

界面制御による磁壁移動型デバイスの高性能化

Improvement of magnetic domain wall motion devices by controlling interfacial structure



小峰 啓史 (Takashi KOMINE, Dr. Eng.)

茨城大学 工学部付属グリーンデバイス教育研究センター
副センター長

(Vice Director, Green Device Education and Research Center,
Ibaraki University)

応用物理学会 日本物理学会 日本磁気学会 日本熱電学会
American Physical Society IEEE

受賞: The International Thermoelectric Society (ITS) outstanding
research paper award (2015) 第58回電気科学技術奨励賞 (2010)

日本磁気学会学術奨励賞(内山賞) (2008)

研究専門分野: 磁気工学 物性物理学

あらまし 近年の情報通信量の劇的な増加に伴い、大量な情報を高速処理するための大容量・高速・低電力な高機能デバイスの開発は急務の課題である。近年、スピンに関係する新現象の発見をきっかけとして、スピンの自由度を利用した新機能デバイスが注目されている。本研究では、磁壁移動型メモリの高速動作を実現するため、界面電界を誘起するための磁性/非磁性絶縁物界面構造に着目して、磁気特性および電気伝導特性がスピン依存伝導現象に及ぼす影響を検討した。フェリ磁性体 TbFeCo(TFC)を磁性層として、絶縁層/磁性層/絶縁層からなる積層構造試料を形成し、高磁場を印加した場合の異常ホール抵抗およびその膜厚、温度依存性を実験的に調べた。

TFC 膜厚 50nm では、異常ホール抵抗の符号はいずれの温度においても負であり、希土類(RE)-rich な異常ホール抵抗の符号と一致した。一方、20nm 厚、及び、10nm 厚の TFC 薄膜の異常ホール抵抗では、高磁場側で異常ホール抵抗の符号が温度上昇とともに反転する特異な現象を見出し、通常見られるヒステリシスとは大きく異なる形状のヒステリシスを得た。また、得られたヒステリシスからは保磁力が大きな相の存在が示唆された。5nm 厚の TFC 試料では異常ホール抵抗の符号は、遷移金属(TM)-rich なものと一致したが、

いずれの試料も定量分析からは、RE-rich な組成を示し、異常ホール抵抗の符号と一致しなかった。

異常ホール抵抗および磁気特性から求めた保磁力の温度および膜厚依存性は、磁気モーメントが0になる補償温度が存在することを示唆しており、補償温度は異常ホール効果の反転温度とも一致した。異常ホール抵抗の符号の温度依存性をさらに調べるため、Tb 組成および膜厚を変えて TM-rich 試料を作製し、同様に測定したところ、異常ホール効果の符号は TM-rich のままであった。これらの現象を説明するため、界面層モデルを考察した。特に、異常ホール抵抗の符号は Tb 量と密接に関係しており、作製した試料の界面層は Tb が実効的に欠如した TM-rich 相として振舞っていると考えると実験事実が説明出来る。界面の原子分布を調べるため、深さ方向の元素プロファイル調べたところ、元素ごとにプロファイルの裾が異なることが明らかとなり、磁性層および絶縁層のミキシングが磁気特性や輸送特性に影響していることが示唆された。したがって、電界制御を実現するためには、磁性層/絶縁層界面における元素拡散を加味した成膜条件の検討、もしくは、電界印加が可能な拡散防止層の形成を検討する必要があることがわかった。

1. はじめに

近年、電子の持つ電荷とスピンの双方の機能を最大限に引き出すことで、新規デバイスを創出するスピントロニクスという分野の研究が盛んである。特に、電流/電圧によるスピンの直接制御[1]が議論されており、磁壁移動型メモリ[2]-[4]はその応用例の一つである。磁壁移動型メモリの実現には、低電流・高集積・高速動作の要件を満たす必要がある。近年では、磁性層/非磁性層界面で生じるスピン軌道トルクが注目されており、ラシュバ効果をはじめとする多様なトルクが磁壁移動に影響を及ぼすことがわかってきた[5]。いずれのトルクも、ナノワイヤ幅方向、あるいは長手方向に生じる実効磁場が磁壁移動速度を改善することが理論的に示唆されている。単純なモデル計算では、磁壁移動速度はラシュバ効果に比例するため、現状の100倍、データ転送レートにすると、100Gbps という超高速データ処理に相当する。したがって、桁違い

