

【概要】

磁気記憶デバイスの低消費電力化は、低炭素化社会を実現するための重要な課題の一つである。本研究事業では、情報書込み手法の低エネルギー化を目指し、外部磁場や電流を用いるのではなく、電界を磁性体に印加することによる磁化方向制御を試みた。具体的には、磁化の高い熱安定性を示す $L1_0$ 型 FePt 規則合金を材料として選択し、ナノ構造化と磁化過程の関係を系統的に調べ、さらに実際のデバイスに近い全固体素子構造において電圧印加による磁気特性の変化を評価した。その結果、①ナノ構造化により磁壁移動型から磁化回転型への磁化過程の変化が観測され、それに伴い保磁力(H_c)も増大すること、② ± 13 V の範囲で印加電圧を変化することにより、40 Oe の H_c の変調が観測されること、および③観測された H_c の変調が界面磁気異方性の変化に起因することが示唆された。

【前書き】

近年の深刻なエネルギー問題や資源枯渇の危惧から、電子情報機器の開発においても省エネルギー、環境調和、あるいは低炭素排出といったキーワードが重要視されるようになってきている。中でも、電子情報機器の根幹を成す記憶素子の低消費電力化は、豊かな持続性社会を実現するために解決しなくてはならない課題である。メモリに代表される従来の記憶素子や演算素子は主に半導体デバイスにより構成されており、電荷による情報記憶を行っている。そのため、情報保持のためには定常的な電力を必要とする。一方で、磁気記録媒体や磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)に代表される磁気記憶デバイスでは、磁性体の方向によって情報を記憶しているため、電力を切っても情報が保持される。この不揮発性という利点を活かすことで、半導体のみを利用した従来のエレクトロニクスデバイスと比較して、記録保持時に必要とされる消費電力を大幅に低減できる[1]。しかしながら、情報書込みを行うために磁化反転を誘起する際、外部から大きなエネルギーを加える必要があり、これが磁気記憶デバイスの省エネルギー化に向けた一つの弊害となっている。

最も古典的な磁化反転の手法は外部磁場を用いるものである。例えば、記憶素子近傍に電気配線を形成し、その配線に電流を流すことで生じる磁場により磁化反転を誘起する。この外部磁場を用いる手法では、記録密度の増加や素子の高集積化に伴い、効率良く磁化を反転させることが困難になってきた。近年、外部磁場による情報書込みに替わる手法として、磁性体に電流を直接通電させるスピン注入磁化反転[2,3]が注目を集めている。スピン注入磁化反転は、伝導電子スピンと磁性体の局在スピン間に働く量子力学的相互作用を利用する手法である。しかしながら、スピン注入型書き込み手法においても現状ではサブ mA オーダの電流が反転に必要となり、電流値の低減が十分ではない。また、スピン注入磁化反転は素子への通電が必須となるため、消費電力ゼロを目指すような抜本的な解決策とはならない。

そこで本研究では、電流ではなく電圧を用いて磁化方向を制御することに着目した。絶縁層を介して磁性体に電圧を印加しその磁気特性を制御する試みは、(In,Mn)As や (Ga,Mn)As に代表される希薄磁性半導体において精力的に研究されてきた[4]。しかしながら近年になって、金属磁性体においても金属薄膜を極薄化することで、電圧印加により磁気特性を制御できることがわかってきた[5-8]。これは、絶縁層との界面近傍における電子の蓄積により磁性体の電子構造が変化することに起因する効果である。本研究課題では、

実デバイスへ応用することを視野に入れて、超高密度磁気記録媒体材料と期待されている $L1_0$ 型 FePt 規則合金の磁化方向を電圧により制御することを目指した。具体的には、① ナノ構造化された FePt 規則合金における磁化過程の研究、② 電圧印加による FePt 規則合金の H_c 変調の観測、および③ 観測された H_c 変調のメカニズムの解明に取り組んだ。

【本論】

① ナノ構造化された FePt 規則合金における磁化過程の研究

高密度、高集積を目指す次世代デバイスへの応用を視野に入れた場合、ナノサイズ化された FePt 規則合金の磁気特性を明らかにする必要がある。特に、ナノ構造化と磁化反転機構との関係を理解することは、電圧により FePt 規則合金における H_c の変調を行う上で重要な基本的知見となる。そこで、スパッタ法および微細加工法を駆使することで、精密に形状およびサイズを制御した FePt 規則合金の円形ドットを作製し、FePt 規則合金のサイズに依存した磁化過程の変化を系統的に調べた。

