

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名「固体中へのスピン注入による新機能創製」

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)

研究代表者

鈴木 義茂 (大阪大学大学院基礎工学研究科 教授、
産業技術総合研究所エレクトロニクス部門 客員研究員)

主たる共同研究者

湯浅 新治 (産業技術総合研究所エレクトロニクス部門 グループリーダー)

長濱 太郎 (産業技術総合研究所エレクトロニクス部門 主任研究員)

久保田 均 (産業技術総合研究所エレクトロニクス部門 主任研究員)

福島 章雄 (産業技術総合研究所エレクトロニクス部門 主任研究員)

大谷 義近 (東京大学物性研究所 教授、
理化学研究所量子ナノ磁性研究チーム リーダー)

木村 崇 (東京大学物性研究所 助手、
理化学研究所量子ナノ磁性研究チーム 客員研究員)

宮崎 照宣 (東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻 教授)

安藤 康夫 (東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻 助教授)

白石 誠司 (大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻 助教授)

水口 将輝 (大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻 特任助手)

3. 研究内容及び成果

本チームに於いては電子の電荷のみならずスピンを利用した新たなエレクトロニクスの確立を目指し固体へのスピン注入による新機能創成の研究を、鈴木・長濱グループ、大谷グループ、宮崎グループの3グループ編成で遂行した。

① 鈴木・長濱グループでは電子のコヒーレントなスピン依存伝導およびスピン注入トルクの制御により新機能素子を創出することを目的として研究が行なわれた。まず、高度な電子の伝導性を制御するために鉄およびコバルトの単結晶を電極とするトンネル磁気抵抗素子を世界で初めて作製し、電極を単結晶鉄の超薄膜とした素子においてトンネル磁気抵抗効果の大きさがバイアス電圧に対して振動的に変化する「スピン依存量子サイズ効果」を発見した。更に、コバルト単結晶電極とアルミナバリア層の間に単結晶銅スペーサー層を挿入することによりトンネル磁気抵抗効果の大きさがスペーサー層の膜厚に対して振動する「スピン偏極共鳴トンネル効果」を発見した。この効果の発見により強磁性ベース層のスピン偏極量子準位を利用する共鳴トンネルスピントランジスタが原理的に実現可能であることを初めて示した。さらに層状反強磁性を示す単結晶クロムを電極とした場合、トンネル磁気抵抗効果の大きさがクロム層の膜厚

に対して2原子層の周期で振動することを見出したが、クロムを電極としたトンネル素子ではトンネル磁気抵抗効果が電極表面の1原子層のスピンの偏極の方向によって決められていることを示すものである。以上の事実は、コバルトや鉄などの Δ_1 電子(電極表面に垂直な軸による任意の角度の回転に対して不変な波動関数を持つ電子)を持つ電極では電極全体に広がった Δ_1 電子がスピン依存伝導を担っていること、一方で、クロムの様な Δ_1 電子をフェルミエネルギー近傍に持たない電極では、電子が電極表面1原子層で散乱されることにより伝導が生じるためにスピン依存伝導性が表面1原子層に非常に敏感になっているものとして統一的に理解されることを示したもので、以上の一連の実験によりアモルファスアルミナをバリア層とするトンネル磁気抵抗素子のスピン依存伝導機構にかなり明瞭な知見を与えることに成功した。

更にスピン偏極共鳴トンネル効果を利用したトランジスタを実現するために、二重バリア構造を作製し、上下および中間層からそれぞれ電極を取ることを試み、一部ウエットエッチングを併用することにより3端子構造の作製に成功し、それぞれの電極間でトンネル磁気抵抗効果を確認している。3端子素子としての挙動は中間層(ベース)の抵抗を考慮することによりモデル化された。一方、走査型トンネル顕微鏡の測定結果からアモルファスアルミナバリア上の鉄は粒状に成長することが見出され、増幅作用を示すトランジスタの作製には平坦性の良い超薄中間層の成長技術を開発する必要があることを明らかにした。

また鉄コバルト合金層の間に銅のスペーサーを挟んだ巨大磁気抵抗素子を作製し、スイッチング時間が200psec以下と言う超高速スピン注入磁化反転を実現し、マグネシア(MgO)をバリア層とするトンネル磁気抵抗素子においてもスピン注入磁化反転を実現しているが、本結果は、スピン注入により情報の書き込みを行う次世代の磁気RAM(MRAM)が実現可能であることを示すものである。

