

Co₂FeSi/PMN-PT界面マルチフェロイク構造における 巨大磁気電気結合効果の実証



若 者

宇佐見 喬政*

The giant converse magnetoelectric effect
in Co₂FeSi/PMN-PT multiferroic heterostructures

Key Words : Multiferroic heterostructure, Heusler alloy, piezoelectric material

はじめに

著者は、2020年3月に東京工業大学物質理工学院材料系博士後期課程にて博士(工学)を取得し、大阪大学大学院基礎工学研究科 浜屋研究室にて特任研究員を経た後、2023年10月より同研究室の助教として着任し、現在に至っている。今回、本誌「若者」についての執筆の機会を頂いたので、浜屋研究室にてCRESTプロジェクトの特任研究員として行ってきた界面マルチフェロイク材料に関する研究の成果について紹介させていただきたい。

界面マルチフェロイク材料への期待

現在のコンピューターは、演算対象となるデータを格納するワーキングメモリとして、ダイナミックランダムアクセスメモリ(DRAM)などの半導体メモリを利用している。しかしDRAMは、電源を落とすと格納されているデータが消失する揮発メモリである。そのため、データを保持し続けるために、常時電力を供給する必要がある、待機電力の大きさが問題となっている。

DRAMのような揮発メモリに対して、電力供給なしでデータを保持することができるメモリを不揮発メモリと呼ぶ。ワーキングメモリに不揮発メモリを使用できるようになれば、上述の待機電力の問題を解消できることから、現在、不揮発メモリの研究・開発が盛んに行われている。その中で、スピントロ

ニクス技術を利用した磁気抵抗ランダムアクセスメモリ(MRAM)が、新規不揮発メモリの有力な候補として期待されている[1]。MRAMは、メモリセルとして、磁気トンネル接合(MTJ)素子を利用する。MTJ素子は、厚さ数nmの薄い絶縁層を二つの強磁性層(磁石)が挟んだような三層構造を有しており、二つの磁性層の磁化配置が平行か反平行状態かに応じて、素子の電気抵抗が変化する。この抵抗変化は、トンネル磁気抵抗(TMR)効果と呼ばれている。磁化配置は、外部からの電力供給なく保持できるため、MRAMは、磁化配置によって変化する電気抵抗の大小を情報の1と0に対応付けることで、情報の記録や読み出しを行い、不揮発メモリ動作が可能となる。

磁化の平行/反平行配置を情報の0と1に対応付けるMRAMでは、メモリセルに情報を書き込む際に磁化の方向を外的に制御する必要がある。現在、磁化方向制御には、スピントランスファートルクもしくはスピン軌道トルクと呼ばれる現象を利用することが主流となっている。しかしこれらの情報書き込み手法は、素子に大きな電流を印加する必要があり、情報書き込みに伴う電力消費の大きさが懸案事項となっており、情報書き込み時の電力消費を低減させることが現行のMRAMの主要な課題となっている。この問題を解決するために、電流印加方式に比べて消費電力の少ない電圧印加方式の磁化制御技術の開発が求められている[2]。

様々な電圧印加方式の技術開発が進められる中で、近年、図1に示すような強磁性層と圧電体の積層構造で構成される界面マルチフェロイク構造に注目が集まっている[3,4]。界面マルチフェロイク構造は材料の組み合わせが豊富にあり、室温を含む幅広い温度での動作が可能であるため、他の電圧磁化制御技術に比べてデバイス応用上の利点を有している。実際に界面マルチフェロイク構造をMRAMに適用



* Takamasa USAMI

1992年12月生まれ
東京工業大学 物質理工学院材料系 博士後期課程 修了(2020年)
現在、大阪大学 大学院基礎工学研究科 附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 助教 博士(工学)
専門/スピントロニクス
TEL : 06-6850-6331
FAX : 06-6850-6341
E-mail : usami.takamasa.es@osaka-u.ac.jp

