

「電子・光子等の機能制御」  
平成12年度採択研究代表者

鈴木 義茂

(産業技術総合研究所 エレクトロニクス部門 グループ長)

## 「固体中へのスピン注入による新機能創製」

### 1. 研究実施の概要

本プロジェクトは、接合構造を用いてスピン偏極電子を強磁性体中に強制的に注入することによりスピンの依存した三端子スイッチング・磁化反転・磁気相転移などの顕著な現象を発現させることを第一の目的とする。またこの研究過程で既存の強磁性トンネル素子の高度化につながる技術が開発されるものと期待される。この研究は、トンネル磁気抵抗効果(TMR)を利用した強磁性体RAM(M-RAM)の問題点を解決する基礎的な技術を与えるものであると同時に、「スピンエレクトロニクス」という新しい学問・技術分野を構築していく際に共通する「固体中における非平衡スピンの注入と伝播およびその相互作用」を扱う基礎的理解と技術を与える。

本プロジェクトは、2000年度に開始されたが、それ以前に本研究チームでは、(1)単結晶電極を有する強磁性トンネル磁気抵抗素子の作製、(2)強磁性体/非磁性体接合を持つプレーナ構造スピン注入素子の作製、および(3)コンタクト原子間力・トンネル複合顕微鏡(AFM-STM)によるトンネルバリアの局所評価装置の開発に成功している。そして、例えば、(1)では磁気抵抗が結晶面方位に依存するといった初期的なデータを得る段階にあった。

2000年度は、これらの個々の技術を統合して研究を推進する要となる新素子作製装置を購入した。この装置が稼動することによって本プロジェクトに属する3つのチームが有機的に連動して研究が行われることになる。また、2000年度は、既存の装置で作製した素子を詳細に評価することにより以下の成果を得た。

#### (1) 単結晶電極の電子状態がスピン依存トンネル抵抗に反映されることを発見

このことによりスピン偏極共鳴トンネルトランジスタといった新素子が原理的に可能であることが示された。

#### (2-1) 強磁性/非磁性体接合を有するプレーナ型素子においてスピン注入を測定

スピン注入磁化反転を行う際の基礎データとなるスピン拡散距離について信頼できるデータを与えた。

## (2-2) 強磁性共鳴によるスピンドイナミクス測定からスピン注入の影響を検出

Cu/FeNi/Cu/Pt薄膜の強磁性共鳴を測定し、その線幅の変化からFeNiのスピンがCu層を通してPt層に拡散的に注入されていることを確認した。このことは、強磁性層のスピン際差運動を超高速に制止する技術につながるものと考えられる。

## (3-1) 極薄バリア層の作製

エピタキシャル成長した極薄Al単結晶を酸化してアルミナバリアを作製する技術を開発した。さらに、絶縁層の形成に必要なAl層の最小の膜厚が3原子層であることを明らかにした。この膜は、トンネルを利用したスピン注入に最適であるばかりでなく、ハードディスクのヘッドに求められる低抵抗トンネル磁気抵抗素子にも利用できるものと考えられる。

## (3-2) コンタクト原子間力・トンネル顕微鏡による、Alの酸化初期過程の観察

Alは多結晶強磁性体電極上で約5 nmの粒を形成し、その粒界から酸化が進行することを示した。このことは、均質なトンネル接合生成の指針となる。

以上の結果から、スピン偏極共鳴トランジスタなどのスピン3端子素子が原理的に可能であることが示された。2001年度は実際にスピン偏極量子井戸準位へのトンネルを測定する予定である。また、スピン注入磁化反転に関しても基礎的な準備は整いつつある。2001年度は新しく導入した装置により、各チームを結合した研究を開始する。例えば、産総研で作製した単結晶膜へのスピン注入を東北大で行う予定である。

