

「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研究部門 グループリーダー)

## 「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

本研究は、スピン偏極電子の金属中への弾道的小および拡散的な注入とそれにより引き起こされる、スピン依存電流スイッチング・磁化反転・磁気相転移の制御技術の確立し、次世代の固体磁気メモリ(M-RAM)の基礎原理を与えると共にスピニエレクトロニクスの分野に新しいパラダイムをもたらすことを目的としている。

スピン依存電流スイッチングを実現するために、まず、スピン依存共鳴トンネルトンネリングの実現を試みた。これまでの研究で、非常に薄い強磁性金属単結晶膜の内部にスピン偏極した量子井戸準位が発生すること、また、強磁性金属単結晶膜を電極として強磁性トンネル接合が作製できることを示したきた。H13 年度は、(1)極薄単結晶電極をもつトンネル接合のスペクトル解析、(2)共鳴トンネルデバイスの作製と特性評価を行った。また、スピン偏極電子注入誘起磁化反転を実現する前段階として、H13 年度は、引き続き強磁性/非磁性体接合のホール測定によるスピン注入の確認をおこなった。さらに、微小領域にスピンを注入をする準備として、AFM/STM によるトンネルバリアの局所電気特性の評価および微小トンネル接合の評価を並行して行った。

### 2. 研究実施内容

#### (1) スピン機能デバイスの研究 (鈴木グループ)

**【研究目的】** スwitching機能と記憶の機能を兼ね備えた新スピン機能素子を研究することにより、例えば超 Gbit 級 MRAM といった、次世代のスピン素子に必要なスピン依存伝導の制御技術とその物理の理解を提供する。特に、スピン依存共鳴トンネルトランジスタの基礎研究を行う。そのために、H13 年度は、スピン依存共鳴トンネルを実現する。

**【方法】** 図 1 に示すように、強磁性トンネル接合の一方の電極を非常に薄くすることにより、トンネル電子が電極内で多重干渉するようになる。この結果、トンネル磁気抵抗に量子サイズ効果が表れると期待される。

**【結果】** 高度の単結晶金属成長技術を用いて、強磁性トン

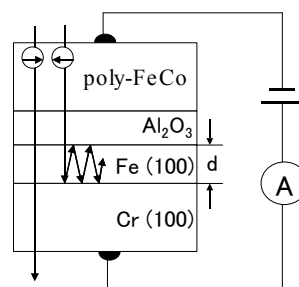


図 1 超薄 Fe 電極を有するトンネル磁気抵抗素子。Fe 電極内でスピンに依存した電子の多重干渉が生じ、磁気抵抗効果に量子サイズ効果が現れる。

ネル接合の Fe 電極を原子層のオーダーで薄くすることに成功した。その結果、磁気抵抗効果が厚膜の場合の 3 倍程度に増大した。さらに、磁気抵抗効果に量子サイズ効果が現れることを世界で初めて発見した(図 2)。このことは、原子層のオーダーの超薄膜単結晶電極の作製により、スピン依存伝導を電子の干渉によって制御できることを示しており、今後のスピン 3 端子素子の開発に道を開くものである。

## (2) スピン注入磁化反転の研究(大谷グループ)

**【研究目的】** 電子スピンの自由度を用いた物性制御工学分野はスピニエレクトロニクスと呼ばれ、多くのスピン依存伝導に関する研究が活発に行

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。本研究の最終目的はこのような非平衡磁化を積極的に用いて再現性の良いスピン注入磁化反転技術を確認することにある。このために次の二つの観点に注目してこれまで実験・研究を遂行してきた。一つは強磁性／非磁性体接合を有する多端子ホール素子を用いて、金属中の注入スピン拡散距離や注入効率を評価すること、二つ目は微小強磁性円盤格子を用いて微小強磁性体の静的また動的な磁化反転挙動を調べることである。ここでは、昨年度主に遂行した二つ目の微小磁性体の磁化反転挙動に関する実験及び理論的な研究結果、特に磁気微粒子間の双極子相互作用の影響についての詳細を報告する。