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(100)単結晶基板の上に Fe (1 nm) / Au (50 nm) / FePt (10 nm) の層構成を有する薄膜試料を作製した。FePt 層の成膜温度は 300°C であり、成膜後に 300°C から 600°C の温度範囲でアニールを行い、 $L1_0$ 規則構造へと規則化を促進した。電子線リソグラフィおよび Ar イオンミリングを用いて、薄膜試料を円形ドットへと加工した。図 1 に、ドット直径 (D) を 500 nm、100 nm および 30 nm とした $L1_0$ -FePt ドットにおける磁気力顕微鏡 (MFM) 像に原子間力顕微鏡 (AFM) 像を重ねた結果を示す。MFM 像の明暗のコントラストは膜面に対して上向きおよび下向き磁化に対応しており、外部磁場 (H) は薄膜の膜面垂直方向に印加した。残留磁化状態において、 D が大きな 500 nm では多磁区構造が形成されているのに対し、 D の小さな 100 nm および 30 nm のドットでは単磁区構造が観察された。これは、ドットサイズを微小化することにより、磁区構造を単磁区化できることを示している。また、磁場中の MFM 像では、各ドットにおいて磁化反転が独立に生じており、加えて 100 nm および 30 nm ドットでは磁化反転の過程で多磁区構造の形成が観測されていない。

図 2(a)に、FePt ドットにおける D に対する H_c の変化を示す。 D の減少に伴

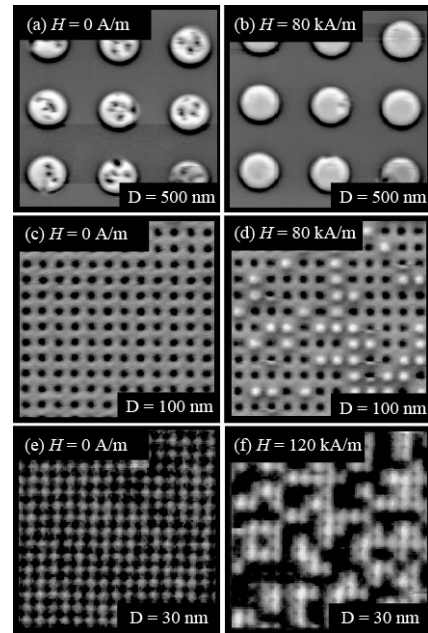


図 1 $L1_0$ -FePt ドットの残留磁化状態 (a), (c), (e) および磁場中 (b), (d), (f) における原子間力顕微鏡 (AFM) 像を重ねた磁気力顕微鏡 (MFM) 像。ドット直径 (D) は 500 nm ((a), (b)), 100 nm ((c), (d)) および 30 nm ((e), (f)) である。

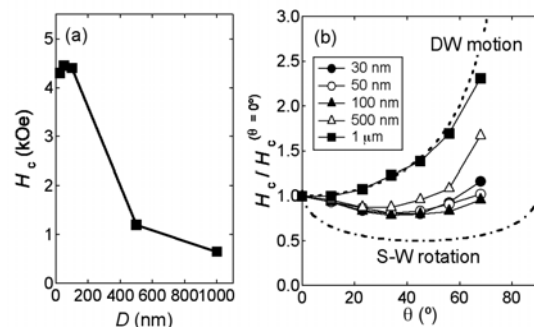


図 2 (a) $L1_0$ -FePt ドットにおける保磁力 (H_c) のドット直径 (D) 依存性。(b)規格化された H_c の磁場印加角度 (θ) 依存性。 $\theta=0^\circ$ が膜面垂直方向に対応し、 $\theta=90^\circ$ が膜面内方向である。図中の点線は磁壁移動 (DW motion) が支配的な場合の角度依存性の計算結果、一点鎖線は一斉回転モデル (S-W rotation) による計算結果を示している。

