

「新しい物理現象や動作原理に基づくナノデバイス・システムの創製」
平成13年度採択研究代表者

猪俣 浩一郎

(東北大学大学院工学研究科 教授)

「スピン量子ドットメモリ創製のための要素技術開発」

1. 研究実施の概要

本研究は新しい原理に基づく超大容量スピンメモリの創製を目指しており、その基本コンセプトは室温でクーロンブロッケードが発現する磁性量子ドットを開発し、そのトンネル抵抗を電圧で制御することである。さらにメモリとしての機能を高めるため、低電力書き込みおよび高信号電圧確保のための技術開発を行う。H14年度は以下のような成果を得た。(1) 低電力書き込み可能な素子として反平行結合 (SyAF) 膜を用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) 素子を作製し、そのスピン反転磁場は素子サイズに依存しないことを見出した。(2) SyAF膜をCPP-GMR素子に適用するとそのGMRが約5倍増大することを発見した。(3) ハーフメタル開発のために行った $\text{Co}_2(\text{Cr, Fe})\text{Al}$ フルホイスラー合金薄膜を用いたMTJ素子において、室温で16%、低温で26.5%のTMRを得た。(4) 極薄グラニューラー薄膜を上下電極で挟んだCPP構造において、明瞭なクーロン階段とそれに伴うTMRの振動を観測した。(5) 下部電極 (Fe) 上に形成した薄いトンネル障壁上へのFe磁性ナノドットの作製に成功、クーロンブロッケード効果も観測した。上記成果は一応計画に沿っており、今後の研究によって予定成果が得られるものと考えている。

2. 研究実施内容

(1) 素子サイズに依存しないスピン反転磁場を実現

超高真空スパッタ装置を用いてRuをスペーサとする $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}/\text{Ru}/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ SyAF膜を作製し、電子線リソグラフィとイオンミリングを用いて μm からサブ μm サイズに微細加工、MFMを用いて磁区構造を、カー効果を用いてスピン反転磁場を測定した。パラメータとしてRu膜厚 (交換結合の大きさ)、アスペクト比、および $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 膜厚などを変化させた。その結果、交換結合を強くし (Ru膜厚を0.45 nmまで薄くする)、かつアスペクト比 k を1にす

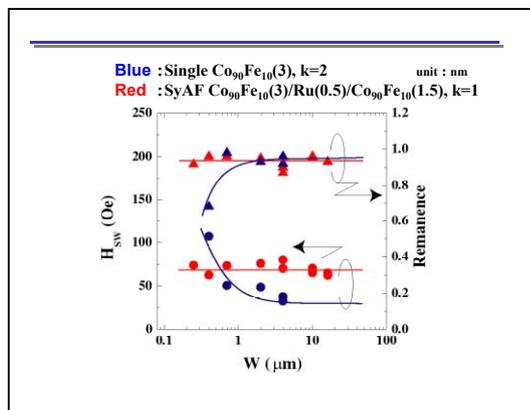


図1 SyAFフリー層を用いたMTJのスピン反転磁場と角型比の素子幅依存性

ること、スピン反転磁場 H_{sw} が素子サイズに依存しないことを見出した。

次に、この結果をトンネル接合に適用するため、上記SyAF膜をフリー層とするスピントネル接合素子を作製し、微細加工技術を駆使して $0.25\mu\text{m}$ サイズまでの微小素子を作製した結果、やはり $k=1$ の素子のスピン反転磁場は素子サイズに依存しないことを確認した(図1)。

(2) CPP-GMRのエンハンス効果を発見

上記SyAFをフリー層とするスピバルブ型CPP-GMR素子を作製しそのGMR効果を測定した結果、従来のCPP-GMR素子に比べ約5倍もの大きなGMR効果が発現することを見出した。SyAF素子としては上述と同じ $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}/\text{Ru}/\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 膜を用い、微細加工技術を用いてIrMn反強磁性体を用いたCPP-GMR素子を作製した。GMRを発現する中間層としてはCuを用い、その膜厚を変化させた。比較のため通常の $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 単層膜をフリー層とするスピバルブ型CPP-GMR素子も作製した。その結果、従来の素子は0.8%程度のCPP-GMRなのに対し、SyAFフリー層を用いた素子のCPP-GMRは4%程度と、従来素子より5倍も大きい値を示した。