次いでスピン注入磁化反転素子における電流電圧特性の非対称性を利用してマイクロ波を整流することを試み、外部磁場などでフリー層の磁化と固定層の磁化に適当な角度を持たせてマイクロ波電流を導入すると、その周波数がフリー層の磁気共鳴の周波数と一致した時に磁気共鳴が誘起されることを発見した。この磁気共鳴によりフリー層の磁化が大きな歳差運動をし、マイクロ波電流が固定層からフリー層に向かって流れる瞬間には磁化が反平行に近づくために抵抗が大きくなり大きな電圧が発生し、その逆に、電流がフリー層から固定層に向かって流れる瞬間には磁化が平行に近づくために抵抗が小さくなり、発生する電圧は小となり、共鳴周波数において電圧が発生することを見出しスピントルクダイオード効果と名付けた。発生する電圧は印加電圧の二乗に比例し、二乗検波特性を示す。簡単な理論的考察から発生電圧はスピン注入磁化反転に必要な電圧に反比例することを示し、さらに、スピン注入磁化反転に必要な電圧が25mVより小さくなるとこの素子の特性は半導体ダイオードを上回る可能性があることを見出し、この素子を基礎として、今後、スピントルクトランジスタといった能動素子も実現可能であると考えられることを示した。

② 大谷グループでは、主にスピン注入磁化反転やスピンの拡散伝導に着目して2次元ナノスケール素子あるいは3次元ナノピラー構造を用いた実験的また理論的な研究を行い、非局

所手法を用いた2次元スピン注入デバイスを用いて電荷の流れていない領域にスピン流を定常的に誘導する方法を確立した。この手法をホール効果測定に応用し、スピン流から生じる非局所ホール効果の測定に成功した。また、非局所手法を用いて非磁性細線中に誘起されるスピン流の3次元分布を計算する手法を確立し、電流から分離されたスピン流のみによって生じる磁化反転素子の設計と作製を行い、電荷流を含まないスピン流のみによるパーマロイ(Py: Ni₈₀Fe₂₀合金)微粒子の磁化反転に成功している。

それぞれの研究の詳細は以下の如くである。

非局所ホール効果測定には非磁性体銅クロス構造と強磁性 Py 細線から成る素子を作製してホール電圧の測定を行った。電荷の流れを含む電流は銅細線の一部を流れるため、Py 細線を境に他方の銅細線部分には電流は流れず、アップとダウンのスピン流が拡散的にお互い向きを異にして流れるが、スピン流が生じている領域に非磁性不純物によりスピン軌道相互作用が生じると、両スピン流の軌道を同じ方向に曲げることになり、スピン量子化軸がデバイスの基板面に垂直の場合のみ横方向電圧が誘起されること、磁場を垂直に印加した場合に非局所ホール抵抗が観測されること、また、磁場を面内に制限して、Py 細線に対して平行あるいは垂直方向に印加するとホール抵抗は観測されないことを見出している。次に、純度の高い銅細線を用いて同様の実験を行ったところホール抵抗は消失してほとんど観測されないため、この結果はこの現象が不純物によるスピン軌道相互作用に起因すると考えられること、また、散乱方向がスピン流の方向と量子化軸との外積により決定されることの定性的な解釈と符合することも明らかにした。

このようなスピン注入素子を設計し実験する上で、素子中のスピン流の分布を詳細に理解する必要があるため、スピン緩和の度合いの指標となるスピン流に対する抵抗(スピン抵抗)の概念を導入した3次元のスピン流分布の数値計算手法を確立した。計算手法の正当性を確かめるために一対の強磁性細線とそれらを橋渡しする非磁性細線から成る面内スピンバルブ素子中のスピン流分布の計算を行い、その結果、スピン流は一方の強磁性スピン注入端子から注入され他方の検出端子へと銅細線中を電荷の流れを伴わずに伝播することを見出し、スピン抵抗の小さい強磁性検出端子に、スピン流が吸収されることにより銅細線中の分布が変化することを示している。これは、強磁性体がスピン流を吸収し内部でスピン緩和(スピントランスファー)を促進することを意味し、強磁性体を微小にするとスピン流の吸収によって磁化反転を誘起できることが予想されることを意味する成果である。

