

「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

(大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)

「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のお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、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を既に見出している。今年度は強磁性電極を非常に薄くすることにより、バリステックな電子の電極内での減衰の様子を確認することに成功した。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、ノンローカルなスピン流の注入手法を用いることにより、電流(電荷の流れ)を全く流さなくてもスピンの流れ(スピン流)だけで磁化反転を誘起できることを世界で初めて示した。この結果は、「スピン流」という新しい概念の重要性を示すと共に将来の新しい磁化反転技術の基礎を与えるものである。

集束イオンビーム(FIB)を用いた微細加工プロセスを開発した。この方法を用いて強磁性トンネル接合(MTJ)を微細なピラー($200 \times 400 \text{ nm}^2$)に加工し、スピン注入磁化反転に成功した。スピン注入磁化反転、広くは固体中のスピン流のダイナミクスの理解のために、金属多層膜の強磁性共鳴線幅の温度依存性を詳細に調べた。その結果、温度の減少とともにスピン拡散長が増大し、離れたところにあるスピン流の吸収体が効果的に働き始めることを見出した。

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】 スイッチング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。そのために、H16年度は、①三端子素子作製プロセスの開発、②強磁性単結晶超薄電極中のバリステック伝導電子の減衰について調べ

た。

【方法】 ①三端子素子作製技術の鍵は超薄な中間ベース層にいかにして電極を取り付けるかということにある。そこで二重AlO₂バリア接合を作製し、新規に開発したマスクを用いて、素子加工を行った。また、作製した素子について、詳細な電気伝導特性、磁気伝導特性を評価した。

②共鳴トンネルトランジスタにおいて重要なパラメータである、電極中でのパリスティック電子の減衰を明らかにするため、超薄Fe(001)/Cr(001)電極をもつTMR素子を作製し、TMR比のFe(001)膜厚依存性からFe(001)電極中のパリスティック成分の減衰について調べた。

【結果】 ①5nmの多結晶NiFe中間層を持つ三端子素子(図1)の作製に成功した。詳細な伝導特性測定や、磁気伝導特性評価(図2)から、この素子の電気回路的な特性を詳細に知ることができた。本素子のように超薄ベース層を作製した場合、ベース抵抗が大きくなり、電気回路的に無視できなくなる。そのような場合には、電気回路的に磁気抵抗効果が強調されることがわかった。しかし、この効果は線形であり、共鳴トンネル素子に期待されるような非線形な特性は示さない。このように三端子素子の基本的な伝導特性が明らかになったことによって、今後膜構造の最適化を行うことにより、共鳴トンネル素子の実現を目指す。

②超薄Fe(001)/Cr(001)電極をもつTMR素子を作製し、TMR比のFe(001)膜厚依存性と温度依存性を詳細に調べた。その結果、Fe(001)が非常に薄い領域でのMR減少、またその領域では温度の低下にしたがってMRも低下することがわかった。このような低温でのMR低下は初めて観測されたものである。この現象は、超薄Fe(001)/Cr(001)という電極の構造を考慮すると理解される。MR比はトンネル電子が散乱される所のスピン分極率で決定される。超薄Fe(001)は単結晶膜で散乱が少ないので、パリスティック伝導電子は散乱されることなくFe(001)層を横切り、Cr(001)層に達することができる。しかし、Crはスピン分極していないため、Cr層で散乱された電子はMRを示さない。すなわちMR比は減少する。この効果は、Fe(001)層が薄いほど、あるいは低温でFe(001)層内での散乱が少ないほど顕著になり、MRは減少する。MR比の膜厚変化を解析し、各温度での減衰長を求めた。このような知見は、今後共鳴トンネル素子などのコヒーレント伝導を用いた素子のデザインの際に重要な指針を与える。

