

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420295

研究課題名(和文) スピン制御デバイスの消費電力低減を目指した磁気緩和と磁気異方性の電界制御の検討

研究課題名(英文) Research on the voltage control of magnetic damping and magnetic anisotropy for power-efficient spin devices

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：スピン制御磁気デバイスの低消費電力化のために電圧制御の可能性が検討されている。このためにはデバイスの動作に重要なパラメータである磁気緩和係数と磁気異方性係数の物理的起源を明らかにする必要がある。GaAs基板上Co添加Fe単結晶薄膜を試料とし、アニール処理の有無および温度を変化させることにより電子散乱率を変化させ、磁気特性特に緩和係数との関係を検討した。電子散乱率が増加すると、低温(77K)では磁気緩和係数は減少するのに対して、室温では緩和係数は逆に増加するという結果が得られた。これは理論の予測とも合致しており、伝導電子の散乱は磁気緩和の大きさを決める重要な要素の一つであることが示された。

研究成果の概要(英文)：Voltage control of magnetic properties is considered to be the key for power-efficient spin devices. To achieve this, the microscopic origins of magnetic properties including magnetic damping and anisotropy should be elucidated. It is theoretically pointed out that one of the important factors is the electron scattering. We have investigated the contribution of electron scattering to the damping in Co-doped Fe single-crystal thin films whose scattering rates are controlled by annealing or varying the temperature. We have found that, when the electron scattering rate increases, the magnetic damping is reduced at low temperature (77K), while it is enhanced at room temperature. The opposite dependencies of the magnetic damping on the electron scattering rate at low and room temperatures agree with the theoretical studies based on the linear response.

研究分野：工学

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

## 1. 研究開始当初の背景

持続可能な社会を実現するために地球環境保全とエネルギー資源の効率的活用が要求される中で、急激に増大している IT 機器の消費電力抑制は喫緊の課題となっている。IT 機器に使われる主要な素子である CMOS 素子ではゲート長縮小によりリーク電流が増大し、待機時消費電力が増大している。近年不揮発性メモリを CMOS ロジックと主記憶に導入して消費電力を低減する技術が推進されている。この用途では不揮発性メモリには高速、高書き換え耐性、高集積化が求められ、これらを満たす spinRAM 等のスピン制御素子に期待が集まっている。spinRAM では電流注入磁化反転により状態を操作する。磁化反転に必要な電流密度は  $J_c \propto \alpha K_A V$  であり磁気緩和係数  $\alpha$  と磁気異方性係数  $K_A$  の積で与えられる。(Vは素子体積) 記録の熱安定性には  $K_A$  が大きいことが要求されるので、消費電力を抑え同時に記録の熱安定性を担保するためには  $\alpha$  と  $K_A$  の最適化が必要となる。近年更なる省電力化に向けて電界による磁気特性制御が提案されており、磁気異方性を電界により動的に制御できることが実験室レベルでは示されている。

磁気緩和と磁気異方性はともにスピン軌道相互作用(SOI)に起源を持つため  $\alpha$  と  $K_A$  には相関があると考えられている。微視的理論によれば  $\alpha \propto \lambda^2 \times (\hbar/\tau) \times (\text{遷移行列要素 } 1)^2$  であり、SOI の大きさ  $\lambda$  の 2 乗に比例している。一方  $K_A \propto \lambda^2 \times (\text{遷移行列要素 } 2)^2$  でこちらも  $\lambda^2$  に比例する。しかし関与する遷移行列要素は  $\alpha$  と  $K_A$  に対して異なるため、 $\alpha$  と  $K_A$  が比例するという単純な図式は成立しない。更にダイナミックな物理量である  $\alpha$  は電子の散乱時間  $\tau$  に依存するためフォノン散乱、不純物散乱、alloy-disorder 散乱なども  $\alpha$  を決定する要素として考慮する必要がある。

## 2. 研究の目的

スピン制御素子の消費電力低減を実現するためには、その材料となる磁性薄膜の磁気特性にまでさかのぼり磁気緩和と磁気異方性

を支配している物理的機構を明らかにして、この 2 つが組成・結晶歪・温度・電界印加によりどのように変化するかを知ることが鍵となる。本研究では Fe をベースとした試料に対して系統的に磁気緩和および磁気異方性を測定し、スピン制御素子に最適な材料を探すうえでの指針を得ることを目的とする。

