

令和元年6月18日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04328

研究課題名(和文) 電界によるスピンドYNAMICS制御と電界アシストスピン流磁化反転の開発

研究課題名(英文) Control of spin dynamics by electric field and electric-field-assisted spin Hall switching

研究代表者

加藤 剛志 (Kato, Takeshi)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：50303665

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では磁気ランダムアクセスメモリの新たな磁化反転手法として研究が進んでいるスピントラック効果を用いた磁化反転において、CoやFe超薄膜にHfO₂/MgO絶縁層を介して電界を印加し、超薄膜のスピントラック磁化反転の電界印加効果を調べた。また、電界印加時、スピン流注入時のスピンドYNAMICSを調べた。Co超薄膜の保磁力は電界によって43 %/(V/m)、スピントラック磁化反転の臨界電流密度は20 %/(V/m)と大きな値が得られることを確認した。保磁力やスピントラック磁化反転の臨界電流密度の電界効果は絶縁層の成膜条件に大きく依存することが確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピントラック磁化反転は磁気ランダムアクセスメモリの高密度化、高速化に有効な次世代の磁化反転技術として期待されているが、磁化反転の臨界電流密度の低減が求められている。本研究では電界という電力消費の少ない方法でこの臨界電流密度が大きく変調されることを示し、基礎、応用両面において重要な成果が得られたと考えられる。また、この臨界電流密度の変調は絶縁層の成膜条件に大きく依存することも明らかになり、今後、成膜条件の最適化により更に大きな電界効果が得られることが期待される成果も得られた。

研究成果の概要(英文)：Spin Hall switching is considered as a promising way of the next generation writing scheme of the magnetic random access memories. This study focused on the effect of the applied electric field on the spin Hall switching of Co and Fe ultrathin films, where the electric field was applied through HfO₂/MgO insulation layer. Moreover, the effect of the electric field on the spin dynamics was also studied. The coercivity and current density of the spin Hall switching were modified by the electric field as 43 %/(V/m) and 20 %/(V/m), respectively. The modifications of the coercivity and the current density of the spin Hall switching by the electric field were found to be sensitive to the deposition condition of the insulation layer.

研究分野：磁性薄膜工学

キーワード：電子・電気材料

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM）やスピン FET に代表されるスピントロニクスデバイスにおいては磁性材料の磁化方向が記憶の機能を担い、情報の書き換えのために磁化方向を反転する。MRAM 磁化反転技術は電流磁界（第 1 世代）からスピン偏極電流によるスピン注入磁化反転（第 2 世代）に発展し、磁化反転の大幅な低消費電力化を達成した。しかしスピン注入磁化反転においても、反転に必要な消費電力は磁性体の磁化反転のエネルギー障壁に比べると数万倍も大きく、ほとんどのエネルギーを無駄に消費している。このため、より高効率な磁化反転手法が世界的に研究されており、次世代技術として電界アシスト磁化反転が注目されている。これは電界により記憶を担うメモリ層材料の特性を変化させ、微小なスピン偏極電流を用いて磁化反転する技術であり、現行より数桁の低消費電力化が可能と考えられる。

電界アシスト磁化反転についてスピン注入磁化反転の素子構造と同じ構造でいくつか報告がある①。これは素子構造が簡単であるというメリットはあるが、電界印加とスピン注入に同一の配線（トンネル障壁）を用いるため、両者を独立に制御することが困難である。一方、スピン注入磁化反転に代わる新たな磁化反転手法としてスピンホール効果を用いた磁化反転が検討されている②。これは磁性薄膜に隣接する非磁性層内に電流を流すことで、それに垂直に生成する純スピン流を用いた磁化反転である。このスピンホール磁化反転は膜面内に電流を流すことで磁性体の磁化反転を誘起できるため、この素子に電界印加電極を付与することで、電界印加とスピン流の注入を独立に制御し、電界アシスト磁化反転について系統的に理解できるようになると期待される。さらにスピン注入磁化反転やスピンホール磁化反転などのスピン流による磁化反転は磁化のダイナミクスと密接に関連があり、電界印加時の磁化ダイナミクスについても検討を行うことで、電界アシスト磁化反転現象について包括的な理解が期待される。

