

平成22年 5月14日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19360284
 研究課題名（和文）単原子積層エピタキシャル人工格子における超微細磁気構造とスピン伝導の解析
 研究課題名（英文）Spin scattering asymmetry coefficients of alternate monatomic epitaxial $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ superlattices
 研究代表者
 土井 正晶（DOI MASAOKI）
 東北大学・大学院工学研究科・准教授
 研究者番号：10237167

研究成果の概要（和文）：

超高真空 EB 蒸着法および IBS 法を用いて単結晶 MgO(001)基板/Au (300nm) 電極上に AML $[\text{Fe}/\text{Co}]_n/\text{NM}(5\text{nm})/\text{AML}[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ ($n=21\sim 37$)エピタキシャル薄膜を積層し、その上に IrMn(7nm)を積層したスピントラップ薄膜を作製した。スピン伝導の解析の結果、室温でスピン散乱非対称性係数 $\beta=0.76$ 、 $\gamma=0.81$ と大きな値を持つことを明らかにした。また、AML/NM/AML 薄膜の β 値の温度変化から、室温において高い β 値が維持できることを明らかにし、AML $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ が CPP-GMR のエンハンスにつながる有力な材料であることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

The full epitaxial stacked films with AML $[\text{Fe}/\text{Co}]_n/\text{Cu}$ or $\text{Ag}/\text{AML}[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ for CPP-GMR measurement were confirmed on the electrode of Au on MgO(001) substrate by the RHEED and TEM observation. We have estimated the spin asymmetry coefficient (β and γ) of the AML $[\text{Fe}/\text{Co}]_n/\text{Cu}$ or $\text{Ag}/\text{AML}[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ from the fitting of the plot of ΔRA as a function of thickness of ferromagnetic layer (t_{FM}) by the Valet-Fert theory. The bulk asymmetry in our epitaxial SV with AML $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ were found to be $\beta=0.76 \sim 0.81$. Also we achieved the interface asymmetry coefficient ($\gamma_{\text{FM/NM}}$) value of 0.81 ± 0.03 , 0.84 ± 0.02 using Cu and Ag spacer with AML $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$, respectively.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,100,000	2,730,000	11,830,000
2008年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
2009年度	3,000,000	900,000	3,900,000
年度			
年度			
総計	15,900,000	4,770,000	20,670,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：エピタキシャル薄膜、単原子積層、巨大磁気抵抗効果、CPP-GMR スピントラップ、スピン分極率、スピン伝導非対称パラメータ、MR 変化率

1. 研究開始当初の背景

ユビキタスネットワークの実現に向けて、ストレージメモリはその素子寸法が100nmをきるところまで微細化が進展し、その高密度・大容量・高速化の要請はさらに高まり続けている。しかし、次世代超高密度・大容量・超高速のストレージメモリ実現のためには、現在のデバイスとして実用化されているGMR (Giant Magnetoresistance) /TMR (Tunneling Magnetoresistance) では記録再生感度 (GMR) および応答速度 (TMR) が十分ではなくなることが分かっている。この限界を打ち破るためには、ナノスケールでの特異なスピン伝導物理のデバイス応用が現実の研究課題となっており、新たな量子スピン伝導に基づいた新規MR原理の創製とそのデバイスへの適用検討が不可欠である。

次代のストレージメモリを担うデバイス技術として、垂直通電 (Current Perpendicular to Plane :CPP) 型のスピン伝導デバイスが注目を集め、多くの研究がなされている。GMR では電流狭窄効果によるMR変化率の増加が報告された (研究分担者: 佐橋政司ら)。また、MgO トンネルバリアを用いたTMR ではスピン伝導の方向制御に起因すると考えられるMR変化率の増加が報告されている (S. Yuasa et. al)。