**【実験方法】** パーマロイ(Fe<sub>20</sub>Ni<sub>80</sub>合金)からなる磁気円盤格子を Si (100)基板上に電子線リソグラフィおよび電子線蒸着装置を用いたリフトオフ法により作製した。得られたパーマロイ円盤の寸法は厚み 60 nm、直径 0.6 μm である。微粒子配列は基本的に四角格子に設計されている。双極子相互作用の影響を調べるために、[0, 1]方向の円盤間距離  $d$  を 0.6 μm に固定して[1, 0]方向の格子定数が 0.6 μm(試料 A)と 0.05 μm(試料 B)の 2 種類の異なる格子配列を作製した(図 3 挿入図)。これらの磁気微粒子格子について室温・大気中で縦磁気カー効果を用いて磁化曲線を測定した。また、円盤間距離  $d$  や直径  $2R$  を系統的に変化させたパーマロイ円盤格子を作製し、上述と同様の磁化測定を行った。

**【実験結果・考察】** 図 3 に、A, B 二つのパーマロ

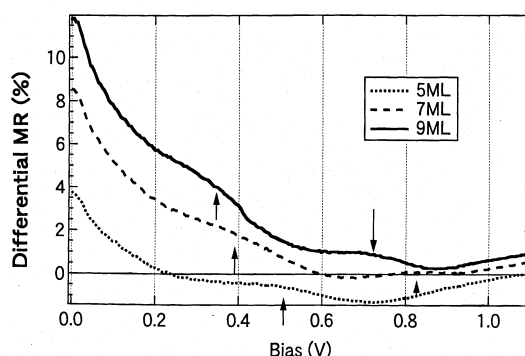


図 2 超薄 Fe (001)電極 (5, 7 および 9 原子層) を有するトンネル磁気抵抗素子の磁気抵抗効果のバイアス電圧依存性。量子サイズ効果により磁気抵抗効果に振動が現れる。

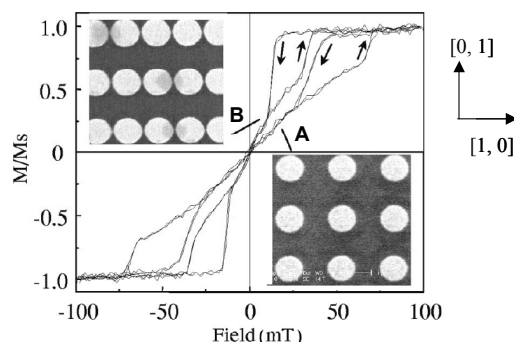


図 3 パーマロイ円盤格子の磁気ヒステリシスループ。A は格子定数 1.2 μm の正方形格子、B は[0, 1]方向に 1.2 μm、[1, 0]方向に 0.65 μm とした矩形格子。外部印加磁場は[1, 0]に平行。

円盤格子の磁気ヒステリシスループを示す。外部磁場は水平に印加されている。磁気光学的手法を用いた磁化測定は、レーザー光のスポット径内のすべての磁性体円盤(本研究の場合スポット径が  $50 \mu\text{m}$  程度であるので約数千個)の磁化情報を加算した量になる。しかしながら、本研究で用いた試料では、磁化反転等の遷移が急峻かつ明確に観測されることから、個々のパーマロイ円盤の磁化過程を反映しているとして差し支えない。ここで磁化過程の詳細に注目すると、試料 A, B どちらの場合もゼロ磁場近傍において磁化は外部磁場に対して線形に変化する。また、外部磁場が増大するとある臨界磁場で急激に磁化も増加して飽和する。逆に飽和した状態から磁場を減少させると飽和状態がある臨界磁場まで保たれ急激に磁化は減少する。このような磁化の変化は一般に磁壁の核発生・伝搬・消滅による磁化過程に多く観測されることが知られている。円盤磁性体のような対称性の良い磁性体の場合は、磁壁ではなく円盤中心に補足された磁気渦の移動として磁化過程が記述される。実際用いた試料の磁気力顕微鏡観察を行ったところ、明瞭に磁気渦が観測された。以後、上述の急激な磁化の増大を示す磁場を磁気渦の生成磁場  $H_n$ 、逆に磁化の急激な減少を示す磁場を磁気渦の消滅磁場  $H_n$  と呼ぶ。また、ゼロ磁場近傍の磁化率  $\chi_0$  は磁気渦の移動のし易さを示し、磁気渦の閉じ込めポテンシャルを反映する。つまり、図 3 に示した試料 B のように磁場印加方向に対して接近した円盤列において、双極子相互作用のために等方的な格子の B に比べ磁気渦は移動し易くなる。このように双極子相互作用の効果が生成  $H_n$ ・消滅  $H_n$  磁場と磁化率  $\chi_0$  に明瞭に観測される。