い、 H_c が徐々に増加している。この H_c の D 依存性を理解するために、 D の異なる FePt ドットにおける H_c の磁場印加角度(θ)依存性を調べた。ここで H_c の値は、 $\theta = 0^\circ$ の H_c で規格化したものとなっている。図 2(b)に示した結果より、 $D = 1\mu\text{m}$ では θ の増加に伴い H_c が増加しており、磁壁移動が磁化反転を支配するモデルと良い一致を示している。一方、 D が小さくなるにつれて H_c の θ 依存性が下に凸の傾向を示すようになり、磁化回転により磁化反転が生じていることがわかった。以上より、 D の減少に伴う H_c の増加は、磁壁移動による磁化反転機構から非一斉ではあるが磁化回転が支配的な磁化反転機構へと磁化過程が変化したことに起因していると考えられる。

②電圧印加による FePt 規則合金の H_c 変調の観測

金属磁性体に対し電圧を印加して磁気特性制御を行うときに重要となるのが、磁性体の極薄化である。金属はキャリア密度が極めて高い ($10^{22}\sim 10^{23}\text{ cm}^{-3}$) ため電子の遮蔽効果が強く、例えば絶縁障壁を介して金属に電圧を印加しても、電荷蓄積が生じるのは絶縁障壁との界面近傍に限られてしまう。そのため、界面での特性変化が顕著となるよう、極薄の薄膜試料を用いることが不可欠である。本研究では、FePt 規則合金を膜厚 1.5 nm まで薄膜化し、電圧印加下で FePt の異常ホール効果を測定することにより、電圧印加による H_c の変調を検討した。

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(100)単結晶基板上に Fe および Au の下地層を成膜後、FePt 層(1.5 nm)を成膜した。その後、真空状態を保持したまま基板を電子線蒸着装置へと搬送し、電子線蒸着により 5 nm 厚の MgO 層を成膜した。この薄膜試料を、電子線描画および Ar イオンミリングを用いてホール素子形状へと加工した。加工後、原子層堆積法により電圧印加用絶縁層となる 20nm 厚の Al-O 層を形成し、さらに電圧印加電極用の Cr/Au 層を上部に作製した。作製した素子の光学顕微鏡像を図 3 に示す。Cr/Au 電極に電圧(V_{app})を印加しながら、図中の端子配置で FePt の異常ホール効果を測定し、電圧印加による H_c の変化を調べた。

図 4 に、 $V_{\text{app}} = -13\text{V}$ および 13V における H_c 領域を拡大した異常ホール曲線を示す。 V_{app} を -13V から 13V まで変化させたところ、およそ 40 Oe の H_c の変化が観測され、FePt 規則合金の磁気特性を電界により制御できることが確認された。 H_c の変化量(ΔH_c)を印加した電界(E)に対してプロットした結果を図 5 に示す。正の電界領域で H_c は増加し、一方、負では H_c が減少した。正の電界は、FePt/MgO 界面に電子が蓄積される電界の方向となる。この結果より、FePt/MgO 界面で電子を蓄積させることにより、磁気異方性を向上し H_c が増加したものと

