

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 13 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560384

研究課題名(和文)低消費電力スピンド制御デバイス用低スピンドamping磁性材料の探索

研究課題名(英文) Research on low spin-damping magnetic materials for the power-efficient spin-controlled devices

研究代表者

高橋 豊 (Takahashi, Yutaka)

山形大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：00260456

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：磁性薄膜の磁気緩和(スピンドamping)現象はパソコンに使われる磁気ディスクの速度や将来のメモリーとして期待されているスピンドメモリ素子の消費電力に影響を及ぼす重要な現象であり、その物理的起源を明らかにすることは素子開発に必須の要件になっている。このために代表的な磁性金属である鉄(Fe)にコバルト(Co)あるいはニッケル(Ni)を微量添加した単結晶合金薄膜を作製して、強磁性共鳴法を用いて磁気緩和係数を測定した。これらの薄膜では熱処理により結晶の状態を向上させると磁気緩和係数は低下することが示された。これは金属内の電子の散乱と磁気緩和が密接に関連しているという理論的予想に合致している。

研究成果の概要(英文)：Spin damping is an important phenomenon which affects the speed of hard disk drives and the power consumption of spin-memory devices under development. Understanding its physical origin is mandatory for the material design of these devices. We have investigated the spin (Gilbert) damping coefficients of Fe thin films with dilute concentrations of Co or Ni, which are 3d transition metals and are widely-used magnetic materials. The films were fabricated in high-vacuum and later some of them were annealed to improve the crystallinity. The Gilbert damping coefficients were measured by the ferromagnetic resonance spectroscopy. It is found that the damping coefficients reduce slightly after annealing. It is theoretically anticipated that the spin damping depends on the scattering rate of electrons in metals. Our findings infer that damping of the films reduces because the scattering rate lowers as the crystallinity improves.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス、電子機器

キーワード：スピントロニクス 磁気記録 強磁性共鳴 磁気緩和係数 3d強磁性遷移金属 rfマグネトロニクスパッキング

1. 研究開始当初の背景

IT 社会においてハード面での基盤となる半導体と磁気デバイスでは過去半世紀以上にわたり微細化による高速化高集積化などの高性能化が進められてきた。しかし現在微細化に伴う問題が顕在化しつつある。CMOS 素子ではゲート長の縮小により待機時リーク電流が増大し、素子全体の消費電力の増大につながっている。次世代磁気記録装置では、光による加熱あるいはマイクロ波照射を併用したアシスト磁気記録が必要になると考えられているが、これも発熱そして電力消費の増大につながる。更にひとつの PC に 3 ~ 6Gbyte 搭載されている DRAM は数十ミリ秒毎にリフレッシュが必要で記憶内容保持のためだけに電力を消費する。発熱は単に装置の冷却が必要になるという点にとどまらない。地球環境保全のために CO₂ の排出削減が強く求められている中で、IT 機器もその例外とはならず消費電力を抑える方策が強く求められる。これに応える技術の一つとして、スピン偏極電流注入磁化反転を使った磁気トンネル接合 (MTJ) 素子に期待が集まっている。シリコン CMOS 技術と MTJ 素子を組み合わせることにより消費電力の小さい論理素子や高速な不揮発性メモリを実現しようと研究がすすめられている。

MTJ の磁化反転スイッチング(磁化平行↔反平行)使われるスピン注入磁化反転は微細化された素子に適した磁化制御技術であるが、スイッチング時に電流を流すのでエネルギーが消費される。消費電力を抑えるために、磁化反転に必要な電流密度 J_c をどこまで下げられるかが重要な課題となっている。Slonczewski のモデルによれば $J_c \propto \alpha E_b$ であり、 J_c は Gilbert 磁気緩和係数 α と平行 - 反平行状態間のエネルギー障壁 E_b との積で与えられる。長期間の熱安定性を考えると E_b を下げることができないので、磁気緩和係数 α を小さくすること(低磁気緩和材料)が消費電力低下のための鍵となる。このように素子実現のために極めて重要な磁気緩和係数 α であるが、これまでは各材料ごとに得られる経験的

