「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する 革新材料・プロセス研究」 平成21年度採択研究代表者

H23 年度 実績報告

木村 崇

九州大学 稲盛フロンティア研究センター 次世代エレクトロニクス材料研究部門・教授

電荷レス・スピン流の三次元注入技術を用いた超高速スピンデバイスの開発

§1. 研究実施体制

- (1)木村グループ(九州大学)
 - ①研究代表者:木村 崇 (九州大学・稲盛フロンティア研究センター、教授) ②研究項目
 - ・ 多端子スピン生成技術による三次元巨大スピン流の生成
 - ・ 三次元巨大スピン流注入による厚膜磁性体の磁化反転の実証

(2) 能崎グループ(慶応義塾大学)

主たる共同研究者:能崎 幸雄(慶應義塾大学理工学部、准教授)
②研究項目

- ・ 合成スピン流方向の高速変調技術の確立
- ・ スピントルクの最適化による低電力・高速磁化反転技術の開発
- (3) 宮尾グループ(九州大学)

①主たる共同研究者:宮尾 正信(九州大学システム情報科学院、特任教授) ②研究項目

- ・ 高品質強磁性フルホイスラー合金の MBE 成長技術の確立
- ・ プレーナー素子構造用サブミクロン微細加工技術の確立

(4)伊藤グループ(関西大学)

①主たる共同研究者:伊藤 博介(関西大学システム理工学部、准教授)②研究項目

- ・ スピン注入磁化反転の計算機シミュレーション
- ・ ホイスラー合金等ハーフメタルの電子状態の計算機シミュレーション

§2. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(3-1)に対応する)

前年度までに、多端子スピン注入による巨大スピン流の生成が可能であることを実証し、更に、 ホイスラー合金を用いることで、電荷レス・スピン流の生成効率が飛躍的に増大することを確認した。 本年度は、多端子化により、最大生成スピン流がどの程度増大するか?また、現在の素子構造に おいて、電荷レス・スピン流の限界を決めている要因は何か?を調べると共に、更なる電荷レス・ス ピン流の生成効率の向上を目指し、4元系ホイスラー合金の成膜法を開発し、それを用いて電荷 レス・スピン流の生成効率を評価した。

<u>木村グループ</u>

電荷レス・スピン流の注入効率の更なる向上にむけて、本年度は、①多端子スピン注入、②側 面スピン吸収技術など、素子構造の改良による高効率スピン注入技術を開発し、各実験結果を解 析し、どの程度の注入効率の改善があるのかを定量的に調べた。

まず、多端子スピン注入技術に関しては、前年度に二端子スピン注入により、複数の端子から 純スピン流を生成すると、スピン吸収体中では、各端子からのスピン流が合成されて注入できるこ とがわかったので、今回は、その発展版として四端子注入素子を作製した。図1にスピン信号バイ アス電流依存性を示す。信号が 50% 減衰する電流の大きさを Ico とすると、四端子注入では、 その値は、四倍以上にまで、改善されることが分かった。このことは、スピン信号の減少は、主にス ピン注入源の発熱によるものであり、非磁性細線の発熱の影響はあらわれていないことを意味して いる。すなわち、更なる注入源の数の増大により、より効率的にスピン流を生成できると考えられる。



図1. (a) 単端子スピン注入、三端子、四端子スピン注入の概念図。(b) 四端子スピン注入 下で得られたスピン信号 (c) 各スピン注入下におけるスピン信号のバイアス電流依存性

もう一つの特筆すべき点は、ある一定量のスピン流を生成する場合、多端子注入を用いることでエ ネルギー効率が改善される点である。例えば、単端子注入における Ico に対応する 2mA の電流 を四端子注入により流す場合、スピン信号の減衰は 5% 以下であり、50/4% より圧倒的に小さい ことが確認できる。このことは、ジュール熱が電流の二乗に比例することに対応しており、電流を分 割することで、単端子スピン生成源のジュール発熱が効率的に抑制されたことに対応している。多 端子スピン注入は、余分なスペースが必要であるが、今後、縦型構造作製技術と上手く組み合わ せることで、スペース面の改善を目指したい。