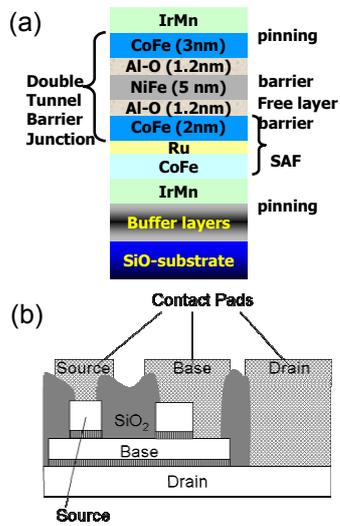


図1 作製した3端子素子の断面模式図
(a) 積層構造. (b) 素子加工後の断面

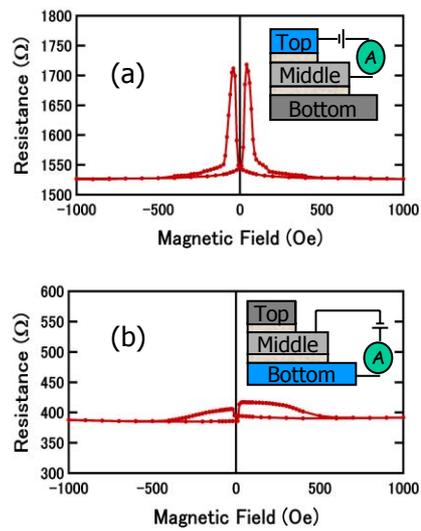


図2 作製した3端子素子の各電極間における磁気抵抗効果

(2) スピン注入磁化反転の研究 (大谷グループ)

【研究目的】昨年度の研究を通じて作製手法を確立したナノピラーとナノスケール面内スピバルブ構造を用いて、スピントルクとスピン蓄積それぞれの寄与の相関、あるいはどちらが支配因子であるかを明らかにすること、及び面内スピバルブ構造においてスピントルクのみを用いて微小磁性体の磁化を反転する技術を確認することを目的とする。さらに以上の研究結果から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手法を確認することが最終目的である。

【方法】図3に示すようにスピントルク磁化反転素子はスピン注入源であるPyパッド、Cuクロス、Py微粒子 (幅50nm×長さ150nm×厚さ30nm) と金細線で構成される。破線で示すように電流を流すとCuクロスの交差点位置から左に向かってスピントルクは伝播し、Py微粒子に吸収される。またスピン吸収を促進させることを狙って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た。

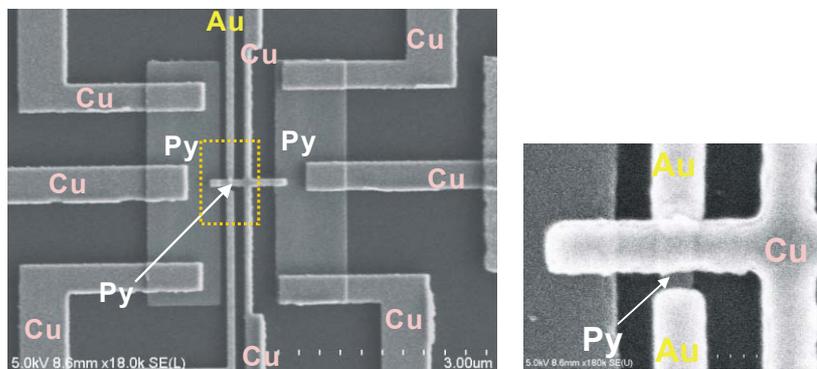


図3 スピントルクによる磁化反転素子の走査電子顕微鏡像(左)及び破線に囲まれた部分の拡大像(右)。パーマロイ(Py: Ni₈₀Fe₂₀合金)の大きさは幅 50 nm × 長さ 150 nm × 厚さ 20 nm。

【結果】まず通常の非局所スピン抵抗を測定すると微粒子とスピン注入パッドの磁化状態に対応して変化する明瞭な磁気抵抗曲線が観測され、スピンバルブ抵抗変化の大きさは $0.3\text{ m}\Omega$ であった。次に、この素子を用いて行ったスピントレントによる磁化反転の実験結果を図4に示す。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ゆくと負の印加電流（約 -12 mA ）において非局所スピンバルブ抵抗に大きな変化が観測された。この変化量が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ントレントのみによって磁化反転が誘起されたと考えられる。また、サイズを変化させながら行った実験からも同様の振る舞いが観測され、良好な再現性が確認された。