このことを考慮して、上述のスピンバルブ素子の注入源を Py パッド、スピン流を運ぶ銅細線を銅クロス、検出強磁性細線を Py 微粒子(幅 50nm×長さ 150nm×厚さ 30nm)に置き換えた磁化反転素子を作製した。Py パッドから電流を流すと銅クロス位置から Py 微粒子に向かってスピン流は拡散的に伝播し、微粒子に吸収されるため、金細線を磁化状態検出用の端子として微粒子に接触させ、通常のスピンバルブ抵抗を測定すると微粒子とスピン注入パッドの相対的な磁化状態に対応して明瞭な非局所スピンバルブ抵抗曲線が観測され、変化の大きさ 0.3mΩ を実測した。次に、初期状態として微粒子の磁化とパッドの磁化が反平行の状態、磁

場の代わりにパルス状の印加電流を増大させて行くと負の印加電流(約-12mA)において非局所スピバルブ抵抗に大きな変化を観測し、この変化量が前述の磁場印加によって生じる抵抗変化と一致することからスピ流のみによって磁化反転が生じることを検証することに成功している。

更に、スピ注入効率を増大させるために接合間のスピ抵抗を考慮した拡散伝導の2電流モデルを提案し、このモデルを用いて、3次元スピ流分布を可視化する簡単な計算手法を確立し、効率的なスピ注入磁化反転を誘起するデバイスを設計した。

一方、ナノピラー磁化反転素子については、再現性良い実験結果を得ることの出来るナノピラー構造の作製手法を確立し、更に上述の計算結果を利用して素子作製と詳細な実験を行い、上部電極のサイズや材料を最適化することによりスピ流を増大することが出来ることを実験的に検証した。その他、スピ流によって生じる磁化の不安定性について理論研究も行った。その結果、一様磁化状態であってもスピ偏極電流を流すことにより、スピ波が励起され、磁化状態の不安定化が引き起こされること、引き続きこの状態にスピ偏極電流を流し続けると、磁壁が核発生することを新たに発見した。更に、この理論解析を磁気渦構造についても適用した結果、磁気渦はローレンツ力の様に渦中心の磁化ベクトルとスピ偏極電流ベクトルの外積で得られる方向に力を受けて運動することを見出した。このことを実験的にも検証している。

③ 宮崎グループでは、非磁性体/強磁性体/非磁性体(N/F/N)の接合における、強磁性体の才差運動に伴うスピ流の発生、伝搬の現象であるスピポンピングに関する研究が行なわれた。強磁性共鳴(FMR)スペクトルの線幅(スペクトルのピーク間の幅)から Gilbert のダンピング定数を精度良く算出する手法を提案し、Fのダンピング定数はNに大きく依存することを見出し、この現象は強磁性体の才差運動によりスピ流が非磁性体内に伝搬し、非磁性体内におけるスピ蓄積とスピ緩和が実現されていると解釈するスピポンピングの効果として説明することに成功した。また強磁性の才差運動の減衰を直接的に観測するためにポンププローブ法を応用した高速磁化測定装置を構築し、上記試料におけるスピポンピングによる磁気緩和の増大現象を直接的に観測することに成功し、スピ流による新機能創製に関するその後の研究に多大な貢献をした。本研究ではさらにスピ流の伝搬によるノンローカルな効果を期待し、N/F/N1積層膜およびN/F/N1/N2積層膜(N1, N2は非磁性体)におけるN1内のスピ流の伝搬及びN1/N2界面におけるスピ緩和に伴うFのダンピング定数の変化を調べ、N1の膜厚が十分薄い領域では両積層膜間のダンピング定数はN2に依存した値を示し、N1の膜厚を厚くするに従い両者の差は緩やかに減少すること、これはN1内のスピの伝搬によってN1/N2界面における緩和をF層がノンローカルに影響を受けた結果であることをスピポンピングの理論と比較して定性的に示している。更にF層のダンピング定数のN1膜厚依存性からN1内のスピ拡散長を求め、N1がCuの場合にスピ拡散長は室温で約400nm、低温で約1000nmに達することを示しているが、これらはスピ注入による高周波デバイス応用に際してスピ流の影響を示した重要な成果である。