界面制御による磁壁移動型デバイスの高性能化

Improvement of magnetic domain wall motion devices by controlling interfacial structure

なデータ転送速度を得るためには、ラシュバ効果を増強する接合界面及びその界面電界制御による原理を確立することが不可欠である。また、スピン軌道相互作用の電圧制御は、現在、実用化間近の磁気メモリ(MRAM)のさらなる低電力化にも寄与することが期待できる。

磁壁移動型メモリを実現する材料として、フェリ磁性体 TbFeCo はその候補材料の一つである[6]-[8]。希土類(RE)-遷移金属(TM)合金であるフェリ磁性体では、希土類組成により平均磁気モーメントが0になる補償組成が存在し、スピン依存伝導現象が、この補償組成を境に変化することも知られている[9][10]。界面電界制御を実現するためには、適切なゲート絶縁層との界面構造の理解が重要であるが、RE-TM 合金に対する絶縁層界面に着目した研究は行われていない。本研究では、補償組成近傍の TbFeCo 薄膜の電界スピン制御を最終目標とし、TbFeCo/絶縁体界面における微視的構造とスピン依存伝導の関係を調べることを目的として、TbFeCo/絶縁層界面が異常ホール効果に及ぼす影響を実験的に調べた。

2. 研究方法および結果

本研究では、RF マグネトロンスパッタリング装置により、ガラス基板上に薄膜試料を堆積させた。薄膜構成は Glass / AlN(25nm) / TbFeCo(t_{TFC}) / AlN(5nm)とした。 t_{TFC} はTbFeCo層厚であり、5, 10, 20, 50nm と変化させて積層構造試料を作製した。TbFeCoの成膜には、高純度 Ar ガスをスパッタガスとして用い、TbFeCo ターゲットをスパッタ成膜した。Tb 組成は 30at.%であり、室温で RE-rich として振る舞う組成である。AlN 層の成膜には、反応性スパッタリングを用い、Ar と N₂ の混合ガスを用い、AlN ターゲットをスパッタ成膜した。AlN は絶縁体であり、TbFeCo のガラス基板や大気からの酸化を防ぐための保護層でもある。スパッタ成膜は、一般に非平衡薄膜を形成することが可能であり、大きな残留膜応力が存在する。本研究では、このような膜応力の効果を界面における電界効果と考え、膜厚を変えて、スピン依存伝導現象の一つとして異常ホール効果を評価した。

異常ホール効果を評価するため、成膜時にメタルマ

スクを用いてホールバーを形成し、同様に電極を形成した。Quantum Design の PPMS を用いて、膜面垂直方向に磁場を印加し、TbFeCo 層における異常ホール抵抗を測定することで、異常ホール効果の膜厚依存性と温度依存性を評価した。温度は 5K~400K、磁場は±9T の範囲で測定を行った。薄膜の組成分析には、ICP 分析を用い、Tb, Fe, Co の検量線から薄膜試料全体の組成を分析した。過去の室温における磁気特性分析から、Tb28at.%で希土類と遷移金属のモーメントが相殺する補償組成になることを確認しており、室温および 100nm 膜厚で、30at.%の RE-rich 試料と 25at.%の TM-rich 試料の2種類の組成を主な試料として検討した。

TbFeCo(TFC)薄膜の異常ホール抵抗の膜厚及び温度依存性を図1に示す。異常ホール効果の符号は、補償組成を境に変化することが知られている。TFC 膜厚 50nm では、異常ホール抵抗の符号はいずれの温度においても負であり、これは希土類(RE)-rich な異常ホール抵抗の符号と一致する。一方、20nm 厚、及び、10nm 厚の TbFeCo 薄膜の異常ホール抵抗は、高磁場側で異常ホール抵抗の符号が温度上昇につれ反転することを見出した。また、通常見られるヒステリシスは大きく異なる形状のヒステリシスを得た。この特異なヒステリシスは、2つの磁気特性の重ね合わせと理解できるが、磁化及び異常ホール係数は、磁場に対して単調に変化すると期待できるため、平均磁化の温度依存性だけでは、これらの結果を十分に理解することはできない。また、得られたヒステリシスからは、保磁力が大きな相の存在が示唆される。さらに、5nm 厚の試料では、異常ホール抵抗の符号は遷移金属(TM)-rich なものと一致した。しかし、いずれの試料も、定量分析からは RE-rich な組成な組成を示し、異常ホール抵抗の符号と一致しないことがわかる。

