

Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層の電圧磁気異方性制御Voltage Control of Magnetic Anisotropy in Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ Free Layers

上野鷹幸^{a)†}・船橋信彦^{b)}・金城秀和^{b)}・麻生慎太郎^{b)}・加藤大典^{b)}・青島賢一^{b)}・久我淳^{b)}・
本橋光也^{a)}・町田賢司^{b)}

^{a)} 東京電機大学大学院工学研究科, 東京都足立区千住旭町 5 番 (〒120-8551)

^{b)} NHK 放送技術研究所, 東京都世田谷区砧 1-10-11 (〒157-8510)

T. Ueno^{a)†}, N. Funabashi^{b)}, H. Kinjo^{b)}, S. Aso^{b)}, D. Kato^{b)}, K. Aoshima^{b)}, K. Kuga^{b)},

M. Motohashi^{a)} and K. Machida^{b)}

^{a)} Graduate School of Engineering, Tokyo Denki University, 5 Asahi-chou, Senju, Adachi-ku, Tokyo 120-8551, Japan

^{b)} Science & Technology Research Laboratories, Japan Broadcasting Corporation, 1-10-11 Kinuta, Setagaya-ku, Tokyo 157-8510, Japan

The voltage-controlled magnetic anisotropy (VCMA) of the relatively thick Co₂₀Fe₈₀ (X nm)/Gd (Y nm)/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm) free layers on an MgO insulating layer was investigated for its application to optical devices. The VCMA change of the entire free layers was observed with a Co₂₀Fe₈₀/Gd layer of less than 1 nm, despite the estimated VCMA coefficient was 5.84 fJ/Vm at most. It can be attributed to the VCMA effect generated in the MgO/Co₂₀Fe₈₀ interface. The Co₂₀Fe₈₀/Gd film thickness dependence of the VCMA was evaluated, however it was mostly unchanged. On the other hand, the VCMA was greatly improved by inserting a Tb-Fe-Co underlayer between an electrode and an MgO insulating layer. The VCMA coefficient was increased to 21.8 fJ/Vm. We consider that the increase of VCMA effect was attributed by the improvement of the crystallization of the MgO/Co₂₀Fe₈₀ interface.

Key words: voltage-controlled magnetic anisotropy, magneto-optical kerr effect, magnetic tunnel junction, RE-TM alloy, optical device

1. はじめに

近年, 電流を流すことなく, 電圧によって磁化状態を制御する, 電圧制御磁気異方性 (VCMA) 効果に関する研究が活発に行われている¹⁾⁻⁶⁾. VCMA 効果は, 絶縁層と強磁性体の界面に生じる電界によって磁気異方性が変化する現象であり, 磁気メモリの低消費電力化などへの応用が期待されている. しかしながら, 金属材料では, 自由電子によって電界が遮蔽されるため, 数原子層程度の薄膜でのみ, VCMA の報告がなされている¹⁾⁻⁶⁾. これに対し, 我々は, 光学デバイスへの応用を目指して, 磁気光学材料として知られる RE-TM 合金の Gd-Fe 薄膜に着目し, その VCMA 効果について研究を進めている. パルクと同程度の磁気光学効果を得るためには, 10 nm 程度の膜厚が必要となるが, 我々は過去の報告で, Tb-Fe-Co/MgO/Gd-Fe-MTJ 素子において, MgO 絶縁層と Gd-Fe フリー層との界面に, 厚さ 1 nm 未満の Co-Fe/Gd 層を挿入することで, 厚さ 9 nm の Gd-Fe フリー層において, 垂直保磁力の変化や面内・垂直の磁化方向制御など, VCMA 効果が生じることを見出した⁷⁾. 今回, Co-Fe/Gd/Gd-Fe フリー層の VCMA 効果における Co-Fe/Gd 層の効果を明らかにするため, Ag 電極上に製膜した MgO/Co-Fe/Gd/Gd-Fe において, Co-Fe/Gd 層の構成を変えた素子を作製し, VCMA 係数の改善を試みた. さらに, Ag 電極直上の素子と Tb-Fe-Co/MgO/Gd-Fe-MTJ 素子との比較により, Tb-Fe-Co/Co-Fe 下地層の挿入によって, VCMA 係数が増大することを明らかにしたので報告する.