(3) フルホイスラー合金で初めてTMRを観測

フルホイスラー合金として $\text{Co}_2\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Al}$ 合金に着目、その薄膜をマグネトロンスパッタを用いて作製し、構造と磁気特性を調べた。その結果、この材料はas-depoでも熱酸化Si基板上に結晶化し、X線回折の結果B2構造をとることを見出した。この膜を用いてスピントネル接合を作製したところ、特に $x(\text{Fe})=0.4$ において室温で16%、低温で26.5%のTMRを得た(図2)。従来、フルホイスラー合金を用いてTMRが観測されたことがなかったことを考えると、これは画期的である。低温での磁化は約 $400\text{ emu}/\text{cm}^3$ と小さく、単位胞当たりの磁気モーメントを見積ると約 $2\mu_B$ であり整数に近い。これはハーフメタルが保持すべき特徴であり、B2構造がハーフメタルか否かが注目される。いずれにしてもこのような小さな飽和磁化をもちながら大きなTMRを示す材料は特異である。

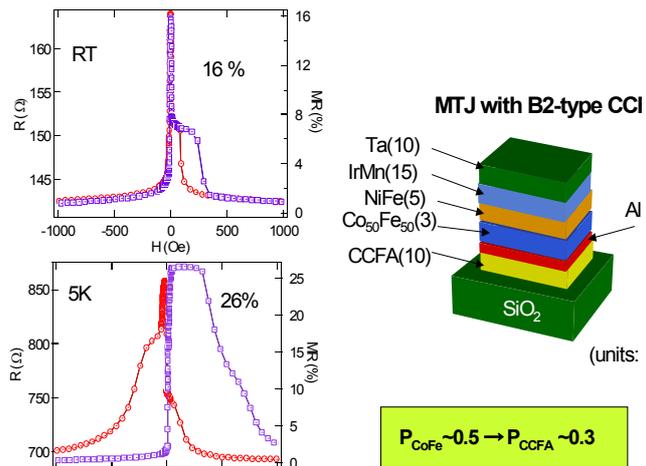


図2 CCFAを用いたMTJのTMR

(4) スピン量子ドット創製に関する研究

(a) 単一電子トンネル効果を利用したTMRの電圧制御(電圧による素子のオン/オフ、TMRの増大や振動現象)を行うために、微小ギャップ中にグラニューラー構造薄膜を埋め込んだナノブリッジ構造や、極薄グラニューラー薄膜を上下電極で挟んだCPP構造を作製し、その磁気伝導特性を調べた。これまでの集束イオンビームを用いた微細加工法に替えて電子線リソグラフィ法を用いることによって試料の質的改善がなされ、

CPP構造試料において明瞭なクーロン階段とそれに伴うTMRの振動を観測することができた(図3)。データの再現性も同時に改善され、磁歪の効果では説明しがたいことの確認もできた。注目すべき新しい結果は、TMR振動の極小部においてTMRの符号が反転し、いわゆるinverse TMRが生じていることを磁気抵抗曲線の測定によって明確に示したことである。このことは、スピン依存単一電子トンネル効果の理解およびそれを利用した素子設計には、単純化したオーソドックス理論では不十分であり、スピン蓄積効果等の考慮が必要であることを示唆している。

(b) スピン依存単一電子トンネル効果をより高い温度で、より明瞭に観測するためには、磁性微粒子(磁性量子ドット)のサイズや間隔が均一であることが必要である。そのために、自己組織化プロセスによる規則的な磁性量子ドットの作製が本プロジェクトの主要テーマとなっており、下部電極(Fe単結晶薄膜)上に形成された薄いトンネル障壁上にFe等の磁性ドットを作製することを試みた。まず、磁性ドットの下地となるMgO障壁層を下部電極上に平坦に形成する方法について検討した結果、MgOを蒸着源として直接成膜した場合にMgO層が単結晶になり、かつ原子レベルの平坦性が得られることがわかった。このMgO層上に基板温度および蒸着量を変化させてFeを堆積させた結果、基板温度にあまり依存せず、Fe層厚が0.5 nm以下において、孤立したFeドットが形成されることがわかった(図4)。ただし、ドットサイズおよびドット間距離については、現状では均一化には至っていない。また、STMによる各Feドットの電流電圧特性に室温でクーロンブロッケイドが観察され、各Fe粒子が電氣的に孤立していることも明らかになった。

