

「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

(独立行政法人産業技術総合研究所 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(MRAM)の基礎原理を与えると共にスピントロニクス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、トンネル磁気抵抗効果の機構を解明することを試みた。これまでの研究で、**強磁性**電極を極薄膜とするとトンネル磁気抵抗に量子サイズ効果が現れること、強磁性電極とバリア層との間に**非磁性**金属層を挿入することによりスピンに依存共鳴トンネルトンネリングが生じることを既に見出している。今年度は強磁性電極とバリア層との間に**反強磁性**体であるCrの超薄膜層を挿入した。以上の結果から、トンネル磁気抵抗効果の機構を統一的に理解するに至った。また、昨年度プロジェクトで購入したイオンミリング装置を用いて軟磁性体パーマロイベースのナノピラー素子の作製方法を確立した。更にその素子を用いてスピン注入磁化反転を観測することに成功した。また、ノンローカル配置の異常ホール効果測定やスピバルブ測定から面内方向に関してもスピン蓄積を効果的に生じさせる手法を確立した。

さらに、スピン機能評価の研究を行うために、①コプレーナ線路からの高速パルス磁界応答信号測定、②ポンププローブ法による磁化の才差運動の測定を行った。また、スピン機能評価するための極微小メモリセルを形成するために、集束イオンビームを用いたプロセスを検討した。

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、H15年度は、反強磁性層を界面に挿入してトンネル電子の対称性がトンネルに与える影響を調べた。

【方法】 図1に示すように、強磁性トンネル接合の一方の強磁性電極(Fe)とバリア層(Al_2O_3)の間に非常に薄い反強磁性の単結晶薄膜(Cr)を挿入した。Cr(001)面は面内では強磁性的に原子の磁化が揃い、原子面間では磁化が反強磁性的に配列した「層状反強磁性秩序」を示す。さらに、Cr[001]には Δ_1 バンド(sp バンド)のギャップがフェルミエネルギーの周りに開いている。このため、 sp 電子のトンネルが抑制されると期待される。

【結果】 高度の単結晶金属成長技術を用いて、強磁性トンネル接合のFe電極とアモルファス Al_2O_3 バリア層の間に反強磁性のCr(001)単結晶超薄膜を挿入することに成功した。その結果、磁気抵抗効果がCrの膜厚に対して2原子層周期で振動することを発見した(図2)。Cr[001]にはフェルミエネルギー付近に Δ_1 バンド(sp バンド)が無い。このため、トンネルする sp 電子はCr表面層で d バンドに散乱される必要がある。このために、トンネル磁気抵抗効果が表面1原子層に敏感になったと考えられる。このことは、単結晶トンネル接合ではバンドの対称性の制御によりトンネル伝導を制御できることを示しており、今後のスピン非線形あるいは3端子素子の設計に重要な示唆を与える。

(2) スピン注入磁化反転の研究 (大谷グループ)

【研究目的】 スピン依存伝導を反映する現象の一つとしてスピン注入磁化反転が最近注目されている。強磁性(F1)/非磁性/強磁性(F2)の三層構造において一方の強磁性体F1から非磁性体を挟んで他方の強磁性体F2へ電流を流すとスピン偏極した伝導電子が強磁性体F2に注入される。その結果、注入された伝導電子のスピンと強磁性体F2の局在電子スピンは交換相互作用が働き、スピントルクを通じてF2層が磁化反転することが知られている。本研究の最終目的はこのようなスピン注入磁化反転技術を $\sim 10^5$ A/cm²程度の低電流密度で実現することにある。このために本年度は次の二つの観点から実験・研究を遂行した。