次に、三次元スピン注入を実現するうえで、重要となる厚膜磁性体へのスピン注入効率を評価 するために、吸収体を非磁性体中に埋め込んだ横型スピンバルブ素子を作製し、スピン吸収効率 の吸収体膜厚依存性を調べた。厚膜磁性体へのスピン吸収を定量的に評価するうえで、気をつ けなくてはいけないのは、スピン流が非磁性体を流れる際に受ける幾何学的な散乱効果である。 そのような散乱は、スピン反転を引き起こす可能性があり、スピン信号の減衰につながる。その結 果、スピン吸収の評価が困難となる可能性がある。このような幾何学的散乱の影響を避けるために、 図のように、非磁性細線をT 字型に加工し、分岐した細線中にスピン吸収体を設置した。図2(a) (b) に、吸収体がある場合と無い場合のスピン信号の結果を示す。分岐細線上に吸収体を置いた 場合においても、明瞭なスピン信号の減衰が観測されており、スピン吸収効果が生じているのが 確認できる。次に、この吸収体の厚さを変化させ、スピン信号が膜厚に対してどう変化するかを調 べた。図に示すようにスピン信号は、膜厚の増加とともに減少しており、厚膜化による吸収効率の 増大が確認できる。図において、点線は、一次元モデルにおいて側面の面積増大を考慮した際 のスピン信号の計算値であり、厚膜の吸収体では、計算値よりも大きな吸収効果が得られることが 分かった。この原因については、おそらく一次元モデルからのずれによるものと考えており、今後 は、伊藤グループが開発中の三次元スピン流分布の数値計算プログラムと組み合わせた定量的



図2.(a),(b)分岐型横型スピンバルブ素子におけるスピン吸収効果の概念図(c)実際に試作した分岐型スピンバルブ素子。スピン信号の測定結果(吸収体無(d)吸収体有(e))。(f)スピン信号の吸収体接合面積依存性。

解釈を実現し、更に、それを用いて最適吸収構造を設計する。

また、更なる巨大スピン流の生成に向けて、スピン注入電極をピラー化することで、臨界電流密度が三倍以上に増大することを見出した。更に、材料ベースでの生成効率の向上のためのホイスラー合金をスピン生成源とする純スピン流注入を宮尾グループと共同で実施、高速制御に向けた実験を能崎グループと共同に着手しており、着実に進展している。

<u>能崎グループ</u>

本年度は、スピントルク移行磁化反転の高速化に向けて、①スピントルクの定量的測定に不可 欠な微小磁性体のスピンダンピングの高感度測定に必要な素子設計、②宮尾グループが開発を 進めているホイスラー合金端子のスピンダンピング測定、③木村グループが開発を進める多端子 素子のスピンダンピング測定を行った。また、スピントルクの交流化による磁化反転の低電力化、 高速化を検証するため、④交流磁場を用いた高磁気異方性磁性体の磁化反転実験を行った。さ らに、⑤強磁性/非磁性界面へのスピン蓄積、非磁性体中のスピン拡散、および強磁性体への 吸収、スピントルク移行の微視的理論の確立を目指した。その結果、①コプレーナ型のマイクロ波 伝送線路の形状を最適化することにより、スピンダンピング信号の検出感度を最大化できることを 明らかにした(図3:スピンダンピング信号強度とコプレーナ線路の寸法の関係(19))。さらに、最適 化したコプレーナ線路を用いて、多端子素子およびホイスラー合金端子のスピンダンピング信号 の測定を行った(②、③)。その結果、スピン系から格子系へのエネルギー散逸が極めて小さいこ と、すなわちスピン移行磁化反転の注入源、注入先材料として適していることがわかった。多端子 注入素子についてもスピンダンピング信号の測定実験を進めている。交流磁場印加による磁化反 転実験(④)では、強磁性体の磁気特性パラメータの制御によりスピン歳差運動の位相同期性が