膜厚の異なる TbFeCo 薄膜における 9T の異常ホール抵抗率および 0T の抵抗率の温度依存性を図2に示す。10nm, 20nm 厚の試料では、温度低下に伴い異常ホール抵抗の符号が TM-rich から RE-rich に変化する。5nm 厚の試料では、異常ホール抵抗の符号は TM-rich のままであることがわかる。さらに、膜厚が厚くなるにつれて、符号反転が起こる温度も上昇していること

界面制御による磁壁移動型デバイスの高性能化

Improvement of magnetic domain wall motion devices by controlling interfacial structure

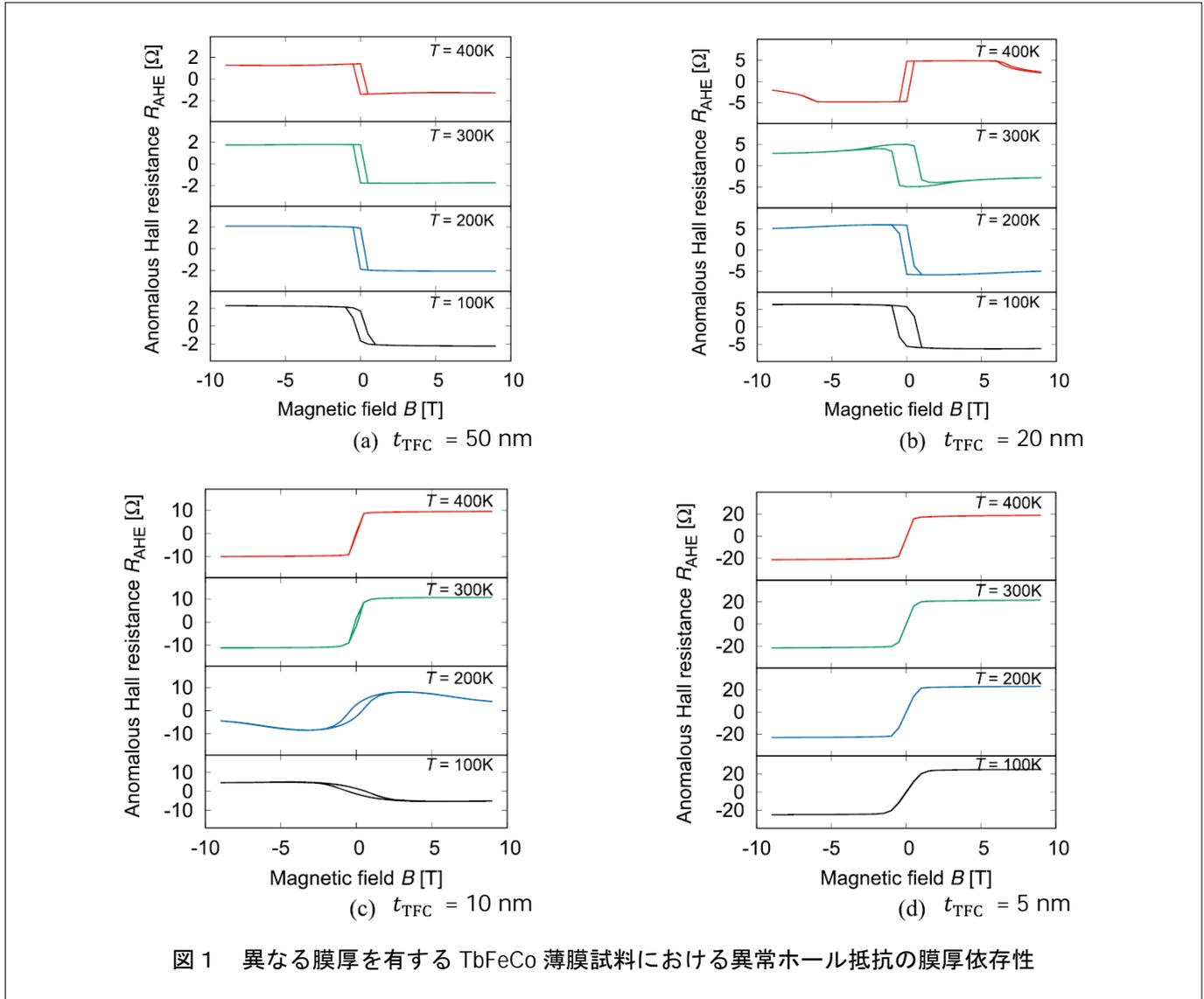


図1 異なる膜厚を有する TbFeCo 薄膜試料における異常ホール抵抗の膜厚依存性

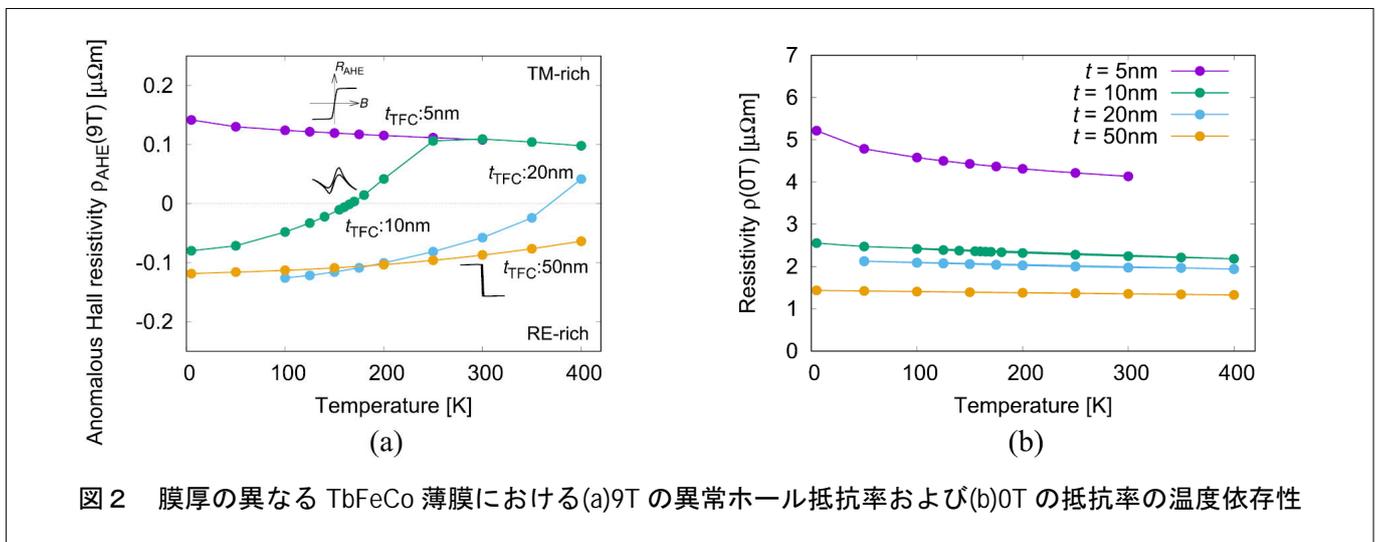


図2 膜厚の異なる TbFeCo 薄膜における(a)9T の異常ホール抵抗率および(b)0T の抵抗率の温度依存性

界面制御による磁壁移動型デバイスの高性能化

Improvement of magnetic domain wall motion devices by controlling interfacial structure

がわかる。抵抗率は温度に対してはいずれも単調な変化であり、膜厚低下に伴い、界面散乱の影響が顕著になるため抵抗率も単調に増加する。しかし、5nm厚の試料では、抵抗率の上昇が大きく、界面の影響が現れていると考えることが出来る。異常ホール抵抗および磁気特性から求めた保磁力の温度および膜厚依存性より、TFC 膜厚 10nm, 20nm では保磁力の発散が見られ、その発散温度は異常ホール効果の反転温度とも一致する。

異常ホール抵抗の符号の温度依存性をさらに調べるため、Tb 組成および膜厚を変えて TM-rich 試料を作製し、同様に測定した。TM-rich 試料における異常ホール抵抗の温度依存性を図 3 に示す。20nm, 50nm 厚の試料では、ほとんど領域で TM-rich な異常ホール抵抗の符号を示している。20nm 厚の試料で、符号反転が低温まで起こりづらいことは、先に述べた界面層が TM-rich を促進していることと矛盾しない。

