

令和元年5月29日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04487

研究課題名(和文) 低エネルギー高速磁化反転技術のための反強磁性構造の創製

研究課題名(英文) Fabrication of antiferromagnetic structures for low energy and high speed magnetization switching technique

研究代表者

関 剛斎 (SEKI, Takeshi)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：40579611

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、反強磁性をキーワードに、反強磁性層を用いた接合における磁化ダイナミクスや、異なる種類の磁性層間の界面における交換結合の利用により、磁化反転の高速化と低エネルギー化に資する材料創製および物理機構の解明を目的として研究を遂行した。その結果、人工反強磁性構造の創製および反強磁性ダイナミクスの観測、反強磁性磁気構造に作用するスピン軌道トルクの機構解明、スピン軌道トルクによる人工反強磁性構造の磁化スイッチング、および磁化ダイナミクス励起による共鳴的低エネルギー磁化反転という研究成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題によって得られた研究成果は、人工反強磁性体を創製するための指針や磁気構造および磁化ダイナミクスに関する知見、さらには反強磁性構造に作用するスピン軌道トルクの機構解明など、材料科学および物理学の観点から極めて重要な進展をもたらしたものであり、学術的に意義深い。また、外部擾乱に対して安定な磁気構造の反強磁性体をスピン軌道トルクで磁化制御した成果は、従来材料や技術では到達できない新しい切り口でのスピントロニクスデバイスの高性能化に繋がる技術と期待でき、社会的意義も大きいものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：The purposes of this research project are the materials development for fast magnetization reversal with low power consumption and the elucidation of its physical mechanism by exploiting the layered structure with an antiferromagnetic structure and its magnetization dynamics. We have fabricated the artificially controlled antiferromagnetic layered structure, and have observed its antiferromagnetic dynamics. We have systematically investigated the effect of spin orbit torque acting on the artificial antiferromagnetic structure, and finally the spin orbit torque switching has been demonstrated for the artificial antiferromagnetic structure. In addition, we have achieved the low-energy resonant magnetization switching by exciting the magnetization dynamics.

研究分野：磁性材料学

キーワード：反強磁性体 積層構造 ダイナミクス

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

電子の持つ電荷とスピンという2つの性質を利用するスピントロニクスは、情報の不揮発性という半導体エレクトロニクスには無い魅力を有しており、電子デバイスの消費電力を大幅に低減できる工学分野である。スピントロニクスデバイスを支える代表的な現象に、磁性層/非磁性層/磁性層の3層構造において観測される巨大磁気抵抗効果(GMR)や、非磁性層をトンネル障壁層に置き換えたトンネル磁気抵抗効果(TMR)がある。これらは、2つの磁性層の磁化相対角に依存して抵抗が変化する現象である。この磁気抵抗(MR)効果に加え、伝導電子との相互作用により磁化を反転させるスピントルク磁化反転などを利用して、磁気ランダムアクセスメモリなどの磁気メモリ素子の開発が現在進められている。

しかしながら、研究開発当初、GMR あるいは TMR やスピントルクといった従来の物理現象に基づくデバイスの動作原理や FeCo 系合金といった従来材料のみの利用では、動作速度の高速化、消費エネルギーの低減などに限界が見え始め、デバイス性能の向上が鈍化していた。そのため、新材料の開発や新しい動作原理の開拓が切望されており、特に「外部からどのように磁化方向を操作するか?」は、磁性体を情報記憶要素として用いるスピントロニクスデバイスの抱える共通の課題であった。より具体的な課題は磁化反転の「高速化」と「低エネルギー化」の2つであり、大きな有効磁場(H_{eff})を有する材料、複数の磁性材料を組み合わせた特異な積層構造、従来とは異なる磁化運動モードの利用、あるいは物理起源の異なる有効磁場トルクを磁化に作用させることなどが課題の解決策になると期待されていた。

