

令和 3 年 6 月 1 4 日現在

機関番号： 8 2 6 2 6

研究種目： 若手研究(B)

研究期間： 2016 ~ 2020

課題番号： 1 6 K 1 7 5 0 8

研究課題名（和文）4d遷移金属を用いた新規強磁性薄膜の理論設計

研究課題名（英文）Theoretical design of a ferromagnetic thin-film with 4d transition-metal

研究代表者

北岡 幸恵（Kitaoka, Yukie）

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究員

研究者番号： 3 0 7 6 0 2 6 9

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000 円

研究成果の概要（和文）：第一原理計算を用いて4d遷移金属薄膜の磁気異方性と電界効果を調べた。磁気異方性は、磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM）などの記憶保持力を決める重要な物性値である。フリースタンディング単層膜で系統的に磁気異方性を解析した結果、MRAMに応用可能な垂直磁気異方性となるのは、Ru単層膜のみであることがわかった。現実系モデルに近いMgO基板上Ru単層膜の解析をした結果、従来のFe単層膜と比較して、磁気異方性エネルギー（MAE）および電界に対するMAEの変化が約3倍になることがわかった。この成果は、高密度化・低消費電力化に向けた新規強磁性薄膜の理論設計における材料探索の一つの指針を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題の遂行により得られる知見をもとに、4d 遷移金属を用いた電界制御可能な高い垂直磁気異方性を持つ新規強磁性薄膜材料の作成が可能となり、MRAM のさらなる高密度化、低消費電力化が実現する。その波及効果から、情報機器全体の消費電力の大幅な削減につながることが予想される。本研究は新規強磁性薄膜材料の理論開発を通して、低消費電力社会の実現を目指すものであり、工学的意義は極めて高い。

研究成果の概要（英文）：The magnetic anisotropy (MA) and electric-field control of MA energy of 4d transition-metal thin-film were investigated by using first-principles calculations. The MA is an important property for storage applications such as magnetic random access memories (MRAM). For the free-standing monolayer, we found that only a Ru monolayer become perpendicular MA applicable of MRAM. For a Ru monolayer on MgO substrate, both MA energy and its rate of change against electric-field are about 3 times as large as those for an Fe monolayer on MgO substrate. These results have provided a guideline for material search in the theoretical design of ferromagnetic thin-films for high density and low power consumption.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：第一原理計算 強磁性薄膜 電界印加 磁気異方性

1．研究開始当初の背景

既存の半導体メモリにおける物理限界を超える技術として、電子のスピン自由度を利用したスピントロニクスが注目されている。スピントロニクスを利用した不揮発性メモリの開発は、高度情報通信社会における高速化・高密度化・低消費電力化に向けた重要なテーマである。その中でも、無限書き換えが可能な磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM：Magnetoresistive Random Access Memory）に関する研究・開発が国内外の多くの研究機関や企業によって行われている。

MRAM における情報の読み書きは、図 1(a)に示す磁気トンネル接合（MTJ：Magnetic Tunnel Junction）と呼ばれるピラー型のナノ構造を用いて行われる。垂直磁化を持つ 2 枚の強磁性薄膜と MgO からなるトンネル障壁層を挟み込んだ構造をしている。下部の固定層では強磁性薄膜の磁化の向きが固定されており、上部の自由層において、電流や外部磁場を用いて磁化の向きを制御することで読み書きを行う。MTJ 素子を微細化すると、強磁性薄膜内のスピン数が現象してしまう。その結果、自由層での磁化反転に必要なエネルギーが減少し、室温の揺動磁場によって勝手に磁化が反転してしまう確率が無視できなくなる。そこで本研究では、「(1) 高磁気異方性エネルギー」および「(2) 電界印加による磁気異方性エネルギーの減少」の二つを満たす新規強磁性薄膜を探索し、次世代の MRAM を担う MTJ 素子のための強磁性薄膜材料を理論的に設計することを目的とする。