## 3. 研究の方法

本研究ではまず電子散乱の磁気特性への寄与を見るために、GaAs 基板上に製膜された単結晶 Fe 薄膜をベースとして、これに同じ 3d 強磁性金属である Co を不純物原子として微量添加して電子散乱頻度を制御した。成膜は rf マグネトロンスパッター法を用い、結晶構造は X 線回折法を用いて測定を行った。静的な磁気特性は試料振動型磁束計(VSM)を用いて測定し、高周波磁気特性は強磁性共鳴法(FMR)を用いた。電子散乱頻度は室温および低温(液体窒素温度)での電気抵抗率より評価した。

また、スピン軌道相互作用(SOI)の寄与を見るために、原子レベルでの SOI が大きい白金(Pt)を微量添付した単結晶 Fe 薄膜も用意した。

## 4. 研究成果

初めに Fe-Co 系薄膜における Gilbert 磁気緩和係数に対する電子散乱の影響を検討した研究について報告する。

### (1)成膜・結晶構造

rf マグネトロンスパッター法を用いて GaA(001) 基板上に bcc Fe<sub>100-x</sub>Co<sub>x</sub> (Co の原子組成  $x$  は EDX 法により決定し 2, 4, 6, 11 at.%) を成膜した。成膜は室温で行い、真空槽の圧力は  $0.8 \times 10^{-4}$  Pa 以下で、成膜時のアルゴンガス圧は 0.7 Pa とした。膜厚と組成が同じ 2 つの試料を連続して成膜し、一方を成膜後に真空槽から取り出さずに 300°C でアニール処理を施した。(以下 As-depo 試料と Annealed 試料と呼ぶ。)

図 1 に膜厚 100 nm, Co 組成 6 at. % の試料の X 線回折パターンを示す。As-depo および Annealed 試料ともに bcc Fe<sub>94</sub>Co<sub>6</sub>(002)面から

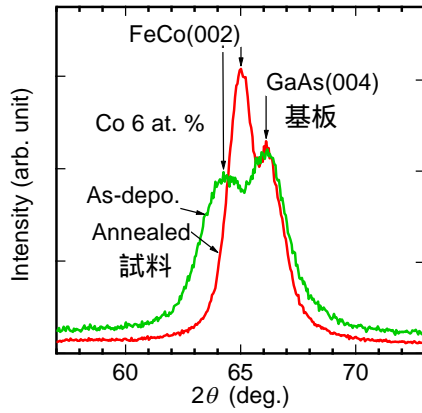


図1 Co組成6 at.%, 膜厚100 nm 試料のX線回折パターン  
 緑 - As-depo.試料 赤 - Annealed 試料

の回折ピークが観測されているが、アニール処理による結晶性の向上によるピーク幅の狭容が見て取れる。更に結晶の面内配向を確認するためにVSMを用いて薄膜面内方向に磁場を印加して磁化曲線を測定した。図2に膜厚が12 nmのFe<sub>94</sub>Co<sub>6</sub> As-depo 薄膜の測定結果を示す。飽和磁化は1750 emu/cm<sup>3</sup>で、<100>方向が容易軸、<110>方向が困難軸となっており、GaAs(001)基板に対してcube-on-cubeの関係で配向してエピ成長していることが確認された。これはAnnealed 薄膜でも同様の結果が得られた。

この配向関係は強磁性共鳴測定でも確認することが出来た。VSM測定と同じ膜厚12 nm、Co組成が6 at. %の試料の共鳴磁場と印加磁場(面内)方向の関係を図3に示した。As-depoとAnnealed 試料共に面内磁気異方性による共鳴磁場の4回対称の変動が観測されており、基板に対して整合して成膜されていることを示している。この角度変化の振幅から磁気異方性係数  $K_1$  を求めると、As-depo 試料の  $3.51 \times 10^5$  erg/cm<sup>3</sup> からアニール処理により  $3.91 \times 10^5$  erg/cm<sup>3</sup> に上昇している。

## (2)電子散乱頻度

試料薄膜における電子散乱頻度は室温および低温(液体窒素温度)における面内電気抵抗を測定することにより評価した。測定は4端子法を用いて行い、磁場は印加されていない。