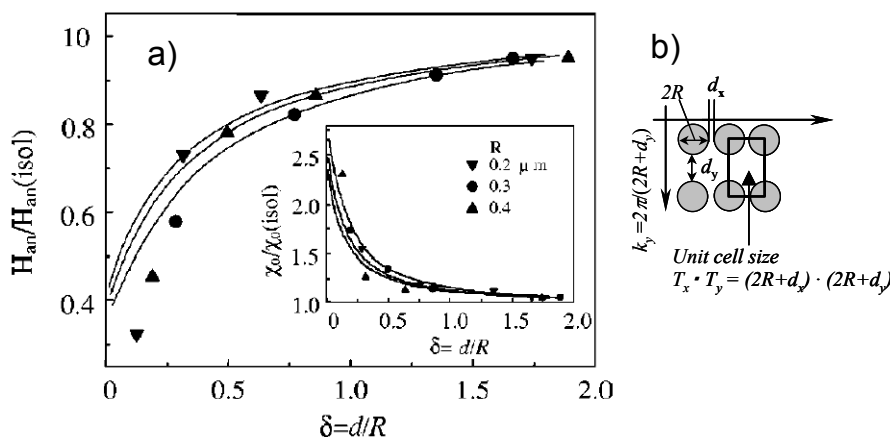


図 4 a) 規格化された磁気渦消滅磁場  $H_{an}$ , 磁化率  $\chi_0$  (内挿図) の規格化円盤間距離  $\delta$  依存性。

b) 磁気円盤格子の模式図と変数の定義。図中の丸、三角、逆三角印は測定値、実線は計算結果を示す。

図 4 a) と内挿図はそれぞれ磁気渦の消滅磁場  $H_{an}$  と磁化率  $\chi_0$  の円盤間距離依存性を示す。同一グラフ上で異なる円盤径の試料を比較するために孤立円盤とみなせる試料の値を用いて規格化した。図中の逆三角、丸、三角のシンボルは実験結果を示す。磁気円盤間距離の増加と共に十分孤立化した円盤の値に漸近していく様子が観測される。 $H_{an}$  と  $\chi_0$  の両物理量はともに計算結果と良い一致を示した。実験結果を説明するための解析モデルは磁気渦の構造は磁場印加に伴い変化しないと仮定したリジッドボルテックスモデルを用いた。また円盤間の相互作用を簡便に記述するために、図 4 b) に示すように円盤格子の単位胞を定義した。このモデルによる解析結果から磁

気円盤内の静磁氣的相互作用(自己減磁場による相互作用)は磁気渦消滅磁場  $H_{an}$  に対して正の寄与を示し、一方円盤内交換相互作用と円盤間静磁氣的相互作用は負の寄与を示すことが判った。

ダイナミクス測定に関しては、磁気円盤中に補足される磁気渦が有効質量をもってポテンシャル中を振動する調和振動子として振舞うかについての準備的実験を行った。上述のパーマロイ磁気円盤格子についてブリュアン光散乱実験を行ったところ、予想したような磁気渦の共鳴振動に対応する吸収スペクトルが観測された。このことについても更に詳細な実験を遂行する予定である。

### (3) 走査型トンネル顕微鏡によるトンネル絶縁層表面の構造の評価(宮崎グループ)

効率的なスピン注入を目指すためには均質でかつ極薄の絶縁膜の作製が必須である。昨年度、均質な絶縁層生成の指針とすべく、走査型トンネル顕微鏡(STM)を用いて極薄絶縁層用 Al の酸化初期過程を観察した。本年度は ICP プラズマ酸化、ラジカル酸化、自然酸化と酸化方法を種々変化させて、Al 表面の酸化の様子を原子分解能の STM で評価した。図 5 (a), (b)はそれぞれラジカル酸化および