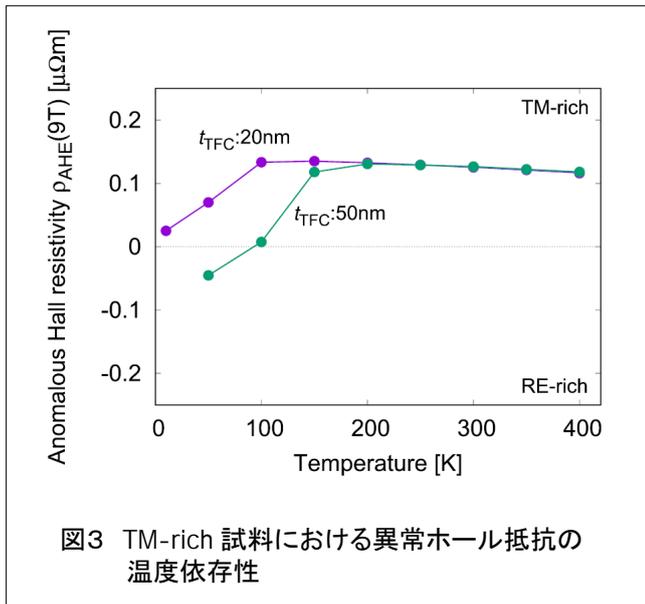


図3 TM-rich 試料における異常ホール抵抗の温度依存性

これらの現象を説明するため、界面層モデルを詳細に考察した。異種物質の界面では、ミキシングやラフネスが作用する可能性があり、本研究で作製した薄膜界面でも同様のことが起こり得る。特に、異常ホール抵抗の符号は Tb 量と密接に関係しており、作製した試料の界面層は Tb が実効的に欠如した TM-rich 相として振舞っていると考えると、実験事実が説明出来る。

界面の元素分布を実験的に調べるため、X 線光電子分光法により深さ方向の元素プロファイル調べた。作製した薄膜試料を集束イオンでエッチングしながら、深さ方向に出現する元素および結合状態を調べた。Tb, Al の分布を見てみると、界面から磁性層および絶縁層に拡散もしくはミキシングしていることがわかった。一方、Fe, Co は作製した積層構造を維持していることがわかり、TFC 層内で元素分布があることがわかる。Al と結合した Tb が磁性を失うと考えると、界面層は FeCo 合金に近い振る舞いを示す可能性がある。また、Tb の拡散により TFC 組成が変調することから、TFC 層厚によって同じ組成分析結果を示しても、TFC 層内の実効的な組成が変わっている可能性もある。したがって、急峻な界面による電界制御を実現するためには、磁性層/絶縁層界面における元素拡散の条件を加味した成膜条件の検討、もしくは、電界印加が可能な程度の拡散防止層の形成を検討する必要があることがわかった。

異常ホール抵抗の符号は、TM-site のモーメントの向きによって決まっており、TM-rich 相では異常ホール抵抗は正になる。抵抗率の膜厚依存性から、界面層はいずれの薄膜試料でも一定層厚存在すると考えられるが、TbFeCo 層厚が薄くなるにつれて、界面層の電気/磁気特性が優位になったと考えれば、全ての測定結果とは矛盾しない。フェリ磁性体において、RE-site, TM-site の磁気モーメントの温度依存性が異なることが知られており、磁化が 0 になる温度として補償温度があることが知られている。したがって、実験結果は同じ Tb 組成にも関わらず、補償温度が TFC 膜厚により異なることを示している。本研究で仮定した界面層は、電気伝導層における RE 組成を変調していることがモデルから推察される。膜厚によって異常ホール効果の符号反転温度が単調に推移するのはそのためである。

界面における Tb 組成と補償温度の関係を詳細に調べるため、分子場近似を用いて、フェリ磁性薄膜における補償組成の膜厚依存性を解析した[11]。界面層を仮定した場合には、部分的に RE 組成が一定割合減少した副格子を仮定し、同様に自己無撞着な分子場を計算して、実効磁気モーメントの温度依存性を計算した。

界面制御による磁壁移動型デバイスの高性能化

Improvement of magnetic domain wall motion devices by controlling interfacial structure