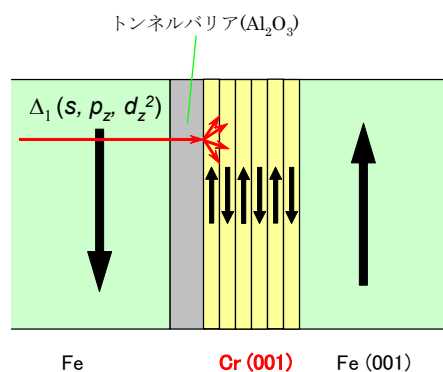


図1. 超薄Cr(001)単結晶挿入層を有するトンネル磁気抵抗素子。Cr(001)中には Δ_1 バンド(s, p_z, d_z^2)がFermiエネルギー近傍に無いため、トンネル電子はCr層とアルミナバリア層との界面で散乱される。このためトンネル磁気抵抗効果はCr表面の磁化に敏感となると考えられる。

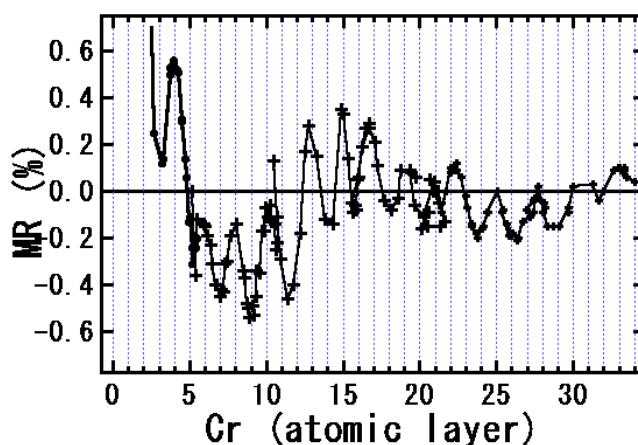


図2. 超薄Cr(001)単結晶挿入層を有するトンネル磁気抵抗素子の磁気抵抗効果のCr層膜厚依存性。トンネル磁気抵抗効果は、Cr層の膜厚に対して2原子層周期で振動する。Cr(001)は層状反強磁性体であり、トンネル磁気抵抗効果がその表面の磁化を反映するためと考えられる。

一つは強磁性/非磁性体/強磁性体オーミック接合を有するナノピラー素子の作製技術を確認して再現性良いスピン注入磁化反転を実現する。二つ目は面内のスピンバルブ構造を用いてスピン蓄積を効果的に生じさせる手法を確立することである。本報告では上記2項目の内、最初の項目を中心に結果をまとめる。

【方法】セルフアライメントとArイオンミリングの手法を用いてCo/Cu/Co 3層膜からナノピラー素子を作製した。図3(a) (b)にそれぞれ代表的な素子を上部から観察した走査顕微鏡 (SEM) 像と断面構造の模式図を示す。現在のところ再現性良く作製可能な素子のうちで最小のサイズは図3(a)に示す短軸90 nm、長軸120 nmの楕円体形状の素子である。積層構造は次の通りである。最下部に下部電極となる100 nmのCu層その上に厚さ40 nmのCo層が堆積され、さらにその上に、6 nmのCu層を隔てて厚さ2 nmのCo層と20 nmのAuキャップ層が形成されている。磁気抵抗測定と微分抵抗の印加直流電流依存性は交流励起電流 $I_{ac} \sin \omega t$ ($\omega/2\pi = 173$ Hz)に直流バイアス電流 I_{dc} を重畳させてロックイン検波することにより室温で測定した。