4. 事後評価結果

4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

高密度、低消費電力の不揮発性メモリという重要デバイスへの応用を見据えて、この方向の基礎的データを積み上げつつ、物理学的に意味のある多くの新しい知見と成果を得ている。論文発表は英文95件、和文22件、口頭発表(ポスター発表含む)は国際会議126件、国内会議173件、そのうち招待されたものが夫々36件、2件、特許出願は国内4件、海外2件などをおこない、Nature、Science、Physical Review Letterなど国際的評価の高い学会誌や国際会議に多くの優れた研究成果が発表されており、新しい材料の開発によってスピン注入MRAMの応用に見通しがつけられたことは大きな成果である。その他スピンドायオード、これによるマイクロ波発生、スピンプンピング、スピン流の分離とその基礎研究など、本研究の成果をベースに応用研究、新しいスピン物性に関する基礎研究など新しい展開が期待できる。下記は其中でも特筆すべきものを列挙したもので、いずれも世界で初めて報告された独創的な成果である。

- ① スピン依存トンネル効果を大きくするためにトンネル構造、特にトンネル絶縁膜と電極との界面の凹凸や、トンネル絶縁膜の特性のゆらぎの影響を実験的、理論的に明らかにした。その結果、トンネル絶縁膜をアモルファス Al_2O_3 より単結晶 MgO に変えることにより130%を超えるトンネル抵抗比と200ps以下の高速でのスピン注入による磁化反転を実証した。
- ② スピン注入磁化反転を実験的に検証するために高品質なナノ・ピラー素子の作製技術を確立し、スピン注入効率を増大させるためにスピン反転抵抗による拡散伝導の2電流モデルを提案した。
- ③ STM、conductive-AFM、IETS(Inelastic Electron Tunneling Spectroscopy)を用いたトンネル接合の界面評価技術を確立した。

なお

- a. スピン依存共鳴トンネル効果、スピントルク・ダイオード効果とこれによるマイクロ波の発生、スピンプンピング効果の発見、
 - b. 非局所手法を用いて電荷流とスピン流を分離しスピン流のみによる磁化反転の誘起に成功したこと、
- は当初予期していなかった成果である。

4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

科学的にはスピン注入現象、スピントルク効果、スピン流注入などスピントロニクスに関する物理現象の発見、検証を目標に所期の予想以上の成果を挙げ、技術的には、近未来の応用としてはSRAM、MRAM、比較的将来の応用ではスピントランジスタ(3端子)への応用などを見据え、重要な成果を出し、スピントロニクスの基盤となる貴重な研究成果であり、今後の実用化が期待される。スピントロニクス分野の発展に大きく貢献するものであり、科学的にも、技術的にもインパクトはかなり高いと思われる。特に

- ① スピン偏極共鳴トンネル効果の発見による MRAM の特性向上への技術的インパクト大、
- ② トンネル絶縁膜を MgO にし、且つ電極を単結晶化する事により大きな TMR を得た技術インパクト大、
- ③ 非局所注入により電荷流とスピン流を分離して、スピン流のみによる磁化反転を誘起した科学的インパクト大、
- ④ 上記手法を用いた微小磁気ディスク内の磁化状態の実測の技術的インパクト大、
である。

4-3. その他の特記事項

プロジェクト発足当初はまだ十分に展望が明らかでなかった「スピンエレクトロニクス技術」に関して、様々な新現象、新機能を発明・発見し、次世代のエレクトロニクス技術として有望なことを示した貢献は大きい。

特に単結晶を用いたトンネル素子によるスピン偏極共鳴トンネル効果による大きな TMR は今後の HDD 磁気ヘッド、MRAM の微細化、スピン RAM の開発に大いに貢献すると思われる。

非局所注入手法による電荷流からスピン流を分離することによりスピン流に実証がなされ、今後スピン注入による物理の発展に寄与すると期待できると共に、これから本格的にスピン流の研究に取り込むことにより電流を注入しない、極低消費電力メモリの実現も夢ではないと期待される。

受賞については、宮崎照宣、第5回山崎貞一賞、“トンネル磁気抵抗素子の応用に関する研究”(平成 17 年 11 月 18 日)が挙げられる。