2. 実験方法

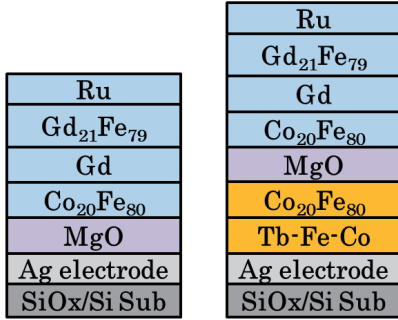
Fig. 1 に作製した試料の膜構成と試作した素子の顕微鏡像, および, 測定系の概略図を示す. 試料は, すべてイオンビームスパッタにて, 表面熱酸化 Si 基板の上に, 室温で製膜した. Ag 電極[Ru (3 nm)/Ag (30 nm)/Ru (3 nm)]上に, 絶縁層[MgO (3 nm)], フリー層[Co₂₀Fe₈₀ (X nm)/Gd (Y nm)/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)], 保護層[Ru (3 nm)]を直接製膜した素子を作製し, Ag 電極と MgO 絶縁層との間に[Tb-Fe-Co (10 nm)/Co₂₀Fe₈₀ (0.5 nm)]下地層を挿入した素子の結果⁷⁾と比較した. Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)単層では VCMA 効果は発生しないため, 厚さ 1 nm 未満の Co₂₀Fe₈₀/Gd 層を挿入した. Gd₂₁Fe₇₉ よりも飽和磁化の大きい Co₂₀Fe₈₀ を絶縁層の界面に挿入することで, Co₂₀Fe₈₀ に生じる VCMA 効果により, フリー層全体の異方性を制御することを考えた. Co₂₀Fe₈₀/Gd の層厚が異なる素子を作製し, VCMA 効果を評価した. また, MgO の結晶性向上による VCMA 効果の改善を期待して適用した, 非晶質 Tb-Fe-Co 下地層の効果について検証した.

電子線描画とイオンビームミリングにより, フリー層を 10 μm 角の素子に加工した後, 透明電極材料である In-Zn-O で上部透明電極を形成した. 素子の評価には, マイクロカー測定装置を用いた. 上部電極側をプラスとして素子に直流で±1.5 V までの電圧を印加した状態で, 垂直方向の磁界を印加して, カーヒステリシスループを取得した. 測定用レーザーのスポットサイズは 2 μmφ であり, 波長は 658 nm とした.

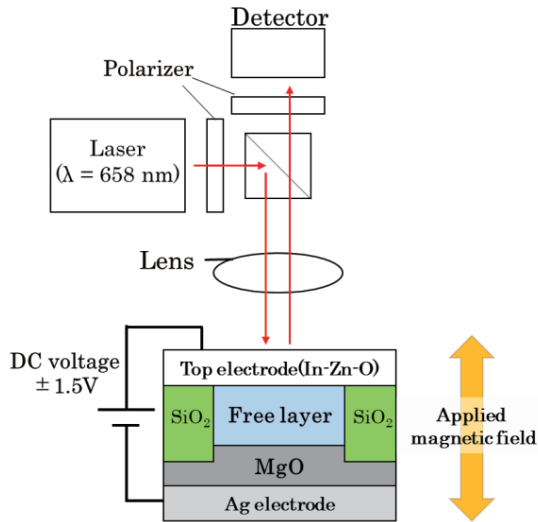
また, 磁化容易軸が膜面内方向の素子については, 規格化したカーループと飽和磁化 M_s の値を用いて式(1)より異方性エネルギー E を求めた後, 印加電圧ごとの異方性エネルギーの変化量から

