MgO/Co/Pt 積層膜における磁気異方性および ダンピング定数の電界効果

砂古口藍子、大島大輝、岩田聡*、加藤剛志 (名古屋大、*名産研)

Electric field effect of magnetic anisotropy and damping constant in MgO/Co/Pt trilayers A. Sakoguchi, D. Oshima, S. Iwata*, T. Kato (Nagoya Univ., *NISRI)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)は、高い書き換え耐性があり、高速で読み書きが可能な不揮発性メ モリとして注目される一方で、書き込み時の消費電力の低減が課題である。電界アシスト磁化反転¹⁾は、現 在主流のスピン移行トルク(STT)磁化反転に対し、書き込み時の電力を飛躍的に低減できる技術として注 目されている。電界アシスト磁化反転において安定した書き込みを行うためには、電界印加時における磁性 膜の磁化ダイナミクスを理解する必要がある²⁾。本研究では、垂直磁気異方性を示す MgO/Co/Pt 積層膜にお いて、垂直磁気異方性とダイナミクスの電界による変調を時間分解磁気光学 Kerr 効果(TRMOKE)を用いて 調べた。

<u>実験方法</u>

スパッタリング装置にて、ITO(35 nm)/MgO(10 nm)/Co(1.2 nm)/Pt(1.6 nm)/Ta(10 nm)/熱酸化膜付き Si 基板を成膜した。異 常ホール効果(AHE)測定のため、Ar⁺エッチング装置を用いて 十字のパターンを作製し、クロス部分に電圧印加用電極を配線 して-3 V~3 V の電圧を印加した。磁化ダイナミクスを調べる TRMOKE では、中心波長 1040 nm、パルス幅 500 fsec、繰り返 し周波数 100 kHz のファイバーレーザを光源とし、Pump 光と して波長 1040 nm、Probe 光として二次高調波の 520 nm のレー ザー光を試料に入射した。測定の際、外部磁界を膜面法線方向 から 73°の角度、5-14 kOe の範囲で印加した。測定した磁化 の歳差運動を減衰振動関数 $exp(-\tau/t)sin(\omega t)$ でフィッティング し、角周波数 ω と緩和時間 τ から実効異方性磁界 H_{keff} 、g 係 数、ダンピング定数 α を算出した。

<u>実験結果</u>

Fig. 1 は AHE と TRMOKE 測定から得た H_{keff} の電界依存であ る。両測定において電界の増加に伴い、 H_{keff} は直線的に減少し た。AHE と TRMOKE の測定から得た磁気異方性の電界効果は それぞれ -32 fJ/Vm, -47 fJ/Vm である。Fig. 2 は α の電界依存 を示している。 α は電界が印加されていない場合, α = 0.024 程 度であったが、電界の増加に伴い減少し、0.3 V/nm の電界で 0.019 まで減少した。これは、MgO/CoFeB/Ta 積層膜³で報告さ れている値の 5 倍程度の電界効果であった。

<u>参考文献</u>

- 1) W. Wang, et al., Nat. Mater. 11, 64 (2012).
- 2) R. Matsumoto, et al., Appl. Phys. Express 12, 053003 (2019).
- 3) A. Okada, et al., Appl. Phys. Lett. 105, 052415 (2014).



Fig.1 Electric field dependence of effective magnetic anisotropy field of the MgO/Co/Pt trilayer



Fig.2 Electric field dependence of damping constant of the MgO/Co/Pt trilayer

FeCo/Pt/CoNi 多層膜による DMI の強化

大原健太郎, 劉小晰 (信州大工) Enhancement of DMI on Multi-layer FeCo/Pt/CoNi Kentaro Ohara, Xioaxi Liu (Shinshu University)

<u>はじめに</u>

強磁性体と重金属からなる空間反転対称性の破れた磁性多層膜において、ジャロシンスキ・守谷相互作用 (DMI)によってカイラル磁壁や磁気スキルミオンなどのトポロジカル磁気構造は発現し、それがスピントロニ クス研究として注目されている.磁気スキルミオンはナノスケールの極小なサイズで、トポロジカル的にも 保護されているため、超高密度・超低消費電流の磁気記録デバイスへの応用が期待されている^[1].そのため、 磁気スキルミオンの応用の実現には磁気スキルミオンが室温かつゼロ磁場を含む広い環境の範囲において安 定していることが望まれる.磁気スキルミオンの発現には DMI を有し、膜構造の非対称性が必要であるとい われている.DMI は強磁性体と重金属の界面に生じる相互作用であり、これまで先行研究の多くは DMI の強 化を行うために同じ磁性体を異なる重金属が挟むことによる磁気スキルミオンの発現である.一方で、異な る磁性層を挟む重金属の磁気スキルミオンの発現についての報告は少ない.したがって今回は、 Pt/FeCo/Pt/CoNi/Pt の多層膜(FeCo/Pt/CoNi 膜)において同条件で製膜した Pt/CoNi/Pt/CoNi/Pt (CoNi/Pt 膜)

の多層膜より DMI が強化されたことについて報告する.