なパラメーターとして取り扱われてきた。

2. 研究の目的

次世代磁気デバイスにおける磁化制御法として期待されている電流注入磁化反転であるが、素子の熱安定性を保持しつつ反転閾値電流を低下させるためには磁気緩和係数 α の小さい材料を選択する必要がある。これまでは現象論的パラメーターとして取り扱われてきた α であるが、その物理的微視的起源を解明することにより α の大きさを決定する要因が理解されれば、材料設計の段階で適切な材料を選択する上で有用な情報を与えてくれることになる。本研究では半導体上に製膜された典型的な強磁性体である 3d 遷移金属薄膜を対象として、強磁性共鳴法を用い α の添加原子組成と結晶状態への依存を測定することにより、磁気緩和の物理的メカニズムに迫り低磁気緩和材料を探索する指針を得ることを目的とする。本研究で明らかにされた α の微視的起源は 3d 遷移金属のみならず一般的に他の強磁性体にも適用できることを期待している。

3. 研究の方法

α の微視的起源に関しては近年複数のグループで理論研究が進められている。それらによると次の 4 つの因子が重要であると指摘されている。

- (i) 結晶構造を反映した結晶場
波動関数の軌道運動部分を決める
 - (ii) スピン軌道相互作用(SOI)
波動関数のスピン部分と軌道部分の関係を定める
 - (iii) spin-up/down バンドでのフェルミ面近傍でのバンド分散(状態密度)
 - (iv) 電子の散乱頻度
- 興味深い点はこれらの因子は結晶磁気異方性にも関連していることである。もちろんそれぞれの因子が磁気緩和と磁気異方性に同じ形で寄与するわけではないので、この 2 者が同一の傾向を示すわけではないがこの関連には注意を払う必要がある。

上記の点を踏まえて本研究では GaAs 上に

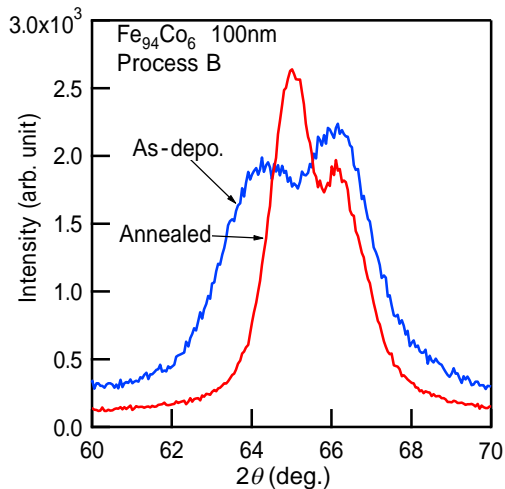


図1 X線回折測定結果

製膜されたFeベースのbcc遷移金属薄膜をモデルシステムとした。具体的にはFeに微量のCo(最大11 at.%)およびNi(最大13 at.%)を添加した系を対象として、添加原子組成、結晶状態(as-depo or annealed)、膜厚をパラメータとしてFMR測定を行い、その共鳴線幅から磁気緩和係数 α を抽出した。単体のFeは磁気緩和係数 α が極めて小さい材料である。これにCoまたはNiを添加することにより以下のように磁気緩和に影響すると考えられている因子を変化させることが出来る。

- (a) SOIを変化させる: CoのSOI係数は70 meV程度でFeの50 meVよりも大きく、Niでは90 meVで更に大きい
- (b) フェルミ面(E_F)を上昇させる: Coの価電子数はFeよりも1つ多く、Niでは2つ多い。このためFeをCo, Niで置換すると E_F が上昇して(E_F 近傍の状態密度に変化があれば) E_F 近傍の状態密度が変化する。
- (c) 電子散乱頻度が変化する: Fe単体の薄膜に比べてCo, Niを添加した薄膜では合金散乱と結晶欠陥により散乱頻度上昇につながる。またas-depo膜に対してanneal処理を施した膜では結晶欠陥の密度が低下し、電子散乱頻度は低下すると期待される。

