

「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、セル選択機能をもつ強磁性トンネル接合 (MTJ) 素子をマトリックス状に配列させたクロスポイントメモリアーキテクチャである。そのための要素技術として、セル選択機能をもつ MTJ 並びに低電力書込みおよび高速読出しのための技術開発を行う。H17 年度の進捗状況は以下の通りである。(1) セル選択可能素子としてスピン依存共鳴トンネル素子およびスピン単一電子素子の研究を進め、一定の前進を見たものの最終目標に向けた研究加速が必要である。(2) 高速読出しのためハーフメタル開発に取り組み、フルホイスラー合金を用いた MTJ において室温で 75% の TMR を得た。(3) 低抵抗 MTJ を作製し 10^6A/cm^2 の電流密度でスピン注入磁化反転を実現し、繰り返し耐性も確認した。最終年度はセル選択機能の確かな見通しを明らかにすること、および室温 TMR100%、自己差動読出し・スピン注入書込みの実現に向け、最大の努力を払う。

2. 研究実施内容

猪俣グループ

(1) スピン共鳴トンネル効果素子の開発：昨年度、MBE を用いて強磁性二重トンネル接合素子を作製し、コンダクタンスのバイアス電圧による振動を観測、スピン依存量子井戸形成に世界ではじめて成功した。しかし、中間層が島状成長するため TMR の振動を観測できなかった。これを改善するため H17 年度は Cr と MgO に挟まれた Fe 層内にスピン依存量子井戸を形成させることを試みた。これは Fe の多数スピンバンドと Cr のバンドにエネルギーギャップがあるため、Fe の多数スピンバンド内にスピン依存量子井戸を形成できる可能性があると考えたからである。MBE を用いて Cr 下地層の上に Fe 超薄膜を成長させ、その上に MgO を成長させた結果、1 nm の Fe でも連続してエピタキシャル成長させることができた。しかし、現時点でコンダクタンスや TMR の振動は観測されていない。この原因は Cr の成長にあり、H18 年度は MBE に代えて超高真空スパッタでの成膜に移行し、TMR 振動の観測を目指す。

(2) ハーフメタルの開発：従来、 $\text{Co}_2(\text{Cr,Fe})\text{Al}$ (CCFA) 系ホイスラー合金に着目し、巨大 TMR を

得るべく研究を行ってきたが、 $L2_1$ 構造を得ることが困難であることが判明し、この系での可能性は小さいと判断した。新たに $L2_1$ 構造を得やすい系として最近明らかにされた Co_2FeSi 系に着目し、実験を行った。その結果、確かに $L2_1$ 構造は得られるものの、格子定数が CCFA に比べて小さく MgO 基板との格子ミスマッチが大きいせいか、大きな TMR が得られない。これを改善し、 $L2_1$ 構造と小さな格子ミスマッチを両立させるべく新組成系について実験を進めている。現在までのところ室温で 75% の TMR を得ている (図1)。今後、組成並びに熱処理条件の最適化によって、目標の室温 TMR100% が得られるものと期待される。

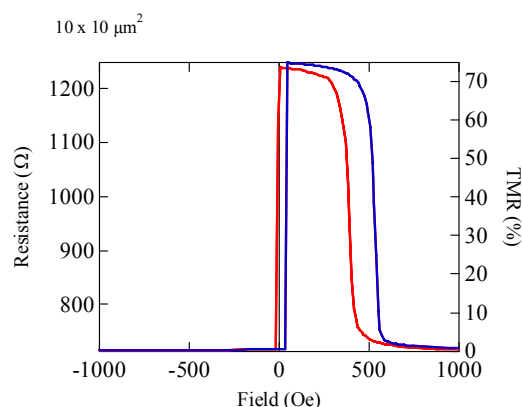


図1 室温での TMR 曲線

高梨グループ

非磁性ナノ粒子配列の構造制御、クーロンブロッケイド(CB)およびスピン蓄積に起因する TMR に関して研究を行った。大きな帯電エネルギーと効率の良いスピン蓄積を実現するためには、ナノ粒子の微小化が必要であり、原子レベルで平坦化した MgO 障壁層上に Au ナノ粒子配列を成長させ、プローブ顕微鏡により構造評価を行った。最適化した条件において得られた Au ナノ粒子の平均粒径は約 1 nm であり、真空バリアを介した STM による I - V 測定により約 0.7 eV の帯電エネルギーを得た。

