

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： 新規 MRAM 開発のための計算科学支援チーム

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：

スピントロニクス材料設計

研究開発機関名：

東北大学 電気通信研究所

研究開発責任者

白井 正文

# 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

本課題は、電圧駆動磁化反転（電圧トルク）MRAM の実現に向けて、大きな磁気異方性電圧効果を示す磁気トンネル接合材料を理論設計することを目的とする。具体的には、3d遷移金属と5d遷移金属からなる強磁性合金・多層膜と高誘電率酸化物からなる系に着目し、重元素の大きなスピン軌道相互作用を利用することで、磁気異方性電圧変調を増大させる。

平成29年度は、重元素を含む強磁性合金・多層膜／高誘電率絶縁体接合界面における磁気異方性電界変調率が1,000 fJ/Vmを超える系を理論設計することを目標とした。

## 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) 電圧トルク MRAM 材料の理論設計

##### 1-1) 重元素を含む強磁性合金の探索

平成28年度に引き続き、重元素を含む強磁性合金を対象として、大きな磁気異方性電圧効果を示す材料を探索した。平成28年度に実施したMgO/Fe界面に単原子層挿入した系を対象とした研究により、磁気異方性電圧変調の増大が理論予測されたIr原子に着目した。平成29年度は、FeとIrが合金化した場合の磁気異方性電圧効果を定量的に評価した結果、MgO/Fe-Ir合金における垂直磁気異方性ならびにその電圧変調が、MgO/Fe界面に比べて増大することを明らかにした。また、大きな磁気異方性電圧効果と高トンネル磁気抵抗比の両立を目指して、高スピン偏極Co基ホイスラー合金にIr原子を添加することによるスピン偏極率ならびに磁気異方性電圧効果に及ぼす影響を理論的に評価した。

##### 1-2) 高誘電率絶縁体を考慮した評価

平成29年度は、強磁性金属表面・界面における電界による3d電子数変化を増大させる強磁性金属／絶縁体界面を実現する方策として、高誘電率を示す酸化物に着目して、電圧印加による界面電荷の変調量の増大を目指した。具体的には、ゲート絶縁体に用いられる高誘電率材料HfO<sub>2</sub>を候補として取り上げ、HfO<sub>2</sub>/Co界面における磁気異方性電圧効果を定量的に評価した。

### 2-2 成果

#### 1) 電圧トルク MRAM 材料の理論設計

##### 1-1) 重元素を含む強磁性合金の探索

平成28年度に実施した研究により、MgO/Fe界面にIr単原子層を挿入した系において、磁気異方性電界変調率が300 fJ/Vm近い値に増大することを理論計算に基づいて予測した。しかしながら、実際に作

製された試料においては Ir 原子が拡散し、Fe と Ir が合金化していることが実験的に確認された。そこで、平成 29 年度は、Fe と Ir の合金化が磁気異方性およびその電圧効果に及ぼす影響を評価した。まず、Ir 原子を 6.25% 添加した Fe-Ir 合金と MgO を積層した MgO/Fe-Ir/MgO 膜において磁気異方性を評価した結果、Ir 添加による垂直磁気異方性エネルギーの増大を確認した。また、各 Fe 原子層に添加された Ir 原子の磁気異方性エネルギーへの寄与を調べると、界面第 1 層ではなく界面から 2 層目および 3 層目に添加された Ir 原子が垂直磁気異方性の増大に寄与していることが明らかになった。次に、Ir 原子を 6.25% 添加した Fe-Ir 合金からなる MgO/Fe-Ir/Cu 膜について磁気異方性の電圧変調を評価したところ、図 1 (a) に示すように、Ir 添加により磁気異方性電界変調率が 30% 程度増大する結果が得られた。このとき、界面第 1 層および 2 層目の Ir 原子は、界面第 1 層の Fe 原子に比べて 1 桁程度大きな磁気異方性電界変調を示す (図 1 (b))。この Ir 添加による垂直磁気異方性およびその電圧効果の増大は実験結果と対応している。

