

# Fe/Ir/Co/MgO/ZrO<sub>2</sub> 構造における電圧磁気異方性制御

小野田 浩成, 野崎 友大, 野崎 隆行, 湯浅 新治  
(産総研)

Voltage-controlled magnetic anisotropy in Fe/Ir/Co/MgO/ZrO<sub>2</sub> structures

Hiroshige Onoda, Tomohiro Nozaki, Takayuki Nozaki, and Shinji Yuasa

(AIST)

## はじめに

磁気抵抗効果型ランダムアクセスメモリ (MRAM) に適用可能な低消費電力な書き込み手法として、電圧磁気異方性制御 (VCMA) が注目を集めている。純電子論的な VCMA 効果の起源は、絶縁体/強磁性金属接合への電圧印加により誘起される界面軌道磁気モーメント変化や界面電気四重極の変調により理解されている<sup>1)</sup>。従って VCMA 効果の増大には界面に蓄積される電荷量の増大が有効と考えられる。本研究では、代表的な high-k 誘電層である ZrO<sub>2</sub> 層を導入した構造における VCMA 特性を評価した。

## 方法

MBE 法およびスパッタリング法を用いて MgO(001) 基板上に Cr (50nm)/超薄膜 Fe (0.5-1.0 nm)/Ir (0.06 nm)/Co (0.1 nm)/MgO (0.7, 1.0 nm)/ZrO<sub>2</sub> (2 nm)/キャップ層 Pt (5nm) 構造を作製した。ZrO<sub>2</sub> 層は室温 (RT) もしくは 200°C の基板温度にて作製し、特性比較を行った。VCMA 特性は微細加工素子を用いて、電圧印加下における極カー効果測定から評価した。

## 実験結果

Fig. 1 に MgO/ZrO<sub>2</sub> 層の XRD 測定結果を示す。MgO/ZrO<sub>2</sub> (RT) の試料では、ZrO<sub>2</sub> の回折パターンが確認されていないのに対し、MgO/ZrO<sub>2</sub> (200°C) では  $2\theta = 30^\circ$  付近に回折パターンが確認された。つまり ZrO<sub>2</sub> 層は室温成膜では非晶質構造となり、200°C 成膜では結晶化している。この結果は in-situ 反射電子線回折の結果とも一致した。Fig. 2 に MgO/ZrO<sub>2</sub> (200°C) 素子における極カー効果のバイアス電圧依存性の例を示す。Fe/Ir/Co 層の垂直磁気異方性を反映する面直方向の飽和磁界が電圧印加により明瞭に変化した。規格化した磁化曲線から求めた VCMA 係数は、MgO/ZrO<sub>2</sub> (RT) 素子で -406 fJ/Vm, MgO/ZrO<sub>2</sub> (200°C) 素子では -488 fJ/Vm となり、MgO のみの素子 (-239 fJ/Vm) より大きな VCMA 効果が観測された。講演当日は、各試料の磁気特性や誘電率の詳細についても報告する。

本講演で発表した研究の一部は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務 (JPNP16007) の結果得られたものである。

## 参考文献

- 1) T. Nozaki *et al.*, *Micromachines*, **10**, 327 (2019).

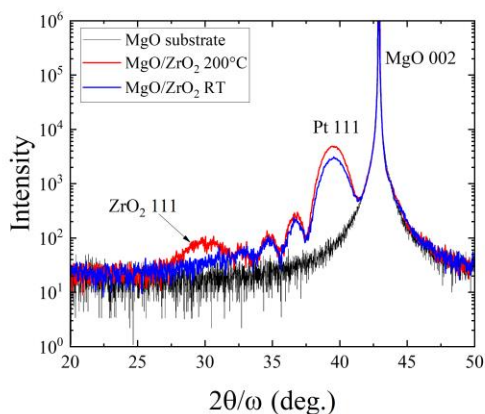


Fig. 1 XRD patterns of MgO/ZrO<sub>2</sub> structures and MgO substrate.

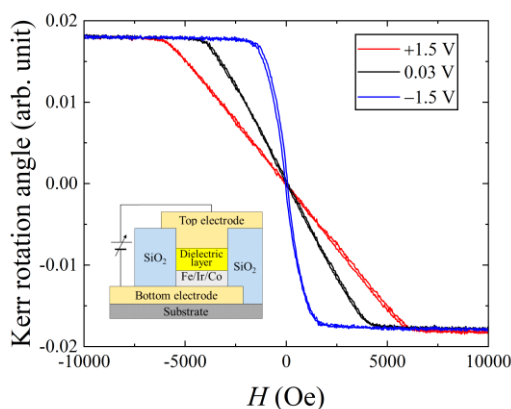


Fig. 2 MOKE hysteresis loops of Fe (0.85 nm)/Ir (0.06 nm)/Co (0.1 nm)/MgO (1.0 nm)/ZrO<sub>2</sub> (2 nm) deposited at 200°C with and without applied DC voltages.