界面層モデルでは、実効的に 30% の Tb モーメントが減少している層を仮定した。計算から、RE 組成に応じて補償温度が増加することが再現できることがわかった。また、いずれの組成においても、界面層モデルによる磁気モーメント減少が補償温度を低下させている。したがって、実験で観測した異常ホール抵抗の符号反転は、界面組成に起因する補償温度の推移に対応していること明らかとなった。しかしながら、定量的な不一致は依然として残されており、これらは界面層への分流や界面歪みによる実効電界が寄与しているものと考えている。

以上の考察から、酸素や窒素などを含む絶縁層の形成により、磁性層/絶縁層の界面磁気特性が著しく変わる可能性が示唆された。電界効果を実現するためには適切な絶縁層の形成が不可避であることも明らかとなった。今後、電界制御により、磁性層磁化を制御するための絶縁層の組み合わせや拡散防止層の形成により、引き続き界面電界効果によるスピン依存伝導制御を検討する他、力学的な歪み導入によるスピン依存伝導制御も重要な研究課題となるであろう。

3. まとめと今後の展望

本研究では、界面電界を誘起するための磁性/非磁性絶縁物界面構造に着目して、磁気特性および電気伝導特性がスピン依存伝導現象に及ぼす影響を検討した。その結果、磁性層/絶縁層の界面に新たな界面層が形成される可能性を示唆し、その結果、膜厚に依存性して著しく磁気特性が異なること、特に、磁壁移動を考える上で重要な磁気補償温度の推移が観測された。これは、界面電界を制御するための適切な絶縁層形成方法の検討が非常に重要であることを意味している。今後、適切な絶縁層材料の選定、形成条件の精査、拡散防止層の形成により、引き続き界面電界制御の検討を行う。また、界面電界を制御する方法としてのラッシュバ効果も並行して検討を進めており、Bi 合金材料との積層構造により、界面に誘起されるスピン軌道相互作用を測定する試みを行なっている。今後、各層の適切な組み合わせと、最適電界印加により、磁性層に生じるトルクを制御することが可能となるものと考えている。

本研究によりスピン軌道相互作用を制御した磁壁移動型メモリを実現することで、3次元高集積・低電流駆動の他に高速動作が期待できる。今後、益々進展する第4次産業を下支えする新規メモリデバイスの創成に繋がりたいと考えている。

参考文献

- [1] L. Berger, *Phys. Rev. B* **54**, 9353 (1996); J. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.* **159**, L1 (1996).
- [2] N. Vernier, A. D. Allwood, D. Atkinson, M. D. Cooke, and R. P. Cowburn, *Europhys. Lett.* **65**, 526 (2004).
- [3] T. Moore, H. Szabolcs, L. D. Buda-Prejbeanu, S. Auffret, B. Rodmacq, S. Pizzini, J. Vogel, M. Bonfim, A. Schuhl, G. Gaudin, and I. M. Miron, *Nat. Mater.* **10**, 419–423 (2011).
- [4] S. Fukami, T. Suzuki, N. Ohshima, K. Nagahara, and N. Ishiwata, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 2539 (2008).
- [5] K.-S. Ryu, L. Thomas, S.-H. Yang, and S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Express* **5**, 093006 (2012).
- [6] T. Komine, K. Takahashi, A. Ooba, and R. Sugita, *J. Appl. Phys.* **109**, 07D503 (2011).
- [7] D. T. Ngo, K. Ikeda, and H. Awano, *Appl. Phys. Express* **4**, 093002 (2011).
- [8] S. Li, H. Nakamura, T. Kanazawa, X. Liu, and A. Morisako, *IEEE. Trans. Magn.* **46**, 1695 (2010).
- [9] T. Hatori, M. Okuda, and S. Nakagawa, *J. Appl. Phys.* **99**, 08C513 (1983).
- [10] T. Okuno, K.-J. Kim, T. Tono, S. Kim, T. Moriyama, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto, and T. Ono, *Appl. Phys. Express* **9**, 073001 (2016).
- [11] R. Ando, T. Komine, S. Sato, S. Kaneta, Y. Hara, *AIP advances* **8**, 056316 (2018).

この研究は、平成27年度SCAT研究助成の対象として採用され、平成28～29年度に実施されたものです。