2. 研究の目的

本研究では最終的にGMRの電流狭窄による量子効果とスピン伝導の方向制御した高スピン分極化を融合したMR原理の創製とそのデバイスへの適用検討を目標とする。スピン伝導におけるアップスピンとダウンスピンの電子伝導の非対称性をより定量的に解き明かすためには、構成材料原子が各結晶面にエピタキシャル成長したエピタキシャル膜を作製し、フェルミ面におけるフェルミ速度、スピン分極との関係を調べることが重要であるとの視点に立ち、単原子積層エピタキシャル金属超極薄薄膜を用いたCPP-GMRにおけるスピン伝導の研究を第一に行う。エピタキシー技術を用いることにより1原子層で制御した人工規則合金を作製し、そのスピン伝導について検討を行う。この方法を用いることにより従来バルクにおいて存在する平衡規則薄膜はもとよりバルクでは存在しない非平衡規則薄膜を作製することが可能である。本研究ではバルクにおいて規則相が存在

し、磁性の観点からスピン分極率が大きく、かつ $\Delta 1$ バンドにおいてスピン非対象性が高いことが報告されている $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 規則合金薄膜に着目した。 $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ 規則合金はbcc構造のB2規則相を有しており、(001)面上にFeとCoが1原子層ごとに交互に積層した結晶構造である。bcc-Feが比較的容易にMgO/Au上にエピタキシャル成長することからAu上人工規則薄膜がエピタキシャル成長することが予想される。本研究では現有評価設備 (RHEED, LEED, STM/AFM) により厳密に積層構造を評価し、最適条件を決定する。また異なる条件で試料を作製することによって規則度の異なるスピンバルブ (S V) 試料を作製した後、素子化のための微細加工を施し、そのMR変化率を測定する。MR変化率の規則度依存性から規則度とスピン伝導について考察する。また、Fe/Co人工規則薄膜を(110)、(111)面でのエピタキシャル薄膜を作製する。(110)面系については非平衡人工規則薄膜となる。(100)、(110)、(111)面において人工規則薄膜を作製し、MR変化率を比較することによって結晶方位とスピン伝導との関係を明らかにする。

本研究期間において超高密度・大容量・超高速のストレージメモリ実現に向けた新規ヘッドデバイス創製のための設計指針を提示することを目標とする。

3. 研究の方法

本研究代表者らはすでにMgO(001)基板上のFe(1ML)/Co(1ML)エピタキシャル成長に関する予備実験を行った。その結果、[Fe(1ML)/Co(1ML)]のエピタキシャル成長を確認しており (J. Magn. Magn. Mat., 304, e121-e123 (2006).)、下記の実験計画に従いエピタキシャル金属超極薄薄膜を用いたスピンバルブ型CPP-GMRにおけるスピン伝導の研究を行った。

(1) Fe/Co (B2 構造) エピタキシャル薄膜を以下の方法で作製し、膜構造と磁気特性の評価を行う。

- ① 既存の超高真空電子線蒸着装置を用いて単結晶 MgO 基板(100), (110), (111)上に1原子層ごとにFeおよびCoを1ML積層したエピタキシャル規則薄膜を作製する。このときエピタキシャル成長の基板温度依存性を反射高速電子

線回折装置 (RHEED) によって評価し、エピタキシャル成長および規則化に最適な基板温度を決定する。また、K-cell (新規増設) を用いたエピタキシャル成長を RHEED 強度振動によるその場観察から厳密な 1 原子層状成長を確認する。比較のために Fe と Co の同時蒸着による FeCo 合金薄膜を作製し、人工規則薄膜との膜構造を比較する。

- ② 作製したエピタキシャル薄膜は in-situ において反射高速電子線回折装置 (RHEED)、低速電子線回折装置 (LEED)、その場観察装置、その場走査型トンネル・原子間力顕微鏡 (STM/AFM) によって成長様式と膜構造を評価する。RHEED 像によってエピタキシャル成長を確認し、ストリーク間隔から薄膜面内の原子間隔を評価し、LEED から面内配向性を評価する。Fe および Co 1 原子層ごとの積層後 STM その場観察によって 1 原子層状成長することを確認する。また膜構造 (結晶構造、格子定数など) を X 線回折を使って評価する。一般的に Fe と Co の規則合金ではその原子散乱因子の差が小さいため、X 線などの構造評価では規則度の評価は困難である。そこで RHEED の規則線強度と磁気異方性によって相対的な規則度をまず評価する。最終的には中性子回折を用いた規則度の絶対評価を行う。薄膜の磁気測定は既設の試料振動型磁力計 (VSM) を使用する。