2. 研究の目的

本研究では第 3 世代の磁化反転手法として研究が進んでいるスピンホール磁化反転のメモリ層に絶縁層を介して電界を印加し、スピンホール磁化反転の電界印加効果を調べる。また、電界印加時、スピン流注入時のスピンドイナミクスを実験的に調べ、電界アシストスピン流磁化反転現象を包括的に理解することを目的とする。

3. 研究の方法

超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて、Co 超薄膜、Fe 超薄膜（膜構成：MgO (10 nm) / Co (0.3~0.6 nm) / Pt (1.5 ~ 5 nm) / SiN (5 nm)、MgO (10 nm) / Fe (0.3~0.6 nm) / Pt (1.5 ~ 5 nm) / SiN (5 nm)）を熱酸化膜付き Si 基板および合成石英ガラス基板の上に成膜した。これらの超薄膜は電子線露光装置、マスクアライナ、Ar⁺イオンエッチング装置を用い、3 μm ~ 100 μm 幅のホール効果測定用十字パターンに微細加工した。その後、電圧を印加するための上部電極をフォトリソグラフィによるリフトオフ法により作製した。絶縁層は HfO₂ (50 ~ 100 nm)を用いた。電圧印加用電極パターンは Al (100 nm)または ITO (100 nm)を用いた。ITO は超短パルス光による時間分解磁気 Kerr 効果 (TRMOKE) 測定のために利用した。素子の異常ホール効果の測定は、膜面内方向に電流 30 ~ 100 μA を流し、電流に直交する電極から異常ホール電圧を検出した。スピンホール磁化反転測定は、膜面内方向に外部磁界を 200 Oe 程度を印加し、パルス幅 10 μs ~ 1 ms のパルス電流を印加した後の異常ホール電圧を測定することで調べた。スピンホール磁化反転や異常ホールループの測定は、電極にゲート電圧 $V_G = -20 V \sim +20 V$ を印加して行い、電界印加効果を調べた。

電界印加時のスピンドイナミクスは、中心波長がポンプ光 1040 nm、プローブ光 520 nm、パルス幅 500 fs、繰り返し周波数 100 kHz のファイバレーザーを用いた TRMOKE 計測により見積もった。測定時には外部磁界を膜面法線方向から 40° ~ 80°に印加し、その大きさを 4 kOe ~ 14 kOe で変化させた。なお、試料微細加工前の薄膜の磁気特性は、交番磁界勾配磁力計、磁気光学スペクトル測定装置、X 線回折装置などを用いて測定した。

4. 研究成果

図 1 は電界アシストスピンホール磁化反転観測用に作製した Co 超薄膜素子の光学顕微鏡像である。基板上の Co 超薄膜は電子線露光装置により 3 μm × 6 μm のホールクロス状に加工され、絶縁層の HfO₂ (100 nm)を介して超薄膜に電界を印加できるようになっている。I+, I-は電流パルス印加端子であり、V+, V-は異常ホール電圧検出端子である。

図 2 は Al (100 nm) / HfO₂ (100 nm) / MgO (10 nm) / Co (0.4 nm) / Pt (3 nm) / SiN (5 nm) / 熱酸化膜付き Si 基板にゲート電圧 $V_G = -20 V, +20 V$ を印加した場合の異常ホールループである。ここで、Co 超薄膜の電界効果は HfO₂ 膜のスパッタ条件により大きく変化することが分かっているが、図 2 は Ar 圧 0.4 Pa にて HfO₂膜を成膜した素子の結果である。異常ホールループ