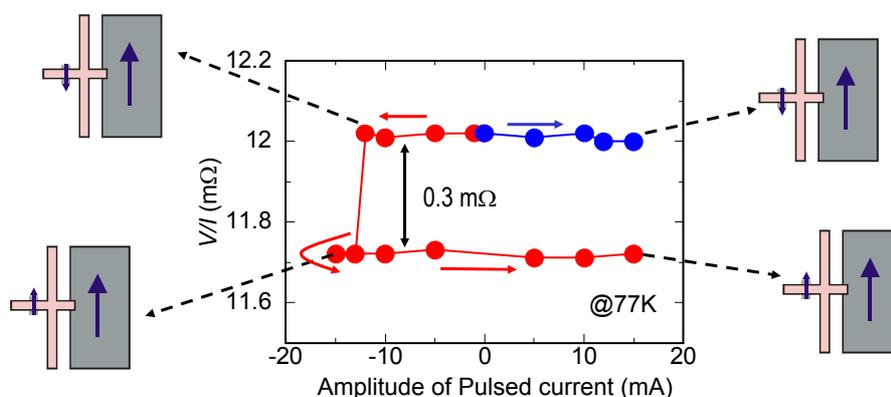


図4 スピントレントによるパーマロイ微粒子の磁化反転過程を示す非局所抵抗の印加パルス電流依存性と磁化状態の模式図。

(3) スピン機能評価の研究（宮崎グループ）

(a) 微小トンネル接合のスピン注入磁化反転

強磁性トンネル接合を用いたスピン注入磁化反転を実現するためには、構造および界面の制御された微小素子を作製する必要がある。本研究は昨年度までに確立した集束イオンビーム（FIB）を用いた微細加工プロセスを用いて強磁性トンネル接合（MTJ）の微細化を行い、スピン注入磁化反転を観測することを目的として進めている。作製した素子の最小面積は $200 \times 400 \text{ nm}^2$ である。図5(a), (b)はタングステンマスクの表面および完成した微小MTJの断面の走査イオン（SIM）像を示す。その磁気抵抗曲線を測定した結果、30%の高いTMR比を示した（図5(c)）。また、接合面積で規格化した素子の抵抗値は設計どおりの値を示し、電流電圧（ I - V ）特性を解析して得られた絶縁障壁高さおよび膜厚は従来の加工による面積の大きい接合と同等の値を示した。即ち、FIB照射によって素子が劣化することなく良好な特性を有する微小MTJが作製できた。また、反応性イオンエッチングの条件を最適化することで接合面積を 100 nm 以下に微細化できる見通しが立っている。またこの微細加工技術を用いて、フリー層をCoFeBとする微小低抵抗MTJ（素子面積 $500 \times 500 \text{ nm}^2$ 、素子抵抗 $RA=26 \text{ }\Omega\mu\text{m}^2$ ）を作製した。この素子においてスピン注入による磁化反転を観測