(2) Au 電極上の [Fe(1ML)/Co(1ML)] エピタキシャル薄膜の膜構造と磁気特性評価

MgO(100) 基板上に Au がエピタキシャル成長し、その上に bcc-Fe がエピタキシャル成長することが分かっている。従って MgO/Au 上に Fe/Co がエピタキシャル成長 (ミスフィット 0.9%) すると考えられる。(1) と同様に MgO/Au 電極上に [Fe(1ML)/Co(1ML)]₂₀ を作製し、その構造評価を行う。

(3) Au 電極上の [Fe(1ML)/Co(1ML)] エピタキシャルスピンバルブ薄膜の作製と膜構造・磁気特性評価

- ① MgO/Au/[Fe(1ML)/Co(1ML)]₂₀/Au, Cu, Ag/[Fe(1ML)/Co(1ML)]₂₀/IrMn/Cu トップピン型スピンバルブ薄膜を作製し、その構造を①と同様に評価する。
- ② 磁気抵抗効果特性の評価を行いスピ

ンバルブ特性のチェックを行う。

(4) CPP 型素子加工

作製したスピンバルブ薄膜を露光マスク、レジストを用いたリソグラフィ法 (現有設備) と EB リソグラフィ、イオンミリング等のプロセスによって微細加工し、0.7 μm ~ 1.5 μm φ 径の膜面垂直方向通電 (CPP) 型の素子に加工する。上部 Cu 電極をスパッタ法 (現有設備) によって蒸着し、垂直通電型 (Current Perpendicular to plane) CPP 型の素子を作製する。

(5) 磁気抵抗効果測定

作製した CPP-GMR 素子を用いて低温 (4.2K) から室温までの磁気抵抗効果測定 (現有設備) を行い、スピン伝導特性を評価する。結晶方位とバンド構造を考慮してそのスピン伝導の規則度依存性および結晶方位依存性について考察した。

(6) スピン散乱の非対称係数

CPP-GMR の伝導特性を解析する場合、単純な 2 流体モデルによる扱い、およびそれを有限のスピン拡散長に対して拡張した Valet-Fert モデルによる扱いが良く知られている。そこで磁気抵抗効果測定によって得られる強磁性層膜厚 t_{FM} と面積磁気抵抗変化量 ΔRA の関係を Valet-Fert モデル式 (1)

$$\Delta RA = \frac{(2\beta\rho_{FM}^* t_{FM} + 3\gamma AR_{FM/Au}^*)^2}{2\rho_{FM}^* t_{FM} + \rho_{Au} t_{Au} + 3AR_{FM/Au}^*} \quad (1)$$

のバルクスピン非対称係数 β 、界面スピン非対称係数 γ を変数として非線形曲線フィッティングを行い、 β 、 γ の値を見積もった。

4. 研究成果

平成 19 年度ではエピタキシー技術を用いることにより 1 原子層で制御した単原子積層エピタキシャル薄膜 (ALM (Alternate Monatomic Layered)) を作製・評価し、点接触アンドレーフ反射を用いてそのスピン分極率を評価した。その結果、MgO(001) 基板上に基板温度 75°C で成膜した AML[Fe/Co]_n では同じ方法で測定されたホイスラー合金系ハーフメタルに匹敵する高いスピン分極率 (P=60%) が得られることが示された。この P 値は、これまでの Fe₅₀Co₅₀ 合金薄膜の P 値より 10% ほど高いものであり、規則度の上昇がスピン分極率を高めている可能性を示唆している。次に MgO(001) 基板上に Au の下部電