## 2. 研究実施内容

本年度の研究は、大きく3つの内容に分けられる。まず、初めは(1)強磁性電極の特徴的な電子状態を利用したスピン依存スイッチング素子を開発するための研究。ついで、(2)強磁性体から非磁性体あるいは他の強磁性体にスピン偏極電子を注入して磁化反転や磁気相転移を起こさせる研究。最後に、(3)トンネルデバイスにとってもっとも重要でありかつ制御の難しいバリア層の成長の制御の研究である。以下にこれらの研究の経緯と成果について報告する。

### (1) 単結晶電極トンネル素子の電気伝導特性の評価(鈴木グループ)

強磁性電極の特徴的な電子状態を利用したスピン偏極共鳴トンネルトランジスタのようなスイッチング素子を実現するにはトンネル電流に電極の電子状態の特徴が反映される必要があることは言うまでもない。然るに、現在までに得られているトンネル磁気抵抗素子ではトンネル電流は印加電圧の単調増加関数、トンネル磁気抵抗は印加電圧の単調減少関数となっておりなんらの特徴も示さない。この原因としては以下の2つが考えられる。すなわち、(i)現在までに作られている

トンネル磁気抵抗素子は多結晶電極を持つため、いろいろな結晶方位を持つ粒子の異なる特性が打ち消しあい結果として単調な電流-電圧特性(I-V特性)を示している。あるいは、(ii)電子がアモルファスアルミナ層を通過するときに非弾性散乱を受けてエネルギーを失うために、高バイアス下でもホットエレクトロンの注入がなく、I-V特性にはFermi面の電子状態しか寄与しないという考え方である。そこで、電総研のグループでは単結晶電極を持つトンネル磁気抵抗素子を作製し、そのI-V特性を詳細に評価した。

素子は、MgO等の単結晶基板の上にエピタキシャル成長した単結晶Fe電極を持つ。電極の面方位は、(100)(110)および(112)である。このFe単結晶膜の上にその場でAl層を成長し、その場酸化した後にCoFe多結晶上部電極を堆積した。この接合膜を微細加工によりトンネル素子に加工してI-V特性、 $dI/dV$ 特性、および $d^2I/dV^2$ 特性を低温(2K)と室温で測定した。

まず、低温の場合、低バイアス領域に3つのはっきりした $d^2I/dV^2$ のピークが認められた。これらは、マグノン散乱に起因するピーク(0.02~0.03V)、Al-Oフォノン散乱のピーク(0.12V)、および非常に低バイアスのもうひとつのピーク(0.01V以下)であり結晶面方位にほとんど依存しない。一方、高バイアス域には、結晶面方位に依存した異常が現れた。例えば、(100)面では、+0.27V付近に異常が見られる。この異常は、 $F\alpha$ (110)面の角度分解状態密度のピークに一致した。

以上の結果は、これまでの実験に見られた単調なI-V特性が多結晶電極に由来しアルミナ中の散乱の帰結ではないことを示している。すなわち、相当数の電子はアルミナをバリスティックに通過し、単結晶電極を利用すればその電子状態の特徴がI-V特性に現れる。すなわち、単結晶電極を利用すればスピン偏極共鳴トンネルトランジスタが原理的に実現できることが分かった。来年度は、電極の磁性層の膜厚を原子層のオーダーで薄くすることによりトンネル特性に量子井戸準位の影響を出すことを試みる。

## (2) スピン注入磁化反転および磁気相転移の研究

### (2-1) 強磁性/非磁性体接合におけるスピン注入のホール効果による測定(大谷グループ)

【背景・目的】 電子スピン自由度を用いた物性制御を研究する工学分野はスピンエレクトロニクスと呼ばれ、近年この分野の研究は活発となり、多くのスピン依存伝導に関する研究が行われている。スピン依存伝導を反映する現象として強磁性体から非磁性体へ偏極スピンを注入すると、スピン拡散長の範囲において非平衡磁化が生じることが知られている。一般に、ホール効果は正常ホール効果と異常ホール効果の和で表される。正常ホール効果は、伝導電子に作用するローレンツ力に起因し、異常ホール効果は伝導電子のスピ

ンが局在する磁気モーメントにより散乱されて生じる。従って、スピン拡散長の範囲で生じる非平衡磁化も異常ホール効果に反映されることが予想される。本研究はスピン注入誘起ホール効果を測定することにより、非平衡磁化の空間分布およびスピン拡散長について議論することを目的とする。