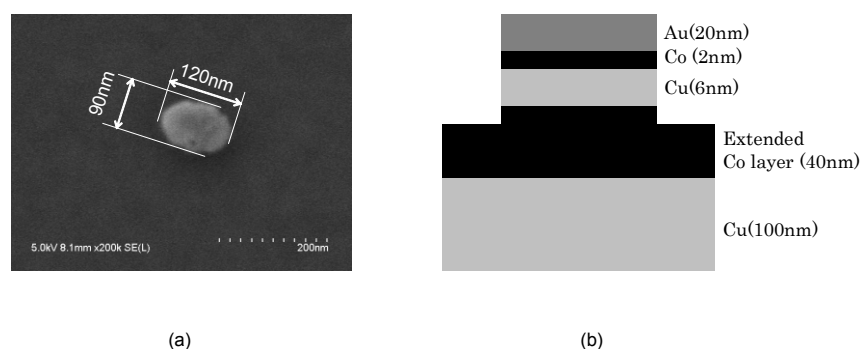


図3 (a)上部から観察したナノピラーのSEM像、(b)ナノピラーの断面構造の模式図

【結果及び考察】 図4(a)はゼロバイアス電流における典型的な磁気抵抗曲線である。図からも分かるように、二つのCo層の平行から反平行への磁化配列の変化に応じて2.5%の巨大磁気抵抗効果 (GMR) が観測される。通常、このようなピラー構造の磁化反転は印加磁場の符号が変わってから起こるが、我々の素子では印加磁場が同一符号の領域で反転している。これは、図3(b)に示したように、下部Co層までミリング形成が及びその結果エッジ部分に現れる表面磁極が外部印加磁場と逆方向を向いた浮遊磁場を作るためと考えられる。このことを考慮すると図4(a)の磁気抵抗曲線よりこの浮遊磁場は190 Oe、また上部Co層の保磁力が95 Oeと求められる。図4(b)に微分抵抗の電流依存性を示す。外部磁場を140 Oe印加して反強磁性的な磁化配列を安定化させた後、ピラーに流す直流電流を+16mAから-16mAの範囲で掃引した。この構造で+電流は下部Coから上部Coに流れる状態を指す。図からも解かる通り印加電流約-5 mAで反平行から平行に、また+6 mA近傍で逆の平行から反平行への急峻なスピン注入磁化反転が実現された。磁化反転に伴う抵抗変化は磁気抵抗効果で観測された磁気抵抗変化と同じであることからスピン注入によって完全な磁化

反転が誘起されたことは明らかである。また、磁化反転に必要な電流密度は、正負の平均から電流密度は約 $5 \times 10^7 \text{A/cm}^2$ と求められた。この素子の磁化反転の急峻さ等の特性には上述の浮遊磁場は大きな影響を与えないことも分かった。以上のように15年度の研究からナノピラーの作成方法を確立し、再現性良く磁化反転動作を観測することができた。今後は、第2の項目の実験から得られた知識を生かしてスピン蓄積の効果を利用して電流密度を低減するための素子構造を作製して実験を進める。

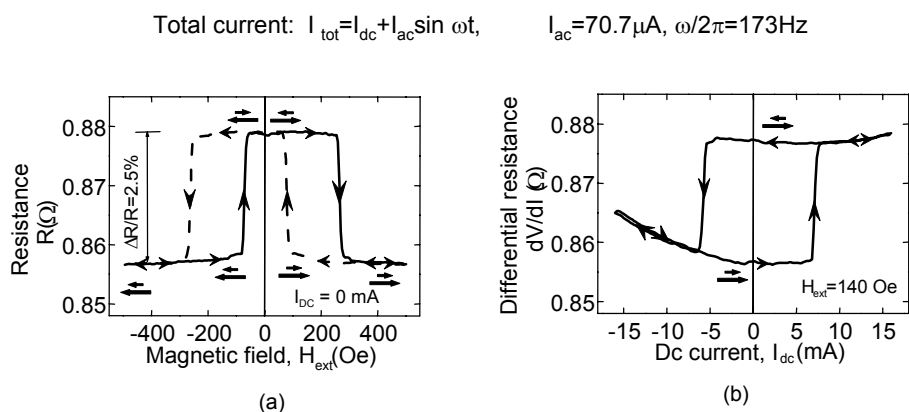


図4 (a)ゼロバイアス直流電流の場合の磁気抵抗曲線
(b)外部磁場140 Oeにおける微分抵抗の直流電流依存性

(3) スピン機能評価の研究 (宮崎グループ)