極を含む Au300/[Fe/Co]₁₀/Au5/[Fe/Co]₁₀ 構成のフルエピタキシャル薄膜に IrMn を積層したスピバルブ薄膜を作製し、微細加工した CPP-GMR 素子の MR 特性を評価した。その結果、Au スペースにおいて Fe₅₀Co₅₀ と Cu を用いた CPP-GMR スピバルブ薄膜素子の MR 比 (1%程度) をはるかに上回る最大 5% の MR 比が得られることが示された。その理由としてスピ分極率の増大に起因した面積抵抗変化量の増大とエピタキシャル成長による界面抵抗の低下に起因した面積抵抗の低減が考えられる。

平成20年度は中性子回折法により AML[Fe/Co] の B2 規則度の評価を行った。その結果、AML[Fe/Co] の B2 規則度が 0.70 程度であることが分かった。この値は、スピ分極率と規則度の関係を調べたシミュレーション結果ともよく一致し、規則化によりスピ分極率が上昇したことが示された。さらに高スピ分極材料である AML[Fe/Co] は、その SV-CPP-GMR 特性により、強磁性膜厚 8nm で MR 比 5% が得られると見積もられた。スピ伝導の解析の結果、高いバルク散乱の非対称性 ($\beta = 0.81$) を有することが分かった。この値は室温で報告されている他のデータと比較して最高値であり、CPP-GMR のエンハンスにつながる有力な材料であることを明らかにした。

そこで 21 年度は Cu および Ag スペースを用いた AML[Fe/Co]_n からなるエピタキシャル CPP-GMR スピバルブ (SV) 薄膜を作製し、スピ伝導の解析から電子伝導の非対称性、特に γ (スピンの界面散乱非対称係数) と磁気抵抗効果との関係について考察することを目的として研究を行った。超高真空 EB 蒸着法および IBS 法を用いて単結晶 MgO(001) 基板/Au (300nm) 電極上に基板温度 75°C において AML[Fe/Co]_n/Cu, Ag (5nm)/AML[Fe/Co]_n (n=21~37) エピタキシャル薄膜を積層し、その上に IrMn (7nm) を積層したスピバルブ薄膜を作製した。RHEED 観察像から bcc-AML 上の Cu は bcc-like で成長し、その上の bcc-AML もエピタキシャル成長することがわかった。スピ伝導の解析の結果、室温でスピ散乱非対称性係数 $\beta = 0.76$ 、 $\gamma = 0.81$ と大きな値を持つことを明らかにした (図 1)。また、AML/Cu/AML 薄膜の β 値の温度変化はホイスラー薄膜と比較して小さく、室温において高い β 値が維持できることを明らかにした。この値は室温で報告されている他のデータと比較して最高値であり、スピ拡散長が膜厚に対して十分に長い Ag を中間層とし、理想的な素子を作製した場合、MR 比が 20% 以上となることが示唆された。これらの結果から

AML[Fe/Co]_n が CPP-GMR のエンハンスにつながる有力な材料であることを明らかにした。

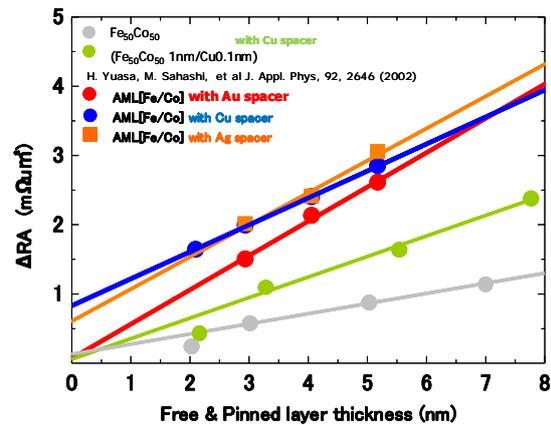


図 1 . AML[Fe/Co]_n/Cu, Au, Ag (5nm)/AML[Fe/Co]_n (n=21~37) エピタキシャル薄膜の磁気抵抗変化 (ΔRA) .