<u>実験結果</u>

Fig.1 に CoNi/Pt 膜と FeCo/Pt/CoNi 膜の ヒステリシスループ,磁気光学カー効果 (MOKE) 顕微鏡の観察結果を示す.二 つの膜はマグネトロンスパッタ装置によ って製膜しており、それぞれの膜の層の 厚さは0.5nm 以下になるようにした. そ の結果, CoNi/Pt 膜では保磁力が 70Oe 程 度の垂直磁気異方性を示したのに対し, FeCo/Pt/CoNi は保磁力,残留磁化がほぼ 0な軟磁性を示した.これは一般的にス キルミオンが発現するヒステリシスルー プの形であり,スキルミオンの発現が期 待できる^[2]. 次に MOKE 顕微鏡を用いて, 磁区構造を観察したところ, Fig.1 (b) で CoNi/Pt 膜は DMI がほぼ 0 な磁区構造 を得られたのに対して, Fig.1 (c) で FeCo/Pt/CoNi 膜は DMI が大きい値を示 す磁区構造を得られた.また実際に80e



Fig. 1 (a)Hystereis Loops for Perpendicular Magnitization. (b,c)MOKE images at zero field room temperature (Pt/CoNi/Pt/CoNi/Pt) and (Pt/FeCo/Pt/CoNi/Pt) (d)MOKE images applying 80e Perpendicular field to (Pt/FeCo/Pt/CoNi/Pt).

の垂直外部磁場を与えたとき、FeCo/Pt/CoNi 膜でスキルミオンの発現を確認することができた.したがって、 異なる磁性体を挟む重金属の構造で DMI を大きく強化することができることを確認した.

参考文献

- 1) W. Jiang, G. Chen, et al. Physics Reports. 704 (2014) 1-49.
- 2) T. Nozaki, Y. Jibiki, et al. Appl. Phys. Lett. 2019, 144 012402

[Fe/Co/Ni]n多層膜の作製と温度の最適化

齋藤 彪我¹, 宮下 拓也¹, 熊谷 卓也¹,中尾 太一¹, 古矢大悟¹,小嗣 真人¹ (東京理科大学¹)

Fabrication of [Fe/Co/Ni] n thin films and optimization of temperature

Hyuga Saito¹, Takuya Miyashita¹, Takuya Kumagai¹, Taichi Nakao¹, Daigo Furuya¹, Masato Kotsugi¹ (Tokyo Univ. of Sci.¹)

<u>はじめに</u>

社会の次世代エネルギーの発展に伴い、高い磁気異方性をもつハード磁性材料は非常に重要な役割を 果たす。さらに、資源の枯渇リスクや環境破壊の観点から、貴金属フリーの新規磁性材料が求められて いる。そこで我々は、レアアースフリーかつ高い一軸異方性をもつ規則合金に着目し、*L*1₀ 合金のパル スレーザー蒸着(PLD)法による人工創製と物性調査に取り組んできた。しかしながら、既往の研究では 2元系合金に限定されており、元素種および積層順、また蒸着温度には検討の余地が大きく残されてい る。

そこで本研究では、PLD 装置を用いて Fe、Co、Ni を蒸着元素とし、単原子構造積層により、新たな磁気多層膜の創製を行った。さらに蒸着温度を変えたものを複数作製し、それらの表面構造、結晶構造解析、磁気特性解析を行うことによって作製温度の最適化を行った。

<u>実験方法</u>

実験では、MgO(001)単結晶上に PLD 装置による単原子交互積層法を用いて成膜を実施した。試料の内容としては、Cu 25 nmの下地層の上に(Fe/Co/Ni)を1単位として 51ML 蒸着した。このときの蒸着温度を室温から 600°Cまで 100°Cごとに変化させた。作製した試料については、各層ごとに反射高速電子回折(RHEED)を用いた表面の面内格子定数の調査を行った。物性解析では、原子間力顕微鏡(AFM)を用いて表面平坦性の調査し、X線回折(XRD)を用いて結晶構造を評価した。さらには超伝導量子干渉磁力計(SQUID)を用い、磁気特性評価を行った。

実験結果

Fig1 に XRD 測定で得られた Fe/Co/Ni 試料の 200℃、300℃、400℃においての面外スペクトルを示す。本測定結果より、どの 蒸着温度においても Cu(002)ピークと Cu(004)ピークの広角側に それぞれ試料由来と見られるピークが出現した。また、温度が上 がるごとにそれらのピークが低角側にシフトしていく傾向が見 られた。