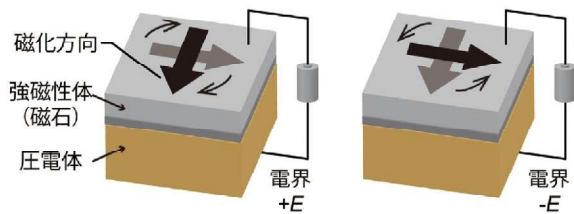


図1 界面マルチフェロイク構造と電界印加による磁化方向制御の模式図。

することで、電流制御型に比べて書き込み電力を3桁程度低減できるといった試算もなされており [5]、有力な電圧磁化制御技術の候補とされている。

一般に界面マルチフェロイク構造の性能は磁気電気結合係数 $\alpha_E (= \mu_0 dM/dE)$ と呼ばれる性能指標で評価されている。この値が大きいほど、小さな電界で磁化を大きく変調できる高性能な材料であることを意味しており、デバイス応用に向けて 10^{-5} s/m を超える値を実証することが必要とされている。これまで、強磁性層に磁歪材料である FeGa 系合金を利用した界面マルチフェロイク構造において、 10^{-5} s/m 台の値は実証されているが [6]、MRAM をはじめとするスピントロニクスデバイスへの応用のためには、高いスピン偏極率を有する材料を強磁性層に利用した界面マルチフェロイク構造において 10^{-5} s/m 台の性能を実証することが重要である。そこで著者らは、デバイス応用に適した強磁性層として、ハーフメタル特性 (伝導電子が完全にスピン偏極した状態) が期待されているホイスラー合金 Co_2FeSi に注目し、圧電体層には大きな圧電効果が期待される $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT) に着目した。もし、ハーフメタルホイスラー合金と PMN-PT で構成されるマルチフェロイク構造において、大きな磁気電気効果が実現すれば、MRAM をはじめとする様々なスピントロニクスデバイスに対して消費電力の少ない新しい電圧印加方式の情報書き込み技術を提供可能となると考え、研究を実施した。

$\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(001)$ 界面マルチフェロイク構造の研究

はじめに、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(001)$ 界面マルチフェロイク構造を作製するために分子線エピタキシー (MBE) 法により、PMN-PT(001) 基板の上に Co_2FeSi 薄膜を成長する条件を探索した。薄膜の成長温度条件などを最適化することで、反射高速電子線回折 (RHEED) 像から明瞭なストロークパターン

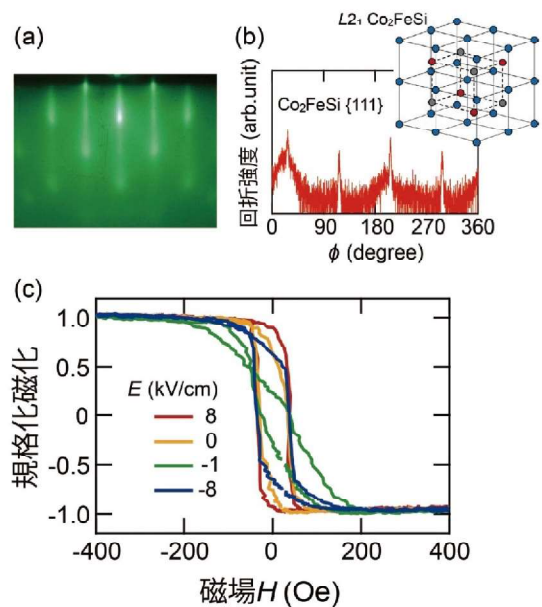


図2 (a) Co_2FeSi の RHEED 像。 (b) Co_2FeSi の XRD (ϕ スキャン) 測定の結果。 (c) $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(001)$ 界面マルチフェロイク構造における電界による磁性変化。

が観測され、試料が二次元エピタキシャル成長していることがわかる [図 2 (a)]。また X 線回折 (XRD) から Co_2FeSi 111 回折線が観測され、 Co_2FeSi がハーフメタル特性発現に重要な $L2_1$ 規則構造を有していることがわかる [図 2 (b)]。また飽和磁化の値も良好であり、PMN-PT 上に高品質な Co_2FeSi 薄膜が成長できたと言える。作製した界面マルチフェロイク構造の磁気電気結合効果を評価するために、電界を印加して磁気光学効果を測定した。図 2 (c) に示すように Co_2FeSi 由来のヒステリシス曲線が電界印加により変調されており、電界印加で磁気異方性が変調されることが明らかになった。これらの結果から磁気電気結合係数 α_E を見積もったところ、 $\alpha_E = 6.3 \times 10^{-6}$ s/m という値が算出され、先行研究と比べても比較的大きな値が得られた [7]。

$\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(011)$ 界面マルチフェロイク構造の研究

Co_2FeSi と PMN-PT が有望な組み合わせであることが明らかとなったため、PMN-PT (001) 面上に比べてさらに大きな歪みが期待される PMN-PT (011) 面の利用を検討した。前項と同様に、MBE 法を用いて PMN-PT (011) 基板の上に Co_2FeSi 薄膜を成長した。図 3 には、作製した界面マルチフェロイク構造の磁気電気結合効果を評価した結果を示す。

