

# メモリデバイス応用に向けた 界面マルチフェロイク構造の二値性制御

宇佐見 喬政\*

**Control of Binary States of The Multiferroic Heterostructures  
for Memory Devices**

Takamasa USAMI\*

For the development of voltage-controlled magnetization switching in spintronic memory devices, we demonstrate a highly (422)-oriented  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  layer on the piezoelectric PMN-PT(011) substrate by inserting an ultra-thin vanadium (V) layer. The strength of the growth-induced magnetic anisotropy in the  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  layers can be artificially controlled by tuning the thicknesses of the inserted V and the grown  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  layers. As a result, a giant converse magnetoelectric effect (over  $10^{-5}$  s/m) and a non-volatile binary state at zero electric fields are simultaneously achieved in the  $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{V}/\text{PMN-PT}$  multiferroic heterostructure. This study paves the way toward magnetoresistive random-access memory (MRAM) with low-power writing technology.

## 1. はじめに

次世代不揮発性メモリとして期待される磁気抵抗ランダムアクセスメモリ(MRAM)は、磁気トンネル接合(MTJ)素子を記録素子として利用している。MTJ素子では、強磁性層の磁化配置(平行/反平行状態)に応じて、電気抵抗が変化する効果[トンネル磁気抵抗(TMR)効果]が生じる。この電気抵抗変化を情報の0/1に対応づけることでMRAMは不揮発メモリ動作が可能となっている。このような原理で情報を記録するMRAMでは、磁化配置を変調することが情報書き込み動作に相当する。現在主流の磁化制御手法では、MTJ素子に大電流を印加する必要があるため、通電に伴うジュール熱の発生により、情報書き込みに必要な電力消費が大きいというデメリットを有している。

情報書き込みに関する問題を解消するために、電流印加方式に比べて消費電力の少ない、電圧駆動による磁化制御技術の開発が求められている。とりわけ、図1に示すような強磁性体と圧電体のヘテロ構造により構成される界面マルチフェロイク構造はデバイス実装の観点から有力な電圧磁化制御技術の候補とされている。ごく最近、我々は、強磁性体として高いスピニ偏極率を有するCo系ホイスラー合金磁性体の一つである $\text{Co}_2\text{FeSi}$ と、高い圧電性能を有する $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT)を組み合わせた界面マルチフェロイク構造を作製し、実用化の壁として存在していた $10^{-5}$  s/m台の性能指標(磁気電気結合係数)を実現し、高効率な磁化方向制御を実証した<sup>1,2)</sup>。さらに電圧印加による不揮発メモリスイッチング動作実証も同時に成功している。

前述の高い性能指標と不揮発スイッチングの同時実証は、界面マルチフェロイク構造をMRAM等のスピントロニクスメモリデバイスへ適用するための重要な要件であり、高い信頼性のもとこの要件が満たされることが必要である。このためには、強磁性層に発現する磁気異方性( $K_g$ )の自在制御が重要であることが先行研究において指摘されている<sup>3)</sup>。我々がこれまで実証してきた $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}/\text{PMN-PT}$ 界面マルチフェロイク構造においては、強磁性体層と圧電体層の界面にアモルファス層が形成されおり[図2(左)]、このアモルファス層は、上部 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 強磁性層の結晶配向性を低減し、高信頼性の構造の実現を阻んでいた。そこで本研究では、新たに強磁性体 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層と圧電体PMN-PT層の界面に、新たに金属バナジウム(V)原子層を設けることで、明瞭な界面構造の実現を目指した。これにより、高い配向性を有する強磁性体 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層を実証し、不揮発メモリスイッチングの高信頼性動作を目指した。

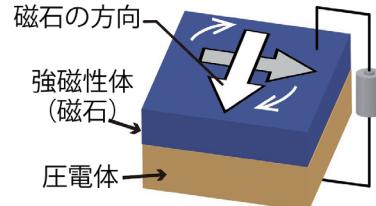


図1 界面マルチフェロイク構造の模式図。

## 2. 実験結果

分子線エピタキシー法を用いて、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{V}/\text{PMN-PT}$ 界面マルチフェロイク構造を作製した。この時、界面挿入V層の膜厚 ( $t_V=0.3, 0.6, 1.0, 2.0$  nm) や $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層の膜厚 ( $t_{\text{CFS}}=10, 20, 30$  nm) を変化させた試料を用意した。作製した試料の界面近傍における原子像〔高角散乱環状暗視野走査透過顕微鏡像 (HAADF-STEM image)〕を図2に示す。界面原子層にFeを利用した図2(左)の構造<sup>1)</sup>に比べて、Vを利用した図2(右)の構造においては、明瞭な界面が実現しており、上部の強磁性 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層の配向性も向上していることが明らかになった<sup>4)</sup>。また、磁化測定の結果から、膜厚 $t_V$ や $t_{\text{CFS}}$ を変調することで、 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ の $K_g$ を系統的に変調可能であることも明らかになった。

