

「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 主任研究員)

「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、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、非常に薄い鉄の単結晶膜の内部にスピン偏極した量子井戸準位が発生しトンネル磁気抵抗効果が大きくなることを示している。今年度は、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の実現に成功した。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、強磁性/非磁性体接合のスピン流によって生じるスピントロニクス効果測定によるスピン拡散の確認や磁気多層構造と等価と考えられる微小磁気細線中の磁壁を駆動する実験をおこなった。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、スピン機能評価の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、H14年度は、非磁性層を介した明瞭なスピン依存共鳴トンネルを実証する。

【方法】 図1に示すように、強磁性トンネル接合の一方の強磁性電極(Co)とバリア層( $Al_2O_3$ )の間に非常に薄い非磁性の単結晶薄膜(Cu)を挿入することにより、トンネル電子が電極とバリアの間で多重干渉するようになる。この結果、スピン依存共鳴トンネル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、強磁性トンネル接合のCo電極とアモルファス $Al_2O_3$ バリア層の間に非磁性のCu(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Cuの膜厚に対して激しく振動することを世界で初めて発見した(図2)。このことは、原子層のオーダーで強磁性層および非磁性層を積層することにより、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】 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立することにある。このために本年度は次の二つの観点に注目してこれまで実験・研究を遂行した。一つは強磁性/非磁性体接合を有する多端子ホール素子(以後多端子ホール素子)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、二つ目は微小磁性体中に捕捉されている微小磁壁に電流を注入することによって磁壁に圧力を加え駆動する実験である。本報告では上記2項目の内、主に1項目を中心に結果をまとめる。

【方法】 図3は本実験に用いた多端子ホール素子の走査型電子顕微鏡像と模式図を示す。模式図の下には白破線で示すように電流を印加するときに予想される非磁性体中のスピン依存電気化学ポテンシャルの空間分布を示す。試料はスピン注入源であるパーマロイ( $Fe_{20}Ni_{80}$ 合金)細線とCu多端子ホール素子で構成される。このような配置において白破線で示すように電流を印加すると多端子ホール素子側には電流は流れないが、アップとダウンに分極し

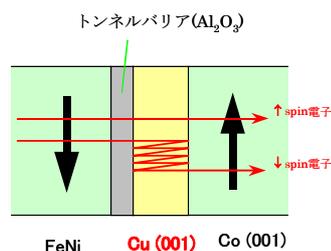


図1 超薄Cu(001)単結晶挿入層を有するトンネル磁気抵抗素子。スピン偏極した電子がバリアとCu層を共鳴的にトンネルするため、磁気抵抗効果がCuの膜厚に対して大きく振動すると期待される。

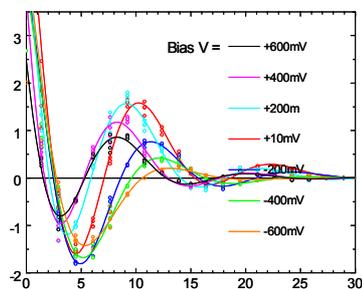


図2 超薄Cu(001)挿入層を有するトンネル磁気抵抗素子の磁気抵抗効果(MR)のCu膜厚依存性。いろいろなバイアス電圧を変化すると振動の位相と周期が系統的に変化する。

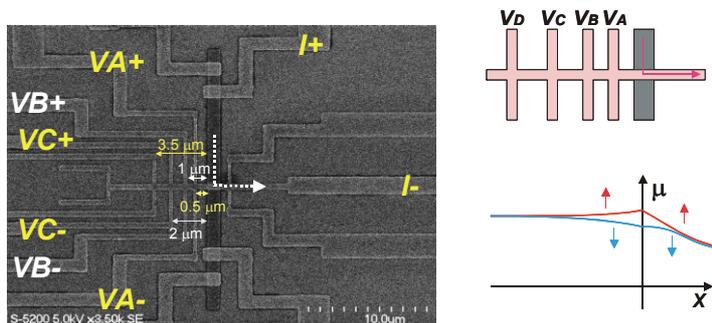


図3 強磁性( $Fe-Ni$ 合金)/非磁性(Cu)接合を有する多端子ホール素子の走査電子顕微鏡像とその模式図及びスピン依存電気化学ポテンシャルの空間分布。注入される電子スピンはホールクロスと反対側に流れるので多端子ホール素子部分にスピン分極が誘起される。このためにホール素子内にスピン流が誘導される。

たスピンの流がスピン拡散長の範囲で方向を違えて誘導される。従って、純粹にスピン流によって生じるホール抵抗を測定することができる。このような構造を電子線リソグラフィとリフトオフ法を用いて作製した。まずパーマロイ細線を蒸着・リフトオフ形成した後、表面をイオンミリングにより清浄化する。その後、大気暴露せずに清浄表面上に50 nmのCu素子を再度蒸着・リフトオフ形成した。接合抵抗は4.1Kの低温においてもオーミック的であり、コンタクト抵抗は0.6Ωであった。