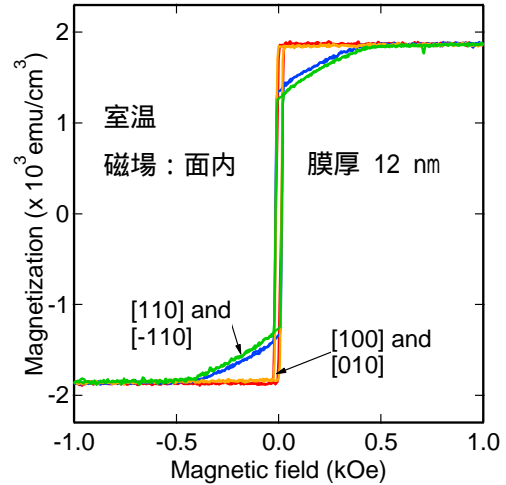


図2 Co組成6 at.%, 膜厚12 nmのAs-depo.試料に磁場を面内に印加した場合の磁化曲線

As-depo 膜と Annealed 膜の電気抵抗率の膜厚依存を図4に示す。As-depo 膜( $\Delta \rightarrow \blacktriangle$ )でも Annealed 膜( $\circ \rightarrow \bullet$ )においても冷却により抵抗率は  $0.09 \mu\Omega\cdot\text{m}$  程度低下している。抵抗率は室温領域ではフォノン散乱が支配的であるが、低温になるとフォノン散乱は消えていく。室温から液体窒素温度への冷却による抵抗率の低下はフォノン散乱からの寄与で、残留抵抗は不純物、格子欠陥、界面ラフネスなど試料の成膜条件に依存する残留散乱によるものと考えられる。室温でも液体窒素温度でもAs-depo 膜よりも Annealed 膜の抵抗率が低い。このことはアニール処理により残留散乱が減少して電子散乱率  $\Gamma_e$  が低下していることを示している。アニール処理により、同じCo組成の薄膜で膜内の電子散乱頻度の異なる試料を得ることが出来た。次にこの散乱頻度の違いが磁気緩和に及ぼす影響を以下で強磁性共鳴法により検討する。

## (3)Gilbert 磁気緩和係数

磁気緩和はキャビティを使用した磁場掃引型の強磁性共鳴分光器を用いて測定した。磁場は膜面内方向に印加し、磁場方向を面内で360度回転させて各角度 $\phi$ で測定を行った。(但し液体窒素を用いた低温測定では装置側の制約から角度を1点に固定して測定した)測定はマイクロ波周波数 35 GHz (Q-band)で

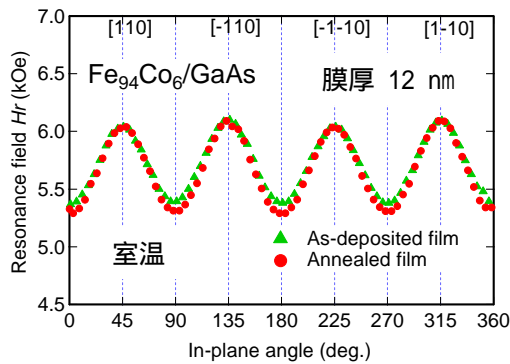


図3 Co組成6 at. %, 膜厚12 nm 試料に磁場を面に印加した場合の強磁性共鳴磁場の面内角度依存  
 緑 - As-depo.試料 赤 - Annealed 試料

行い、共鳴磁場は図3に示すように5.3-6.0 kOeであった。この共鳴磁場は十分に大きく、図2の磁化曲線からわかるように、試料の面内磁化が完全に飽和した状態であり、磁化と印加磁場は平行になっている。

磁気緩和係数(Gilbert damping coefficient,  $\alpha$ )は強磁性共鳴の線幅 $\Delta H_r$ から評価する。但し線幅はGilbert緩和係数 $\alpha$ 以外にもいくつかの要因によって広がるため注意が必要である。このためには $\Delta H_r$ の面内角度 $\phi$ 依存が重要な指標となる。3d遷移金属ではGilbert緩和の $\phi$ 依存は小さい。これに対して別の主要な緩和過程と考えられているTwo-magnon-scattering(TMS)では、GaAs上のbcc Fe系の薄膜の場合に4回対称の角度依存を示すことが知られている。

