくため、 $T_z$  項が Ir 0.15 nm 膜が Ir 0.05 nm 膜よりも垂直磁気異方性小さい要因と考えられる。図 1(c) は Ir の軌道磁気モーメント ( $m_L$ ) の測定結果である。特に Ir 0.05 nm では明瞭な  $m_L$  異方性があること、そして面内磁化の  $m_L$  がより大きいことがわかった。この結果は Ir の多数スピンバンドの軌道磁気モーメントが垂直磁気異方性を生むことを示唆する結果である。このように大きな垂直磁気異方性及び電圧効果 320 fJ/Vm を示す FeIr/MgO 系では、Fe/Pt/MgO 系を異なり磁気双極子  $T_z$  項の寄与が小さいため軌道磁気モーメントとの競合が小さくなった結果、大きな電圧効果が出ていると考えられる。

Fe/Ir/MgO 系の電圧磁気異方性変化のアニール依存特性を測ると、アニールにより電圧磁気異方性変化が 6 倍になることがわかった。これはアニールにより化学秩序が変更されて磁気異方性変化が増大したことを示唆する結果である。

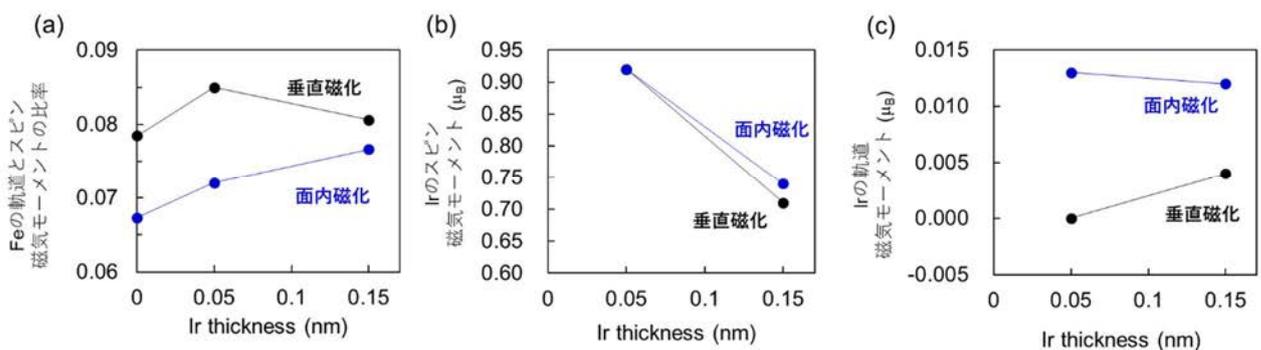


図 1(a) FeIr/MgO 膜における Fe の磁気モーメントの測定結果。縦軸は「軌道磁気モーメント÷有効スピン磁気モーメント」を示す。(b) FeIr/MgO 膜における Ir の有効スピン磁気モーメントの測定結果。(c) FeIr/MgO 膜における Ir の軌道磁気モーメントの測定結果。

2. 電圧 DMI 変化の検討として、Fe/Co(0.52 nm)/Pd/MgO 薄膜における電圧効果を検討した。図 2(a) はスピン波素子の光学顕微鏡写真である。図 2(b) は様々な Pd 挿入膜厚における電圧 DMI 変化のポストアニール温度依存特性である。結果として Fe/Co(0.52 nm)/MgO のポストアニールを施さない膜(as-deposited)において最大の DMI 変化 65 fJ/Vm を示すことがわかった。これは昨年度報告した Fe/Pt/MgO 系における 35 fJ/Vm の 2 倍近い値であり、磁気トンネル接合を用いれば  $\pm 1$  V/nm で 3 mJ/m<sup>2</sup> 相当の DMI が変調可能であることを意味する。

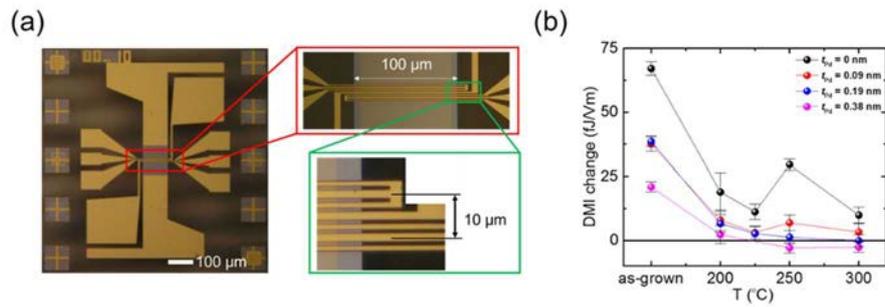


図 2(a) スピンは素子の光学顕微鏡写真。Fe/Co(0.52 nm)/Pd/MgO 多層膜における電圧 DMI 変化の測定結果。未アニール膜(as-grown)でPdを挿入しないFe/Co(0.52 nm)/MgO膜で最大値 67 fJ/Vmを示した。