【結果及び考察】 図4

は異なる位置に配置されたホール端子により測定されたホール抵抗の磁場依存性を示す。外部磁場は図3において示した素子基板に対して垂直に印加され、測定は4.1Kで行われた。図からも分かるように、ホール抵抗は磁場に対して偶関数的な対称性を保って直線的に減少する。

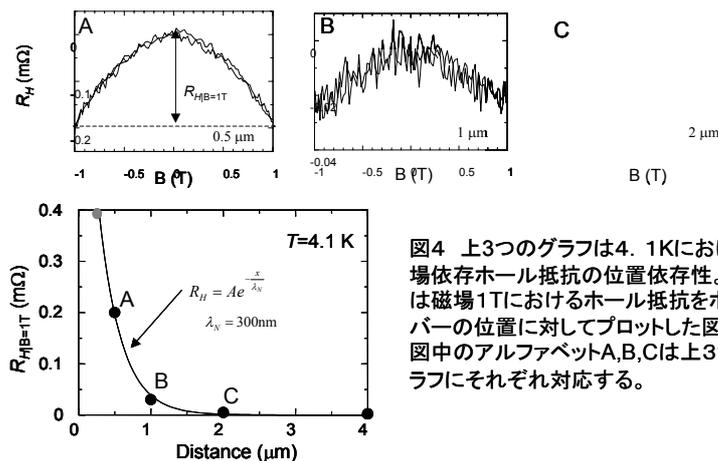


図4 上3つのグラフは4.1Kにおける磁場依存ホール抵抗の位置依存性。下図は磁場1Tにおけるホール抵抗をホールバーの位置に対してプロットした図である。図中のアルファベットA,B,Cは上3つのグラフにそれぞれ対応する。

このことは、ホール抵抗がスピン軌道相互作用に起因することを考慮すると、強磁性体部分の磁化過程を反映していることを示す。すなわちホール抵抗は磁化の垂直成分に比例して変化する。また、このホール抵抗の変化量はスピン拡散の空間分布を反映している。指数関数的に減少することを考慮して、図4に示すようにフィッティングするとスピン拡散長を見積もることが可能である。本実験で用いたCuの場合4.1Kにおいて300nmと見積もられた。これらの実験結果は、電流が流れていない領域にスピン分極を生じさせ、かつその大きさを測定する手法を示したものである。また、第二の項目である電流注入磁壁移動に関しても、人為的にピン止めした磁壁を電流印加によりピン止めサイトから離脱させることが可能であることを実験的に示した。これら二つの実験結果は、今後の磁化反転素子創生の要素技術になると考えられる。

(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

スピン反転を測定するために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。

はじめに、強磁性トンネル接合にサブナノ秒のパルス磁界を印加し、強磁性電極の磁化反転に伴うトンネル電流の応答信号を測定するために、3個のエア・コプレーナ・プローブからなるアライメントシステムを製作した。測定システムはパルスジェネレータ、高速オシロスコープ、高帯域プローブにより構成した。また、ヘルムホルツコイルによりX, Y軸方向(容易軸方向, 困難軸方向)に磁場を印加しながら測定することができる。伝送系のインピーダンス整合をとるために、接合からの電極およびパルス磁界印加用のコプレー

ナ線路を加工した。このコプレーナ伝送路上に強磁性トンネル接合を配置した素子を作製し、パルス磁界に応答するパーマロイ層の磁化の反転信号を観測した。最速の反転時間は500 psで、反転信号はLandau-Lifshits-Gilbert (LLG) 方程式による計算結果と時間スケールではほぼ一致した。

更に早い時間スケールの磁化の変動を観測するために、ポンププローブ測定が可能な光

学系を構築した(図5)。delay line は粗動と微動の両ステージで構成され、粗動ステージで精度100 fs, 最長10 ns, 微動ステージで精度40 fs, 最長 1.33 nsのpump光の遅延が可能である。光スイッチとコプレーナ伝送路から構成される伝送路全体の透過信号帯域は2.4 GHzであった。本システムを用いて180 x 90  $\mu\text{m}^2$ の面積のパーマロイ薄膜の磁化の才差運動によるシグナルを測定し、1 ns以下の振動周期を観

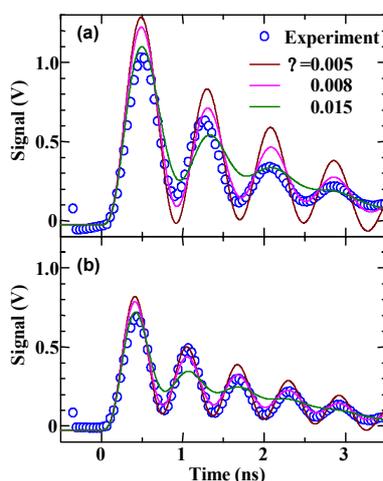


図5 磁化の才差運動によるカーシグナルの時間依存性。(a)は静磁界が10 Oe, (b)は20 Oeの場合を示す。○が測定結果, 実線は計算結果を示す。

測した。得られたシグナルをLLG方程式を用いてフィッティングをした結果、ダンピング定数 $\alpha=0.008$ を得た。この値は強磁性共鳴により得られるパーマロイ薄膜のそれと一致した。