【実験方法】 試料作製は熱酸化Si(100)基板上に電子線リソグラフィおよび蒸着装置を用いて行った。Co細線幅と厚みはそれぞれ2 $\mu$ mと100 nm、また、Al細線幅と厚みはそれぞれ0.5 $\mu$ mと200nmとした。ホール端子 - 接合間距離は0.5、5.0、10.0 $\mu$ mである。電気抵抗率測定およびホール抵抗率測定は4端子法で行った。印加磁場範囲は-3~3T、測定温度範囲は2~300Kである。

【実験結果・考察】 電気抵抗率測定より、Alの2Kにおける電気抵抗率は0.78  $\mu\Omega$ cm、残留抵抗比は5.42である。電流 - 電圧測定結果より、Co/Al接合界面は測定温度範囲内において良好なオーミック接合を示し、2Kでの界面抵抗は0.35  $\times 10^{-13}\Omega$ m<sup>2</sup>である。2Kにおいてホール端子 - 接合間距離が0.5、5.0 $\mu$ mのときホール抵抗率の印加磁場依存性に異常ホール効果が観測された。端子 - 接合間距離が10.0 $\mu$ mのとき正常ホール効果のみが観測された。通常解析と同様に、 $R_s$ を異常ホール係数、 $M_s$ を非平衡磁化の大きさとして、ホール抵抗率曲線を強磁場領域から外挿して異常ホール効果の寄与 $R_sM_s$ の端子 - 接合間距離依存性を求めた。 $R_sM_s$ はホール端子 - 接合間距離の関数として現れ、端子 - 接合間距離と共に $R_sM_s$ は小さくなる。散乱因子である $R_s$ がAl中で場所に依存しないと仮定すると、非平衡磁化 $M_s$ の距離依存性を反映すると推察される。ホール抵抗率より求めた $M_s$ の距離依存性と、Co/Al接合界面からの距離 $x$ に対し $\exp(-x/\lambda_N)$ で減衰すると仮定すると $M_s$ 距離依存性を定性的に説明することができる。ここで、ホール効果測定の結果を考慮して、スピン拡散長 $\lambda_N$ を $\lambda_N = 5.0\mu$ mとした。界面における非平衡磁化の大きさは約 $M_s = 0.28 \times 10^{-3}$ eVになる。ホール端子 - 接合間距離0.5 $\mu$ mのとき低温領域で観測された異常ホール効果は、測定温度の上昇に伴い直線変化へ近づき100K以上において正常ホール効果のみが観測される。端子 - 接合間距離が10.0 $\mu$ mでは2~300Kにおいて正常ホール効果のみが観測される。一方、100K以上において全ての端子 - 接合間距離で正常ホールのみが観測される。従って、非平衡磁化に起因する異常ホール効果を測定することにより、Al中でのスピン拡散長の温度依存性を求めることが出来た。本研究で用いたAlのスピン拡散長 $\lambda_N$ は、低温領域において約5.0 $\mu$ m程度と推察される。その値は温度上昇とともに減少し、100 K以上において $\lambda_N = 0.5\mu$ m以下になることが見出された。

(2-2) 強磁性共鳴によるスピンドYNAMIKSの測定 (宮崎グループ)

非磁性体中へのスピン注入を評価するためにCu/FeNi/Cu( $d_{Cu}$ )/Pt薄膜を作製し、強磁性共鳴スペクトルを測定した。NiFeとPtに挟まれたCuの膜厚 $d_{Cu}$ を減少させると共鳴線幅が増大した。この線幅が、磁気的不均一性と磁気緩和による寄与によると仮定してスペクトルを解析して求めた、緩和の指標であるGilbert damping parameter  $G$ の $d_{Cu}$ 依存性をFig. 1に示す。