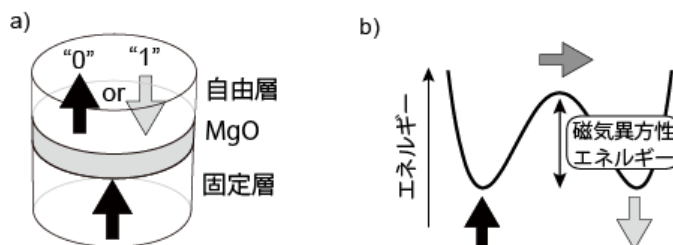


図 1. (a) 磁気トンネル（強磁性層/MgO/強磁性層）接合、(b) 磁気異方性エネルギーの模式図。

磁気異方性エネルギーとは図 1(b)に示すような、磁化反転に必要なエネルギーの大きさである。3d 遷移金属強磁性体を利用した Fe/MgO/Fe ベースにおける磁気異方性エネルギーの解析が盛んに行われている。しかし、直径 10 ナノメートルサイズの MTJ 素子に対応するような磁気異方性エネルギー（約 $30 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ ）をもつ材料の開発には未だ成功していない。そこで、上記エネルギーを超える強磁性薄膜を設計することが必要不可欠である。さらに、磁気異方性エネルギーが大きくなると同時に、読み込み/書き込み（磁化スイッチング）をするのに必要な消費電力が大幅に大きくなる。そのため、高密度化および低消費電力化にむけて、課題(1)と(2)を同時に取り組む必要がある。電界を印加させることで磁気異方性エネルギーを小さくすることができれば、電流によるジュール熱が発生せず、書き込み時の消費電力を大幅に削減することができる。

2．研究の目的

本研究課題では、MTJ 素子の高密度化および低消費電力化に向けた強い垂直磁気異方性と大きい電界効果を有する強磁性薄膜の材料設計をする。MTJ 素子を利用した MRAM は、従来の半導体メモリを凌駕する可能性を秘めているが、現状では MTJ 素子の微細化（高密度化）に伴う熱耐性の低下、また情報書き込み時に必要な電流密度が大きくなるなどの問題を抱えている。本研究ではスピン軌道相互作用の大きい 4d 遷移金属を用いて、この問題の解決を目指す。上記の条件を満たす材料の設計指針を理論的に確立させることで、次世代を担う新たな MRAM における磁性材料を提案する。

3．研究の方法

本研究課題では、磁性材料の解析において信頼性の高い第一原理計算手法（FLAPW：full-potential linearized augmented plane wave）を採用する。FLAPW 法では、原子球領域を球面調和関数で補強した平面波（LAPW）基底関数を用い、フル（クーロン）ポテンシャルを厳密に取り扱っている。そのため、d 電子軌道における非対称性を十分に考慮しており、磁気的性質に関して厳密な解析ができる。ここでは、磁気異方性エネルギーの計算には Force 理論を用い、スピン軌道相互作用を第二変分法で取り入れた固有値の差（磁化方向が界面に対して面直方向と面内方向にあるときの全エネルギー差）から見積もる。電界の計算には、面直方向に周期性が

ない2次元系に対して、外部電場のような外場ポテンシャルを導入して行う。
まず、垂直磁気異方性を示す4d遷移金属薄膜を探索する。次に、現実系モデルに近いMgO基板上4d遷移金属薄膜における磁気異方性と電界効果を解析することで、強い垂直磁気異方性と大きい電界効果を有する新規強磁性薄膜を決定する。

4. 研究成果

強磁性薄膜の磁気異方性エネルギーは、主に結晶磁気異方性エネルギー（MCAE：magnetocrystalline anisotropy energy）が起因しており、MCAEはスピン軌道相互作用（SOC：Spin-orbit coupling）で決定される。そのため、SOC定数の大きな4d遷移金属の強磁性薄膜に着目した。