#### (b) スピン注入用極微小メモリセル形成

収束イオンビーム(FIB)のカーボン(C)薄膜デポジション機能を用いて微小MTJセル形成用のマスクパターン作製プロセスを検討した。イオンビームのプローブ電流, アパーチャ径を種々検討した結果, 最小約110 nmのサイズのCマスクパターンを作製することができた(図6)。最も小さいサイズのパターン形状は円錐状であった。セル形成に適していると考えられる直方体形状では一辺のサイズは最小130 nmであった。この場合, マスクパターンの高さは300 nm以上であり, マスクの高さは十分に確保できた。CマスクパターンのArおよび酸素ガスに対するエッチングレートを求めた。CマスクはArエッチングに対しては十分硬く, 酸素エッチングに対しては非常に速いエッチングレートを示した。次いで

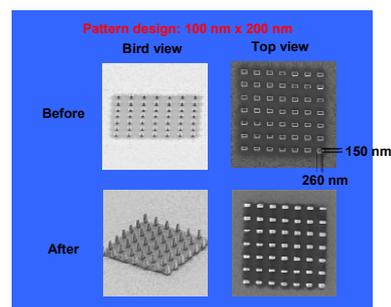


図6 Arエッチング前後のCマスクのFIB像。

MTJ薄膜上に130 nm x 130 nm, 150 nm x 260 nmの形状のCマスクパターンを形成し, Arエッチングを用いてMTJ薄膜をエッチングした。エッチング後もパターン形状は良好であり, マスクパターン形状をMTJ薄膜に転写することができた。パターン形状, エッチング後の形状変化, エッチング速度の結果から, 想定するプロセス中でデポジションしたCをマスクとして用いることができると判断した。しかし, Arエッチング後マスクパターンの側壁

が再付着した金属層に厚く覆われてしまい、その後の酸素エッチングによりCを除去することができなかった。Cマスクパターンの側壁角度、およびArイオンの入射角度を最適化することにより再付着の防止を検討する必要がある。

### 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 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
- 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（原著論文）発表

- T. Nagahama, S. Yuasa, Y. Suzuki, E. Tamura, "Quantum size effect in magnetic tunnel junctions with ultrathin Fe(001) electrodes", Journal of Applied Physics, 91-10, pp.7035-7037, 2002/05.
- S. Yuasa, T. Nagahama, Y. Suzuki, "Spin-Polarized Resonant Tunneling in Magnetic Tunnel Junctions", Science, 297-5579, pp.234-237, 2002/07.
- S. Yuasa, T. Nagahama, T. Kawakami, K. Ando, Y. Suzuki, "A large quantum-well oscillation of the TMR effect", J.Phys.D:Appl.Phys., 35, pp.2427-2431, 2002/09.
- J. Inoue, H. Itoh, "Magnetoresistance and interfacial electronic state of impurity doped ferromagnetic tunnel junctions", Journal of Physics D, 35, pp.2432-2436 (2002).
- 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).
- 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)
- M. Grimsditch, P. Vavassori, V. Novosad, V. Metlushko, H. Shima, Y. Otani,  
and K. Fukamichi, “Vortex chirality in an array of ferromagnetic dots”, Phys.  
Rev. B, vol. 65, page 172419-1 – 172419-4 (2002)
- S. Iura, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, Enhancement of Thermal Stability in  
Ferromagnetic Tunnel Junctions Prepared by the Radical Oxidation Method, J.  
Magn. Soc. Jpn., 26, 839-842 (2002).
- S. Iura, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, Thermal Stability of Tunnel  
Junctions with additional oxidation at the surface of the bottom electrode,  
J. Magn. Soc. Jpn., 27, 303-306 (2003).
- Y. Ando, M. Hayashi, S. Iura, K. Yaoita, C. C. Yu, H. Kubota and T. Miyazaki,

Growth mechanism of thin insulating layer in ferromagnetic tunnel junctions prepared using various oxidation methods, J. Phys. D, 35, 2415-2421 (2002).

- S. Mizukami, Y. Ando, T. Miyazaki, Effect of spin diffusion on Gilbert damping for a very thin Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> layer in Cu/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Cu/Pt films, Physical Review B, 66, 104413-1 -9 (2002).
- T. Miyazaki, Y. Ando and H. Kubota, Recent Development of MRAM Technology, Journal of Magnetism, 8, 36-44 (2003).

(2) 特許出願

H 1 4 年度特許出願件数 : 1 件 (研究期間累積件数 : 3 件)