Fig2 に SQUID 測定で得られた蒸着温度 300℃作製の Fe/Co/Ni 試料の磁化曲線を示す。磁気ヒステリシスより、飽和磁化 M_s は 549 emu/cc、磁気異方性エネルギー K_u は 9.39×10⁴ erg/cc と算出さ れた。まず磁化容易軸は面内方向であった。今回の試料では蒸着 レートの遅れにより M_s、 K_u ともに値が小さかったが、今後は特 性の更なる向上が期待される。

参考文献

- [1] M. Saito et. al., Appl. Phy. Letters114, 072404, (2019)
- [2] T. Kojima et. al., Jpn. J. Appl. Phys., 51, 010204, (2012)
- [3] H. Ito et al., AIP Advances 9, 045307 (2019)



Fe/Co/Ni

Fe/Co/Ni

Perpendicular magnetic anisotropy of Fe/cubic CrO/MgO heterostructures

Y. Iida^{1, 2}, Q. Xiang², T. Scheike², Z. Wen², J. Okabayashi³, T. Ohkubo², K. Hono^{1,2}, H. Sukegawa² and S. Mitani^{1,2}

¹ Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

² Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba 305-0047, Japan

³ Research Center for Spectrochemistry, The University of Tokyo, Tokyo 113-0033, Japan

Single-crystalline Fe/MgO interfaces show large perpendicular magnetic anisotropy (PMA) of 2 mJ/m².¹⁾ The hybridization of Fe- $3d_z^2$ and O- $2p_z$ orbitals plays an important role for PMA at Fe/MgO interface.²⁾ Moreover, the magnetic anisotropy at Fe/oxide interface can be tuned by the electric field,³⁾ and large voltage control magnetic anisotropy (VCMA) coefficients of 290 fJ/Vm at Fe/MgO interface were reported.⁴⁾ Experimental and theoretical approaches have also been performed for enhancing PMA and VCMA by inserting heavy metals into Fe/MgO interface.^{5,6)} Thus, Fe/MgO based magnetic tunnel junctions (MTJs) are promising for voltage-control magnetoresistive random access memory. In this study, we investigated structure and magnetic properties of Fe/MgO heterostructures formed by a sputtering process and found the formation of rock-salt-type CrO at the Fe/MgO interface, which shows interface PMA energies of 1.55 mJ/m².

The multilayered stacks of MgO substrate (001)//MgO(5 nm)/Cr(30 nm)/Fe(0.7 nm)/MgO(2 nm) were prepared by rf-sputtering. MgO substrate and Cr buffer were annealed at 500 °C. After the deposition, post-annealing was performed at $T_a = 300$, 400, 500 °C, and an as-deposited sample was also prepared for comparison. The structural analyses were performed using aberration corrected scanning transmission electron microscopy (STEM) with energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS). In as-deposited samples, the oxidation of Fe layer was confirmed, suggesting that it was oxidized during the sputter-deposition of MgO layer. After the post-annealing with $T_a = 500$ °C, Cr-oxide was segregated between Fe and MgO layers. From the nanobeam electron diffraction (NBD) patterns, the Cr-oxide layer was characterized as the rock-salt type structure. In addition, it was found that the Fe oxide was reduced by Cr and returned to pure Fe.

The magnetic properties were investigated using a vibrating sample magnetometer. Saturation magnetizations increased with the post-annealing temperatures. The stacks with $T_a = 400$, 500 °C show effective PMA energies of 0.82 and 0.77 MJ/m³, respectively. Interface PMA energies of 1.55 mJ/m² were achieved in the samples with $T_a = 500$ °C, suggesting that the PMA occurs at the Fe/CrO interface. Our demonstration revealed that the diffusion of Cr leads to the well-controlled flat heterostructure, resulting in a cubic CrO ultrathin layer stabilized at Fe/MgO interface.

Acknowledgements

We thank J. Uzuhashi for the structural analyses. This work was partly supported by the JSPS KAKENHI Grant Number 16H06332. Y. I. acknowledges the National Institute for Materials Science for the provision of the NIMS Graduate Research Assistantship.

References

- 1) J. W. Koo et al., Appl. Phys. Lett. 103, 192401 (2013).
- 2) H. X. Yang et al., Phys. Rev. B 84, 054401 (2011).
- 3) T. Maruyama et al., Nat. Nanotechnol. 4, 158 (2009).
- 4) T. Nozaki et al., Phys. Rev. Appl. 5, 044006 (2016).
- 5) T. Nozaki et al., APL Mater. 6, 026101 (2018).
- 6) K. Masuda et al., Phys. Rev. B 98, 224421 (2018).

