

氏 名（本 籍 地）	飯 田 裕 希
学 位 の 種 類	博 士（ 工 学 ）
学 位 記 番 号	博 甲 第 9792 号
学位授与年月日	令和 3年 3月 25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審 査 研 究 科	数理工質科学研究科
学 位 論 文 題 目	Perpendicular Magnetic Anisotropy in Sputter-Deposited Fe/MgO(001)-Based Heterostructures (スパッタリング成膜による Fe/MgO(001)系ヘテロ構造の垂直磁気異方性)
主 査	筑波大学 教授(連係大学院) 博士(工学) 三谷 誠司
副 査	筑波大学 教授 博士(工学) 末益 崇
副 査	筑波大学 教授 博士(工学) 柳原 英人
副 査	筑波大学 准教授(連係大学院) 博士(理学) 内田 健一

論 文 の 要 旨

本論文は磁性薄膜や磁性ヘテロ構造の基礎的問題である界面垂直磁気異方性について調べたものであり、スパッタ法で作製した Fe/MgO(001)系材料における構造制御、成膜プロセス開発、および、磁性金属/酸化物界面の垂直磁気異方性の理解に関する新規性の高い成果を得ている。ここで、Fe/MgO(001) 界面は巨大な垂直磁気異方性を示すことが知られており、その電界制御の効率係数の大きさも注目を集めている。Fe/MgO(001)界面のこのような磁気物性の理解が進み、スパッタ法によって量産することが出来るようになれば、次世代の不揮発磁気メモリ技術に大きく貢献すると考えられる。

本論文において最初に行われた研究は、通常用いられる FeB や CoFeB ではない純 Fe の多結晶層を用いて、スパッタリング成膜による MgO との界面における垂直磁気異方性磁性の実現とその発現メカニズムの理解である。W 下地上に極薄 Fe アモルファス層が形成されることを利用し、MgO 上部層からの固相エピタキシーと更に上部に配した Tb 層による酸化還元制御によって所望の構造を得て、顕著な垂直磁気異方性を実現している。Tb 層の代わりに Mg 層を使うことも行い、それらの比較から Tb 層による過剰酸素吸収が重要な役割を果たしていることを明らかにしている。

この研究のハイライトは、スパッタリング成膜によって作製した Cr/Fe/MgO(001)単結晶ヘテロ構造の界面垂直磁気異方性であり、この場合においても Fe 層の酸化と還元のプロセスが重要な働きをしていることを明らかにしている。スパッタ法で作製された Fe/MgO(001)構造において、分子線エピタキシー法の場合と比べて遜色のない 1.55mJ/m^2 という大きな界面垂直磁気異方性エネルギーを得ている。さらには、下地の Cr が Fe と MgO の間まで拡散移動し、準安定な CrO 層を形成するという新規な現象を発見している。CrO という 3d 遷移金属酸化物と Fe との界面においても、Fe/MgO に匹敵する垂直磁気異方性が得られたという事実は基礎物性の観点からも非常に興味深い。

上記の他に、Fe/MgO 界面に W 原子層を挿入した試料を作製して、垂直磁気異方性とその電界効果を調べている。また、実用材料の CoFeB を用いて、La/CoFeB/MgO という 3 層構造も作製し、各層の電気陰性度と垂直磁気異方性の関係等を議論している。本論文の研究全体を通じて、放射光施設における X 線吸収分光(XAS)や X 線磁気円二色性(XMCD)による試料評価を駆使しており、酸化状態や垂直磁気異方性の発現メカニズムに関する重要なデータを得ている。

論文の構成としては、第1章はイントロダクションであり、トンネル磁気抵抗効果、界面垂直磁気異方性、磁気異方性の電界制御、および、これらの機能性の不揮発磁気メモリへの応用について述べている。加えて、従来の研究開発においては、有用な特性を示す Fe/MgO(001)構造がスパッタリング成膜では作ることができなかった状況を徹底的な文献検索によって説明している。

第2章は、実験方法であり、薄膜成長、微細加工、構造評価法、磁気測定法、トンネル磁気抵抗効果やトンネル磁気抵抗効果を用いた電圧制御磁気異方性特性の評価方法などを概説している。放射光施設における X 線吸収分光(XAS)と X 線磁気円二色性(XMCD)の測定と解析方法についても説明を行っている。

第3章は多結晶および単結晶の Fe/MgO(001)構造試料の結果がまとめられている。W 上に得られた Fe/MgO 多結晶試料の磁気特性を系統的にまとめ、顕著な垂直磁気異方性が得られたことが関連データとともに示されている。単結晶 Fe/MgO(001)構造試料については、より詳細な実験結果が示されており、準安定 CrO 層の形成を示す構造解析データや、CrO 層が化学量論比からズレた酸素欠乏の状態にあることなどが示されている。X 線吸収分光(XAS)と X 線磁気円二色性(XMCD)のデータによって、熱処理によって Fe 酸化物の還元が進行する様子を明確に示している。

第4章では、W 層を挿入した Fe/MgO 構造における界面垂直磁気異方性の電界効果の結果をまとめている。理論予測のような巨大な電界効果を得るには至っていないが、基礎的理解の上で有用なデータとなっている。

第5章は、La (or Tb)/CoFeB/MgO 構造試料における垂直磁気異方性の結果を示している。各層の電気陰性度と垂直磁気異方性の関係を明らかにすることを狙ったものであるが、最終的な微視的理解には至っていない。ただし、La が 4f 電子をもたない希土類元素であるという特徴を有しており、そのことから得られたデータの学術的有用性は高い。

第6章は本論文の結論である。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本論文は、スパッタリング成膜によって作製した Fe/MgO(001)ヘテロ構造の界面垂直磁気異方性につ

いて多角的に研究して得られた成果をまとめている。まず背景として、従来の研究開発では、スパッタリング成膜によって Fe/MgO(001)系の垂直磁気異方性が得られたという報告はほぼ皆無であり、この研究が応用展開のきっかけになり得るという点は強調すべきところである。多結晶および単結晶の多彩な構造について研究を行い、その結果として CrO 界面層が生成することや、それによって Fe 酸化物が還元されて垂直磁気異方性が発現すること等、多くの新規現象が見出されている。CrO 層の形成は Fe と 酸化物との界面における垂直磁気異方性の微視的メカニズムの理解において重要な意味をもっており、物理的 understanding の進展や新規構造の提案などの波及効果も期待させる成果である。

スパッタリング成膜による多彩なヘテロ構造試料の作製に成功したことに加え、放射光施設における XAS や XMCD を駆使して現象の理解を行ったことも評価に値するところである。ナノメートルスケールの極薄層の酸化還元プロセスや価数の推定、垂直磁気異方性メカニズムの同定など、XAS と XMCD の有用性を最大限に活用している。超薄膜構造の創製、物性・構造評価、機能性の開拓と理解という観点より、材料科学分野の顕著な研究論文として認められるところである。

〔最終試験結果〕

令和3年2月22日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。