2. 研究の目的

本研究では、反強磁性体の持つ「高い H_{eff} に起因した磁化ダイナミクスの高周波化(高速化)」や「外部擾乱に対する磁化の安定性」といった特徴に着目し、反強磁性磁気構造を有する接合における磁化ダイナミクスや接合界面における反強磁性的結合を制御し利用することを試みた。そして、磁化反転の高速化と低エネルギー化に資する材料創製および物理機構の解明を最終目的として研究課題に取り組んだ。特に、研究代表者がこれまでに培ってきた異種磁性材料積層膜の作製技術や磁化ダイナミクスを用いた低エネルギー磁化反転に関する知見を基盤とし、「反強磁性共鳴に基づく超高速磁化ダイナミクスの観測」および「スピン軌道トルクによる反強磁性磁気構造の磁化反転」を中心課題として研究を遂行した。

3. 研究の方法

本研究では、異種磁性材料を積層化させた薄膜試料の作製、その積層膜中の磁気構造・磁化反転挙動・磁化ダイナミクスの評価手法の確立とそれを用いた解明、および数値シミュレーションを援用した物理機構の理解を研究遂行におけるポイントとした。

(1) スパッタ法を駆使することで、設計された磁気構造を積層構造内に実現できる薄膜作製条件の探索を行った。作製した積層膜の構造や表面形態は、X線回折法および反射高速電子線回折法により評価した。積層膜の基本的な磁気特性の評価には、振動試料型磁束計および超伝導量子干渉素子磁束計を用いた。その後、電気的および光学的測定を行うための素子構造へと微細加工した。微細加工には、電子線リソグラフィ、フォトリソグラフィおよび Ar イオンミリングを利用し、高周波測定用のコプレーナ導波路形状素子、および磁気抵抗効果およびホール効果測定用の他端子素子を作製した。

(2) 高速磁化ダイナミクスの観測に関しては、積層構造中に形成された磁気構造の磁化ダイナミクスをスピントルク強磁性共鳴法により評価し、反強磁性磁気構造に特有の共鳴モードの観測を試みた。この周波数領域測定に加え、高速磁化ダイナミクスを時間領域で評価するための光学測定系の構築にも取り組んだ。

(3) スピン軌道トルクによる磁化反転の研究に関しては、まずはフェリ磁性体におけるスピンホール磁気抵抗(SMR)を系統的に調べることで、反強磁性的磁気構造に対するスピン軌道トルクの作用について理解した。スピン軌道トルクとは、スピン軌道相互作用を起源として生成されたスピン流(スピン角運動量の流れ)を利用するトルクのことであり、例えばスピンホール効果によるトルクがある。SMR はスピンホール効果によって抵抗変化が生じる現象であり、スピンホール効果を評価する1つの有効な手法として本研究では用いた。SMR 測定で得られた知見をもとに、人工反強磁性構造を再度設計・作製し、スピン軌道トルクによる磁化反転の電気的検出を行った。

(4) 上記の実験と並行して、マイクロマグネティクスによる数値シミュレーションを行うことで、微細加工によってナノサイズ化された積層構造内に励起される磁化ダイナミクスを調べた。さらに、計算結果を実験へフィードバックすることで、磁化ダイナミクスが磁化反転磁場や挙動に与える影響などの理解を深めた。

4. 研究成果

(1) 異種磁性材料を複合化させた積層膜における磁化反転と磁化ダイナミクスの解明

FePt 合金のハード磁性層とパーマロイ合金のソフト層を複合化させ、パルス状の高周波磁場を印加した際の磁化反転挙動を調べた。高周波磁場の周波数と外部静磁場を系統的に変化させたところ、空間変調磁気構造に特有のスピン波が励起される条件下でのみ、磁化反転が生じることがわかった。実験と数値計算を比較した結果、スピン波の分散関係と磁化反転の生じる周

波数と磁場の関係が一致していることがわかり、共鳴的な磁化反転が進行していることが明らかとなった。これは従来のエネルギーアシスト型磁化反転とは異なる機構であり、応用上も有用な知見である。また、素子サイズを縮小させた素子に対してもマイクロマグネティクスシミュレーションを行うことにより、ナノサイズ試料において励起される磁化ダイナミクスの詳細を明らかにした。