強磁性の Fe 上下電極、非磁性の Au ナノ粒子配列中間層および MgO 障壁層を用いた 2 重トンネル接合素子を微細加工によって作製し、測定温度は 4.2 K であるが、Al-O 障壁層を用いた場合よりも大きな TMR を得た。この素子の抵抗はバイアス電圧印加により 2 桁近く減少し、CB 効果が明瞭に現れていることが分かる。図 2 は TMR のバイアス依存性である。観測された TMR には、上下 Fe 電極間の直接トンネルによる寄与は見られず、Au ナノ粒子を介したトンネルによる寄与が支配的であると考えられる。データ点はややばらついているが、バイアス電圧増大とともに TMR は増大する傾向が見られ、その大きさも Al-O 障壁層の場合よりも大きく約 0.5% が得られた。素子抵抗に関してもこれまでの試料と比べて改善されており、バイアス電圧印加時には、10 M Ω 台まで低減した。

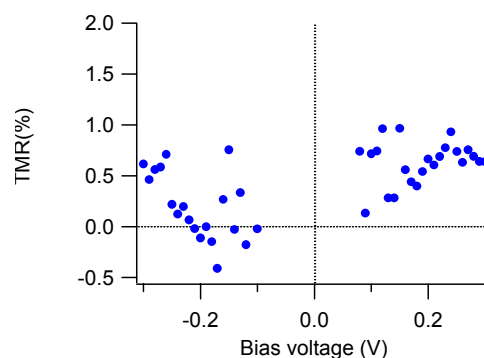


図2 Fe/MgO/Au-nanoparticles/MgO/Fe 2重トンネル接合の 4.2 K における TMR のバイアス電圧依存性

前川グループ

(1) 非局所スピン注入による磁化反転素子の提案：強磁性体(F1)と非磁性体からなる非局所スピン注入法を用いると、非磁性体中に電荷流の伴わない純粋のスピン流とスピン蓄積を生成することができる。この非磁性体にパーマロイなどの微小な強磁性体(F2)を接触させると、F2 がスピンの吸収体として働くため、大きな純粋スピン流が F2 へ流出する。有限要素法を用いた数値シミュレーションの結果、F1 へ $100\ \mu\text{A}$ の電流注入に対して、F2 へ流出する純粋スピン流密度は $10^6\text{A}/\text{cm}^2$ 程度となることが判明した。非局所スピン注入により磁化反転素子の開発が十分可能であることが数値シミュレーションにより示した。

(2) 非局所スピン注入法によるスピン軌道相互作用の微視的評価法の提案：非局所スピン注入・検出法を用いると、Al、Cu、Ag などの非磁性金属のスピン拡散長が求められる。スピン拡散長は、伝導電子の不純物によるスピン軌道散乱の強さによって支配される。我々は、非磁性体のスピン拡散長 λ_N と抵抗率 ρ_N の積とスピン軌道相互作用の結合定数 η_{so} の間に成り立つ普遍的な関係式を見出した。この関係式はスピン軌道相互作用の結合定数を評価する新しい方法を与える。Cu や Al に対して $\lambda_N\rho_N$ の実験値を用いると、これらの金属のスピン軌道相互作用定数の大きさは $\eta_{so}=0.01\sim0.04$ と評価される。