VCMA 係数を算出した⁹⁾。ここで、 μ_0 は透磁率であり、 M_s は試料振動型磁力計(VSM)を用いて測定した。

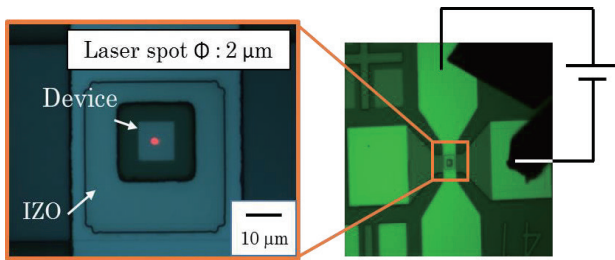
$$E = \mu_0 \int_0^{M_s} H dM \quad (1)$$



(a) Structure of film stacks



(b) Measurement set-up



(c) Micrographs of our device

Fig.1 (a) Structure of film stacks of fabricated devices. (b) A schematic illustration of our measurement set-up for VCMA. (c) Micrographs of our device.

3. 実験結果

3.1 Co₂₀Fe₈₀/Gd 層厚によるフリー層の磁気特性

Co₂₀Fe₈₀/Gd 層の膜厚が異なる素子を作製し、磁気特性を調査した。Fig. 2 に、Ag 電極上に MgO/Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ を製膜した素子において、Co₂₀Fe₈₀ 膜厚を 0.3 nm に固定し、Gd 膜厚を 0 nm, 0.1 nm および 0.2 nm とした素子、また、MgO/Gd₂₁Fe₇₉ を製膜した素子のカーヒステリシスループを示す。Gd₂₁Fe₇₉ 単層の場合、角型比 1、保磁力 805 Oe の垂直磁化を示すのに対し、Co₂₀Fe₈₀ 層を挿入することで、フリー層は面内磁化を示した。このことから、MgO 界面の Co₂₀Fe₈₀ 層は、Gd 層の有無によらず単体では面内磁化であると推測される。また、Gd 膜厚 0 nm において、飽和磁界 H_s は 4.2 kOe であったが、Gd 膜厚を挿入することで垂直磁気異方性が誘起され、膜厚が増加するとともに、1.6 kOe まで減少した。次に、Gd 膜厚を 0.2 nm に固定し、Co₂₀Fe₈₀ 膜厚を 0.25 nm および 0.3 nm とした素子のカーヒステリシスループを Fig.3 に示す。Co₂₀Fe₈₀ が薄くなると、 H_s が 1.6 kOe から 0.7 kOe に減少した。これらの結果から、Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層では、1 nm にも満たない非常に薄い Co₂₀Fe₈₀/Gd 界面の膜構成に応じて、厚さ 9 nm の Gd₂₁Fe₇₉ 層を含めたフリー層全体の磁気異方性が大きく変化する事がわかる。

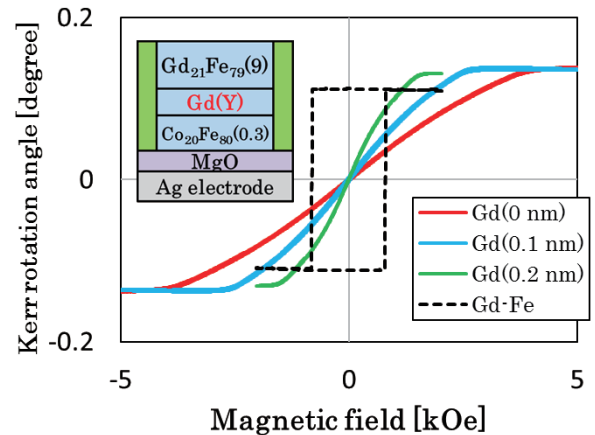


Fig.2 MOKE hysteresis loops of a Ag electrode/MgO/Co₂₀Fe₈₀(0.3 nm)/Gd(Y nm)/Gd₂₁Fe₇₉ and (dashed line) a Gd₂₁Fe₇₉ single layer devices.