3. 電圧効果が遷移金属強磁性の組成によってどのように変化するかを調べるために、 $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x|\text{Pd}|\text{MgO}$  系における合金化・規則化がある系について電圧誘起磁気異方性変調 (VCMA) ・ DMI 変調 (VCDMI) を実験的に調べた。図 3(a)に膜構造を示す。単結晶成長させた Fe (20nm) 上に Fe と Co を交互に原子層レベルで成長させ、最後に Pd を一原子層成膜した。ウェッジ状に示した部分は成膜量をウェッジシャッターにて調整した組成のウェッジを表している。異なる FeCo 組成の場所において電圧効果 (VCMA および VCDMI) をスピン波伝搬測定にて評価した。図 3(b) と 3(c)に Co 組成に対する VCMA と VCDMI の測定結果を示す。Co の組成増加に伴い、VCMA も VCDMI も増加することが分かった。特に、Co-rich の組成において、VCMA = 250 fJ/Vm および VCDMI = 70 fJ/Vm を得ることに成功した。

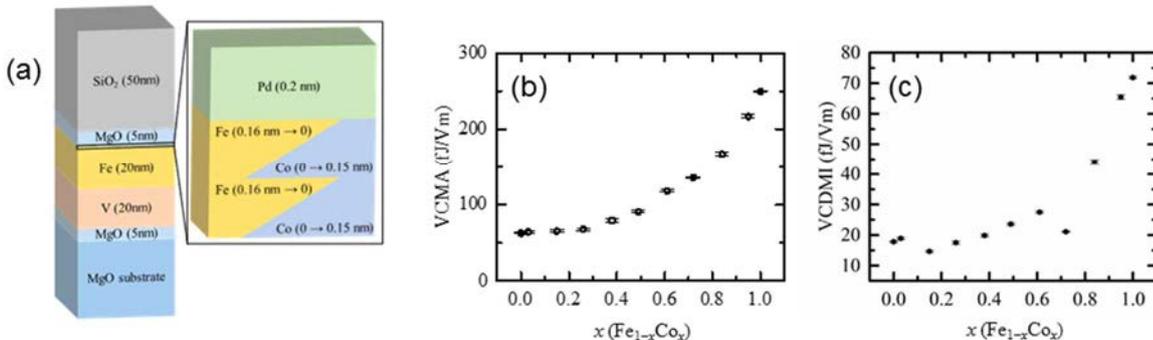


図 3(a)測定に用いた試料の膜構造の概略図。Fe と Co がウェッジ膜の様に描かれているが、実際は原子密度のグラデーションが形成されている。(b), (c) スピン波伝搬測定によって測定された VCMA(b) と VCDMI(c)の組成依存性。

4. DMI を用いた双方向磁化反転の実現のために、DMI の強い系で知られる  $\text{W}|\text{CoFeB}|\text{MgO}$  系の磁化反転を面内磁場下において行なった。強い DMI が存在する系において、三角形などの非対称な形状をもつ試料を面内磁場下で垂直磁場掃引すると、非対称な磁化曲線が得られる。図 4(a)に磁化曲線を測定するための測定回路を示す。十字は異常ホール効果を測定するホールバーを示し、その中心に強磁性試料を配置する。今回の実験では、非対称試料 (三角形) を作成した。

図 4(b)に面内磁場下において三角形試料のホール電圧の垂直磁場依存性を測定した結果を示す。黒・赤・青はそれぞれ磁場 0, -260 Oe, +240 Oe 印加した時の結果を表す。磁場が 0 の場合の結果（黒）では磁化反転終了時に小さなステップがみられる。面内磁場を印加した場合、正の面内磁場（青）の場合は正の垂直磁場（図 4(b)の右側）においてステップが見られ、負の面内磁場（赤）の場合は負の垂直磁場（図 4(b)の左側）においてステップが大きく表れた。このステップは三角形試料のピンングサイトに磁壁がピンングされたことに起因する。このことから、面内の磁場方向に依存して異なる磁化反転過程を得ることに成功した。この結果はピンングサイトを有する三角形磁性体の数値計算結果とも定性的に一致する（図 4(c)）。

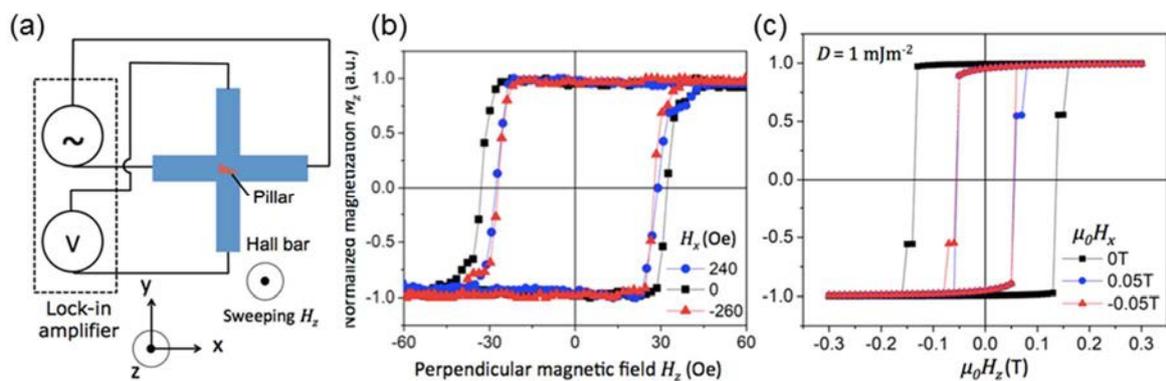


図 4(a)ホール測定の測定回路。(b) 異常ホール電圧によって測定した三角形試料の面内磁場下における磁化曲線。(c)数値計算を用いた DMI を有する三角形磁性体の磁化反転結果。

### 2-3 新たな課題など

なし

### 3. アウトリーチ活動報告

なし