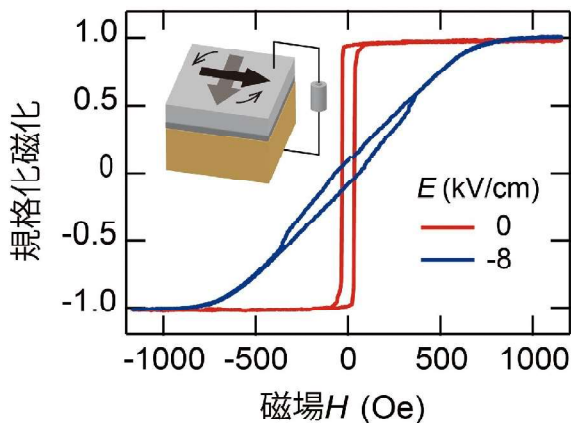


図3 Co₂FeSi/PMN-PT (011) 界面マルチフェロイク構造における電界による磁性変化.

磁気光学効果測定により測定されたループの角型比が顕著に変化しており、挿入図に示すように磁化が面内で90度回転していることが明らかになった。この結果を詳細に解析し、磁気電気結合係数を算出したところ、デバイス应用到必要となる目標値 10^{-5} s/m 台である $\sim 1.8 \times 10^{-5}$ s/m という値が得られた [8]。この値は先行研究で最も大きな FeGa/PMN-PT 系に匹敵する値 ($1.5\text{-}2.0 \times 10^{-5}$ s/m [6]) であり、スピントロニクスデバイスに適用可能な強磁性層を利用した界面マルチフェロイク構造においては世界最高値である [8]。さらに界面マルチフェロイク構造に正負の電界を繰り返し印加した際の残留磁化状態を測定したところ、正負の電界の印加に伴い残留磁化状態は変化し、ゼロ電界に戻してもその状態が保持されていることが明らかになった。このことは電界をゼロに戻した際に磁化が二値状態をとることを意味しており、Co₂FeSi/PMN-PT (011) 界面マルチフェロイク構造において、巨大磁気電気結合効果と同時に、不揮発性スイッチング特性も実証することに成功したと言える [8]。

おわりに

本研究で見出された Co₂FeSi/PMN-PT 界面マルチフェロイク構造は、MRAM をはじめとする様々なスピントロニクスデバイスに対して消費電力の少ない新しい電圧印加方式の情報書き込み技術を提供

するものである。今後は、実デバイスへの組み込みを念頭におき、今回見出された Co₂FeSi/PMN-PT 界面マルチフェロイク構造を MTJ 素子への組み込みを行い、電圧印加による TMR 比の変調実証を目指す予定である。

謝辞

本稿で紹介した研究を遂行するにあたりご協力賜りました大阪大学大学院基礎工学研究科 藤井竣平氏 (博士前期課程・研究当時)、山田晋也准教授、金鳥岳准教授 (研究当時)、小口多美夫特任教授、浜屋宏平教授、大学院工学研究科 白土優准教授、中谷亮一教授、東京工業大学物質理工学院 Amran Mahfudh Yatmeidhy 氏、合田義弘准教授、英国ヨーク大学物理学科 Adam M. Kerrigan 氏、Vlado K. Lazarov 教授に感謝申し上げます。また本研究の一部は、JST CREST (No. JPMJCR18J1)、JSPS 科研費 (No. 19H05616, No. 20K21002, No. 21K14196)、並びに文部科学省「スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク拠点 (Spin-RNJ)」の支援を受けて行われました。また今回、執筆の機会を与えて頂きました大阪大学大学院基礎工学研究科 阿部真之教授に感謝申し上げます。

参考文献

- [1] S. Ikegawa *et al.*, IEEE Trans. Electron Devices **67**, 1407 (2020).
- [2] F. Matsukura *et al.*, Nat. Nanotechnol. **10**, 209 (2015).
- [3] T. Taniyama, J. Phys. Condens. Matter **27**, 504001 (2015).
- [4] J.-M. Hu and C.-W. Nan, APL Mater. **7**, 080905 (2019).
- [5] J.-M. Hu *et al.*, Nat. Commun. **2**, 553 (2011).
- [6] P. B. Meisenheimer *et al.*, Nat. Commun. **12**, 2757 (2021).
- [7] T. Usami *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 142402 (2021).
- [8] S. Fujii, T. Usami *et al.*, NPG Asia Mater. **14**, 43 (2022).