(a) 高速スピン反転の測定

電極をコプレーナ状に加工したトンネル素子 Sub. / Ta (3nm) / Cu (20nm) / Ni₈₀Fe₂₀ (3nm) / IrMn (10nm) / CoFe (5nm) / Al (0.7nm) - 0 / Ni₈₀Fe₂₀ (15nm) / Cu (20nm) / Ni₈₀Fe₂₀ (10nm) の磁化反転を測定した。接合面積は $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ である。上部電極にパルス発生器から電流を流し、高速サンプリングオシロスコープを用いて反転信号を測定した。図5は素子の困難軸方向に磁場 $H_i = 24 \text{ Oe}$ を印加し、容易磁化方向にパルス磁場 H_e を印加してフリー層の磁化を反転させたときの、トンネル抵抗値の変化を測定した結果の一例を示す。 H_e の増大に従いスイッチング時間は短くなり、最速で約 500 ps の反転時間を得た。また反転後の磁化の才差運動がはっきりと見て取れる。LLG方程式による計算と比較すると、スイッチング時間は time-scale 的には一致したが、才差運動の

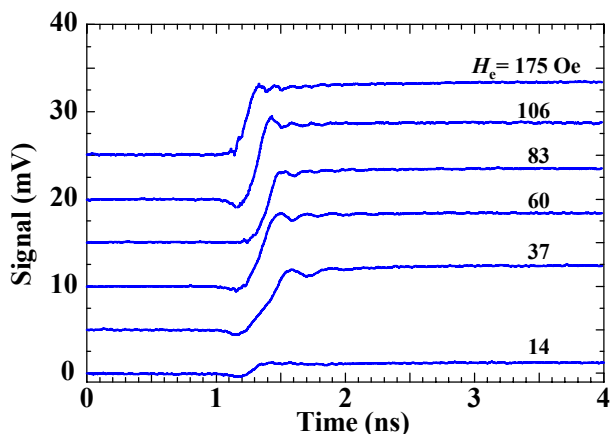


図5 困難軸に $H_i = 24 \text{ Oe}$ を印加し、容易軸方向に磁界 H_e を印加したときのトンネル抵抗値の時間変化。

周波数は異なった．これは局所的な異方性磁界の分布によると考えられる．

pump-probe法による磁化の才差運動の測定システムを構築し，N(20nm)/Ni₈₀Fe₂₀ (d nm)/N(3nm) (N=Cu, Pt, d=5 nm, 10 nm and 30 nm) 薄膜の才差運動を測定した．面積は180 μm x 90 μmである．N=Cuの場合の測定結果の一例を図6に示す．磁化の才差運動によるシグナルの明瞭な振動が見られる．才差運動の周期は1 ns以下で，振幅は振動しながら数nsかけて徐々に減衰する．また，静磁界が大きくなるに従い振動の周期は短くなる．LLG方程式を用いてパルス応答信号を計算した結果を実線で図中に示す． $\alpha=0.008$ の

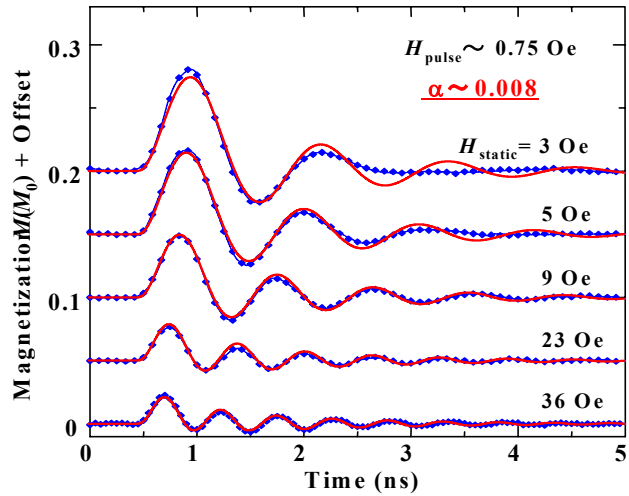


図6 磁化の才差運動によるカーブシグナルの時間依存性．点が測定結果，実線はLLG方程式による計算結果．

とき信号の減衰の傾向が良く一致することがわかる．N=Ptの場合は α の値は増大し，Ni₈₀Fe₂₀の膜厚が薄くなるに従い顕著となった．LLGのフィッティングから得られた α の値は，強磁性共鳴の線幅から求めた α 値と一致した．