# 界面制御 Co/MgO 接合における VCMA 効果に対する下地層の影響

中山裕康、野崎隆行、野崎友大、湯浅新治  
(産総研)

Underlayer effect on the voltage-controlled magnetic anisotropy in interface engineered Co/MgO junctions  
with heavy metals

H. Nakayama, T. Nozaki, T. Nozaki, S. Yuasa  
(AIST)

## はじめに

低消費電力・高速動作・高書き換え耐性を実現する電圧による磁化の制御手法は、次世代の不揮発性磁気メモリ(MRAM)の情報書き込み技術の候補として注目されている<sup>1)</sup>。特に、電圧磁気異方性制御(Voltage-controlled magnetic anisotropy; VCMA)効果は電圧駆動型 MRAM における基盤技術として期待されており、垂直磁気異方性(PMA)のより大きな磁性材料の効率的な磁化制御を行うため、その高効率化が求められている。VCMA 効果の大きさは VCMA 効率 (印加電圧に対する磁気異方性エネルギーの変化) により特徴付けられ、強磁性金属/絶縁体界面への重金属挿入によって VCMA 効率を向上できることが理論的に指摘されている<sup>2)</sup>。その一方で、従来用いられてきた強磁性金属は bcc-Fe(Co)系の材料が中心であり、十分な PMA を得るためには薄膜試料のアニールが不可欠であった。しかし、この加熱プロセスにより、界面制御層及び下地層材料の拡散が避けられず、VCMA 効果に対する界面制御層の影響を実験的に評価することは困難であった。本研究では、アニールを行うことなく比較的容易に PMA の得られる Co を用いて、異なる界面制御層及び下地層材料を用いた積層構造を作製し、界面制御層における VCMA 効果と下地層の影響を調べた<sup>3),4)</sup>。

## 実験方法

スパッタリングと電子ビーム蒸着を併用することで、熱酸化膜付きシリコン基板上に Ta(5 nm)/Ru(10 nm)/Ta(5 nm)/[Pt(0.8 nm) or Pt(2 nm)/Os(4 nm)]/Co(0.7-1.5 nm)/X (=Pt, Ir, Os)(0-0.28 nm)/MgO(3 nm)/ITO(20 nm)積層薄膜を全て室温下で作製した。ここで、Co層及び界面制御層Xはウェッジシャッターを用いて傾斜膜とし、Pt下地膜厚は面直磁界下における異方性磁界評価のため、面直容易磁化膜とならないように最適化を行った。作製した薄膜について $\mu$ MOKEと試料振動型磁力計を併用することで、磁気特性を調べた。フォトリソグラフィとイオンリングを用いて、薄膜を電圧印加素子に加工した。加工した試料について、DC電圧を印加しながら $\mu$ MOKEによる磁気特性の測定を行った。

## 実験結果

磁気特性について、Pt下地試料・Os下地試料ともに、界面制御層X(=Pt, Ir, Os)を導入することにより、実効的な垂直磁気異方性エネルギーの向上が見られた。電圧効果について、界面制御層無しのCo/MgOではPt下地試料・Os下地試料ともに、-40 fJ/Vm程度のVCMA効率が得られ、VCMA効果に対する下地層の影響は小さいことが確認された。これに対し、界面制御層を導入したPt下地試料では、Pt及びIr界面挿入により、VCMA効率の増大(最大-69及び-80 fJ/Vm)が見られ、Os挿入では、VCMA効率は-13 fJ/Vmまで減少した。さらに、界面制御層を導入したOs下地試料では、Pt界面挿入により最大-100 fJ/Vm程度まで及ぶVCMA効率が得られた一方、Ir挿入ではVCMA効率の変化はほとんどなく、Os挿入により正のVCMA効果が観測され、下地層材料に依存して、重金属挿入界面におけるVCMA効果は劇的に変化することが明らかとなった。これらの結果は、下地層のわずかな拡散及び界面制御層との間の電荷移動を示唆するものと考えられる<sup>3),4)</sup>。

## 謝辞

本研究の一部は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(JPNP16007)の結果得られたものである。

## 参考文献

1) Y. Shiota *et al.*, Nat. Mater. **11**, 39 (2012). 2) K. Nakamura *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **429**, 214 (2017). 3) H. Nakayama *et al.*, Appl. Phys. Lett. **122**, 032403 (2023). 4) H. Nakayama *et al.*, Adv. Mater. Interfaces **10**, 2300131 (2023).