図3 スピンダンピング信号強度とコプレーナ線路寸法の関係

向上し、磁化反転エラーを低減できることを明らかにした(12)。さらに、磁気渦構造を利用すること により、スピントルク移行磁化反転で重要な役割を果たす非弾性トルクの定量化が可能であること を示した(13)。スピン流の微視的理論による解析(⑤)では、非磁性層表面におけるスピン密度形 成の源を明らかにした(11)。

<u>宮尾グループ</u>

高いスピン偏極率を有すると期待されるハーフメタルホイスラー合金材料系を利用した巨大スピン流の生成を目的とし、昨年度までに、L2₁規則構造を有する Co₂FeSi(CFS)薄膜を利用した純スピン流の生成と検出に成功している.今年度は、MTJ研究や CPP-GMR 研究において、CFS より更なる高性能化が報告されている Co₂FeSi_{0.5}Al_{0.5}(CFSA)薄膜 [Co₂FeSi に第4元素(Al)を添

加した 4 元系ホイスラー合金薄 膜]の結晶成長と、その純スピン流 の生成・検出について検討した。

CFS 薄膜成長時と同じ結晶成長 条件を利用して, Co₂FeSi₀₅Al₀₅ (CFSA)薄膜形成を試みたところ、 蒸着を開始して約1 nm で良好な エピタキシャル成長が示唆される RHEED ストリークパターンが観 察された. つまり, 第4元素添加 された CFSA 薄膜のエピタキシャ ル成長に成功したことが示唆され た. この薄膜を昨年度開発した微 細加工技術を利用して横型スピン バルブ素子へと加工し[図4(a): 電極端間隔 200 nm], 300 K でスピ ン信号の観測を試みた.図4(b)に は、非局所抵抗(ΔV / I)の磁場依存 性を示す.明瞭なヒステリシス曲 線が室温で観測され,スピンシグ ナル(1.6 mΩ)が得られている. こ れは4元系ホイスラー合金を電極 とした素子において純スピン流の 検出に成功した初めての結果であ る.しかし、CFS 電極を利用した 同様のサイズの試料において得ら



図4. (a) CFSA/Cu/CFSA 横型スピンバルブ素子と (b)室 温スピン信号の観測例.



図5. (a) Si 基板上に形成した CFSA 薄膜の断面 TEM 像. (b) CFSA/Si 界面における異相形成メカニズムの模式図. れている結果とそれほど優位差はなく, MTJ 研究や CPP-GMR 研究の前例から予想した期 待通りの成果であるとは言い難いものであった.

そこで、CFSA 薄膜の断面 TEM 観察を試みた.その結果、CFSA 層とSi 基板との界面では、CFS/Si 系では観測されていなかった反応層の形成が確認された[図 5 (a)].電子線回折パターンの観測より、CFSA 薄膜中からは L2₁規則構造が観測されているものの、このような界面層の形成は結晶規則度の低下などを招いてしまっている可能性が高く、スピン流の生成効率を下げてしまっている可能性が高い.このような界面層の形成理由を考察するために、CFS => CFSA => Co₂FeAl(CFA)という系統的な組成変調効果の検討を行い、結晶構造解析を行った結果、図 5 (b)に示すような界面層形成メカニズムが明らかになってきている.

今後, Si 基板中の Si が Al 系の置換サイトへ拡散するメカニズムを抑制するための良質 なバッファー層を形成し, CFSA 薄膜の結晶規則度の向上による巨大純スピン流の生成を図 る予定である.