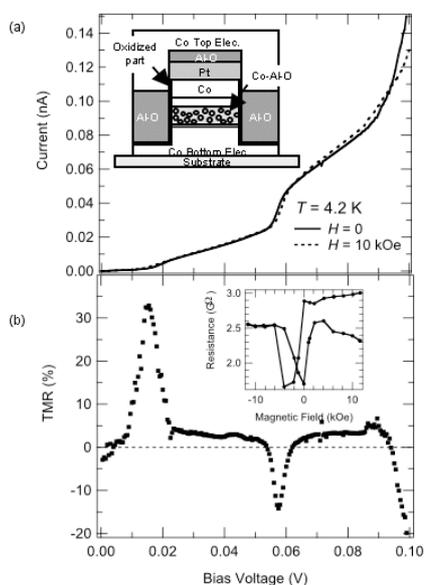


図3. 電子線リソグラフィ法によって微小化したCPP構造試料における(a)電流電圧特性と(b)TMRのバイアス電圧依存性。(a)および(b)の挿入図はそれぞれ試料構造の模式図とinverse TMRを表す磁気抵抗曲線。

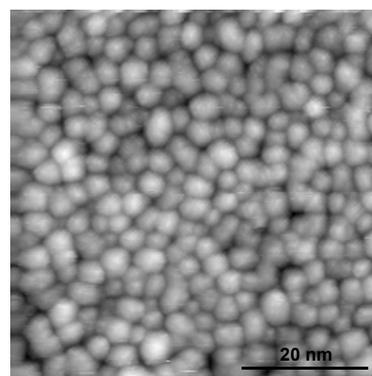


図4. Fe(100)単結晶下部電極上に形成した厚さ1nmのMgO(100)トンネル障壁層の上に、Feを平均膜厚0.5nmで蒸着した場合のSTM像。粒径4-8 nm程度のFeのドットが成長していることを示している。

3. 研究実施体制

猪俣浩一郎グループ

① 研究分担グループ長：猪俣浩一郎（東北大学大学院工学研究科 教授）

② 研究項目：

(1) 巨大信号電圧を可能とするTMR素子開発に関する研究

(2) 低電力スピントリニクス反転技術および素子開発に関する研究

高梨弘毅グループ

① 研究分担グループ長：高梨弘毅（東北大学金属材料研究所 教授）

② 研究項目：

(1) クーロンブロッケード効果による室温におけるTMRの電圧制御に関する研究

(2) 2次元磁性ドットアレーの作製技術に関する研究

4. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

(1) 論文（原著論文）発表

猪俣グループ

- N. Tezuka, E. Kitagawa, K. Inomata, S. Sugimoto, N. Kikuchi, Y. Shimada :
“Switching field behavior in antiparallely coupled sub-micrometer scale magnetic elements” J. Magn. Magn. Mater, 240, 294-296 (2002)
- K. Inomata and N. Tezuka: “Present and Future of MRAM Technology” Proc. of 21st Electronic Materials Symposium, 93-96 (2002)
- K. Inomata, T. Nozaki, N. Tezuka and S. Sugimoto :” Magnetic switching field and giant magnetoresistance effect of multilayers with synthetic antiferromagnet free layers” Appl. Phys. Lett, 81, 2, 310-312 (2002)
- 小池伸幸、手束展規、猪俣浩一郎、杉本諭：「微細反平行結合素子の磁化状態とスピントリニクス反転磁場」日本応用磁気学会誌 27, 316-319 (2003)
- 落合隆夫、手束展規、猪俣浩一郎、杉本諭、斉藤好昭：「ピン層にCoFe/CoFeO_x/CoFeを用いた強磁性トンネル接合の耐熱性の改善」日本応用磁気学会誌、27, 307-310 (2003)
- 西村和正、手束展規、猪俣浩一郎、杉本諭：「Zn_xFe_{3-x}O₄薄膜の構造および磁気・電気特性」日本応用磁気学会誌、27, 340-343 (2003)
- 野崎隆行、阿部慎也、手束展規、猪俣浩一郎、杉本諭：「反平行結合フリー層を用いたGMRスピントリニクス膜の磁化反転特性」日本金属学会誌、66, 11, 1078-1082 (2002)
- N. Tezuka, N. Koike, K. Inomata and S. Sugimoto :” Single domain observation for synthetic antiferromagnetically coupled bits with low aspect ratios” Appl. Phys. Lett, 82, 4, 604-606 (2002)
- K. Inomata, N. Koike, T. Nozaki, S. Abe, N. Tezuka :” Size-independent spin switching field using synthetic antiferromagnets” Appl. Phys. Lett, 82,

