

研究終了報告書

「局所イオン照射法を用いた磁気スキルミオン制御技術の確立」

研究期間： 2021年10月～2024年3月

研究者： 大島 大輝

1. 研究のねらい

磁気構造が注目を集めており、これを用いた高密度磁気メモリ、ブラウンアンコンピューティング、ニューロモーフィックコンピューティングなどが提案されている。磁気スキルミオンは情報保持に電力を消費せず、さらに低電力で駆動可能であることが報告されているため、磁気スキルミオンを利用した電子デバイスの開発・発展は省電力 IoT デバイスの実現につながるものと期待される。強磁性体中で生成される磁気スキルミオンは、隣り合うスピンを並行に揃える「交換結合」、隣り合うスピンを捻る「ジャロシンスキー・守谷相互作用」、スピンの特定の方向を向きやすくなる「磁気異方性」、磁界との作用である「静磁気エネルギー」の競合により磁気スキルミオンの安定状態が変わる。一方、提案者は以前より、磁性薄膜に対しイオン照射を行うことで磁気特性を制御できることを報告しており、さらに局所的にイオン照射を行うことで表面の凹凸なく局所的に磁気状態をコントロールできることを報告している。このことは磁気スキルミオンの安定状態をイオン照射法によりコントロールできることを示唆している。しかしながら、これまでの研究では磁化状態のコントロールは2値的であったのに対し、磁気スキルミオンを制御するためには磁気特性を膜面内方向にかつ徐々に変化させていく必要がある。そこで本研究では新たな試みとしてグレースケール露光の技術を取り入れ、イオン照射法との組み合わせによる磁気スキルミオンの制御技術の確立を目的として研究を行った。ここでは特に、ニューロモーフィックコンピューティングにつながる、磁気スキルミオンを利用した人工ニューロンデバイスの実現を目標として研究を行った。また、上記と並行して、より低電力で駆動可能なブロッホ型スキルミオンが生成されるカイラル磁性体の薄膜についても研究を行い、さらなる省電力デバイスの実現を目標として研究を行った。

2. 研究成果

(1) 概要

グレースケール露光および一様なイオン照射による磁性薄膜の膜面内方向の磁気特性制御を実現するため、イオン注入のシミュレーション、磁性積層膜へのイオン照射、レジストを通じた磁性積層膜へのイオン照射、膜面内方向の磁気特性の勾配を有した電子デバイスの作製の順に研究に取り組んだ。イオン注入のシミュレーションの結果から、 Kr^+ イオンを100 keVのエネルギーで照射した場合、レジスト膜厚を150 nm以下で制御することで磁性積層膜への実効的な照射量を制御できることがわかった。磁性積層膜へ直接イオン照射した結果を経て、 1×10^{13} ions/cm²の照射量でレジスト付の磁性積層膜へイオン照射した場合、磁気特性の1つのパラメータである実効磁気異方性が、レジスト膜厚が150 nmよりも薄くなった際に大きく変化することを明らかにした。この150 nmという値はシミュレーションの結果とよく一致する。当初の目論見どおり、レジスト膜厚により磁性積層膜への実効的な照射量を変化させることができることがわかった。これらの結果を踏まえ、ワイヤー状の電子デバイス構造を微細加工に

より作製し、さらにグレースケール露光と一様なイオン照射を施した。局所的な磁気特性を異常ホール効果により測定すると、実効磁気異方性がレジスト膜厚にしたがって変化している様子が観測され、電子デバイスへの磁気特性の勾配の導入に成功したと言える。マイクロオーダーで磁気特性を自在にコントロールできる技術はこの技術の他にはないと考えられ、非常に重要な結果であると考えられる。しかしながら、このデバイス上において磁気スキルミオンの動的制御を確認することはできなかった。その原因は、磁気スキルミオンの形成条件がイオン照射によりずれてしまったことにあると考えられ、磁気スキルミオンを観測しつつ、磁気特性の勾配を形成するためには、レジスト膜厚およびイオン照射条件をより綿密に設計していく必要があると予想される。

電子デバイスの作製と並行して、カイラル磁性体である β -Mn 型の Co-Zn-Mn のエピタキシャル薄膜作製にも取り組んだ。Co-Zn/Mn を MgO(001)単結晶基板上に形成し、真空中で熱処理することで世界で初めて β -Mn 型の Co-Zn-Mn エピタキシャル薄膜の形成に成功した。

(2) 詳細

膜面内方向の磁気特性制御のためには、グレースケール露光により局所的にフォトレジストの膜厚を制御し、その上からイオン照射を行う必要がある。レジストを通して磁性薄膜にイオンを照射することで、実効的なイオン照射量をコントロールし、その照射量に従い、磁性薄膜の磁気特性が変化すると考えられる。まず、SRIM (Stopping Range of Ions in Matters) シミュレーションにより、グレースケール露光で制御すべきフォトレジストの膜厚を推定した。