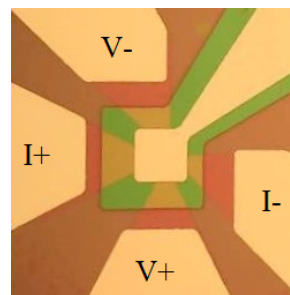


図 1 電界アシストスピンホール磁化反転確認のために微細加工した Co 超薄膜の光学顕微鏡写真

プの保磁力は $V_G = +20$ V とき 345 Oe, $V_G = -20$ V のとき 291 Oe となり, 単位電界当たりの保磁力変化量は 42.9 %/(V/nm) と見積もられる. これから 1 nm のトンネル障壁に 1 V の電圧を印加することで保磁力を約半減できることが期待される.

図 3 は Al (100 nm) / HfO₂ (100 nm) / MgO (10 nm) / Co (0.4 nm) / Pt (3 nm) / SiN (5 nm) / 熱酸化膜付き Si 基板にゲート電圧 $V_G = -20$ V, +20 V を印加しながら測定したスピンホール磁化反転の観測結果である. なお, HfO₂ 膜は Ar 圧 1.0 Pa にて成膜しており, スピンホール磁化反転は膜面内に 200 Oe の磁界を印加し, 磁化反転のパルス電流は 0.1 ms とした. 図 3 に示すように正のパルス電流印加により Co 超薄膜の磁化が上向きから下向きへ, 負のパルス電流印加により磁化が下向きから上向きへ変化している. 磁化反転に必要な電流密度 J_c は約 40 MA/cm² 程度とこれまでの報告と同程度であることを確認した. また, 図から正の電圧と負の電圧でスピンホール臨界電流に差が見られることがわかる. $V_G = +20$ V では $J_c = 40$ MA/cm² で, $V_G = -20$ V では $J_c = 37$ MA/cm² でそれぞれ磁化反転した. ここから, 単位電界当たりの臨界電流密度の変化率は 20 %/(V/nm) となり, 実デバイスでは 1 V 程度の電圧印加により大きく臨界電流密度の低減 (電界アシスト効果) が得られることを確認した. なお, この単位電界当たりの臨界電流密度の変化率は同一サンプルの保磁力変化に比べて小さくなった. 保磁力の変化率と臨界電流密度の変化率の差の原因については十分分かっておらず, 更なる検討が必要である. また, 臨界電流密度の変化率は HfO₂ の成膜条件やスピンホール磁化反転のパルスは場にも大きく依存し, これらの相関をより詳細に検討することで, 電界アシストスピンホール磁化反転現象をより深く理解できるものと考えられる.

図 4 は MgO (10 nm) / Co (0.6 nm) / Pt (1.5 nm) / SiN (5 nm) / 合成石英ガラス基板の TRMOKE 測定結果を示している. 測定の外部磁界 H_{ext} は膜法線方向から 70° 方向に印加し, 磁界の大きさは図中に示す. TRMOKE 波形にはポンプ光照射時の急激な磁化変化やその後の磁化の回復に起因する信号も含まれているが, 図 4 はそれらを差し引き, 磁化の歳差運動のみを取り出した結果である. この磁化の歳差運動を減衰振動関数でフィッティングすることで, 各 H_{ext} での歳差運動角周波数と緩和時間を見積もる. これらの外部磁場依存性から Co 超薄膜の異方性磁界 H_k , g 係数, ダンピング定数 α を抽出した. 図 4 の膜については $H_k = 3.8$ kOe, $g = 2.07$, $\alpha = 0.047$ となり, H_k は磁化曲線の測定と良く一致した. また α はバルクの Co に比べ大きくなっているが, これは Co の磁化歳差運動により Pt 層内にスピン流が流入し, それが Pt 層内で拡散するために大きくなっていると考えられる. 事実, Co (0.4 nm) の試料では $\alpha = 0.085$ と上昇し, 上記の考察をよく説明している. この試料に HfO₂ を介して電界を印加し, 磁化歳差運動の変化を測定したが, 今回の測定では明瞭な変化が観測されなかった. この理由として, 今回 TRMOKE 用に作製した試料では, 電界による磁気特性の変化が観測されておらず, 大きな電界効果を示すサンプルにて, 同様の検討を行うことで, 電界によるスピンドायナミクスの変化を検出することができるものと考えられる.