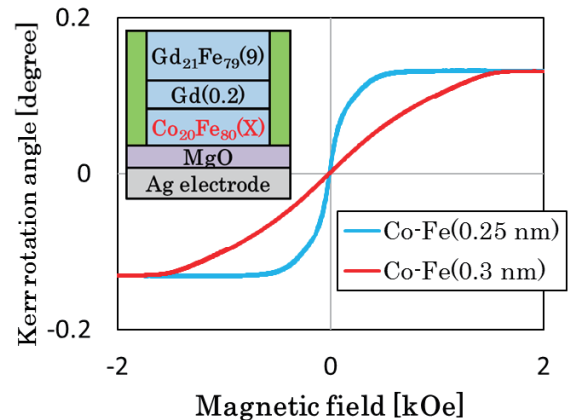


Fig.3 MOKE hysteresis loops of a MgO/Co₂₀Fe₈₀ (X nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ device.

3.2 Co₂₀Fe₈₀ (0.25 nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)フリー層に生じる VCMA 効果

作製した素子の中で、H_Sが最小であった Co₂₀Fe₈₀ (0.25 nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)フリー層の VCMA 効果を測定した。Fig.4 に、各印加電圧における磁気光学特性を示す。黒が印加電圧なし、赤が+1.4 V、緑が-1.4 V の電圧印加時のカーヒステリシスループである。いずれも面内磁化を示したが、電圧印加によりループの傾きに変化が見られた。十方向の電圧では、垂直磁気異方性は増加し、一方向の電圧では減少した。すなわち、これまで VCMA 効果が報告されている金属磁性体の数倍の厚さである 9 nm の Gd₂₁Fe₇₉ を含むフリー層において、電圧印加による磁気異方性の変化が観測された。

規格化したループから VCMA 係数を求めたところ、5.84 fJ/Vm と他の報告に比べて小さな値を示した⁴⁻⁶。このことから、大きな VCMA 効果によって厚い膜の磁気異方性変化が観測されたのではなく、小さな VCMA 効果によって、フリー層全体の磁気異方性が変化したものと考えられる。

Gd₂₁Fe₇₉ の M_sは 98.8 emu/cc であるのに対し、Co₂₀Fe₈₀ (0.25 nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)フリー層の M_sは 174.3 emu/cc と、膜厚 1 nm 未満の極薄膜を挿入しただけで、大きく増大する。Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層では、Gd₂₁Fe₇₉ よりも飽和磁化の大きい Co₂₀Fe₈₀ が絶縁層の界面に挿入されることで、界面がフリー層全体の磁気異方性を支配している。今回の VCMA 効果は、この特殊な層構成によって実現されたと考えられる。

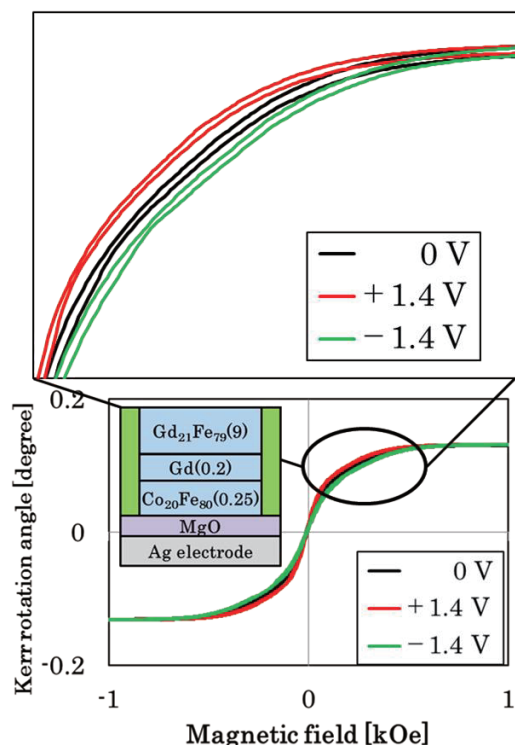


Fig.4 MOKE hysteresis loops of a Co₂₀Fe₈₀ (0.25 nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ free layer with and without an applied DC voltage. The figure above is an enlarged view.