(3) 非局所スピンホール効果の観測可能性：非局所スピン注入法を用いると、非磁性体中に純粋なスピン流が発生する。この純粋スピン流は、スピン軌道散乱(スキュー散乱とサイド跳躍)によって、 η_{so} とスピン流の大きさに比例した異常ホール効果を引き起こす。上記のスピン軌道相互作用の結合定数の値を用いると、非局所ホール抵抗の値は $0.1\text{ m}\Omega$ 程度と見積もられる。Al や Cu を用いた非局所スピンホール素子を作成すれば、非局所スピンホール効果の観測が充分可能である。

斉藤グループ

自己差動検出／スピン注入書き込みメモリを実現するため、MTJ へのスピン注入書き込みに取り組み、MgO トンネルバリアを有する MTJ の低抵抗化および、スピン注入磁化反転の実験を行い、以下の成果を得た。

(1) MTJ 素子の低抵抗化：スピン注入磁化反転を行うために MgO-MTJ 素子の低抵抗化を試みた。その結果、 $RA\sim 20\ \Omega\ \mu\text{m}^2$, $MR>70\%$ (最高値は $MR=88\%$, $RA\sim 15\ \Omega\ \mu\text{m}^2$) をウエハ一面内に均一良く成膜できる成膜条件を得、自己差動検出／スピン注入書き込みを用いればユニバーサルメモリが実現可能であることを明らかにした。

(2) MgO-MTJ へのスピン注入磁化反転と Read/Write 信頼性：MgO トンネルバリアを介したスピン注入磁化反転を試みた。トンネルバリアを用いた場合は信頼性 (トンネルバリアの破壊)の問題が顕著に現れメモリ応用として懸念される。素子構造は、記録磁性層に CoFeB、スペーサー層に MgO トンネルバリア、そしてスピン偏極電子源に CoFeB/Ru/CoFe を用いたスピンバルブ型 TMR 素子である。今回、低電流密度スイッチングを実現する方法として、弱い磁場アシストによりスピン注入効率を向上させるとともに、エネルギーバリアを低減

する方法を用いた。図3に示したようにスピン注入書き込み時の平均電流密度 $1.2 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$ (最低平均電流密度 $8.6 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$) までの低電流密度化を実現した。図4に、スピン注入磁化反転の書き込み繰り返し耐性の結果を示す。この結果は、 $100 \mu\text{sec}$ パルス電流幅でスピン注入磁化反転を行った結果であり、 $>26,000$ 回の書き込み耐性が確認できた (2nsec パルス電流幅で行った場合 $>10^8$ 回に対応する)。

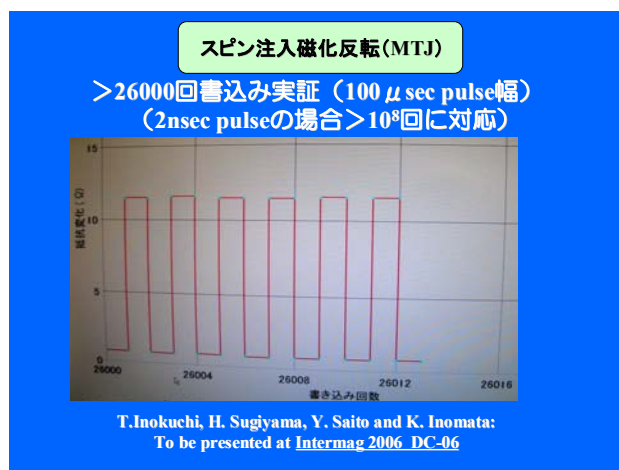
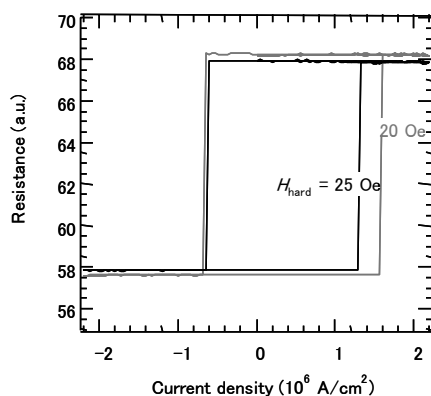