(2) Co-Gd フェリ磁性薄膜を用いた人工反強磁性磁気構造の創製

バルク反強磁性体を実験対象とした場合、反強磁性磁区の制御が困難であるために解析が複雑化する、 H_{eff} が高過ぎるために適用できる計測手法が限定される、などの実験および解析上の不都合が生じると考えた。これらの問題を回避するために、異種磁性層を積層させて反強磁性磁気構造を形成させる人工反強磁性体の創製を行った。人工反強磁性体薄膜では、反強磁性結合強度を層厚による制御ができるため、例えば共鳴周波数を電氣的な計測手法により評価可能な領域に調整できる。また、各磁性層の磁気モーメントの方向を定義することが容易になるという利点もある。

本研究では、人工反強磁性体の材料として Co-Gd アモルファス合金を選択した。CoGd アモルファス合金では、Co と Gd の磁気モーメントが反平行に結合するため、合金組成を調整することで、マクロな磁気特性に対し支配的となる元素を制御できることが知られている。図 1 に、 $\text{Co}_x\text{Gd}_{100-x}$ アモルファス合金における磁気特性の Gd 濃度依存性を示す。Co-Gd アモルファス合金では、Co の磁気モーメントと Gd の磁気モーメントが反強磁性的に結合しており、Gd 濃度を変えることで磁化が補償する（正味の磁化がゼロになる）組成が現れることがわかる。この補償点を境に、Co 磁気モーメントが支配的になる（Co-dominant な）組成領域と、Gd 磁気モーメントが支配的になる（Gd-dominant な）組成領域が存在していることが確認された。これらの知見を元に、 $\text{Co}_{62}\text{Gd}_{36}$ / $\text{Co}_{86}\text{Gd}_{14}$ の積層構造を作製しその磁化曲線を測定したところ、図 2 に示すように、低磁場において二つの Co-Gd 層の正味の磁化が反強磁性的に結合している様子が観測され、人工的な反強磁性構造を形成することに成功した。

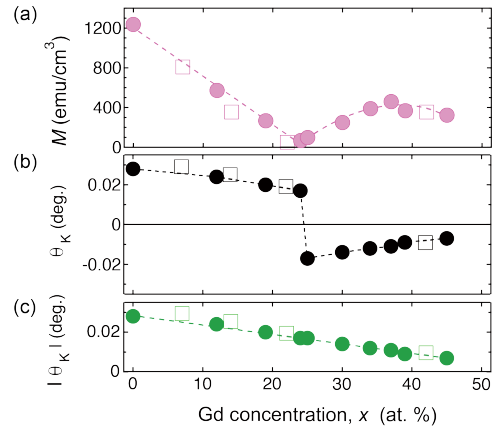


図 1 $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ アモルファス合金における (a) 磁化、(b)カー回転角および(c)カー回転角の絶対値の Gd 濃度依存性。

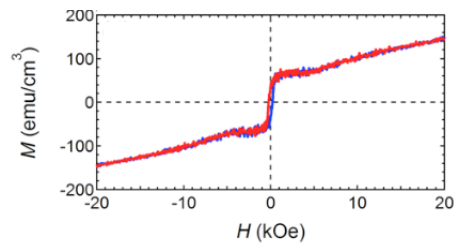


図 2 Co-dominant Co-Gd / Gd-dominant Co-Gd の積層構造における人工反強磁性構造の磁化曲線。

(3) 人工反強磁性構造における磁化ダイナミクスの観測と時間領域測定系の構築

(2)で作製した異なる組成の Co-Gd アモルファス合金から構成される人工反強磁性構造を用いて、その積層膜内に励起される磁化ダイナミクスを調べた。スピントルク強磁性共鳴法によって測定された磁気共鳴スペクトルを図 3 に示す。二つ共鳴ピークが現れており、周波数を変化させることにより共鳴磁場がシフトしている。このピークシフトの傾向は反強磁性構造特有の共鳴現象として理解できる。よって、人工反強磁性構造を用いて反強磁性結合に起因する磁化ダイナミクスの観測に成功した。