することに成功した。反転電流密度は 1.56×10^6 A/cm²であり、理論的に予想される値と比較して妥当であった。

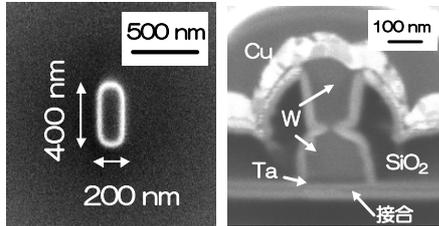


図5 (a)上部から見たタングステンマスク(面積 200×400 nm²)のSIM像、(b)完成した微小MTJの断面SIM像。

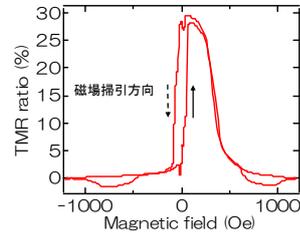


図5 (c)室温、バイアス電圧10 mVにおける磁気抵抗曲線(接合面積 200×400 nm²)。

(b) スピンポンピングとスピン拡散長

スピン注入磁化反転の理解のためには、非磁性体内のスピン緩和、ダイナミクスを理解する必要がある。昨年度までの成果により、強磁性体の才差運動により、隣接する非磁性体にスピントラントが流れることを示してきた。そこで本年度は、Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(*d*_{Cu})/Pt積層膜の強磁性共鳴(FMR)スペクトルの共鳴線幅を解析することにより、非磁性体内におけるスピン拡散長を見積もった。図6に*d*_{Cu}=400 nmの積層膜におけるFMR線幅の温度依存性を示す。赤および青のドットはそれぞれCu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(*d*_{Cu})/Pt積層膜およびCu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(*d*_{Cu})積層膜における測定結果を示す。温度の減少とともにFMR線幅 ΔH_{pp}^{Cu} は減少する。これに対して、Cu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(*d*_{Cu})/Pt積層膜ではCu/Ni₈₀Fe₂₀/Cu(*d*_{Cu})積層膜と同様に、温度の減少とともにFMR線幅 $\Delta H_{pp}^{Cu/Pt}$ は減少するが、ある温度以下においてFMR線幅は急に増大し始める。この違いはCu内を拡散するスピンの拡散長が低温において増大していることで説明できる。界面におけるスピン緩和項のみを議論するために、 $\Delta H_{pp}^{Cu/Pt}$ と ΔH_{pp}^{Cu} の差分を計算して、この結果に対してフィッティングを行った。結果を図中に橙のドットで、またこれに対するフィッティングの結果を実線で示す。温度の減少とともに $\Delta H_{pp}^{Cu/Pt}$ と ΔH_{pp}^{Cu} の差分は上昇する。また最適フィッティングが得られたときのスピン拡散長は室温で ~ 400 nm、低温で ~ 1000 nmであり、他の方法で報告されているCu内のスピン拡散長と比較しても良い一致を示した。

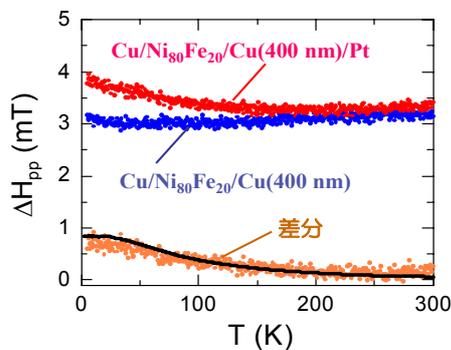


図6 強磁性共鳴線幅の温度依存性。橙の点は二つの曲線の差分を計算してプロットしたものである。

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 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

- A. A. Tulapurkar, T. Devolder, K. Yagami, P. Crozat, C. Chappert, A. Fukushima, Y. Suzuki, “Sub-nanosecond Magnetization Reversal in Magnetic Nanopillars by Spin Angular Momentum Transfer”, Applied Physics Letters, Vol. 85, No. 22 (2004) pp. 5358-5360.
- T. Devolder, C. Chappert, and P. Crozat, A. Tulapurkar and Y. Suzuki, J. Miltat, K. Yagami, “Precharging strategy to accelerate spin-transfer switching below the nanosecond”, APPLIED PHYSICS LETTERS, 86 (2005) 062505-1 - 062505-3.
- T. Devolder, A. Tulapurkar, K. Yagami, P. Crozata, C. Chapperta, A. Fukushima, Y. Suzuki, “Ultra-fast magnetization reversal in magnetic nanopillars by spin-polarized current”, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 286 (2005) 77-82.
- T. Kawagoe, Y. Iguchi, A. Yamasaki, Y. Suzuki, M. Bode, K. Koike, and S. Suga, “Surface magnetic structures of epitaxial Cr (001) films on Au(001) studied by spin-polarized scanning tunneling spectroscopy”, Physics Review B, **71**, 014427 (2005).
- 屋上公二郎, 鈴木義茂, 「スピンエレクトロニクスの基礎と最前線 第14章 スピン