2667-2669 (3003), Selected for the April 28, 2003 issue of the Virtual J. Nanoscale Science & Technology

- Koichiro Inomata, Susumu Okamura, Ryota Goto and Nobuki Tezuka : " Large tunneling magnetoresistance at room temperature using a Heusler alloy with the B2 structure" Jpn. J. Appl Phys, 42, L419-L222 (2003)
- N. Tezuka, N. Koike, K. Inomata and S. Sugimoto : " Magnetization reversal and domain structure of antiferromagnetically coupled submicron elements" J. App. Phys, 93, 10, (2003) in-press
- T. Ochiai, N. Tezuka, K. Inomata, S. Sugimoto and Y. Saito, "Improved thermal stability of ferromagnetic tunnel junctions with a CoFe/CoFeOx/CoFe pinned layer" IEEE trans. Magn. (2003) in-press
- T. Nozaki, H. Sukegawa, N. Tezuka, K. Inomata and S. Sugimoto :
" Spin switching properties of magnetic tunnel junctions with a low aspect ratio using a synthetic antiferromagnet free layer" Appl. Phys. Lett. submitted
- Y. Jiang, S. Abe, T. Nozaki, N. Tezuka and K. Inomata : " Enhancement of current-perpendicular-to plane giant magnetoresistance by synthetic antiferromagnet free layer in single spin-valve films" Appl. Phys. Lett. submitted

高梨グループ

- S. Mitani, T. Moriyama and K. Takanashi : " Structure and tunnel magnetoresistance in Fe/MgF₂/Co junctions with an oxide seed layer on an Fe bottom electrode" J. Appl. Phys, 91, 10, 7200-7202 (2002)
- K. Yakushiji, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori : " Tunnel magnetoresistance oscillations in current perpendicular to plane geometry of CoAlO granular thin films" J. Appl. Phys, 91, 10, 7038-7040 (2002)
- K. Yakushiji, S. Mitani, K. Takanashi and H. Fujimori : " Tunnel magnetoresistance oscillations associated with Coulomb staircases in insulating granular systems" J. Phys. D: Appl. Phys, 35, 2422-2426 (2002)
- T. Shima, T. Moriguchi, S. Mitani, K. Takanashi, H. Ito and S. Ishio :
" Perpendicular Magnetic Anisotropy and Domain Structure of L1₀-Ordered FePt Films Fabricated by Monatomic Layer Control" IEEE Trans. Magn, 38, 2791-2793 (2002)
- S. Mitani, T. Moriyama and K. Takanashi : " Fe/MgO/Fe(100) epitaxial magnetic tunnel junctions prepared by using in-situ plasma oxidation" J. Appl. Phys. In-press
- S. Kaji, G. Oomi, F. Honda, S. Mitani and K. Takanashi : "Temperature

dependence of the electrical resistivity in insulating granular films under high pressure” Trans. Magn. Soc. Japan, Vol. 2 , 53-55 (2002).

- N. Tanaka, J. Yamazaki, S. Mitani and K. Takanashi: “High-angle annular dark-field scanning transmission electron microscopy and electron energy-loss spectroscopy of nanogranular Co-Al-O alloys”, Scripta Materialia, 48, 909-914 (2003).
- S. Takahashi, T. Yamashita, H. Imamura and S. Maekawa: “Spin-Relaxation and Magnetoresistance in FM/SC/FM Tunnel Junctions” , J. Mag. Mag. Mat. 240, No. 1-3, 100-102 (2002).
- J. Martinek, J. Barnas, S. Maeakwa H. Schoeller and G. Schon: “Spin accumulation and cotunneling effects in ferromagnetic single-electron transistors” , J. Mag. Mag. Mat. 240, No. 1-3, 143-145 (2002).
- J. Martinek, J. Barnas, S. Maeakwa H. Schoeller and G. Schon:” Spin accumulation in ferromagnetic single-electron transistors in the cotunneling regime” , Phys. Rev. B 66, 014402(5) (2002).
- S. Takahashi and S. Maekawa: ” Spin injection and detection in magnetic nanostructures” , Phys. Rev. B 67, 052409 (4) (2003).

(2) 特許出願

H14年度特許出願件数 : 6件 (研究期間累積件数 : 6件)