Rashba 型スピン軌道結合が誘起する Fe/Au(111)界面の 垂直磁気異方性

<u>岡林潤</u>¹、李松田²、境誠司²、三井隆也²、小林康浩³、田中清尚⁴、三谷誠司⁵ ¹東大理、²量研機構、³京大複合研、⁴分子研、⁵NIMS

Perpendicular magnetic anisotropy induced by Rashba-type spin-orbit coupling in Fe/Au J.Okabayashi¹, S. Li², S. Sakai², T. Mitsui², Y. Kobayashi³, K. Tanaka⁴, and S. Mitani⁵ ¹UTokyo, ²QST, 3Kyoto Univ., ⁴IMS, ⁵NIMS

Au (111) 表面上の Fe 超薄膜は、界面における軌道混成の変調により Fe 層が垂直磁気異方性を示すこと が報告されている[1]。第一原理計算やモデル計算、及び磁気円二色性(XMCD)による研究が 20 年来行われて きた[2,3]。しかし、界面の Fe の 3d 軌道状態と軌道角運動量の異方性は明確ではなく、スピン軌道相互作用 が絡んだ特異なバンド構造の元素別な軌道分解解析が重要になる。特に、Rashba 型スピン軌道相互作用が誘 起する垂直磁気異方性について理論的に提唱されており[4]、空間・時間反転対称性の破れたトポロジカルス ピン軌道物性の舞台ともなりうる。本研究では、極薄 Fe 堆積に伴う界面電子状態を調べるために、γ線領域 のメスバウアー分光、軟 X 線領域の X 線磁気円二色性(XMCD)、真空紫外領域の角度分解光電子分光(ARPES) を用いて Fe/Au(111)界面の軌道状態を議論することを目的とする。

試料作製について、超高真空中にて Au (111) 表面に 3 分子層 (ML)の Fe を 150℃にて電子線蒸着により 堆積した。メスバウアー分光測定用に界面 1 層には ⁵⁷Fe 同位体を用い、他は安定核種 ⁵⁶Fe を用いた。最表面 には Au 1nmの被覆層を用いた。単結晶成長を高速電子線回折により確かめた。放射光メスバウアー分光につ いて、SPring-8 B11XU にて 14.4 keV の偏光入射光を用い、20 K にて垂直磁場印加中に測定を行った。XMCD 測定について、高エネルギー研 PF BL-7A (東大理)にて行った。また、分子科学研究所 UVSOR にて、直線偏光 を用いた ARPES を行った。

磁化測定では、Fe 3 ML/Au(111)の構造において垂直磁気異方性を観測した。面内面直の磁化曲線の異方 性が 0.01 μ_B であり、軌道異方性エネルギーに換算すると 10⁵ J/m³となった。さらに、放射光メスバウアー 分光では、微細構造の解析により、原子核内部磁場が界面にて増大した。この理由は、界面の軌道磁気モー メントの増大を反映していることとして説明できることが判った。角度依存 XMCD にて、軌道磁気モーメント の異方性は Δm_{orb} =0.01 μ_B となり、磁化測定と同等の軌道異方性を説明できる。さらに、試料作製後に超高真 空中を搬送し、その場(in-situ)ARPES を行った。Au(111)の表面状態は、Rashba 分裂していることを確認し、 その上に Fe を堆積し、*s*, *p* 直線偏光を用いた ARPES を行った。面内・面直軌道を分解したバンド分散を観 測し、3 ML の Fe 堆積の電子状態は、バルク Fe と異なる Au(111)表面との pd 混成軌道を示した。

これらの結果により、Fe/Au(111)の界面の軌道状態と垂直磁気異方性を議論できる[5]。

(1) *メスバウアー分光にて軌道磁気モーメントを検出できるか* メスバウアースペクトルにおける 内部磁場は $H_{hf} = H_{fermi} + H_{dipole} + H_{orb}$ と表され、原子核周囲のs軌道が軌道モーメント(H_{orb})を有し、sd結合 を通してd軌道の磁気モーメントが判る。Au との界面の成分にて H_{hf} の増大があり、これが軌道モーメント の増大に起因し、XMCD による軌道成分の見積もりと一致することが判った。

(2) <u>Fe/Au(111)の垂直磁気異方性の起源は何か</u> Au 原子のスピン軌道相互作用により Rashba 分裂した Au(111) 6p 表面準位が界面にて Fe と結合することで、Fe の軌道異方性は Au のスピン軌道相互作用を通して獲得できるものと考えられる。このように、異種界面のそれぞれの特性を活かした結果として界面垂直磁気異方性が生じる可能性があり、界面新機能性の開拓に繋がる。

参考文献

[1] K. Shintaku et al., Phys. Rev. B 47, 14584 (1993). [2] O. Toulemonde et al., J. Appl. Phys. 95, 6565 (2004)

[3] P. Ohresser et al., Phys. Rev. B 64, 104429 (2001). [4] S.E. Barnes et al., Sci. Rep. 4, 4105 (2013).

[5] J. Okabayashi et al., submitted.