プラズマ酸化による Al 酸化

1.6 nm x 1.6 nm の走査範囲の表面 STM 像および断面プロファイルを示す。ラジカル酸化による Al 酸化膜表面は周期、高さいづれも規則性が見られず、アモルファス状であるのに対して、

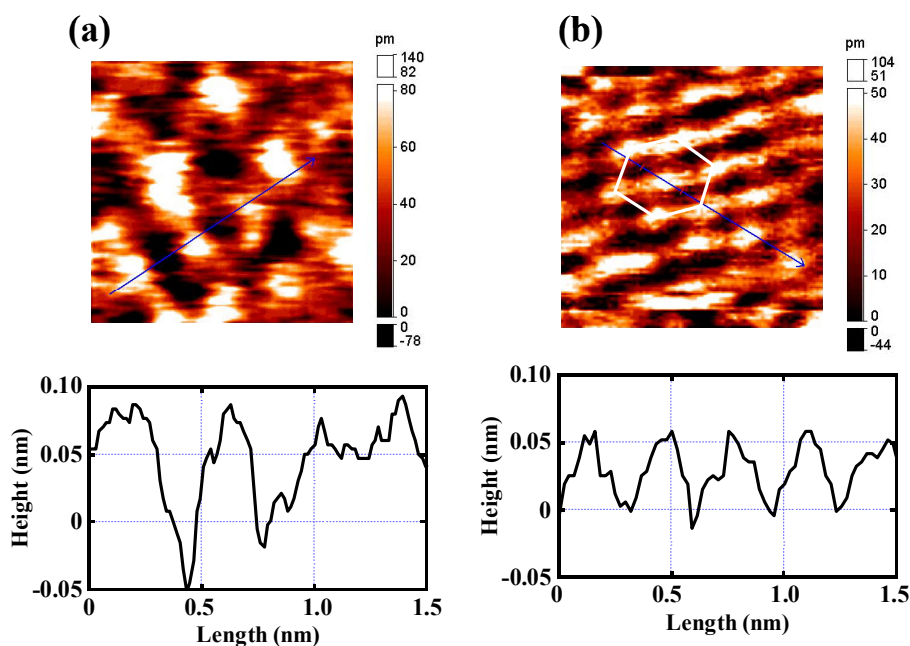


図 5 (a)ラジカル酸化および(b)プラズマ酸化による Al 酸化膜表面の STM 像および断面プロファイル。走査範囲は 1.6 nm x 1.6 nm。

による Al 酸化膜表面は明確な周期性が観測された。これは単結晶  $Al_2O_3$  に対して理論及び実験的に報告されている  $(\sqrt{31} \times \sqrt{31})R \pm 9^\circ$  再構成表面であると推察される。トンネル接合のスピン分極率が接合界面の電子状態を反映すること、および接合の上部電極の結晶性が絶縁層表面の結晶構造に強く依存することから、この結果はスピン偏極共鳴トランジスタ等の素子进行設計する上で重要な知見となる。来年度は STM を用いた局所的な  $I-V$ ,  $dI/dV-V$  特性および微細加工接合の  $d^2I/dV^2-V$  特性を系統的に行い、接合界面の電子状態を解析する予定である。

#### (4) 伝導性原子間力顕微鏡(AFM)による極微小トンネル接合素子評価(宮崎グループ)

スピン注入による新機能の発現を顕在化するためには素子の微細化が必然である。ミクロン以下のサイズの極微小トンネル接合を作製する場合、フォトリソグラフィ、電子線リソグラフィ、及びイオンエッチングを組み合わせた複雑なプロセスが必要であるため、研究を効率よく遂行する上でプローブ技術を用いた新しい素子の評価法の確立が重要である。本年度は電子線リソグラフィを用いたシンプルな接合作製プロセスと伝導性 AFM を用いた極微小素子のトンネル磁気抵抗効果の測定方法を開発した。図 6 に接合作製プロセスの模式図を示す。おおまかには 3 つのステップで試料の作製は完了し、通常のプロセスに必要な絶縁層の作製、コンタクトホール作製、リード電極の作製は不要である。試料の形状は連続な下部電極の上に島状の絶縁層及び上部電極が多数のっている。この試料に対して、伝導性チップと下部電極の間に最大 30 mV の交流電圧を印加し、ロックインアンプで電流を測定した。磁界の印加はヘルムホルツコイルを用い、最大 200 Oe、1 ループ当たりの計測時間は約 40 秒である。1 回のスキャンで表面形状像と電流像が同時に得られ、接合の上部に AFM チップがある時のみ電流が流れた。スキャン後にチップを接合上に移動し固定して磁気抵抗曲線を測定し、最小 50 nm x 50 nm、最大 700 nm x 3500 nm の接合の磁気抵抗曲線を、多数回の磁界のスweep に対して再現性良く得た。本技術を来年度以降の極微小素子へのスピン注入の実験に適用する予定である。