# 低温成長 CoFeB を用いた電圧磁気異方性制御効率の最適化

野崎隆行<sup>1</sup>, 一ノ瀬智浩<sup>1</sup>, 山本竜也<sup>1</sup>, 埋橋淳<sup>2</sup>, 甲野藤真<sup>1</sup>, 薬師寺啓<sup>1</sup>, 大久保忠勝<sup>2</sup>, 湯浅新治<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>産総研, <sup>2</sup>物質・材料研究機構)

Optimization of efficiency in voltage-controlled magnetic anisotropy effect using  
an ultrathin CoFeB layer deposited at low temperature

T. Nozaki<sup>1</sup>, T. Ichinose<sup>1</sup>, T. Yamamoto<sup>1</sup>, J. Uzuhashi<sup>2</sup>, M. Konoto<sup>1</sup>, K. Yakushiji<sup>1</sup>, T. Ohkubo<sup>1</sup>, and S. Yuasa<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>AIST, <sup>2</sup>NIMS)

## 1 はじめに

電圧磁気異方性制御(VCMA: Voltage-controlled magnetic anisotropy)は超低駆動電力な電圧制御型(VC)-MRAM を実現する基盤技術として注目を集めている。VC-MRAM では電圧印加により記録層の垂直磁気異方性(PMA)を打ち消すことで磁化反転を誘起するため、素子サイズ縮小による高 PMA 化とともに大きな VCMA 効率が求められる。これまでエピタキシャル磁気トンネル接合素子(MTJ)では Ir などの重元素ドーピングを利用して-300 fJ/Vm 級の高 VCMA 効率が達成されているが、CoFeB/MgO ベースの標準的な多結晶 MTJ では-50~-70 fJ/Vm 程度に留まっており、特性改善が求められている。我々は最近、低温ステージを有する量産スパッタ成膜装置(EXIM: 東京エレクトロン株式会社製)を用いて MgO トンネル障壁層上のトップフリー超薄膜 CoFeB 膜の作製を試み、ステージ温度 100K での成膜により高品質な MgO/CoFeB 界面が形成されること、さらには室温成膜と比較して、飽和磁化、PMA、磁気ダンピング、VCMA 効率など種々の特性が改善されることを報告した<sup>1,2</sup>。本発表では、Ta および TaB 上のボトムフリー-CoFeB 超薄膜に対して低温成長プロセスを導入し、VCMA 特性比較を行った。

## 2 実験方法と結果

熱酸化膜付き Φ300mmSi ウェハ上にて Ta(5 nm)/Ru(5 nm)/Ta(5 nm)/Ru(5 nm)/Ta or Ta<sub>50</sub>B<sub>50</sub> (5 nm)/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> (0.9 nm)/MgO(2 nm)/CoFeB(3 nm)/Ta(5 nm)/Ru(7 nm)構造を作製した。面内磁界印加下での TMR 測定から PMA および VCMA 特性評価を行うため、下部 CoFeB 層は垂直磁化、上部 CoFeB 層は面内磁化の 90 度磁化配置構造となっている。CoFeB の buffer 材料として Ta および TaB を用いた場合、また TaB 上 CoFeB に関しては、室温および 100K 成膜での特性比較を行った。Ta buffer の場合、ポストアニール温度 350°C で飽和磁化の低下が見られたのに対し、TaB buffer は温度依存性が小さく、Ta buffer と比較して高い耐熱性を示す傾向が確認された。

図 1 に 100K 成膜の Ta/CoFeB、TaB/CoFeB 構造、および室温成膜の TaB/CoFeB 構造をフリー層とする MTJ 素子における VCMA 効率のポストアニール温度依存性を示す。Ta/CoFeB および室温成膜 TaB/CoFeB 構造と比較して低温成膜 TaB/CoFeB は約 -100 fJ/V の高い VCMA 効率を有し、かつ 350°C アニール後においても特性が維持される傾向が見られた。発表では CoFeB/MgO 界面への重元素ドーピング効果も含めた最適化についても議論する。

本研究の一部は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(JPNP16007)、および JSPS 科研費(JP20H05666)助成の結果得られたものである。

- 1) T. Ichinose *et al.* *ACS Appl. Electron. Mater.* **5**, 2178 (2023).
- 2) A. Sugihara *et al.* *Appl. Phys. Exp.* **16**, 023003 (2023).

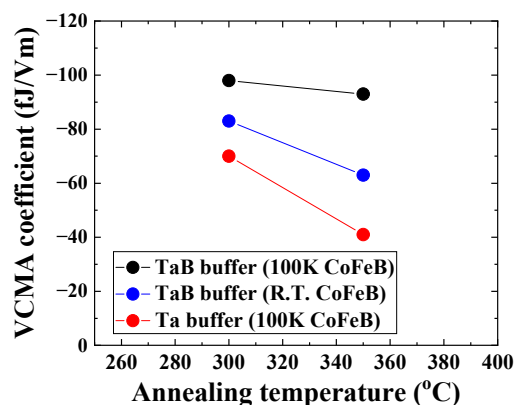


図 1 Ta/CoFeB(100K 成膜) および TaB/CoFeB(100K および室温成膜)における VCMA 効率のポストアニール温度依存性