3.3 Co₂₀Fe₈₀/Gd 層厚による VCMA 係数の変化

次に、Co₂₀Fe₈₀ と Gd の膜厚が異なる素子を作製し、それぞれの VCMA 係数を算出した。Co₂₀Fe₈₀ の膜厚は 0.25~0.5 nm、Gd の膜厚は 0.1~0.2 nm の範囲で変化させた。Fig.5 に、測定したカーヒステリシスループを示す。Fig.5(a)は Gd 膜厚を 0.2 nm に固定した上で Co₂₀Fe₈₀ 膜厚を 0.25~0.4 nm の範囲で変えた素子、Fig.5(b)は Gd 膜厚を 0.1 nm に固定した上で Co₂₀Fe₈₀ 膜厚を 0.3~0.5 nm の範囲で変えた素子の結果である。すべての素子は、面内磁化を示しており、Co₂₀Fe₈₀ の膜厚が増えるほど、H_Sが増大することが分かる。Fig.6 に、VCMA 係数の飽和磁界依存性をプロットした。Gd 膜厚 0.2 nm の素子では、Co₂₀Fe₈₀ の層厚が 0.25 nm から 0.4 nm に増えると、VCMA 係数が 5 から 10 fJ/Vm 程度に増加する。一方、Gd 膜厚 0.1 nm の素子では、膜厚による VCMA 係数の明確な変化はみられなかった。

Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層において、Co₂₀Fe₈₀ と Gd₂₁Fe₇₉ は、それぞれ面内および垂直磁化を示すが、それらの間に Gd を挿入することで、Co₂₀Fe₈₀ に垂直磁気異方性が誘起される。Co₂₀Fe₈₀ 層を厚くすることで VCMA 効果の増大を狙ったが、Co₂₀Fe₈₀ 層を厚くし過ぎると、Gd 挿入によって誘起される垂直磁気異方性よりも Co₂₀Fe₈₀ による磁気的性質の影響が支配的となり、Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層の H_S が増大した。この場合、VCMA 効果を検出することは困難であった。

Co₂₀Fe₈₀/Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層において VCMA 効果を増大する

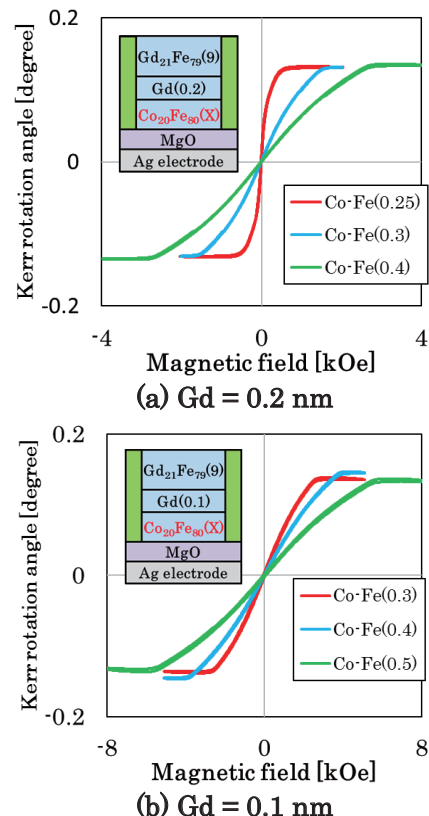


Fig.5 MOKE hysteresis loops of a MgO/Co₂₀Fe₈₀ (X nm)/Gd (Y nm)/Gd₂₁Fe₇₉ device. (a) Gd = 0.2 nm, (b) Gd = 0.1 nm.