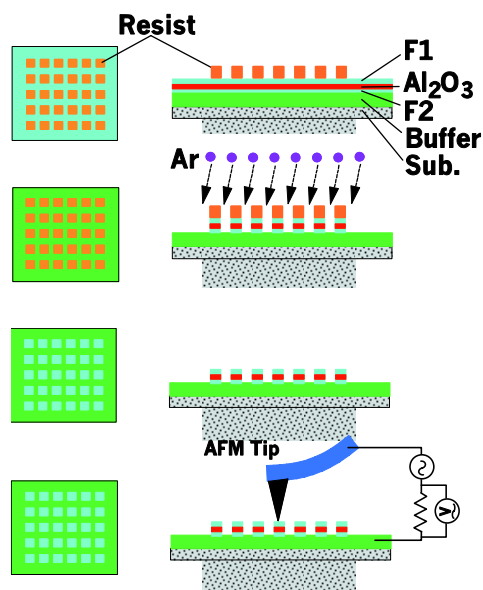


図 6 極微小トンネル接合の作製および伝導性原子間力顕微鏡を用いた磁気抵抗効果評価方法の模式図。

### 3. 研究実施体制

#### 鈴木グループ

- ① 研究分担グループ長 鈴木義茂 産業技術総合研究所エレクトロニクス研究部門  
グループリーダー

- ② 研究項目 スピン機能デバイスの研究

#### 大谷グループ

- ① 研究分担グループ長 大谷義近 東北大学大学院工学研究科材料物性学専攻 助教授
- ② 研究項目 スピン注入磁化反転の研究

#### 宮崎グループ

- ① 研究分担グループ長 宮崎照宣 東北大学大学院工学研究科 教授
- ② 研究項目 局所トンネル接合評価・局所スピン注入の研究

#### 4. 研究成果の発表

##### (1) 論文発表

- T. Nagahama, S. Yuasa, Y. Suzuki and E. Tamura, “Quantum-well effect in magnetic tunnel junctions with ultrathin single-crystal Fe (100) electrodes”, Applied Physics Letters, vol. **79**, number 26, page 4381-4383 (2001).
- T. Kawagoe, E. Tamura, Y. Suzuki, and K. Koike, “Scattering of surface-state electrons by the monatomic step in Fe(001): Differential conductivity imaging by scanning tunneling microscopy” Physical Review B, vol. **65**, page 024406 (2002).
- T. Koide, H. Miyauchi, J. Okamoto, T. Shidara, A. Fujimori, H. Fukutani, K. Amemiya, H. Takeshita, S. Yuasa, T. Katayama, and Y. Suzuki, “Direct determination of interfacial magnetic moments with a magnetic phase transition in Co nanoclusters on Au(111)”. Physical Review Letters, vol.**87**, number 25, page 257201 (2001).
- Y. Otani, T. Ishiyama, S.G. Kim, K. Fukamichi, M. Giroud, and B. Pannetier, “Spin dependent Hall effect in Co/Al junctions with small contact area”, J. Magn. Magn. Matter., vol. **239**, page 135 (2002).
- V. Novosad, K. Yu Guslienko, Y. Otani, H. Shima and K. Fukamichi, “Magnetostatic interdot coupling in arrays of circular ferromagnetic dots” J. Magn. Magn. Matter., vol. **239**, page 234 (2002).
- K. Yu Guslienko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, and K. Fukamichi, “Field Evolution of Magnetic Vortex State in Ferromagnetic Disks”, Appl. Phys. Lett., vol. **78**, page 3848 (2001).
- N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Shimada, S. G. Kim, Y. Otani, and K. Fukamichi, “Vertical magnetization process in sub- micron Permalloy disks”, IEEE Trans. Magn., vol. **37**, page 2082 (2001).
- V. Novosad, K. Yu Guslienko, H. Shima, Y. Otani, K. Fukamichi, N. Kikuchi, O. Kitakami, and Y. Shimada, “Nucleation and annihilation of magnetic vortices in sub-micron permalloy dots”, IEEE Trans. Magn., vol. **37**, page 2088 (2001).
- K. Yu. Guslienko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, and K. Fukamichi, “Magnetization reversal due to vortex nucleation, displacement, and annihilation in submicron ferromagnetic dot arrays”, Phys. Rev. B, vol. **65**, page 24414 (2002).