室温で測定した膜厚12 nm、Co組成6 at. %の薄膜における共鳴線幅 $\Delta H_r$ の面内角度 $\phi$ 依存を図5に示す。 $\Delta$ はAs-depo薄膜、 $\circ$ がAnnealed薄膜)  $\Delta H_r$ はGilbertダンピングによる角度 $\phi$ に依存しない成分に、TMSによると考えられる4回対称の成分が重畳している。TMSの寄与がなくなる $\langle 110 \rangle$ 方向の $\Delta H_r$ がGilbertダンピングからの寄与の上限を与えている。データ点にばらつきはあるもののAnnealed試料に対する $\Delta H_r$ の角分布(赤線)の方がAs-depo試料の角分布(緑線)よりもわずかに狭くなっている。角度で平均した $\Delta H_r$ はアニール処理により62 Oeから58 Oeに減少

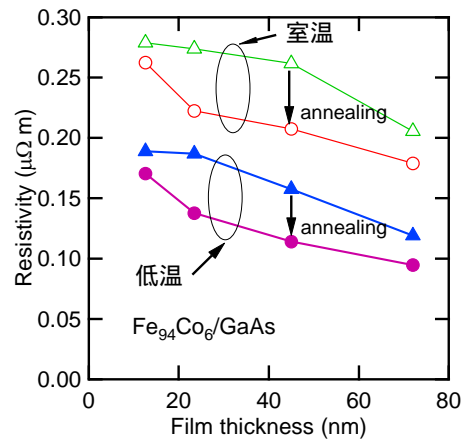


図4 室温域および液体窒素温度におけるCo組成6 at. % 薄膜のアニール処理による電気抵抗率の低下を膜厚12 nmから72 nmの試料について示す。

している。

同一の試料を用いて液体窒素温度でも共鳴線幅を測定した。(装置の制約により $[T \ T \ 0]$ 方向(225度)1点のみ。この方向ではTMSの寄与がなくなる。)  $\blacktriangle$ がAs-depo試料で、 $\bullet$ がAnnealed試料の線幅 $\Delta H_r$ である。低温では $\Delta H_r$ がアニール処理により70 Oeから89 Oeに増加している。

#### (4)本研究による知見

この実験結果は、アニール処理により試料の電子散乱率 $\Gamma_e$ が低下した場合におけるGilbertダンピング定数 $\alpha$ の変化が室温域と液体窒素温度領域では異なることを示している。室温域では電子散乱率 $\Gamma_e$ が低下するとダンピング定数は減少するが、低温域ではダンピング定数は増加する。この傾向は第一原理計算に基づく線形応答の理論から導き出された予測に一致している。これらの理論によれば残留散乱に加えてフォノン散乱からの寄与があり電子散乱率が大きい室温域では”interband contribution”が支配的で、 $\alpha \propto \Gamma_e$ となる。(したがって $\Gamma_e$ が減少すると $\alpha$ も減少する) 一方、電子散乱率が小さい低温域では”inraband contribution”が働き、 $\alpha \propto 1/\Gamma_e$ となる。本研究で得られた実験結果はこの理論を支持する結果となった。

その微視的起源の解明を目指したGilbert磁

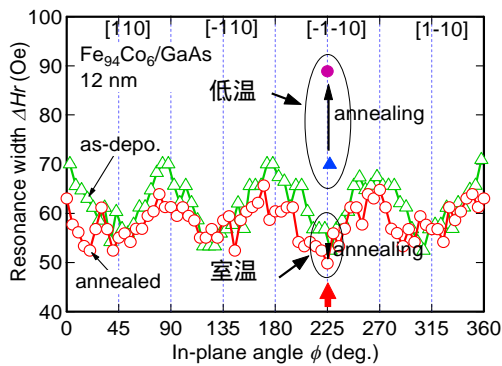


図5 面内に磁場を印加した場合、膜厚 12 nm, Co 組成 6 at.% 薄膜試料のアニール処理による共鳴線幅 $\Delta H_r$ の変化。 $\Delta H_r$ は室温では $0^\circ < \phi < 360^\circ$ の範囲で測定し、低温では $225^\circ$ において測定した。