図3 MgO-MTJ のスピン注入磁化反転

図4 スピン注入磁化反転の書き込み繰り返し耐性

3. 研究実施体制

「猪俣」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：スピン共鳴トンネルに基づくセル選択機能をもつ MTJ 素子ならびにハーフメタルの開発、および低電力磁化反転技術の開発

「高梨」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：クーロンブロッケードに基づくセル選択機能をもつ MTJ 素子の開発

「前川」グループ

- ①研究分担グループ長：前川 禎通（東北大学金属材料研究所、教授）
- ②研究項目：理論解析ならびに理論に基づく新しいスピンドバイスの提案

「斉藤」グループ

- ①研究分担グループ長：斉藤 好昭（株式会社東芝 研究開発センター、主任研究員）
- ②研究項目：自己差動検出／スピン注入書き込みメモリ素子の開発

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

- 菊地麻樹、正木達章、手束展規、杉本諭、猪俣浩一郎
Co₂CrGa フルホイスラー合金薄膜の結晶構造と磁気・電気伝導特性
日本応用磁気学会誌、29、274-277(2005).
- N. Tezuka, S. Abe, Y. Jiang, K. Inomata,
CPP-GMR enhancement in spin valves using a thin Ru Layer,
J. Magn. Magn. Mat. 1150-1153(2005).
- A. Hirohata, H. Kurebayashi, S. Okamura, M. Kikuchi, T. Masaki, T. Nozaki, N. Tezuka
and K. Inomata,
Structural and magnetic properties of epitaxial L2₁-structured Co₂(Cr,Fe)Al films grown
on GaAs(001) substrates,
J. Appl. Phys. 97(11) 103714-1-103714-8(2005).
- A. Hirohata, H. Kurebayashi, S. Okamura, T. Masaki, T. Nozaki, M. Kikuchi, N. Tezuka,
K. Inomata, J. S. Claydon and Y. B. Xu,
Magnetic properties of epitaxial L2₁-structured Co₂(Cr,Fe)Al thin films on GaAs(001)
substrates,
J. Appl. Phys. 97, 10C308-1-10C308-3(2005).
- Y. Jiang, G. H. Yu, Y. B. Wang, J. Teng, T. Ochiai, N. Tezuka, K. Inomata,
Spin transfer in antisymmetric exchange-biased spin-valves,
Appl. Phys. Lett., 86 192515-1-192515-3 (2005).
- S. Okamura, A. Miyazaki, S. Sugimoto, N. Tezuka, and K. Inomata
Large tunnel magnetoresistance at room temperature with a Co₂FeAl full-Heusler alloy
electrode,
Appl. Phys. Lett., 86(23) 232503-1-232503-3 (2005).
- T. Ochiai, Y. Jiang, A. Hirohata, N. Tezuka, S. Sugimoto and K. Inomata,
Distinctive current-induced magnetization switching in a current-perpendicular-to-plane
giant magnetoresistance nanopillar with a synthetic antiferromagnet free Layer,
Appl. Phys. Lett., 86(24) 242506-1-242506-3(2005).
- H. Sukegawa, A. Hirohata, S. Nakamura, N. Tezuka, S. Sugimoto, K. Inomata,
Magnetic Transport Mechanism in Double Ferromagnetic Tunnel Junctions with Two-
Dimensional Ferromagnetic Particles,
IEEE Trans. Magn., 41(10)2679-2681(2005).
- A. Hirohata, H. Kurebayashi, S. Okamura, N. Tezuka and K. Inomata,
Magnetic Properties of Epitaxial Co₂Cr_{1-x}Fe_xAl Full Alloy Thin Films With the L2₁