(b) スピン注入用極微小メモリセル形成および測定装置の開発

FIBの局所的なタングステン薄膜堆積機能を用いた微小MTJの作製プロセスを検討した(図7参照)．試料表面に吸着した原料ガス(W(CO)₆)が収束Gaイオンビームの照射により分解し，微小領域に堆積された金属タングステンをマスクおよび電極として用いた．電極のサイズは最小100nmと小さく，高さは数百nmと高いマスクが作製できた．これを用いて最小600 nm x 600 nmのMTJを作製し，約20%の磁気抵抗を得る事ができた．

通常のプロセスでは超微小MTJの作製は非常に困難である．特にコンタクトホール形成およびリード線の形成工程が難しい．そこでこれらの問題を解決するため，伝導性のカンチレバーを用いた原子間力顕微鏡(C-

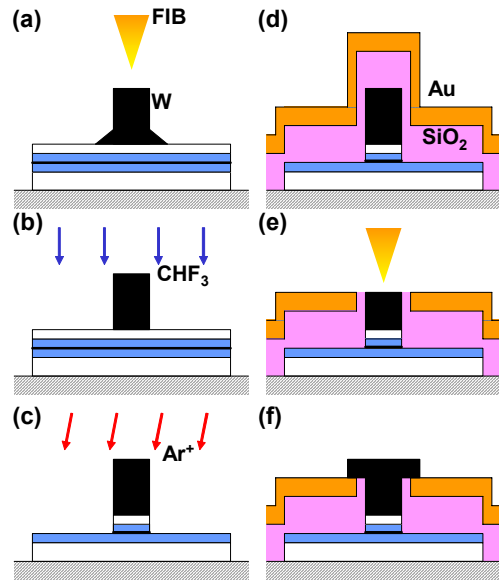


図7 FIBを用いた微小TMR素子の作製プロセス

AFM)をもちいて個々のMTJの電気抵抗を測定するシステムを構築した．本システムはコンパクトなAFM，微小MTJの位置決め用顕微鏡，2軸の直交磁界を印加するマグネット，およびロックインアンプを用いた微小電流測定系から構成される．動作確認のため，ミクロン

サイズのMTJの磁気抵抗曲線を測定したところ、抵抗値、スイッチング磁界を精度良く測定する事ができた。

3. 研究実施体制

鈴木グループ

- ① 研究分担グループ長名（所属、役職）
鈴木義茂 産業技術総合研究所 主任研究員

- 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名（所属、役職）
大谷義近 東京大学物性研究所 教授
理化学研究所FRS 量子ナノ磁性研究チーム チームリーダー（兼務）

- 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名（所属、役職）
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. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

(1) 論文発表

- T. Kawagoe, Y. Suzuki, M. Bode, K. Koike, "Evidence of a topological antiferromagnetic order on ultrathin Cr(001) film surface studied by spin-polarized scanning tunneling spectroscopy", Journal of Applied Physics, Vol. 93, No. 10 (2003) pp. 6575-6577.
- T. Devolder, C. Chappert, V. Mathet, S. Bounabi, Y. Suzuki, Y. Yokoyama, H. Bernas, "Weak coercivity dispersion in magnetic nanostructures fabricated by ion irradiation", IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 38, No. 5 (2002) pp. 2547-2549.
- T. Kimura, Y. Otani, I. Yagi, K. Tsukagoshi and Y. Aoyagi, "Spin current assisted domain wall depinning in a submicron magnetic wire", J. Appl. Phys. vol. **94**, page 7947-7949 (2003).
- T. Kimura, Y. Otani, K. Tsukagoshi and Y. Aoyagi, "Suppressed pinning field of a trapped domain wall due to dc current injection", J. Appl. Phys. vol. **94**, page 7266-7268 (2003).