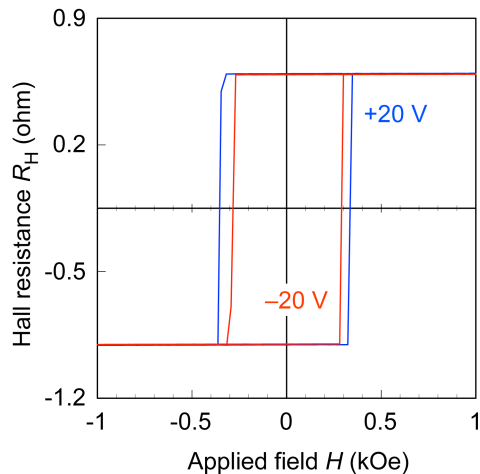


図 2 ゲート電圧 $V_G = +20$ V, -20 V を印加した際の微細加工 Co 超薄膜の異常ホールループ

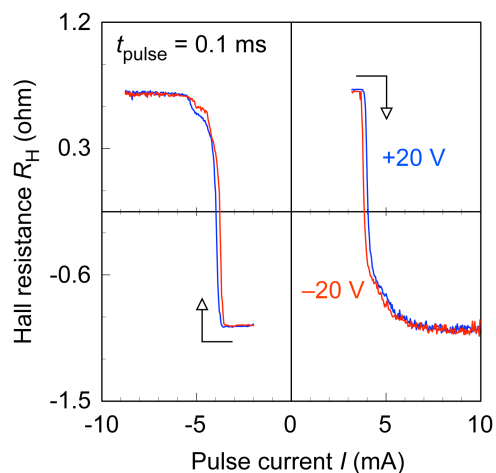


図 3 ゲート電圧 $V_G = +20$ V, -20 V を印加した際の微細加工 Co 超薄膜のスピンホール磁化反転. 電流パルスのパルス幅は 0.1 ms とした.

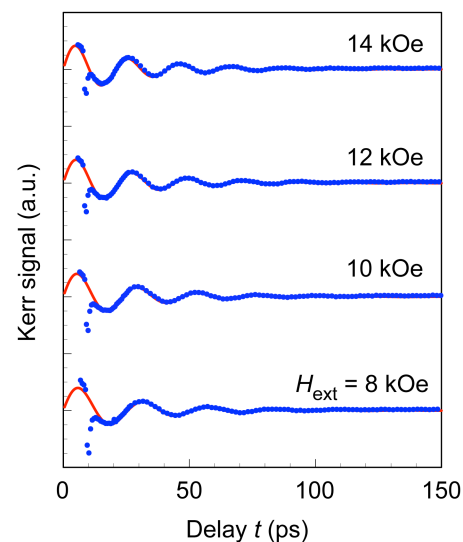


図 4 Co 超薄膜の TRMOKE 測定結果. ●印は実験結果で, 実線は減衰振動によるフィッティング曲線である.

<引用文献>

- ① 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, *Nat. Mater.*, **10**, 853-856 (2011).
- ② L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, R. A. Buhrman, Spin-Torque Switching with the Giant Spin Hall Effect of Tantalum, *Science*, **336**, 555-558 (2012).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計4件)