作製した試料に対してXRDにより結晶状態を確認し、VSMにより基本的な(静的な)磁気特性を測定した。またFMRでは共鳴磁場の

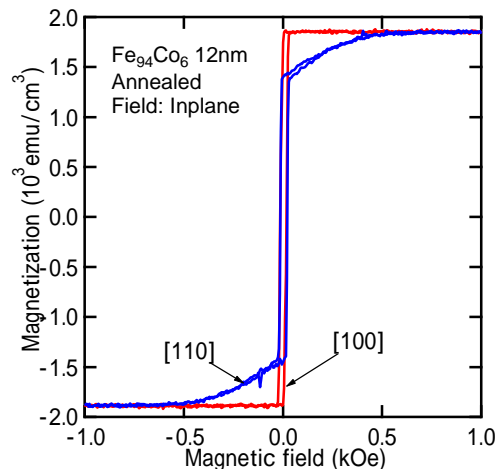


図2 磁化曲線測定結果

印加方向依存から磁気異方性を測定し、共鳴線幅からは磁気緩和を測定した。微視的起源に関連があると指摘されている磁気異方性と磁気緩和を同一の試料に対する同一の測定で得ることが出来た。

4. 研究成果

(1) 試料作製と結晶構造解析

試料はRFマグネトロンスパッタリング法によりFeターゲットを用いepiready n 型GaAs(001)基板上に作製した。CoおよびNiの組成はターゲット上にそれぞれの金属チップを複数配置して制御した。組成(atomic percent)はEDXにより決定した。真空槽の背圧は 0.8×10^{-4} Pa程度で、室温で成膜を行った。薄膜の結晶状態を向上させるために成膜プロセスに改良を加えた。初期のプロセスに対して、改良されたプロセス(プロセス改)ではターボ分子ポンプの排気量増大と成膜前の基板加熱温度上昇(400°Cから450°C)を行い、試料を作製した。(プロセス改/As-depo)更にFe-Co系についてはプロセス改で成膜後に基板を300°Cまで加熱してアニーリングを行った試料も作製した。(プロセス改/Annealed)

図1にプロセス改により作製した膜厚100 nmの $Fe_{94}Co_6$ 膜のXRD(θ - 2θ)測定結果を示す。青で示された回折パターンがAs-depo試料から赤がAnnealed試料である。高角側66.2度付近のピークは基板GaAs(004)からの回折

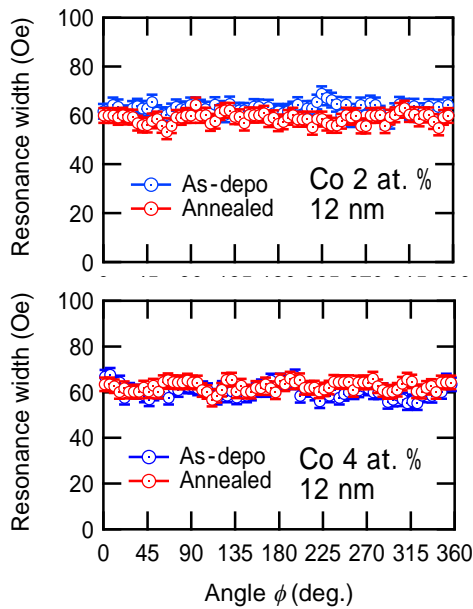


図 3-1 Fe-Co 薄膜(12 nm)に対する FMR 共鳴線幅の面内印加角度依存。上の図が Co 組成 2 at. %で下が 4 at. %。青線が As-depo 試料で、赤線が Annealed 試料に対する測定結果。

で(単結晶基板からの強い回折を抑制するために 0.2 度程度のオフセットをかけて測定した)低角側のピークが $Fe_{94}Co_6(002)$ からの回折である。アニールにより線幅が減少してピークが高角側にシフトしていることが示されており、結晶性が向上していると考えている。他の組成でも同様の傾向が見られた。

(2) 磁化曲線

作製した試料は試料振動型磁束計を用いて面内に磁場を印加した場合の磁化曲線を測定した。例として図 2 に Co 組成 6 at.%で膜厚が 12 nm のアニール処理を施した試料(プロセス改/Annealed)の磁化曲線を示す。[100]方向を容易方向、[110]方向を困難方向とする磁化曲線となっており、これは Fe-Co が GaAs(001)基板上に cube-on-cube の方位関係でエピタキシャル成長していることを示している。Fe-Co 系、Fe-Ni 系いずれの試料でも同様の結果が得られた。また、飽和磁化 M_s は Fe-Co 系では Slater-Pauling 曲線から期待されるように Co 組成が増えるにつれて上昇する傾向が見られ、その大きさもバルク値とほぼ同程度であった。Fe-Ni 系では、今回作製した試料は Slater-Pauling 曲線上でほぼピーク値