ためには、Gd と $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ の膜厚の組み合わせをうまく選択し、磁気異方性を調整する必要がある。しかしながら、この膜構成では、これ以上の向上は期待できないと考えられる。

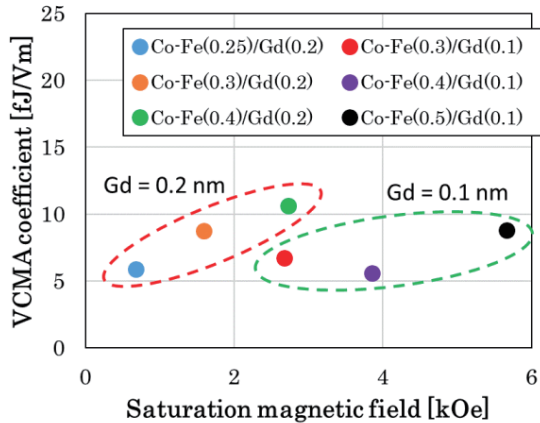


Fig.6 Dependence of VCMA coefficient – saturation magnetic field.

3.4 Tb-Fe-Co/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 下地層による VCMA 効果の増大

Fig. 6 に示した VCMA 係数は、いずれも MgO 絶縁層の直下に Tb-Fe-Co/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 下地層を有する素子⁷⁾ の値 (21.8 fJ/Vm) と比較して半分以下であった。本項では、Tb-Fe-Co/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 下地層の挿入による VCMA 効果の増大について検証する。

フリー層を、 $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ (0.25 nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)/Ru (3 nm) とし、Tb-Fe-Co/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 下地層の挿入前後における磁気特性を比較した。Fig.7 に下地層の有無によるフリー層の磁気特性を示す。赤が下地層あり、青が下地層のない素子のヒステリシスループである。挿入前は面内磁化を示していたフリー層が、下地層の挿入により、角型比1, 保磁力 167 Oe の垂直磁化を示した。

次に、素子抵抗を比較した。下地層ありの素子の面積抵抗 RA および MR 比の値は、それぞれ $1400 \text{ M}\Omega \mu\text{m}^2$ と 25 % (バイアス電圧 100 mV) であった。これに対し、下地層のない素子では RA の値は、 $400 \text{ M}\Omega \mu\text{m}^2$ と大幅に減少した。

下地層の挿入前後で原子間力顕微鏡(AFM)による MgO の表面粗さを測定したところ、中心線表面平均粗さ Ra はいずれも 0.3 nm 程度と変化はみられなかった。

これらの結果より、Tb-Fe-Co/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 下地層により、MgO/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ の結晶化が促進され、抵抗が増加するとともに、界面の $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ に誘起される垂直磁気異方性が増大したと考えられる。

下部電極に用いた Ag 電極は、fcc(111)面に配向しているため、X 線回折によるピークは見られないものの、MgO 絶縁層およびフリー層界面の $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ も fcc(111)面に優先配向していると考えられる。これに対し、Ag 電極と MgO 絶縁層との間に非晶質の Tb-Fe-Co 下地層が挿入されたことで、MgO-MTJ の研究で報告⁵⁾ ⁶⁾ されているように、MgO/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 層が(001) 配向が促進され、結晶性が改善したと考えられる。

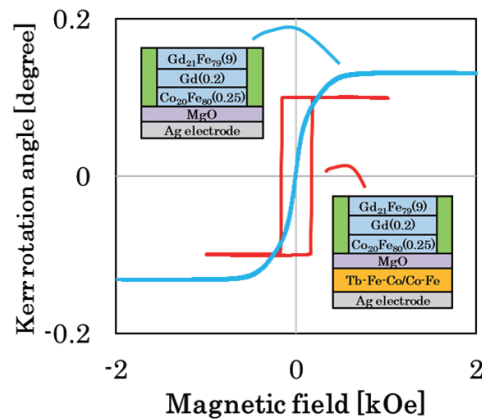


Fig.7 MOKE hysteresis loops of a $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ (0.25 nm)/Gd (0.2 nm)/Gd₂₁Fe₇₉ free layer (red) with and (blue) without Tb-Fe-Co/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ underlayer.