- V. Novosad, M. Grimsditch, J. Darrouzet, J. Pearson, S. D. Bader, V. Metlushko, K. Guslienko, Y. Otani, H. Shima and K. Fukamichi, “Shape effect on magnetization reversal in chains of interacting ferromagnetic elements”, *Appl. Phys. Lett.*, vol. **82**, page 3716–3718 (2003).
- G. N. Kakazei, P.E. Wigen, K. Yu Guslienko, R.W. Chantrell, N.A. Lesnik, V. Metlushko, H. Shima, K. Fukamichi, Y Otani, V. Novosad, “In-plane and out-of-plane uniaxial anisotropies in rectangular arrays of circular dots studied by ferromagnetic resonance”, *J. Appl. Phys.* vol. **93** page 8418 – 8420 (2003).
- J. Shibata, K. Shigeto, and Y. Otani “Dynamics of magnetostatically coupled vortices in magnetic nanodisks”, *Phys. Rev. B* **67** 224404-1–224404-5 (2002).
- V. Novosad, M. Grimsditch, K. Guslienko, P. Vavassori, Y. Otani, and S. Bader, “Spin excitations of magnetic vortices in ferromagnetic nanodots”, *Phys. Rev. B*, vol. **66**, page 052407-1 – 052407-4 (2002)
- Y. Ando, M. Hayashi, M. Oogane, H. Kubota, and T. Miyazaki, “Interface characterization of magnetic tunnel junctions by using tunneling spectroscopy”, *J. Appl. Phys.*, 93, 7023–7025 (2003).
- H. Kubota, M. Hamada, Y. Ando, and T. Miyazaki, “Hard mask fabrication for magnetic random access memory elements using focused ion beam assisted selective chemical vapor deposition”, *J. Appl. Phys.*, 93, 8370–8372 (2003).
- J.H. Yu, H. Lee, M. Hayashi, M. Oogane, T. Daibou, H. Nakamura, H. Kubota, Y. Ando and T. Miyazaki, “Magnetic tunnel junctions with high magnetoresistance and small bias voltage dependence using epitaxial NiFe(111) ferromagnetic bottom electrodes”, *J. Appl. Phys.*, 93, 8555–8557 (2003).
- J. H. Yu, H. M. Lee, Y. Ando, T. Miyazaki, “Electron transport properties in magnetic tunnel junctions with epitaxial NiFe (111) ferromagnetic bottom electrodes”, *Appl. Phys. Lett.*, 82, 4735–4737 (2003).
- H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, G. Reiss, H. Brückl, and W. Schepper, “Size dependence of switching field of magnetic tunnel junctions down to 50 nm scale”, *J. Appl. Phys.*, 94, 2028–2032 (2003).
- S. Mizukami, Y. Ando, T. Miyazaki, “Spin Pumping in Ferromagnetic-Metal/Normal-Metal Junctions”, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 27, 934–939 (2003).
- T. Niizeki, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, “Nanofabrication of magnetic tunnel junctions by using side-edge thin film deposition”, *Science and*

Technology of Advanced Materials, 4, 347-352 (2003).

- 渡邊大輔, 久保田均, 安藤康夫, 宮崎照宣, ” 集束イオンビームを用いた微小強磁性トンネル接合の作製”, 日本応用磁気学会誌, 28, 569-572 (2004).
- 中田淳, 大兼幹彦, 久保田均, 安藤康夫, 加藤宏朗, 宮崎照宣, ” Co_2MnAl ホイスラー合金を用いた強磁性トンネル接合”, 日本応用磁気学会誌, 28, 573-576 (2004).

(2) 特許出願

H15年度特許出願件数：0件（研究期間累積件数：3件）