図 1 にシミュレーションの結果を示す。照射イオンは Kr^+ とし、照射エネルギーは 100 keV とした。図 1 はサンプル上のレジスト膜厚を変化させたときの注入イオンの膜厚方向分布を示している。レジスト膜厚が 150 nm の場合はほとんどのイオンがレジストを貫通せず、それ以下の膜厚ではイオンがレジストを貫通しサンプルに注入されていることがわかる。このことから、サンプルへの実効イオン照射量をコントロールするには、グレースケール露光によりレジスト膜厚を 150 nm 以下でコントロールする必要があることがわかった。

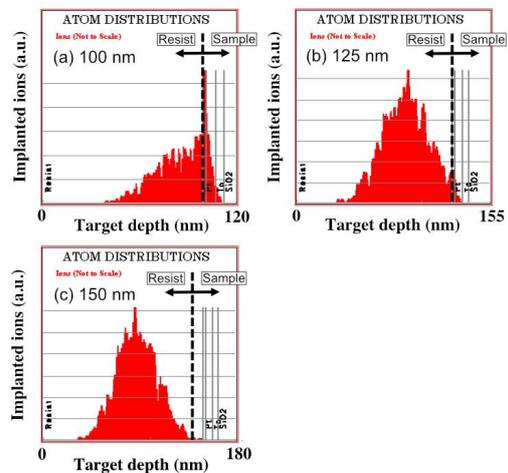


図 1 SRIM によるイオン飛程のシミュレーション

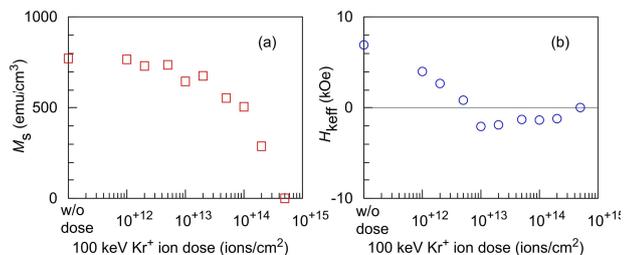


図 2 飽和磁化および実効異方性磁界のイオン照射量依存性

次に、実際にレジストを通して磁性薄膜にイオン照射したときの磁気特性の変化を調べた。磁性薄膜 Ta/Co/Pt 積層膜を熱酸化膜付シリコン基板上にマグネトロンスパッタ法により成膜し、レジストなしで磁性薄膜に対しイオン照射した際の飽和磁化 M_s および実効磁気異方性 $H_{k,eff}$ の変化を図 2 に示す。Ta/Co/Pt 積層膜は界面効果により磁化が膜面法線を向く垂直磁化膜となっているが(実効磁気異方性が正のとき垂直磁化膜)、イオン照射により界面拡散が進行することで飽和磁化および実効磁気異方性が照射量に対して減少していく。次に、Ta/Co/Pt 上にレジストを形成し、その上からイオン照射した結果を図 3 に示す。ここで、照射量は 1×10^{13} ions/cm² とした。レジストなしのサンプルにおいても 1×10^{13} ions/cm² の照射量では飽和磁化はほとんど変化しないことから、レジストありのサンプルにおいてもレジスト膜厚によらず飽和磁化の値はほとんど変化していない。一方、レジストなしのサンプルでは実効磁気異方性が 1×10^{13} ions/cm² の照射量で大きく変化するため、レジストありのサンプルにおいてもレジスト膜厚により実効磁気異方性は大きく変化している。図 3 を見ると、レジスト膜厚が 150 nm を下回ったところから実効磁気異方性の値も大きく減少しており、この臨界レジスト膜厚は SRIM シミュレーションから推定されるレジスト膜厚とよく一致している。図 3 の結果より、レジスト膜厚を 150 nm 以下の膜厚で局所的に変化させることができれば、目的とする磁気特性の勾配を実現可能であることが実験結果からも明らかとなった。