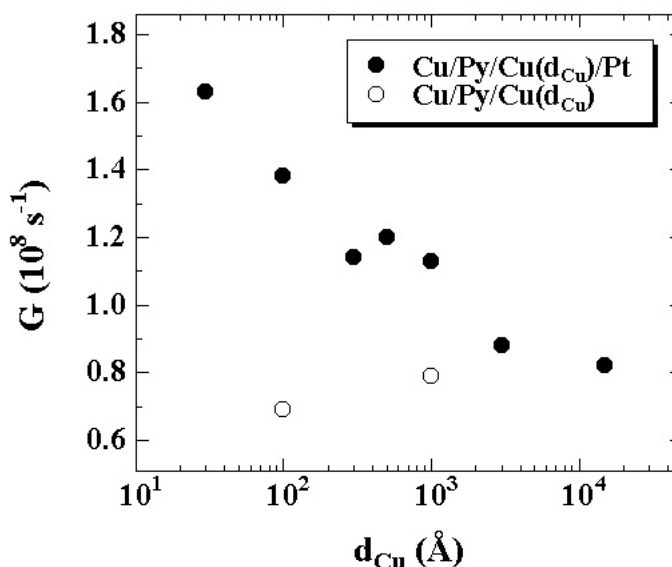


Fig. 1 Cu/FeNi/Cu( $d_{Cu}$ )/Pt 薄膜における  $G$  の  $d_{Cu}$  依存性

$d_{Cu}$ を減少させるとCu/FeNi/Cu/Pt薄膜については $G$ 値が増大するのに対して、Ptを設けないCu/FeNi/Cu薄膜については $G$ 値に変化は見られなかった。これはFeNiの磁化の歳差運動により非磁性体Cuへスピンの拡散的に注入され、Cu/Pt界面でスピン緩和したことによると考えられる。

(3-1) 極薄アルミナバリア層の作製技術の開発 (鈴木グループ)

トンネル接合を用いて多数のスピン偏極電子を対向電極に注入するにはコンダクタンスの高い絶縁障壁が必要となる。また、スピン偏極共鳴トランジスタのようなホットエレクトロンの注入を利用する素子でも注入効率を上げ非弾性散乱の影響

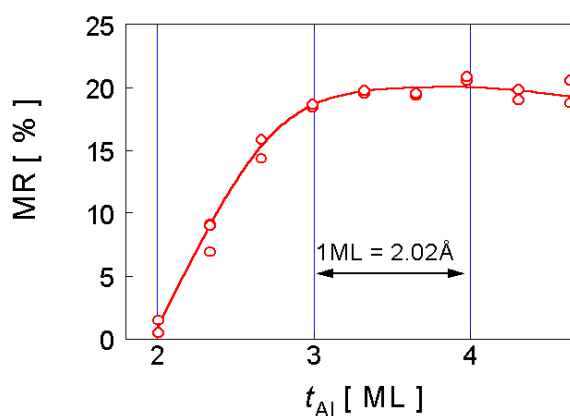


Fig. 2 磁気抵抗効果のバリア層膜厚依存性横軸には、酸化する前のエピタキシャル Al(100)膜の膜厚を原子層数で示してある

を避けるために非常に薄くコンダクタンスの高い絶縁障壁が必要となる。さらに、ハード磁気ディスクのピックアップヘッドにおいてもS/Nの向上のために低インピーダンスのトンネル接合が必要とされている。ところが、これまでの素子では、バリヤ層を薄くしていくと急激に磁気抵抗効果が小さくなったり、素子のインピーダンスがばらついてしまうことが知られていた。そこで、単結晶のエピタキシャル成長を用いて極薄アルミナバリヤを再現性よく成長する技術を開発した。

極薄Al単結晶を例えばFα(100)面上にエピタキシャル成長した後に、その場で酸化してアルミナバリヤを生成した。その結果、Fig. 2に示すように磁気抵抗効果は、Al(100)層厚にして3原子層までほとんど変化しないが、しかし、Al(100)層厚が2原子層になると磁気抵抗効果はほとんど失われてしまうことを見出した。このことは、ストイキオメトリーを保ち絶縁性を示すアルミナの成長には少なくとも3原子層のAlを必要とすることを示している。