4. 結論

VCMA 効果の磁気光学デバイスへの応用を目指し、磁気光学材料として知られている Gd-Fe 薄膜に着目し、物性値と同程度の磁気光学効果が得られる 10 nm 程度の Co-Fe/Gd/Gd-Fe フリー層において VCMA 効果の改善を試みた。

単層では垂直磁化を示す Ag 電極上の MgO/Gd₂₁Fe₇₉ の界面に、厚さ 1 nm 以下の $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ /Gd 層を挿入したところ、 $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ /Gd/Gd₂₁Fe₇₉ フリー層は面内磁化を示すなど、挿入した層がフリー層全体の磁気異方性に大きく影響することを確認した。

さまざまな膜厚の $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ /Gd 層を挿入した素子について VCMA 効果の評価したところ、Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)層を含むフリー層全体で、電圧による磁気異方性の変化を観測した。VCMA 係数が小さいことから、MgO との界面に形成された $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 層に生じる VCMA 効果によって、フリー層全体の磁気異方性が変化したと考えられる。しかしながら、 $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ /Gd 層の膜厚を変えただけでは VCMA 効果の大きな改善は実現できなかった。

一方で、Ag 電極と MgO 絶縁層との間に Tb-Fe-Co 下地層を挿入した素子において、VCMA 係数が 2 倍以上に増大していることが明らかとなった。Ag 電極と MgO 絶縁層との間に非晶質の Tb-Fe-Co 下地層が挿入されたことで、MgO/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ 層において(001) 配向が促進され、結晶性が改善したためと考えられる。

今回の報告で明らかとなった Tb-Fe-Co 下地層の効果により、保磁力変化や磁化方向の垂直・面内の変化を実現している⁷⁾ が、磁化反転には至っていないため、フリー層の膜厚を生かした、電圧による比較的大きな磁気光学効果の制御には至っていない。今回試作した $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{80}$ /Gd/Gd₂₁Fe₇₉ (9 nm)フリー層のカー回転角は、いずれも約 0.1 度であり、磁化反転を実現することで磁気光学効果を用いた立体ホログラフィーを表示することが可能である⁸⁾。しかしながら、実用的な磁気光学デバイスとするためには、カー回転角を

数度程度まで改善することが望ましい。そのため、今後は電圧による磁化の反転制御や、磁気光学効果の増大に向けて、材料や素子構造について、さらなる検討を進めたい。

References

- 1) M. Weisheit, S. Fähler, A. Marty, Y. Souche, C. Poinsignon, and D. Givord: *Science*, **315**, 349 (2007).
- 2) S. Kanai, M. Yamanouchi, S. Ikeda, Y. Nakatani, F. Matsukura, and H. Ohno: *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 122403 (2012).
- 3) Y. Shiota, T. Maruyama, T. Nozaki, T. Shinjo, M. Shiraishi, and Y. Suzuki: *Appl. Phys. Exp.*, **2**, 063001 (2009).
- 4) S. Miwa, K. Matsuda, K. Tanaka, Y. Kotani, and M. Goto: *Appl. Phys. Lett.*, **107**, 162402 (2015).
- 5) T. Nozaki, K. Yakushiji, S. Tamaru, M. Sekine, R. Matsumoto, M. Konoto, H. Kubota, A. Fukushima, and S. Yuasa: *Appl. Phys. Exp.*, **6**, 073005 (2013).
- 6) K. Tanaka, S. Miwa, Y. Shiota, N. Mizuochi, T. Shinjo, and Y. Suzuki: *Appl. Phys. Exp.*, **8**, 073007 (2015).
- 7) N. Funabashi, H. Kinjo, T. Ueno, S. Aso, D. Kato, K. Aoshima, K. Kuga, M. Motohashi, and K. Machida: *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 4003304 (2017).
- 8) D. Kato, K. Aoshima, K. Machida, A. Emoto, H. Kinjo, K. Kuga, H. Ono, T. Ishibashi, H. Kikuchi, N. Shimidzu: *EPJ Web of Conf.*, **40**, 16006 (2013).

2017年11月6日受理, 2018年1月31日再受理, 2018年3月27日採録