- 注入による磁化反転」, シーエムシー出版, 東京 (2004) 167-183.
- 屋上公二郎, 鈴木義茂, 「スピン注入磁化反転の研究動向」, 日本応用磁気学会誌, 第28巻, 9号 (2004), pp. 937-948.
 - H. Itoh, J. Inoue, A. Umerski, and J. Mathon, “Quantum oscillation of TMR in tunneling junctions containing a non-magnetic spacer”, *J. Magn. Magn. Mater.* 272-276 (2004) e1467-e1468.
 - 黒崎義成, 長浜太郎, 湯浅新治, 鈴木義茂, 片山利一, 「トンネル磁気抵抗効果の Fe(001)電極膜厚依存性」, 日本応用磁気学会誌, 第29巻, 4号 (2004), pp. 446-449.
 - 小瀬木淳一, 大澤友克, 伊藤博介, 井上順一郎, “Mn酸化物を用いたトンネル接合のTMRに対するスピン揺らぎの効果”, 日本応用磁気学会誌, 29 (2005) 286-291.
 - G. Kimura, T. Ohsawa, H. Itoh, J. Inoue, “Tunnel magnetoresistance of junctions with twisted magnetization”, *Transactions of the Magnetic Society of Japan*, 5 (2005) 13-17.
 - 大谷 義近, 「ナノ磁気円盤格子の多彩な物性」, *パリティ*, 19, 04 (2004) 44-48.
 - T. Kimura, Y. Otani, I. Yagi, K. Tsukagoshi, and Y. Aoyagi, “Domain wall drag due to dc current injection into ferromagnetic nano-wires”, *J. of Magn. Magn. Mater.*, 272-276 (2004), E1347-E1348.
 - T. Kimura, Y. Otani, K. Tsukagoshi, and Y. Aoyagi, “Non-local Hall resistance measured in submicron-scale non-magnetic/ferromagnetic junctions”, *J. of Magn. Magn. Mater.*, 272-276 (2004), E1333-E1334.
 - J. Shibata, K. Shigeto, and Y. Otani, “Dynamics of nano-scale magnetic vortices in ferromagnetic dot arrays”, *J. of Magn. Magn. Mater.*, 272-276 (2004), 1688-1689.
 - G. Counil, J-V. Kim, K. Shigeto, Y. Otani, T. Devolder, P. Crozat, H. Hurdequint, and C. Chappert, “Inductive measurement of the high frequency permeability of a Permalloy thin film”, *J. of Magn. Magn. Mater.*, 272-276 (2004), 290-292.
 - J. Shibata and Y. Otani, “Magnetic vortex dynamics in a two-dimensional square lattice of ferromagnetic nanodisks”, *Phys. Rev.*, B 70 (2004), 012404-1 - 012404-4.
 - G.N. Kakazei, P.E. Wigen, K. Y. Guslienko, V. Novosad, A.N. Slavin, V.O. Golub, N.A. Lesnik, and Y. Otani, “Spin-wave spectra of perpendicularly magnetized circular submicron dot arrays”, *Appl. Phys. Lett.*, 85 (2004) 443-445.
 - 大谷 義近, 「スピンエレクトロニクスの基礎と最前線 第9章 配列ドット格子と磁気物性」, シーエムシー出版 東京 (2004) 105-116.