- ① W. Zhao, X. Dong, T. Kimura, T. Kato, D. Oshima, Y. Sonobe, Y. Kawato, S. Iwata, Hybrid Memory Layer With Low Curie Temperature CoPd/Pd Multilayer for High-Density Magnetic Random-Access Memory Cells, *IEEE Trans. Magn.*, 査読有, Vol. 54, 2018, 3401405.
DOI: 10.1109/TMAG.2018.2828138
- ② T. Kimura, X. Dong, K. Adachi, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe, S. Okamoto, N. Kikuchi, Y. Kawato, O. Kitakami, S. Iwata, Spin transfer torque switching of Co/Pd multilayers and Gilbert damping of Co-based multilayers, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 査読有, Vol. 57, 2018, 09TD01.
DOI: 10.7567/JJAP.57.09TD01
- ③ N. Roschewsky, T. Matsumura, S. Cheema, F. Hellman, T. Kato, S. Iwata, S. Salahuddin, Spin-orbit torques in ferrimagnetic GdFeCo alloys, *Appl. Phys. Lett.*, 査読有, Vol. 109, 2016, 112403.
DOI: 10.1063/1.4962812
- ④ T. Higashide, B. Dai, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata, Effective Damping Constant and Current Induced Magnetization Switching of GdFeCo/TbFe Exchange-Coupled Bilayer, *IEEE Magn. Lett.*, 査読有, Vol. 7, 2016, 3505605.
DOI: 10.1109/LMAG.2016.2595502

[学会発表] (計8件)

- ① 國島和哉, 周興, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡, MgO/Co/Pt 積層膜の電界アシストスピンホール磁化反転, *IEEE Magnetics Society 名古屋支部若手研究会* (2019).
- ② 石井克弥, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡, MgO/Fe/Pt 積層膜における Gilbert ダンピング定数 α , 第6回応用物理学会 SC 東海地区学術講演会 (2018).
- ③ W. Zhao, T. Kimura, T. Kato, D. Oshima, Y. Sonobe, Y. Kawato, S. Iwata, Hybrid memory layer with low Curie temperature CoPd/Pd multilayer for high-density magnetic random access memory cells, *IEEE International Magnetics Conference 2018* (2018).
- ④ 周興, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡, 垂直磁化 Co 膜における電界アシストスピンホール磁化反転, *IEEE Magnetics Society 名古屋支部若手研究会* (2018).
- ⑤ T. Kimura, X. Dong, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe, Y. Kawato, S. Iwata, Spin transfer torque switching of Co/Pd-based multilayers with low Curie temperature, *Magnetics and Optics Research International Symposium 2018* (2018).
- ⑥ K. Kawakami, D. Oshima, T. Kato, S. Iwata, Compositional Dependence of spin orbit torques in amorphous GdFeCo films, *62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials* (2017).
- ⑦ N. Roschewsky, T. Matsumura, S. Cheema, T. Kato, S. Iwata, S. Salahuddin, Sign of Spin-Orbit Torques in ferrimagnetic GdFeCo, *61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials* (2016).
- ⑧ T. Kato, T. Higashide, B. Dai, D. Oshima, S. Iwata, Time resolved magneto-optical Kerr effect and spin transfer torque switching of GdFeCo / TbFe exchange coupled bilayers, 第40回日本磁気学会学術講演会 (招待講演) (2016).

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計2件)

名称: 磁気抵抗メモリ装置

発明者: 園部義明, 園田正俊, 加藤剛志

権利者: 園部義明, 園田正俊, 加藤剛志

種類: 特許

番号：特願 2017-20282

出願年：2017 年

国内外の別：国内

名称：磁気抵抗素子及び磁気抵抗メモリ装置

発明者：園部義明，町田顕，加藤剛志

権利者：園部義明，町田顕，加藤剛志

種類：特許

番号：特願 2017-226830

出願年：2017 年

国内外の別：国内

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nuee.nagoya-u.ac.jp/labs/iwatalab/>

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：岩田聡

ローマ字氏名：(IWATA, Satoshi)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：未来材料・システム研究所

職名：教授

研究者番号（8 桁）：60151742

研究分担者氏名：大島大輝

ローマ字氏名：(OSHIMA, Daiki)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：未来材料・システム研究所

職名：助教

研究者番号（8 桁）：60736528

(2)研究協力者

無し。

※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。