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

1. “Fe/AlO_x-NOL を用いた NCMR 素子におけるマイクロ波発振の特徴”, 田中俊行, 遠藤広明, 土井正晶, 福家ひろみ, 岩崎仁志, 佐橋政司, 日本磁気学会誌, Vol. 34, No. 3, 297-302 (2010). 査読有
2. “High Bulk Spin Scattering Asymmetry in CPP Spin Valves With Alternated Monatomic [Fe/Co]_n Superlattice”, Tomonori Mano, In Chang Chu, Kousaku Miyake, Masaaki Doi, Satoko Kuwano, Toshiyuki Shima, and Masashi Sahashi: IEEE Trans. Magn., No. 10, 3460-3463 (2009). 査読有
3. “High Level Oscillation With Narrow Linewidth in Magnetic Nano-Contact Spin Torque Oscillator With Synthetic AF Spin-Valve Structure”, Hiroaki Endo, Toshiyuki Tanaka, Masaaki Doi, Susumu Hashimoto, Hiromi Niu Fuke, Hitoshi Iwasaki, and Masashi Sahashi: IEEE Trans. Magn., 45, No. 10, 3418-3421 (2009). 査読有
4. “Interlayer Coupling Through Cu Spacer and Its Unique Temperature Dependency in Spin Valve Films With Co_{1-x}Fe_x/Cr-NOL”, K. Sawada, H. Endo, M. Doi, and Masashi Sahashi: IEEE

Trans. Magn., 45, No.10, 4019-4022
(2009) . 査読有

5. “Structural properties of alternate monatomic layered $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ epitaxial films on MgO substrate”, In Chang Chu, Yoshinobu Saki, Shohei Kawasaki, Masaaki Doi, and Masashi Sahashi; J. Appl. Phys., 47, No.6, 4511-4513 (2008) . 査読有

[学会発表] (計 30 件)

1. “単原子積層 $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ エピタキシャル層を用いたCPP-GMR-SV薄膜のスピン散乱非対称性”, 土井正晶, 志尾崎涼, 鄭鎮源, 真野知典, 佐橋政司, 日本金属学会 2010年春期大会, 筑波大学, 2010年3月29日 (S6・12)
2. “Spin scattering asymmetry in CPP spin valves with alternated monatomic $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ superlattice and Au spacer”, T. Mano, I. Chu, M. Doi, and M. Sahashi, Intermag 2009, Sacramento, California, May 6 (2009) (DB-07).
3. “CPP-GMR characteristics of full epitaxial spin valves film with alternate monatomic $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ superlattice”, I. Chu, T. Mano, M. Doi, and M. Sahashi, Intermag 2008, Madrid, Spain, May 6 (2008) (DC-07).
4. “High spin polarization of epitaxial films with artificial alternate monatomic $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ superlattice”, I. Chu, A. Rajanikanth, Y. Takahashi, K. Hono, M. Doi, and M. Sahashi, Intermag 2008, Madrid, Spain, May 5 (2008) (AS-04).
5. “ $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ 超格子単原子積層を用いたスピバルブCPP-GMR特性” 真野知典, In Chang Chu, 土井正晶, 佐橋政司: 2008年春季 第55回応用物理学関係連合講演会, 日本大学, 2008年03月27日 (27a-F-8)
6. “ $[\text{Fe}/\text{Co}]_n$ 単原子積層多層膜の高スピン分極率” In Chang Chu, Ammanabrolu Rajanikanth, 高橋由紀子, 宝野和博, 土井正晶, 佐橋政司: 2008年春季 第55回応用物理学関係連合講演会, 日本大学, 2008年03月27日 (27a-F-9)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

土井 正晶 (DOI MASAOKI)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 10237167

(2) 研究分担者

佐橋 政司 (SAHASHI MASASHI)
東北大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 20361123

三宅 耕作 (MIYAKE KOUSAKU)

東北大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 20374906

(3) 連携研究者 無し