- T. Kimura, J. Hamrle, Y. Otani, K. Tsukagoshi, and Y. Aoyagi, “Spin-dependent boundary resistance in the lateral spin valve structure”, *Appl. Phys. Lett.*, 85 (16), 3501-3503, (2004).
- T. Kimura, J. Hamrle, Y. Otani, K. Tsukagoshi, and Y. Aoyagi, “Suppression of spin accumulation in nonmagnet due to ferromagnetic ohmic contact”, *Appl. Phys. Lett.*, 85 (17), 3795-3796, (2004).
- T. Kimura, J. Hamrle, Y. Otani, K. Tsukagoshi, and Y. Aoyagi, “Enhancement of non-local spin-valve signal using spin accumulation in local spin-valve configuration”, *Appl. Phys. Lett.*, 85 (22), 5382-5384, (2004).
- T. Kimura, J. Hamrle, Y. Otani, K. Tsukagoshi, and Y. Aoyagi, “Effect of probe configuration on spin accumulation in lateral spin valve structure”, *J. of Magn. Magn. Mater.*, 286 (2005), 88-90.
- J. Shibata, G. Tatara, and H. Kohno, “Effect of spin current on uniform ferromagnetism: Domain nucleation”, *Physical Review Letters*, 94 (2005), 076601-1 - 076601-4.
- 木村 崇, J. Hamrle, 大谷 義近, 「非局所手法を用いたスピン蓄積およびホール効果の測定」, *日本応用磁気学会誌* 29, 3(2005).
- T. Kimura, J. Hamrle and Y. Otani, “Spin-polarized current induced in a single ferromagnetic strip due to inhomogeneous spin injection”, *J. Appl. Phys.*, 97 (2005), 076102-1- 076102-3.
- T. Yang, T. Kimura, and Y. Otani, “Spin-injection-induced intermediate state in a Co nanopillar”, *J. Appl. Phys.*, 97(2005), 064304-1 - 064304-4.
- J. Hamrle, T. Kimura, Y. Otani, K. Tsukagoshi and Y. Aoyagi, “Current distribution inside Py/Cu lateral spin-valve device”, *Phys. Rev. B* 71(2005), 094402-1 - 094402-10.
- 安藤康夫, 水上成美, 宮崎照宣, 「スピンドイナミクスとスピントロニクスデバイス」, *固体物理*, 45 (2005) 35-43.
- D. Watanabe, H. Kubota, Y. Ando, and T. Miyazaki, “A Simple Fabrication Process using Focused Ion Beam for Deep Submicron Magnetic Tunnel Junctions”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 43 (2004) 7489-7490.
- M. Hayashi, Y. Ando, M. Oogane, H. Kubota, T. Miyazaki, “Spin-dependent inelastic electron tunneling spectroscopy of magnetic tunnel junctions”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 43 (2004) 7472-7476.
- 宮崎照宣, 「トンネル磁気抵抗効果」, *スピントロニクスの基礎と最前線*, 第2章, シーエムシー出版(2004) 12-27.
- 安藤康夫, 水上成美, 中村洋明, 久保田均, 宮崎照宣, 「スピンドイナミクス」, *スピントロニクスの基礎と最前線*, 第5章, シーエムシー出版(2004) 51-63.

- T. Miyazaki, “Recent development of MRAM and related phenomena”, Trans. Magn. Soc. Japan, 4 (2004) 67-73.
- H. Kubota, J. Nakata, M. Oogane, Y. Ando, A. Sakuma, and T. Miyazaki, “Large magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using Co-Mn-Al full Heusler alloy”, Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) L984-L986.
- H. Nakamura, Y. Ando, S. Mizukami, H. Kubota, T. Miyazaki, “Measurement of Magnetization Precession for NM/Ni₈₀Fe₂₀/NM (NM=Cu and Pt) Using Time-Resolved Kerr Effect”, Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) L787-L789.
- Y. Ando, H. Nakamura, S. Mizukami, H. Kubota, T. Miyazaki, “Time-resolved magnetization precession and reversal dynamics investigated using tunneling current and Kerr effect”, J. Magn. Magn. Mater., 272-276 (2004) 293-294.
- T. Niizeki, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, “Nanofabrication of magnetic tunnel junctions by using electron beam lithography”, J. Magn. Magn. Mater., 272-276 (2004) 1947-1948.
- H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, “CO+NH₃ plasma etching for magnetic thin films”, J. Magn. Magn. Mater., 272-276 (2004) e1421-e1422.
- M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, “Tunnel spectra for Al/Al-oxide/Ni₈₀Fe₂₀ junctions under the superconducting transition temperature of Al films”, J. Magn. Magn. Mater., 272-276 (2004) e1515-e1516.
- M. Oogane, H. Kubota, Y. Ando, T. Miyazaki, ” Tunnel Conductance in Ni₈₀Fe₂₀/Al-oxide/Al Junctions below the superconducting transition temperature of the Al films”, Transactions of Material Research Society, 29 (2004) 1527-1530.

(2) 特許出願

H16年度特許出願件数：0件（CREST研究期間累積件数：3件）