- Structure,
IEEE Trans. Magn., 41(10)2802–2804(2005).
- S. Okamura, Aya Miyazaki, N. Tezuka, S. Sugimoto, K. Inomata,
Epitaxial Growth of Ordered $\text{Co}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Al}$ Full-Heusler Alloy Films on Single Crystal Substrates, Mater.Trans., 47(1)15–19 (2006).
 - K. Inomata, S. Okamura, A. Miyazaki, M. Kikuchi, N. Tezuka, M. Wojcik and E. Jedryka
Structural and magnetic properties and tunnel magnetoresistance for $\text{Co}_2(\text{Cr}, \text{Fe})\text{Al}$ and Co_2FeSi full-Heusler alloys,
J. Phys. D: Appl. Phys. 39, 816–823(2006).
 - 野崎隆行、中村新一、手束展規、杉本諭、猪俣浩一郎
ナノドットFe中間層を有するエピタキシャル強磁性2重トンネル接合におけるコンダクタンスの振動現象
J. Magn. Soc. Jpn., 30, 180–183(2006).
 - T. Nozaki, N. Tezuka and K. Inomata
Quantum Oscillation of the Tunneling Conductance in Fully Epitaxial Double Barrier Magnetic Tunnel Junctions,
Phys. Rev. Lett., 96, 027208–1–027208–4(2006).

高梨グループ

- F. Ernult, S. Mitani, K. Takanashi, Y.K. Takahashi, K. Hono, Y. Takahashi and E. Matsubara
Self-alignment of Fe nanoparticles on a tunnel barrier
Appl. Phys. Lett., 87 033115–1–033115–3(2005).
- S. Mitani, K. Tsukamoto, T. Seki, T. Shima and K. Takanashi
Fabrication and characterization of L10-ordered FePt/AlO/FeCo magnetic tunnel junctions
IEEE Trans. Magn. 41, 2606–2608 (2005).
- S. Kaji, G. Oomi, H. Hedo, Y. Uwatoko, S. Mitani, K. Takanashi, S. Takahashi and S. Maekawa
Electrical transport and magnetoresistance in Co-Al-O granular films under high pressure
J. Phys. Soc. Jpn. 74, 2783–2790 (2005).

前川グループ

- S. E. Barnes and S. Maekawa
Current-Spin Coupling for Ferromagnetic Domain Walls in Fine Wires,
Phys. Rev. Lett. 95, 107204–1–107204–4 (2005).
- T. Yamashita, K. Tanikawa, S. Takahashi and S. Maekawa
Superconducting π Qubit with a Ferromagnetic Josephson Junction,

- Phys. Rev. Lett. 95, 097001-1-097001-4 (2005).
- N. Bulut, W. Koshibae, and S. Maekawa
Magnetic Correlations in the Hubbard Model on Triangular and Kagome Lattices,
Phys. Rev. Lett. 95, 037001-1-037001-4 (2005).
 - J. Martinek, M. Sindel, L. Borda, J. Barna, R. Bulla, J. König, G. Schön, S. Maekawa, and
J. von Delft
Gate-controlled spin splitting in quantum dots with ferromagnetic leads in the Kondo
regime,
Phys. Rev. B 72, 121302-1-121302-4 (2005).
 - Y. Utsumi, J. Martinek, G. Schön, H. Imamura, and S. Maekawa
Nonequilibrium Kondo effect in a quantum dot coupled to ferromagnetic leads,
Phys. Rev. B 71, 245116-1-245116-13(2005).

斉藤グループ

- Y. Saito, H. Sugiyama, K. Inomata,
Thermal stability parameters in synthetic antiferromagnetic free layers in magnetic tunnel
junctions, ,
J. Appl. Phys. 97, 10C914-1-10C914-3(2005).
- Y. Saito, H. Sugiyama, K. Inomata,
Self-differential detection using laminated magnetic tunnel junctions,
J. Appl. Phys. 97, 10P502-1-10P502-3 (2005).
- 中村志保、斉藤好昭、森瀬博史
スピントロニクスデバイスと磁化制御技術
東芝レビュー 61, 40-43(2006).

(2) 特許出願

H17 年度出願件数 : 3 件 (CREST 研究期間累積件数 : 17 件)