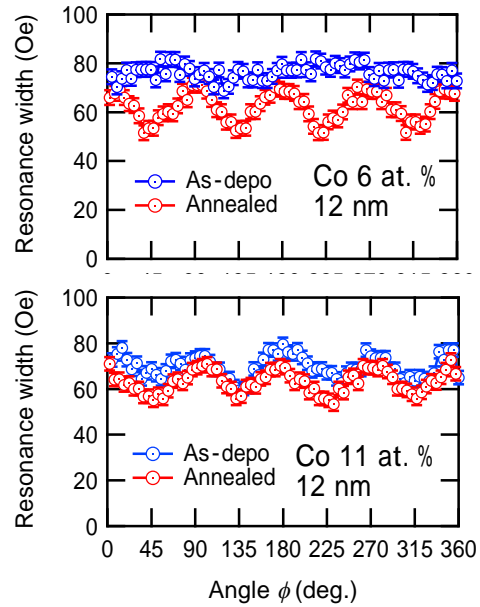


図 3-2 Fe-Co 薄膜(12 nm)に対する FMR 共鳴線幅の面内印加角度依存。上の図が Co 組成 6 at. %で下が 11 at. %。青線が As-depo 試料で、赤線が Annealed 試料に対する測定結果。

をとる組成であるため組成によらない値を示した。

(3) 強磁性共鳴測定：磁気異方性と磁気緩和と磁気異方性と磁気緩和についての知見を得るために室温で通常のマイクロ波キャビティを用いる FMR 分光器を使い、Q バンド(35 GHz 帯)で共鳴スペクトルを測定した。

FMR 共鳴磁場 H_r は薄膜の異方性磁場を直接反映しており、その面内印加方向依存を Bloch の共鳴条件式と比較することにより面内磁気異方性係数を定量的に求めることが出来る。Fe-Co 系、Fe-Ni 系いずれの試料でも H_r の面内分布は[100]を容易方向、[110]を困難方向とする 4 回対称を示しており、VSM 測定と一致する。異方性係数 K_1 を定量的にみると Fe-Co 系では Co 組成 0 at. % から 11 at. % の範囲でほぼ一定の値を示すのに対して Fe-Ni 系では Ni 組成が増加すると K_1 は低下する。バルク Fe と Ni では K_1 の符号が異なることが知られているが、結晶構造の違いとそれにより電子状態が異なるので単純な内挿はできない。理論(第 1 原理計算)との比較が必要であると考えている。同じ Co 組成で As-depo 試料

と Annealed 試料を比較するとアニールにより K_1 が上昇する傾向が見られる。

FMR 共鳴磁場の線幅 ΔH_r は磁気緩和係数 α を直接反映することが知られている。但し結晶欠陥等に起因する extrinsic damping に注意を払う必要がある。以下では Fe-Co 系における As-depo 試料と Annealed 試料の比較に焦点を当てて報告する。図 3-1 および 3-2 に Co 組成 2 at. % から 11 at. % の ΔH_r の面内印加磁場方位依存を示す。青で示したデータが As-depo 試料で赤が Annealed 試料である。6, 11 at. % のデータに見られる 4 回対称で 90 度付近に山を持つ角分布は extrinsic damping の一つ Two-Magnon Scattering によるもので膜面内に規則的に入った dislocation による magnon の散乱に起因している。(α 自体の角分布は小さいと考えられている。) それぞれの組成で As-depo 試料と Annealed 試料を比較すると、4 at. % を除いてアニールにより磁気緩和が低下する傾向が見られる。室温付近において Fe では散乱頻度が低下すると α は減少すると理論的に予想されており、アニールにより結晶性が向上し電子散乱頻度が低下したことによると考えることが出来る。アニールが電子散乱に与える影響を確認するために室温で Fe-Co 薄膜の電気抵抗率を測定した。こちらでもアニールにより抵抗率が低下する傾向が見られ、散乱頻度が低下していることを示している。しかしながら線幅 ΔH_r でも抵抗率でもアニールによる効果は小さい。今回の測定は室温で行ったためにそれぞれの物理量に寄与している散乱はフォノン散乱が支配的で、アニールで結晶性が向上したことによる電子散乱頻度の変化を隠してしまっていると考えられる。フォノンの寄与が小さい低温での測定が強く望まれる。