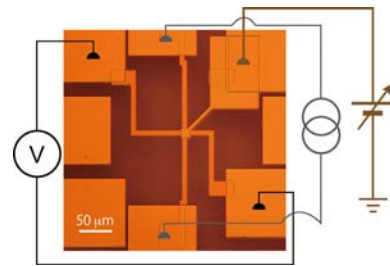


図 3 作製したホール素子の光学顕微鏡像および測定セットアップの模式図。

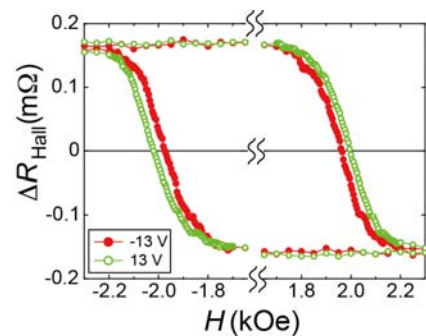


図 4 $V_{\text{app}} = -13\text{V}$ および 13V を FePt 層に印加した際の異常ホール曲線。保磁力近傍を拡大した。

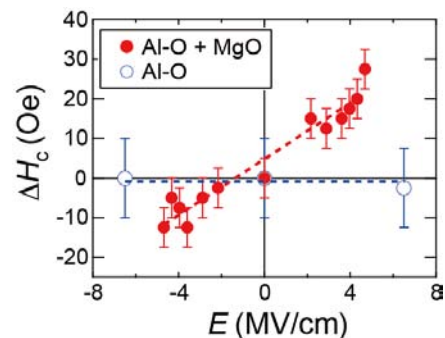


図 5 H_c の変化量(ΔH_c)の電界強度(E)依存性。赤丸が FePt/MgO/Al-O 接合の結果、白丸が FePt/Al-O 接合の結果である。

考えられる。比較のために MgO 層を有していない FePt/Al-O 接合において電圧による H_c の変化を調べたところ、明瞭な H_c の変調は観測されなかった。FePt/Al-O 接合を作製する際には、FePt 層表面を一度大気に暴露した後 Al-O 層を成膜しているため、FePt/Al-O 界面が清浄に保たれていない。このことが、FePt/Al-O 接合で電圧印加による H_c 変調が観測されなかった一因として考えられる。以上より、電圧印加 H_c 変調を観測するためには清浄な界面の形成が重要であると考えられる。

③電圧印加 H_c 変調のメカニズムの解明

上記の実験より、FePt 層と MgO 絶縁層との界面が H_c の変調に重要な役割を果たしていることが示唆された。そこで、FePt 層厚(t_{FePt})を変化させた試料を作製し、FePt 層と MgO 絶縁層の界面での磁気異方性について検討した。

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて薄膜試料を作製した。層構成は、MgO(100)単結晶基板 / Fe (1 nm) / Au (10 nm) / FePt (t_{FePt} nm) / MgO (5 nm) / Au (3 nm)である。比較のために、MgO 層および Au 保護層を有していない試料も作製した。図 6 は面積あたりの垂直磁気異方性(Kt_{FePt})の t_{FePt} 依存性である。 Kt_{FePt} は $K_v t_{\text{FePt}} + K_{\text{int}}$ で表され、 K_v は $L1_0$ 規則構造の形成に起因する磁気異方性であり、 K_{int} は界面磁気異方性に対応する。MgO 層を有していない FePt 薄膜の結果を $t_{\text{FePt}} = 0$ に外挿すると切片はほぼ 0 となり、界面磁気異方性が無視できるくらい小さいことがわかる。一方、MgO 層を有する FePt 薄膜は切片が正の値を持っており、FePt/MgO 界面において界面磁気異方性の存在が示唆される。この K_{int} の値は $630 \mu\text{J}/\text{m}^2$ であり、これまでに Fe/MgO 系で報告されている界面磁気異方性の値[6]と同程度であることがわかった。

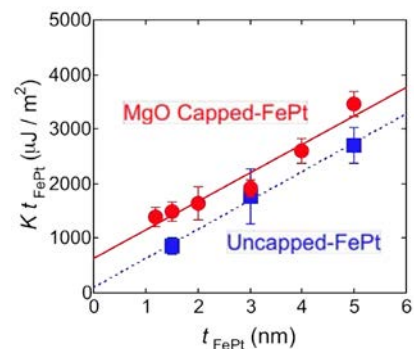


図 6 MgO 層を有する FePt 層、および MgO 層を有さない FePt 層における面積あたりの垂直磁気異方性の t_{FePt} 依存性。

以上より、FePt/MgO 界面において界面磁気異方性が生じていることが明らかとなった。このことから、本研究で観測された電圧印加 H_c 変調は、電界により界面磁気異方性が変化し、それにより H_c が変化した可能性が考えられる。

【結び】

本研究事業では、磁気記憶デバイスにおける情報書込み手法の低エネルギー化を目指し、 $L1_0$ 型 FePt 規則合金におけるナノ構造化と磁化過程の関係を系統的に調べ、さらに電圧印加による磁気特性の変化を評価した。 $L1_0$ 型 FePt 規則合金をナノ構造化することにより、磁化過程が磁壁移動型から磁化回転型へと変化し、それに伴い保磁力(H_c)が増大することがわかった。また、FePt 薄膜に $\pm 13 \text{ V}$ の電圧を印加することで、およそ 40 Oe の H_c 変調の観測に成功した。さらに、その H_c 変調の機構について検討したところ、電圧印加による界面磁気異方性の変化が H_c 変調に起因していることが示唆された。本研究事業で得られた結果は、高密度化・高集積化に向けた磁気記憶デバイスの開発において、情報書込み技術の低エネルギー化に資するものであり、重要な知見であると考えられる。

今後は、さらに大きな H_c 変調を実現するために、膜厚や素子構造を検討し最適化を行う必要がある。また、実際のデバイスに近いナノ構造化された FePt 規則合金において、上記の電圧印加 H_c 変調を実現することが応用上重要となる。