気緩和係数に対する測定は国内、国外でいくつかのグループで行われているが、電気抵抗率を同じ試料で測定することにより電子散乱頻度と磁気緩和係数の関係を示す報告は本研究が初めてではないかと考えている。

次に、磁気緩和係数および磁気異方性係数とスピン軌道相互作用 SOI の関係性を評価するためにに行った研究について、簡潔に報告する。Fe に SOI の大きい元素として知られる Pt を微量(3, 5, 8 at.%)添加した薄膜試料を作製した。成膜方法は Fe-Co 系と同様である。基板(GaAs(001))に格子整合したエピ膜であることを確認した。この試料に対して VSM による磁化曲線により面内の磁気異方性を測定すると、Pt 組成が大きくなると異方性は低下する傾向にあった。Pt 濃度は規則合金を形成するほど大きくはなく、微量の Pt 添加により Fe 結晶が不規則になり異方性が低下したと考えられる。原子としての SOI が大きい Pt を添加したが、結晶の磁気異方性にはつながらない。Pt 添加が磁気緩和にどのような影響を与えるか興味が持たれる。(これは今後の課題である。)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

A. Iwasaki, T. Suzuki, N. Inaba, Y. Takahashi, F. Kirino, M. Ohtake, M. Futamoto

“Correlation between Gilbert damping and electric resistivity in Fe(94)Co(6)/GaAs single crystal thin films: A role of electron scattering”  
Journal of Physics: Conference series  
(Proceedings of JEMS2016)  
印刷中 (2017) (査読有)

A. Kusaoka, J. Kimura, Y. Takahashi, N. Inaba, F. Kirino, M. Ohtake, M. Futamoto  
“Annealing effects on the ferromagnetic resonance linewidths of sputter-deposited Fe(100-x)Co(x) thin films ( $x < 11$ )”  
Journal of Applied Physics  
(Proceedings of MMM2014)  
117 17A917 (2015) (査読有)

〔学会発表〕(計6件)

K. Fujita, Y. Yamamoto, Y. Yoshida, T. Suzuki, Y. Takahashi, N. Inaba  
“Magnetostriction measurement system of magnetic thin films with Michelson interference”  
JEMS2016 (国際学会)  
2016年8月23日 Glasgow, UK

岩崎晃弘、鈴木貴彦、高橋豊、稲葉信幸、桐野文良、大竹充、二本正昭  
「GaAs 基板上に形成した FeCo 単結晶薄膜の電気伝導率と磁気特性の関係」  
応用物理学会東北支部第 70 回学術講演会  
2015 年 12 月 4 日ホテルアップルランド(青森県平川市)

T. Nishimura, S. Yamanaka, Y. Takahashi, N. Inaba, M. Ohtake, M. Futamoto, F. Kirino  
“Damping constants of Ni(x)Fe(100-x) ( $60 < x < 80$ ) single crystal thin films investigated by Q-band ferromagnetic resonance analysis”  
ICM2015 (国際学会)  
2015年7月7日 Barcelona, Spain

志賀正和、鈴木貴彦、桐野文良、高橋豊、稲葉信幸  
「Co-Cr-Fe 単結晶薄膜の磁気特性」  
応用物理学会東北支部第 68 回学術講演会  
2014年12月4日 東北大学工学部青葉記念会館 (宮城県仙台市)

稲葉信幸、高橋豊、大竹充、二本正昭、  
桐野文良

「強磁性共鳴法による Fe-Co 単結晶薄膜の  
磁気緩和定数評価」

東北大学スピニクス特別研究会

2014年11月13日山形大学工学部（山形県  
米沢市）

M. Tsuruike, H. Fujita, Y. Takahashi, N. Inaba,  
M. Ohtake, M. Futamoto, F. Kirino

“Angular dependence of ferromagnetic  
resonance linewidth for Fe(100-x)Co(x)(001)  
single crystal thin films with bcc and fcc crystal  
structures”

INTERMAG Europe 2014（国際学会）

2014年5月7日 Dresden, Germany

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

出願状況（計0件）

取得状況（計0件）

〔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・理工学研究科・准教授  
研究者番号：00260456

### (2)研究分担者

### (3)連携研究者

稲葉 信幸（INABA, Nobuyuki）  
山形大学・理工学研究科・教授  
研究者番号：50396587

### (4)研究協力者