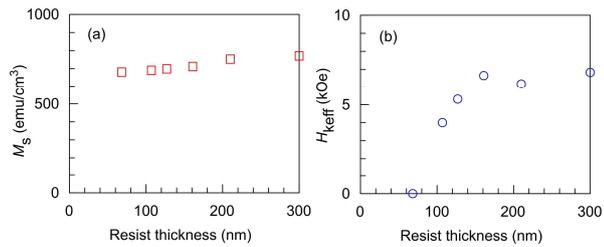


図 3 飽和磁化および実効磁気異方性のレジスト膜厚依存性

膜面内方向の磁気特性の勾配形成を確認するため、以下に示す手順で実験を行った。サンプルはマイクロサイズの磁気スキルミオンの報告がある Ta/CoFeB/Ta₂O₅ の磁性積層膜を使用した。この積層膜は Ta/Co/Pt と同様マグネトロンスパッタ法により成膜した。図 4 に成膜後に磁気光学 Kerr 顕微鏡により積層膜を観察した結果を示す。明るく見える粒状のものが磁気スキルミオンと考えられる。また、他報告と同様、この粒状のものがブラウン運動している様子も観測された。この積層膜を図 5 に示すようなデバイス形状に加工した。局所的に磁気特性が変化していることを確認するため、異常ホール効果測定用に端子を 5 セットつけており、それらを覆うようにグレースケール露光により左から右に膜厚を変化させたレジスト膜を形成した。その上から一様にイオン照射した

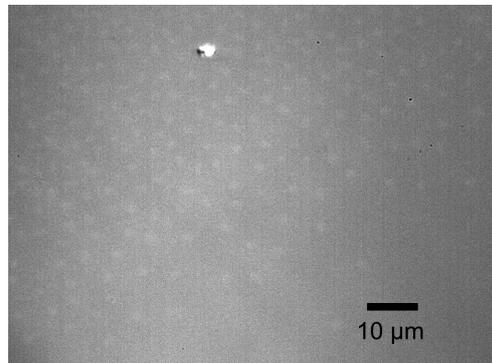


図 4 磁気スキルミオンの観察

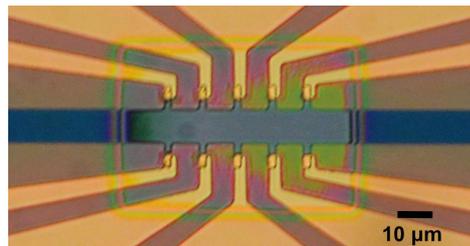


図 5 磁性デバイス上へのグレースケール露光

後、レジストを剥離して磁気特性の測定および磁気スキルミオンの観察を試みた。図6にレジスト膜厚の測定結果および異なる場所で測定した異常ホール抵抗曲線を示す。グレースケール露光を施した領域ではレジスト膜厚が100 nm前後で制御されていることがわかる。今回、このように膜厚が100 nmと非常に薄い領域での制御に成功したことは特筆すべきと考えられる。また、膜面内方向に磁界を印加した際の異常ホール抵抗曲線の変化を見ると場所ごとに曲線の形が変化しており、場所ごとに磁気特性が異なっていることがわかる。この曲線から面内方向に磁化を飽和させるのに必要な磁界(実効異方性磁界)も場所ごとに変化していることがわかり、グレースケール露光およびイオン照射法により膜面内方向に磁気特性の勾配を導入でき、目的とするデバイス構造の実現に成功した。マイクロオーダーで磁気特性を自在にコントロールできる技術はこの技術の他にはないと考えられ、重要な結果である。一方、このデバイスにおいて磁気スキルミオンの観測および動的制御を試みたものの、磁気スキルミオンをデバイス上で確認することはできず、動的制御も行うことができなかった。原因として、磁気スキルミオンの形成条件がイオン照射によりずれてしまったことが考えられる。磁気スキルミオンを観測しつつ、磁気特性の勾配を形成するためには、レジスト膜厚およびイオン照射条件をより綿密に設計していく必要があることがわかった。

電子デバイスの作製と並行して、カイラル磁性薄膜の作製にも取り組んだ結果について報告する。カイラル磁性体である β -Mn型のCo-Zn-Mnは、磁性が消失する温度であるキュリー温度が室温以上であり、かつブロッホ型の磁気スキルミオンが観測される数少ない材料である。この材料のエピタキシャル膜が作製できれば、磁気スキルミオンデバイスのさらなる省電力化が期待できる。実験はMgO(001)単結晶基板上にCo-Zn/Mnの積層膜をマグネトロンスパッタ法により形成し、真空中で熱処理することによりCo-Zn-Mnを結晶化させることで β -Mn型のCo-Zn-Mn薄膜の作製を試みた。図7にX線回折による逆格子マップ測定の結果を示す。MgO基板の特定の結晶方位に対してのみ β -Mn型Co-Zn-Mnの回折スポットが確認できることから、 β -Mn型Co-Zn-Mnが配向してMgO基板上に成長していることがわかる。以上のように、 β -Mn型のCo-Zn-Mnのエピタキシャル膜を世界で初めて報告した。より結晶性のいい薄膜を作製することで、ブロッホ型磁気スキ