【謝辞】

本研究課題の遂行にあたり、東北大学金属材料研究所・高梨弘毅教授、菊池祐介氏、東北学院大学・嶋敏之教授、岩間弘樹氏、東北大学大学院工学研究科・新田淳作教授、好田誠准教授の御協力を頂いた。ここに御礼申し上げます。

【参考文献】

- [1] C. Chappert, A. Fert, and F. Nguyen Van Dau, “The emergency of spin electronics in data storage”. *Nature Mater.* **6**, 813-823 (2007).
- [2] J. C. Slonczewski, “Current-driven excitation of magnetic multilayers”. *J. Magn. Magn. Mater.*, **159**, L1-L7 (1996).
- [3] L. Berger, “Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current”. *Phys. Rev. B*, **54**, 9353-9358 (1996).
- [4] H. Ohno, D. Chiba, F. Matsukura, T. Omiya, E. Abe, T. Dietl, Y. Ohno and K. Ohtani, “Electric-Field control of ferromagnetism”. *Nature* **408**, 944-946 (2000).
- [5] M. Weisheit, S. Fähler, A. Marty, Y. Souche, C. Poinsignon and D. Givord, “Electric Field-Induced Modification of Magnetism in Thin-Film Ferromagnets”. *Science*, **315**, 349-351 (2007).
- [6] T. Maruyama, Y. Shiota, T. Nozaki, K. Ohta, N. Toda, M. Mizuguchi, A. A. Tulapurkar, T. Shinjo, M. Shiraishi, S. Mizukami, Y. Ando and Y. Suzuki, “Large voltage-induced magnetic anisotropy change in a few atomic layers of iron”. *Nature Nanotech.*, **4**, 158-161 (2009).
- [7] M. Endo, S. Kanai, S. Ikeda, F. Matsukura and H. Ohno, “Electric-field effects on thickness dependent magnetic anisotropy of sputtered MgO/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/Ta structures”. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 212503-1-3 (2010).
- [8] D. Chiba, S. Fukami, K. Shimamura, N. Ishiwata, K. Kobayashi and T. Ono, “Electrical control of the ferromagnetic phase transition in cobalt at room temperature”. *Nature Mater.*, **10**, 853-856 (2011).

【発表論文】

- 1) T. Seki, H. Iwama, T. Shima, and K. Takanashi, “Size dependence of the magnetization reversal process in microfabricated L1₀-FePt nano dots”, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44**, 335001-1-10 (2011).
- 2) 関剛斎, 「高保磁力 FePt 合金の磁化制御」 materiあ, Vol. 51, (2012) pp. 216-220.
- 3) T. Seki, M. Kohda, J. Nitta, and K. Takanashi, “Coercivity change in an FePt thin layer in a Hall device by voltage application”, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 212505-1-3 (2011).
- 4) T. Seki, Y. Kikuchi and K. Takanashi, “Interface magnetic anisotropy between L1₀-FePt and nonmagnetic layers”, *IEEE Trans. Magn.* (in press).

1) Electric Field Control of Magnetic Properties for Highly Coercive FePt Nanostructures

2) Magnetic Materials Laboratory, Takeshi Seki

3) Highly efficient magnetization control in nano-magnets having large magnetic anisotropy is an essential issue for the development of future magnetic storage devices such as ultrahigh density magnetic recording and large-scale integrated magnetic random access memory. In this project, we studied on the electric field control of the magnetic properties in $L1_0$ -FePt for the development of the magnetization control technique with low power consumption.

First, in order to understand the magnetization reversal mechanism in FePt nanostructures, the systematic investigation of magnetic properties was carried out for microfabricated $L1_0$ -FePt nanodots. The increase in coercivity (H_c) was observed as the dot size was reduced, resulting from the change of the magnetization reversal process from the domain wall motion to the magnetization rotation. Then, we examined the effect of the voltage application on the magnetic properties for an FePt thin layer. A Hall device including FePt / MgO / Al-O layers were fabricated, and the anomalous Hall effect was measured under the application of voltage (V_{app}). When V_{app} was varied from -13 V to +13V, the H_c change of ~ 40 Oe was successfully obtained. The observed H_c change is attributable to the change of interface magnetic anisotropy between FePt and MgO layer by voltage application.