伊藤グループ

多端子純スピン流注入による磁化ダイナ ミクスのシミュレーション技術を確立し、多端 子にすることでより大きな磁性体の磁化を 反転することが可能であることを理論的に 示した。また注入スピンの方向を変調するこ とで、磁化反転に要する時間を短縮できる ことも明らかにした。

昨年度開発したマイクロマグネティクス (LL 方程式)シミュレーションのプログラムを 多端子注入・スピン変調へと拡張した。これ を用いてパーマロイの磁化ダイナミクスを調 べた結果を図6に示す。図6(a)から明らか なように、1端子の純スピン流注入ではスピ ン流の強さが u=1000 においても磁化は反 転されないにもかかわらず、2端子注入で は u=500 で磁化が反転されていることがわ かる。ここで計算したジオメトリーにおいて は、2端子の純スピン流注入では1端子の 場合と比較して約4倍大きな L_xの磁性体の 磁化を反転可能であることがわかっている。 また、図6(b)は注入スピンのスピン方向と磁 化ダイナミクスとの関係を表している。はじ



図6 (a) 1 端子および 2 端子純スピン注入による磁 化のダイナミクス。(b) 様々な方向の純スピン流によ る磁化のダイナミクス。

めに+y 方向を向いた磁化を-y 方向へと反転するには、-y 方向に偏極した純スピン流を注入する 必要がある。しかし、この場合には磁化の初動において効率的なスピントルクが生じず、磁化の向 きと垂直(+x, +z)にスピン偏極した純スピン流を注入した方が磁化は速く回転し始める。シミュレー ションでは、+z 方向から-y 方向へとスピン方向を変調することで、磁性体へ効率的にスピントルク を受け渡すことができ、より短時間で磁化が反転することが明らかとなった。

以上の結果は、多端子の純スピン流注入およびスピン方向の変調が低消費電力かつ高速なス ピンRAM実現にとって有力な技術であることを示す。今後は、スピン流の空間分布を考慮に入れ、 より高精度なシミュレーションを行い、素子構造やスピン方向制御の最適化を行う。 §3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

●発表総数(発行済:国内(和文) 0 件、国際(欧文) 19 件):

- 1.S. Yakata, M. Miyata, S. Honda, H. Itoh, H. Wada, and T. Kimura "Chirality control of magnetic vortex in a square Py dot using current-induced Oersted field", Appl. Phys. Lett., 99, 242507 (2011). DOI:10.1063/1.3669410
- 2.T. Kimura, N. Hashimoto, S. Yamada, M. Miyao, and K. Hamaya, "Room-temperature generation of giant pure spin currents using epitaxial Co₂FeSi spin injectors," NPG asia materials, 4, e9 (2012). DOI:10.1038/am.2012.16
- 3.K. Hamaya, N. Hashimoto, S. Oki, S. Yamada, M. Miyao, and T. Kimura "Estimation of the spin polarization for Heusler-compound thin films by means of nonlocal spin-valve measurements: Comparison of Co₂FeSi and Fe₃Si", Phys. Rev. B 85, 100404(R) (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.85.100404
- 4.S. Nonoguchi, T. Nomura, and T. Kimura "Nonlocal spin transports in nanopillar-based lateral spin valve" Appl. Phys. Lett. 100, 132401 (2012). DOI: 10.1063/1.3698092
- 5.S. Nonoguchi, Y. Ando, S. Yakata, and T. Kimura, "Transport properties of pure spin currents in a polycrystalline Gd wire", IEEE Trans. Magn., 47, 2750 - 2752 (2011). DOI: 10.1109/TMAG.2011.2158407
- 6.M. Miyata, S. Nonoguchi, S. Yakata, H. Wada, and T. Kimura, "Static and dynamical properties of a magnetic vortex in a regular polygonal nanomagnet", IEEE Trans. Magn., 47, 2505 - 2507 (2011). DOI: 10.1109/TMAG.2011.2158408
- 7.M. Miyata, S. Yakata, T. Kimura, and H. Wada, "Control of Magnetic Vortex Chirality in a Regular Pentagonal Permalloy Nanomagnet Using In-plane Magnetic Field", J. Magn. Soc. Jpn., 35(3), 216-219 (2011). (in Japanese) ISSN: 1882-2924
- 8.S. Yamada, K. Hamaya, T. Murakami, Varaprasad, Y. K. Takahashi, A. Rajanikanth, K. Hono, and M. Miyao, "Low-temperature grown quaternary Heusler-compound Co₂Mn_{1-x}Fe_xSi films on Ge(111)", J. Appl. Phys. 109, 07B113-1-3 (2011). DOI:10.1063/1.3563039
- 9.K. Hamaya, T. Murakami, S. Yamada, K. Mibu, and M. Miyao, "Local structural ordering in low-temperature-grown epitaxial Fe_{3+x}Si_{1-x} films on Ge(111)", Phys. Rev. B 83, 144411 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.83.144411
- 10.Y. Kasatani, A. Yamaguchi, H. Miyajima and Y. Nozaki, "Broadband ferromagnetic resonance of micron-scale iron wires using rectifying effect", IEEE Trans. Magn., 47(1), 1587-1590 (2011). DOI: 10.1109/TMAG.2011.2106115