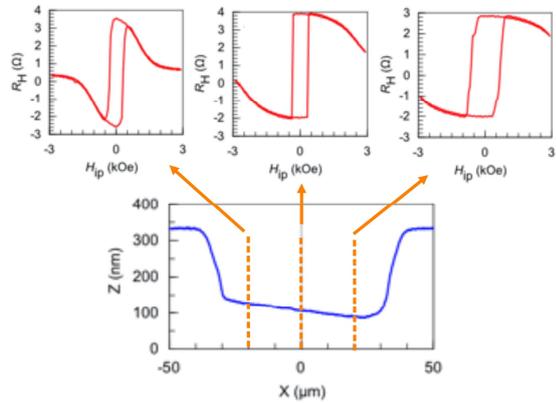


図6 レジスト膜厚の場所依存性と場所ごとの異常ホール曲線

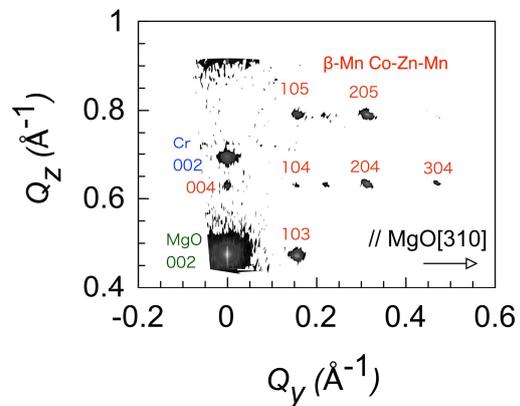


図7 Co-Zn-Mn 薄膜の逆格子マップ測定

ルミオンを利用した超低消費磁気スキルミオンデバイスの実現につながるものと期待される。

3. 今後の展開

今回、目的とするデバイス構造は実現できたが、磁気スキルミオンの動的制御という目標は残念ながら達成できなかった。原因はイオン照射による磁気特性のずれを適切に考慮できなかったことにあると考えられ、今後はより綿密なデバイス設計が求められる。今後 1-2 年のうちに条件を詳細に詰め、磁気スキルミオンを利用した人工ニューロン素子の実現を目指す。人工ニューロン素子の実現後には、すでに報告のある人工シナプス素子と統合し、新たなデバイスの実現を試みる。また、今回提案した磁気特性の制御法は磁気スキルミオンの制御に使えるだけでなく、種々のスピントロニクスデバイスの高機能化につながるものと期待している。今後数年のうちに無磁場スピントルク磁化反転や磁壁の制御など、新たな原理に基づくデバイスの提案を行い、本手法がスピントロニクスデバイスの作製において非常に有用であることを示していきたい。

4. 自己評価

本課題の最終的な研究目標は磁気スキルミオンを動的に制御することにより人工ニューロン素子を実現するというものであったが、磁気スキルミオンの動的制御を確認することはできず、研究目的に対して 7 割程度の進捗状況であったと考えている。一方で、目標の 1 つであった、膜面内方向の磁気特性の勾配を有するデバイス構造の実現に成功したことは特筆すべき成果だと考えている。さまざまなデバイスのサイズや大量生産プロセスにも対応し、グレースケール露光のパターンを変更することにより磁気特性を局所的にかつ自在にコントロールできる本手法は大きな可能性を秘めていると言える。また、並行して進めた β -Mn 型の Co-Zn-Mn のエピタキシャル膜の実現は世界初の成果であり、これもまた独自性の強いものとなっている。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 1件

1. D. Oshima, T. Kato, N. Ikarashi, M. Nagao, "Fabrication of β -Mn Co-Zn-Mn(001) film on MgO single crystal substrate," AIP Adv., vol. 13, 025331 (2023).

マグネトロンスパッタ法により MgO(001)単結晶基板上に Co-Zn/Mn 積層膜を成膜し、真空中で熱処理を行うことで Co-Zn-Mn 薄膜の作製を行った。X 線回折による結晶構造の解析を行った結果、MgO の結晶方位に対して β -Mn 型 Co-Zn-Mn が特定の方位関係を示していることがわかり、エピタキシャル薄膜が実現できていることがわかった。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のものは件数にのみ含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. D. Oshima, T. Kato, N. Ikarashi, M. Nagao, "Fabrication of β -Mn type Co-Zn-Mn(001) film on MgO single crystal substrate," The 67th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (2022).

2. 大島大輝、加藤剛志、グレースケール露光とイオン照射による磁性積層膜の磁気特性制御、電気学会マグネティックス研究会、(2023).

3. D. Oshima, T. Kato, "Ion implantation into magnetic thin films through the microstructured resist masks," International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2023 (2023).