まずは、系統的な解析をするために、第8族（Fe, Ru）・第9族（Co, Rh）・第10族（Ni, Pd）においてプロトタイプモデルのフリースタンディング単層膜での磁気異方性を解析した。全体的に、3d遷移金属単層膜より、4d遷移金属単層膜の方が大きいMCAEをもつことが確認できた。その中でも、MRAMに応用可能な垂直磁気異方性となるのはRu単層膜のみであることがわかった。Ru単層膜のMCAEは、Fe単層膜の約2.8倍になることがわかった。

次に、現実系モデルに近いMgO基板上Ru単層膜の磁気異方性エネルギーと電界効果の解析を行った。計算の結果を図2に示す。従来のFe/MgOではMCAEが 2.12 mJ/m^2 になるのに対し、Ru/MgOでは約3倍の 6.34 mJ/m^2 になることがわかった。また、電界印加に対する磁気異方性エネルギーの変化を示す物理量（VCMA：Voltage-controlled magnetic anisotropy）を計算した。 -8 V/nm から 8 V/nm に電界を変化させたとき、Ru/MgOの磁気異方性エネルギーは 7.40 mJ/m^2 から 5.85 mJ/m^2 に変化した。VCMA係数は -97 fJ/Vm となることがわかった。この値は、従来のFe/MgOがもつVCMA係数の 39 fJ/Vm より、約2.5倍の大きな値である。また、Ru/MgOとFe/MgOでは、VCMA係数が逆符号になることがわかった。電子構造を解析した結果、Fe単層膜ではフェルミ準位近傍にマイノリティスピンのみ存在するのに対し、Ru単層膜ではマジョリティ・マイノリティスピンが存在することが確認できた。磁気異方性エネルギーおよびVCMA係数の増大には、SOC定数の大きさの違いだけでなく、フェルミ準位近傍の占有・非占有d電子軌道の違いも寄与することがわかった。

以上の研究で得られた知見によって、次世代のMRAMを担うMTJ素子のための強磁性薄膜材料の理論設計が前進した。

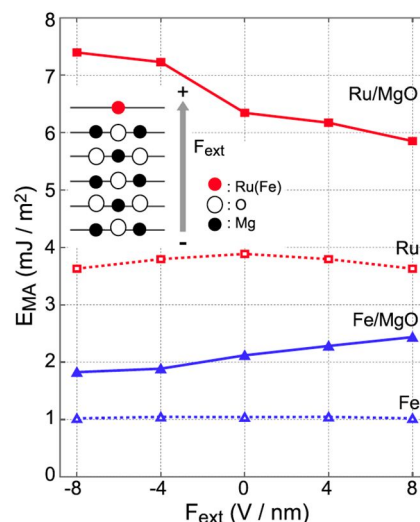


図2. 電界印加したときの磁気異方性エネルギーの変化。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Y. Kitaoka and H. Imamura	4. 巻 7
2. 論文標題 Electric field dependence of the giant magnetic anisotropy of Ru monolayer on MgO(001) substrate	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 45006
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.4980054	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yukie Kitaoka and Hiroshi Imamura	4. 巻 11
2. 論文標題 Giant enhancement of perpendicular magnetocrystalline anisotropy of γ -Fe ₂ O ₃ by Ir doping: A first principles study	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 113002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7567/APEX.11.113002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Y. Kitaoka and H. Imamura	4. 巻 60
2. 論文標題 The first and the second-order magnetic anisotropy in a Fe/MgO system under electric field: a first-principles study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 18003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abd3be	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 北岡幸恵、今村裕志	
2. 発表標題 第一原理計算による γ -Cr ₂ O ₃ の電子構造と磁気構造	
3. 学会等名 日本物理学会 2016年秋季大会	
4. 発表年 2016年	

1 . 発表者名 Y. Kitaoka, H. Imamura
2 . 発表標題 Giant perpendicular magnetic crystalline anisotropy of Ir-doped -Fe203: first-principles calculations
3 . 学会等名 2016 Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM) (国際学会)
4 . 発表年 2016年

〔 図書 〕 計0件

〔 産業財産権 〕

〔 その他 〕

-

6 . 研究組織			
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7 . 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔 国際研究集会 〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------