この膜は、今後のトンネル膜を介したスピン注入の研究に最適であると考えられる。

### (3-2) 局所トンネル伝導測定による、Alの酸化の初期過程の観察(宮崎グループ)

これまで我々のグループでは導電性カンチレバーを用いた原子間力顕微鏡(AFM)による局所伝導特性を測定し、局所的な障壁高さの低い電流パスが抵抗値およびTMR比に影響をおよぼすことを定量的に示してきた。均一な酸化を実現するためには、酸化条件の違いにより酸化の進行がどのように変化するかを調べ、均一な酸化方法実現への指針を示すことが有効的である。本年度は、まず、走査型トンネル顕微鏡(STM)を用い、Alの酸化の進行に伴う伝導性の変化を観測した。

Fig. 3はAl表面をラジカル酸化させたときのSTM像を示す。同一試料に対して酸化を累積的に行い、それぞれの酸化時間においてその場で測定している。酸化室と測定室の間を移動しているため、それぞれのSTM像の観察領域は別々である。酸化前のAl表面は表面凹凸のみを反映し、水平方向に20~30nmの構造が見られる。酸化時間30sでこの大きな構造の内部に約5nm程度の微細構造が現れ、酸化の進行とともにさらに細かく分割されていく様子がわかる。表面凹凸の変化が酸化により大きく変化しないと仮定すると、この微細構造の変化はAl層に酸素が進入して酸化領域が形成されていく過程に対応していると推察される。このように酸化は表面から均一に進行するのではなく、酸化し易い領域から優先的に進むことがわかった。今後、酸化条件の違いによる酸化の進行の違い、および局所的な電流-電圧特性の測定による絶縁層の定性的、定量

的評価を系統的に調べる必要がある。今後、原子レベルでの測定により、酸化初期の過程が明らかになり、均質なトンネル接合生成の指針となると考えられる。

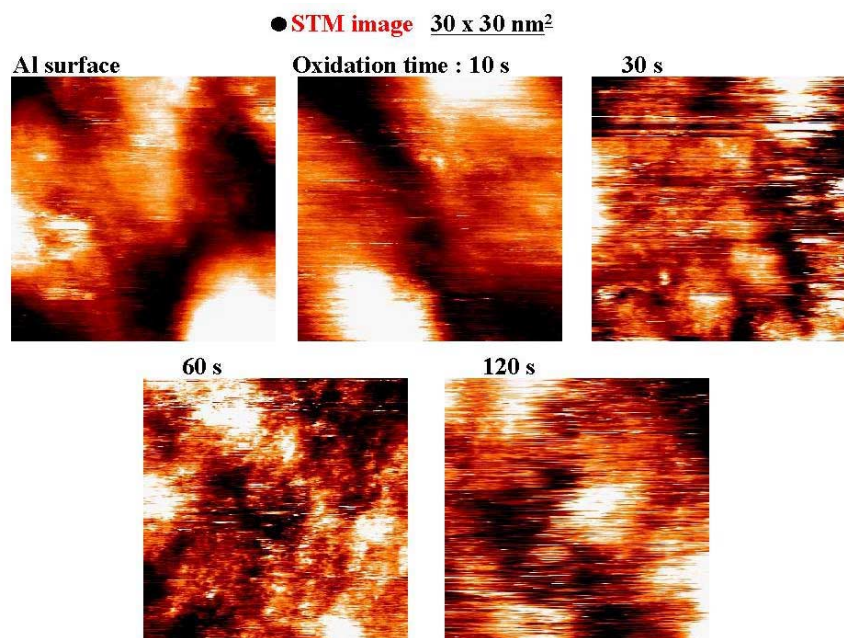


Fig . 3 STM 像のラジカル酸化時間依存性

### 3 . 主な研究成果の発表 ( 論文発表 )

"Hall effect due to spin injection in Co/ Al planar junctions",  
Y. Otani, T. Ishiyama, S. G. Kim, and K. Fukamichi,  
J. Appl. Phys. 87( 2000 ) 6995-6997.