ゼロ電圧での二値状態と磁気電気結合係数を評価するために、試料に電界を印加して磁気光学Kerr効果測定した。図3(上)に、 $K_g=12.6$  kJ/m<sup>3</sup>の磁気異方性を示す $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{V}/\text{PMN-PT}$ ヘテロ構造のKerrヒステリシス曲線を示す。 $E=0$ から $-0.4$  MV/mの変化に伴い、容易軸的挙動から困難軸的挙動に変化していることが分かる。詳細な解析を行い、磁気電気結合係数を算出したところ、 $2.4 \times 10^{-5}$  s/mという値が得られ、従来の $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}/\text{PMN-PT}$ ヘテロ構造の性能を上回る結果となった<sup>4)</sup>。また電界印加に伴う、異方性の変化を詳細に調べるため、残留磁化状態を電界に対してプロットした〔図3(下)〕。ここで、赤(青)色のプロットは、正(負)電界から負(正)電界へのスイープを示している。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、残留磁化状態が保持されていることが明らかになった。このことはゼロ電圧状態において、磁化が二値状態をとることを意味している。一方で、 $K_g=0.6$  kJ/m<sup>3</sup>と低い値を示すヘテロ構造においては、明瞭な二値状態が観測されなかった。これらの結果から、性能指数の向上と不揮発スイッチングの高い信頼性のもとでの同時実現には、本研究で見出した界面終端技術に基づく $K_g$ の精密制御が有効であるといえる。

## 3. まとめ

高い性能指数を実証してきた $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}$ 界面マルチフェロイク構造に対して、新たに強磁性体 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層と圧電体PMN-PT層の界面に、金属バナジウム(V)原子層を設ける技術を開発した。これにより明瞭な結晶性の界面構造を実現し、高い配向性を有する強磁性体 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層が実現した。これにより、 $K_g$ の値を系統的に変調することが可能となり、我々が報告してきた性能指数を上回る値を実証するとともに、不揮発メモリスイッチングを高い信頼性で実現した。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり、ご支援、ご協力を賜りました大阪大学大学院基礎工学研究科 浜屋宏平教授、山田晋也准教授、真田祐彌氏、藤井峻平氏、大阪大学大学院工学研究科 中谷亮一教授、白土優准教授に感謝申し上げます。また、ご支援を賜りました公益財団法人 豊田理化学研究所に感謝申し上げます。

## REFERENCES

- 1) S. Fujii, T. Usami, Y. Shiratsuchi, A. M. Kerrigan, A. M. Yatmeidhy, S. Yamada, T. Kanashima, R. Nakatani, V. K. Lazarov, T. Oguchi, Y. Gohda and K. Hamaya, *NPG Asia Mater.*, **14** (2022) 43.
- 2) J. Okabayashi, T. Usami, A. M. Yatmeidhy, Y. Murakami, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani, Y. Gohda and K. Hamaya, *NPG Asia Mater.*, **16** (2024) 3.
- 3) J. Wang, D. Pesquera, R. Mansell, S. van Dijken, R. P. Cowburn, M. Ghidini and N. D. Mathur, *Appl. Phys. Lett.*, **114** (2019) 092401.
- 4) T. Usami, Y. Sanada, S. Fujii, S. Yamada, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani and K. Hamaya, *Adv. Sci.*, **12** (2025) 2413566.

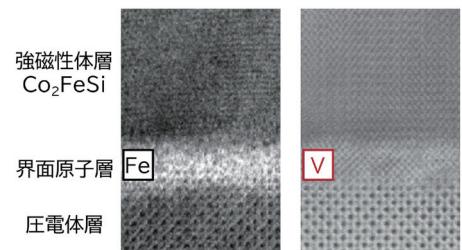


図2 強磁性 $\text{Co}_2\text{FeSi}$ 層／原子層(Fe or V)／圧電体層界面の原子像<sup>1,4)</sup>。

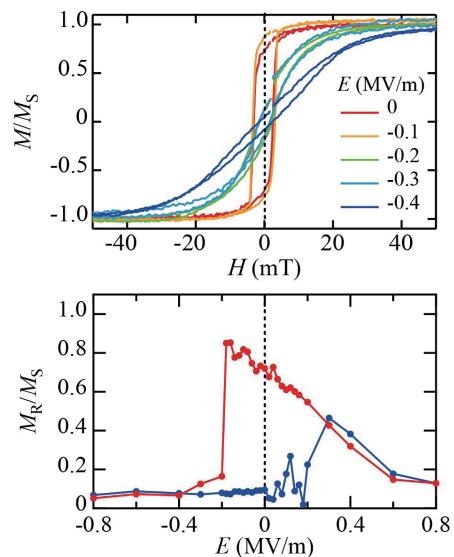


図3  $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{V}/\text{PMN-PT}(001)$ 界面マルチフェロイク構造における電界による磁性変化<sup>4)</sup>。