上記の周波数領域測定に加え、時間領域で磁化の動的挙動を評価するための測定系の構築を行った。本研究では、電流磁場パルスを印加することにより磁化ダイナミクスを励起し、磁気光学カー効果により磁化の動きを検出するポンプ-プローブ法を採用した。構築した測定系のテスト実験として微細加工された FePt 合金におけるポンプ-プローブ測定を行ったところ、電流磁場パルス印加した瞬間にカー信号の急峻な変化が現れており、その後に歳差運動をしながら磁化が平衡点へと収束していく様子を観測することに成功した。この測定手法は、電流印加により磁化ダイナミクスを励起しているため、スピン軌道トルクによって励起された

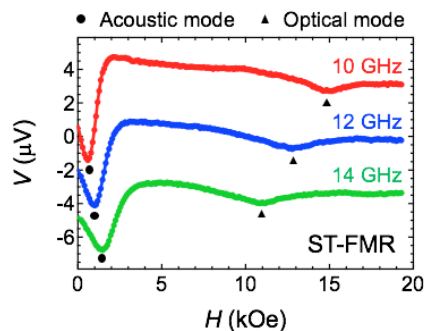


図 3 $\text{Co}_{62}\text{Gd}_{36}$ / $\text{Co}_{86}\text{Gd}_{14}$ 積層膜の磁気共鳴スペクトルの周波数依存性。

反強磁性体構造の磁化スイッチングを実時間で観測することも適用可能と期待される。

(4) スピン軌道トルクによる人工反強磁性構造の磁化スイッチング

(2)および(3)で記した人工反強磁性構造を用いて、スピン軌道トルクによる磁化スイッチングを試みた。まず、Co-Gd アモルファス合金にスピン軌道トルクがどのように作用するかを理解する目的で、Pt / Co_xGd_{100-x} 積層膜における SMR を調べた。ここで、スピン軌道相互作用の大きな Pt 層がスピンホール効果を示す非磁性層に対応しており、Pt 層に電流が流れるとスピンホール効果により電流の横方向にスピン流が生成される。そのスピン流によって Co-Gd 層にトルク (スピン軌道トルク) が作用すると考えられる。

図 4 に、異方性磁気抵抗効果(AMR)および SMR の Gd 濃度依存性を示す。AMR は Gd 濃度に磁化補償組成近傍で符号反転を示したが、SMR は Gd 組成に対して大きな変化を示さず符号反転も見られなかった。この異なる組成依存性は散乱機構の違いやバルクおよび界面での相互作用の違いなどを示唆する重要な知見であり、Co-Gd アモルファス合金の磁化に対しても Pt からのスピンホール効果によりスピン軌道トルクを作用させることができた。

以上の知見をもとに、人工反強磁性構造を Pt 層で挟みこんだ Pt / Co₆₂Gd₃₆ / Co₈₆Gd₁₄ / Pt 積層構造を作製し、直流電流を通電することにより磁化方向がどのように変化するかを調べた。その結果、Pt 層のスピンホール効果を起源とするスピン軌道トルクにより人工反強磁性構造の磁化を 90° スwitching できることを実証した。

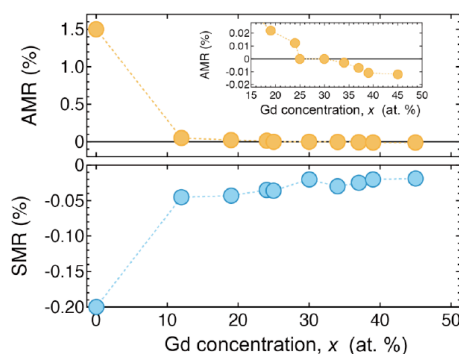


図 4 Pt / Co_xGd_{100-x} 積層膜における異方性磁気抵抗効果(AMR)およびスピンホール磁気抵抗効果(SMR)の Gd 濃度依存性。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 8 件)