(4) 本研究による知見

本研究により Fe をベースとした bcc-3d 遷移金属結晶薄膜の磁気緩和係数 α が結晶性に依存しており、結晶性が向上して電子散乱頻度が低下すると α は低下する傾向にあることが示されたと考えている。 α の組成変化はみら

れなかった。これは SOI が大きい Co と Ni 添加したが今回取り扱った組成領域ではその効果は小さいこと、さらに Co, Ni 添加により電子密度が変化するがこの寄与も小さいことを示唆する。

(5) 今後の展望

この研究結果は α の微視的起源について示唆を与えるが、断定的な結論を示すには至っていないと考えている。 α への電子散乱の寄与を明確にするためにはフォノンの影響をとり除くために低温 (77 K) での測定が必要である。現在これに向けて実験装置の準備を進めている。また、微視的起源を議論するためには電子状態 (バンド分散、状態密度) と α との関係を明らかにする必要があり、理論計算と実験との比較が望まれる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

Y. Wada, Y. Takahashi, N. Inaba, F. Kirino, M. Ohtake, M. Futamoto
“Ferromagnetic Resonance Study of $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x/\text{GaAs}(001)$ ($x < 11$) Deposited by RF Magnetron Sputtering”
Journal of the Magnetic Society of Japan
(Proceedings of ICAUMS 2012)
37 (3-2) pp.166-170 (2013) 査読有

Y. Takahashi, H. Ikeya, N. Inaba, F. Kirino, M. Ohtake, M. Futamoto
“Q-Band Ferromagnetic Resonance Study of Fe Thin Films on GaAs(001) Deposited by RF Magnetron Sputtering”
IEEE Transactions on Magnetics
47 (12) pp. 4682-4685 (2011) 査読有

[学会発表] (計 5 件)

M. Tsuruike, H. Fujita, Y. Takahashi, N. Inaba, M. Ohtake, M. Futamoto, F. Kirino
“Angular dependence of ferromagnetic resonance line width for $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x(001)$ single crystal thin films with bcc and fcc crystal structure”
Intermag Europe 2014 ES-15
2014 年 5 月 7 日 Dresden, Germany

草岡昭成, 高橋豊, 稲葉信幸, 桐野文良,
大竹充, 二本正昭

「スパッタ法により作製した GaAs 上
FeCo 単結晶薄膜のアニーリング効果」
応用物理学会東北支部第68 回学術講演会
2013 年 12 月 6 日山形大学工学部(米沢市)

木村純, 高橋豊, 稲葉信幸, 桐野文良,
大竹充, 二本正昭

「RF スパッタ法により作製した GaAs 基
板上 FeNi 合金薄膜の結晶および磁気特
性」

応用物理学会東北支部第68 回学術講演会
2013 年 12 月 6 日山形大学工学部(米沢市)

稲葉信幸, 高橋豊, 桐野文良, 大竹充,
二本正昭

「強磁性共鳴法による各種強磁性単結晶
薄膜の磁気緩和定数評価」

日本磁気学会第 186 回研究会

2012 年 11 月 2 日

中央大学駿河台記念館(東京)

和田祐也, 高橋豊, 稲葉信幸, 桐野文良,
大竹充, 二本正昭

「RF スパッター法による GaAs(001)上へ
の微量 Co 添加 Fe 薄膜成長」

応用物理学会東北支部第66 回学術講演会

2011 年 12 月 1 日

いわて県民情報交流センター(盛岡)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

<http://takahashilab.yz.yamagata-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 豊 (TAKAHASHI, Yutaka)

山形大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号: 00260456

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

稲葉 信幸 (INABA, Nobuyuki)

山形大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号: 50396587