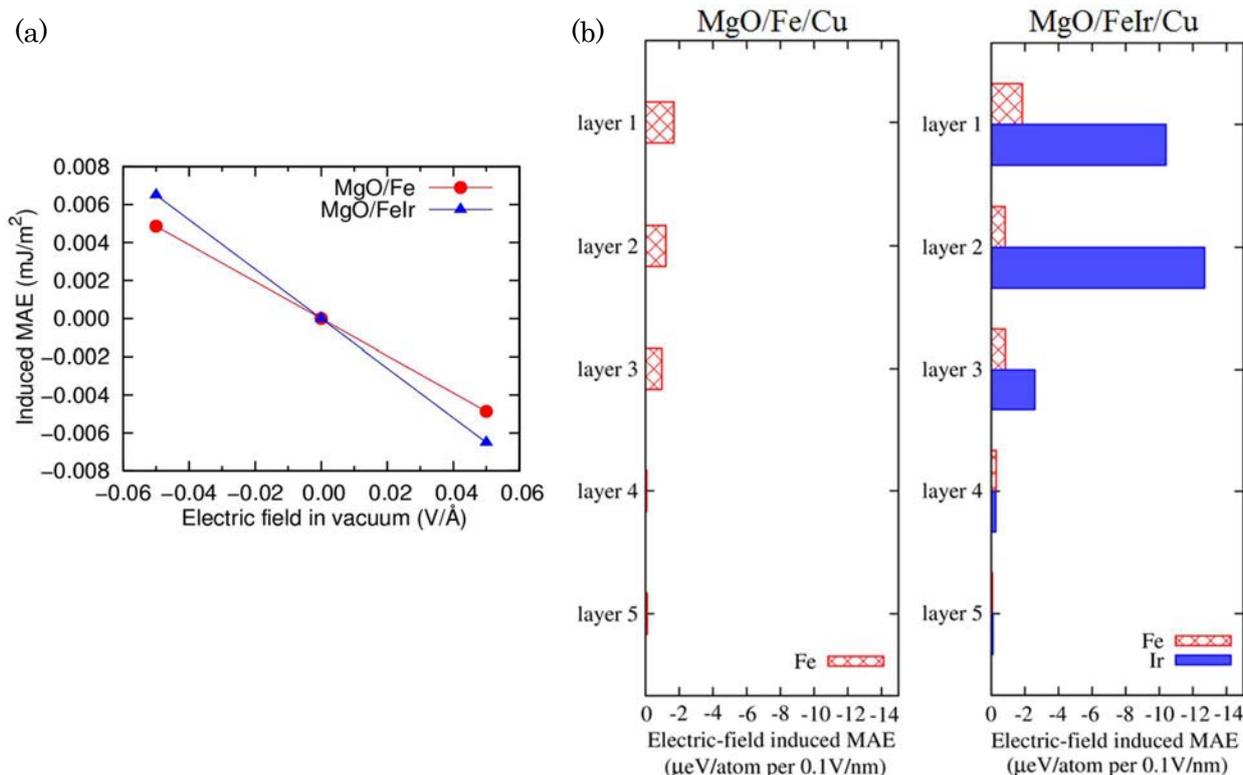


図 1 (a) MgO/Fe/Cu および MgO/Fe-Ir/Cu 膜における磁気異方性エネルギーの外部電界依存性。  
(b) 各原子層における Fe および Ir 原子当たりの磁気異方性エネルギーの電界変調量。

上述のように、Fe への Ir 添加は垂直磁気異方性とその電圧変調の増大に有効であるが、一方で Ir 添加によるトンネル磁気抵抗比の低下が問題となる。そこで、大きな磁気異方性電圧効果と高トンネル磁気抵抗比の両立を目指して、高スピン偏極 Co 基ホイスラー合金に Ir 原子を添加することによるスピン偏極率ならびに磁気異方性電圧効果に及ぼす影響を理論的に評価した。具体的には、ホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{MnSi}$  および  $\text{Co}_2\text{MnGa}$  に含まれる Co 原子の半数を Ir 原子で置換した  $\text{CoIrMnSi}$  および  $\text{CoIrMnGa}$  合金を対象として、電子構造と磁気異方性を計算した。その結果、 $\text{CoIrMnSi}$  と  $\text{CoIrMnGa}$  のスピン偏極率は各々

100%および75%と得られ、CoIrMnSiでは高スピン偏極率が保持されているのに対して、CoIrMnGaではスピン偏極率の低下が見られた。一方、磁気異方性電界変調率については、Ir原子を含まないMgO/Co<sub>2</sub>MnSi/Cu膜とMgO/Co<sub>2</sub>MnGa/Cu膜に対して各々-2.3 fJ/Vmおよび0.4 fJ/Vmと小さな値しか得られないのに対して、Ir添加したMgO/CoIrMnSi/Cu膜とMgO/CoIrMnGa/Cu膜に対しては21 fJ/Vmおよび108 fJ/Vmと桁違いに増大した。ここでCoIrMnGaの方がCoIrMnSiに比べ大きな磁気異方性電圧効果を示している理由は、CoIrMnSiより価電子数の1個少ないCoIrMnGaでは、多数スピンバンドのフェルミ準位付近にIr 5d軌道成分がより多く存在しているためである。

## 1-2) 高誘電率絶縁体を考慮した評価

平成29年度は、ゲート絶縁体に用いられる高誘電率材料HfO<sub>2</sub>を候補として取り上げ、HfO<sub>2</sub>/Co界面における磁気異方性電圧効果を定量的に評価した。まず、計算精度の確認を兼ねて、単斜晶HfO<sub>2</sub>バルクにおける比誘電率を計算したところ、約20という値が得られ実験値をよく再現した。次に、単斜晶HfO<sub>2</sub>(001)面と面心立方晶Co(111)面を接合した膜の計算を実行した。外部電界に対する界面構造およびCo膜厚の変化を調べたところ、外部電界10<sup>9</sup> V/mを印加すると、HfO<sub>2</sub>/Co界面におけるCo-O層間距離が4×10<sup>-4</sup> nm減少し、Co膜厚が6×10<sup>-4</sup> nm増加した。この電界印加に伴う構造変化を考慮して、磁気異方性の電界変調率の求めたところ、真空中の電界に対して-20 fJ/Vmという値が得られた。この結果は、HfO<sub>2</sub>の比誘電率を考慮すると、絶縁体中の電界に対する磁気異方性電界変調率は412 fJ/Vmに相当しており、これはMgO/Fe界面での値114 fJ/Vmに比べ4倍程度大きな値となっている。したがって、HfO<sub>2</sub>/Co界面ではHfO<sub>2</sub>の高誘電率により、MgO/Fe界面に比べ大きな磁気異方性電界変調率が得られることが期待できる。

## 2-3 新たな課題など

電圧トルクMARMを実現するためには、メモリセルの磁気異方性電界変調のバラつきを制御する必要がある。そのため、接合界面近傍における格子欠陥が磁気異方性電界変調に及ぼす影響の解明が不可欠である。また、磁性薄膜の格子歪による磁気異方性電界変調の増大が報告されているが、導入された歪と磁気異方性電界変調の関係は明らかではなく、磁気異方性電界変調が増大する起源の解明が残された課題である。

## 3. アウトリーチ活動報告

該当なし