- ① T. Seki, A. Miura, K. Uchida, T. Kubota, K. Takanashi, Anomalous Ettingshausen effect in ferrimagnetic Co-Gd, *Applied Physics Express*, 査読有, Vol. 12, (2019) pp. 023006-1-4, DOI: 10.7567/1882-0786/aafb5a
- ② W. Zhou, T. Seki, T. Kubota, G. E. W. Bauer, K. Takanashi, Spin-Hall and anisotropic magnetoresistance in ferrimagnetic Co-Gd/Pt layers, *Physical Review Materials*, 査読有, Vol. 2, (2018) pp. 094404-1-7, DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.094404
- ③ T. Moriyama, W. Zhou, T. Seki, K. Takanashi, T. Ono, Spin-Orbit-Torque Memory Operation of Synthetic Antiferromagnets, *Physical Review Letters*, 査読有, Vol. 121, (2018) pp. 167202-1-5, DOI: 10.1103/PhysRevLett.121.167202
- ④ W. Zhou, T. Seki, K. Takanashi, Magnetization switching behavior of exchange-coupled bilayer nanodots characterized by magneto-optical Kerr effect, *Journal of Applied Physics*, 査読有, Vol. 122, (2017) pp. 093902-1-5, DOI: 10.1063/1.4985848
- ⑤ W. Zhou, T. Yamaji, T. Seki, H. Imamura, K. Takanashi, Resonant magnetization switching conditions of an exchange-coupled bilayer under spin wave excitation, *Applied Physics Letters*, 査読有, Vol. 110, (2017) pp. 082401-1-5, DOI: 10.1063/1.4976707

[学会発表] (計 23 件)

- ① Takeshi Seki, Weinan Zhou, Takahide Kubota, Koki Takanashi, Spin-Hall Magnetoresistance in Pt / Co-Gd / Cr Layers, 23rd International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (ICMFS-2018), 2018 年
- ② Takeshi Seki, Weinan Zhou, Takahide Kubota, Koki Takanashi, Spin-Hall and Anisotropic Magnetoresistance Effects in Layered Structures with Ferrimagnetic Co-Gd Alloys, IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG) 2018, 2018 年
- ③ Takeshi Seki, Koki Takanashi, Magnetization Switching Assisted by Spin Wave Dynamics, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 2018 年
- ④ 周偉男, 関剛斎, 森山貴広, 小野輝男, 高梨弘毅, CoGd アモルファス合金を用いた積層構造の磁気特性, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年
- ⑤ W. Zhou, T. Yamaji, T. Seki, H. Imamura, K. Takanashi, Switching Probability Under Spin Wave Excitation in an In-plane Magnetized L1₀-FePt / Ni₈₁Fe₁₉ Exchange-coupled Bilayer, 61st Annual

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称：磁気メモリ素子及び該磁気メモリ素子に用いる磁性材料
発明者：森山貴広、小野輝男、関剛斎、周偉男、高梨弘毅
権利者：同上
種類：特許
番号：特許願 2017-132264
出願年：2017 年
国内外の別： 国内

〔その他〕

ホームページ等 <http://magmatelab.imr.tohoku.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：窪田 崇秀

ローマ字氏名：(KUBOTA, Takahide)

所属研究機関名：東北大学

部局名：金属材料研究所

職名：助教

研究者番号 (8 桁)：00580341

研究分担者氏名：今村 裕志

ローマ字氏名：(IMAMURA, Hiroshi)

所属研究機関名：国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名：エレクトロニクス・製造領域

職名：研究チーム長

研究者番号 (8 桁)：30323091

研究分担者氏名：森山 貴広

ローマ字氏名：(MORIYAMA, Takahiro)

所属研究機関名：京都大学

部局名：化学研究所

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：50643326

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。