- 11.K. Hosono, A. Yamaguchi, Y. Nozaki, and G. Tatara , "Spin current driven by thermal gradient", AIP Conference Proceeding Series , 1399, 731-732 (2011). DOI: 10.1063/1.3666585
- 12.Y. Nozaki, A. Kato, K. Noda, Y. Kanai, T. Tanaka, K. Matsuyama, "Micromagnetic study on microwave-assisted magnetic recording in perpendicular medium with intergrain exchange coupling", J. Appl. Phys., 109(12), 123912, (2011). DOI: 10.1063/1.3596805
- 13.M. Goto, H. Hata, A. Yamaguchi, Y. Nakatani, T. Yamaoka, Y. Nozaki, and H. Miyajiama, "Electric spectroscopy of vortex states and dynamics in magnetic disks", Phys. Rev. B, 84, 064406, (2011). DOI:10.1088/1742-6596/266/1/012080
- 14.S. Nonoguchi, T. Nomura, Y. Ando, and T. Kimura, "Electrical manipulation of spin polarization and generation of giant spin current using multi terminal spin injectors", J. Appl. Phys., 111, 07C505 (2012). DOI:10.1063/1.3672245
- 15.M. Miyata, S. Nonoguchi, S. Yakata, H. Wada, and T. Kimura, "Formations of magnetic vortices in a chain array of triangle Py dots and an isosceles triangle Py dot", J. Appl. Phys., 111, 07B902 (2012). DOI:10.1063/1.3673349
- 16.H. Itoh, S. Honda, and J. Inoue, "Electronic structure and spin-injection of Co-based Heusler alloy/ semiconductor junctions", Key Engineering Materials, Vol. 470, 54-59, (2011). DOI:10.4028/www.scientific.net/KEM.470.54
- 17.S. Oki, S. Yamada, T. Murakami, M. Miyao, K. Hamaya, "Influence of Al co-deposition on the crystal growth of Co-based Heusler-compound thin films on Si(111)", Thin Solid Films 520, 3419 (2012). DOI: 10.1016/j.tsf.2011.10.080
- 18.K. Nakada, S. Yakata, and T. Kimura, "Noise-induced synchronization in spin torque nano oscillators", J. Appl. Phys., 111, 07C920 (2012). DOI: 10.1063/1.3680537
- 19.T. Kobayashi, N. Ishida, K. Sekiguchi, Y. Nozaki, "Ferromagnetic resonance properties of granular Co-Cr-Pt films measured by micro-fabricated coplanar waveguides", J. Appl. Phys., 111, 07B919 (2012). DOI: 10.1063/1.3679411

(3-2) 知財出願

- ① 平成 23 年度特許出願件数(国内 1 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 2件)