- V. Novosad, K. Yu. Guslienko, H. Shima, Y. Otani, S. G. Kim, K. Fukamichi, N. Kikuchi, O. Kitakami, and Y. Shimada, “Effect of interdot magnetostatic interaction on magnetization reversal in circular dot arrays”, Phys. Rev. B, vol. **65**, page R60402 (2002).
- Y. Otani, H. Shima, K. Guslienko, V. Novosad, and K. Fukamichi, “Magnetic Properties of Nano-Structured Ferromagnetic Dot Arrays”, Phys. Stat. sol. **189**, page 521 (2002).
- Andrew C. C. Yu, A. Petford-Long, and T. Miyazaki, “Direct observation of domain

structure and magnetization reversal of magnetic thin films using Lorentz transmission electron microscopy”, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 40, page 4891–4896 (2001).

- Andrew C. C. Yu, R. Doole, A. Petford-Long, and T. Miyazaki, “High resolution electron microscopy of Al-oxide barriers in magnetic tunnel junctions”, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 40, page 5058–5064 (2001).
- J. Murai, Y. Ando, T. Daibou, K. Yaoita, H. F. Han and T. Miyazaki, “Magnon excitation of CoFe/Al-oxide/CoFe ferromagnetic tunnel junctions”, J. Magn. Magn. Mater., vol. 226–230, page 922–923 (2001).
- Y. Ando, M. Hayashi, M. Kamijo, H. Kubota and T. Miyazaki, “Local transport properties of ferromagnetic tunnel junctions”, J. Magn. Magn. Mater., vol. 226–230, page 924–925 (2001).
- S. Mizukami, Y. Ando and T. Miyazaki, “Ferromagnetic resonance linewidth for NM/80NiFe/NM films (NM=Cu, Ta, Pd and Pt)”, J. Magn. Magn. Mater., vol. 226–230, page 1640–1642 (2001).
- M. Hayashi, Y. Ando and T. Miyazaki, “Scanning Tunneling Microscopy Observation of the Initial State of Oxidation in Ferromagnetic Tunnel Junctions”, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 40, page L1317–L13109 (2001).
- H. Kubota, G. Reiss, H. Bruckl, W. Schepper, J. Wecker, G. Gieres, “Magnetoresistance and Dipole Shift of Ultrasmall Magnetic Tunnel Junctions Characterized by Conducting Atomic Force Microscope”, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 41, page L180–L182 (2002).
- Andrew C. C. Yu, C. C. H. Lo, A. Petford-Long, D. Jiles, and T. Miyazaki, “Lorentz transmission electron microscopy and magnetic force microscopy characterization of NiFe/Al-oxide/Co films”, J. Appl. Phys., vol. 91, page 780–784 (2002).
- S. Mizukami, Y. Ando, T. Miyazaki, “Magnetic relaxation of normal-metal(NM)/80NiFe/NM films”, J. Magn. Magn. Mater., vol. 239, page 42–44 (2002).
- X. F. Han, W. Y. Lai, J.-Q. Wang, C. J. O’Connor, T. Miyazaki, “A self-consistent calculation of intrinsic magnetoelectric properties in magnetic tunnel junctions”, J. Magn. Magn. Mater., vol. 239 (2002).

(2) 特許出願

国内2件、外国なし