

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23686006

研究課題名(和文)磁性絶縁体による高効率スピン流生成と新規素子開発

研究課題名(英文)Fabrication of novel spintronic devices using MTJs with magnetic insulators

研究代表者

長浜 太郎 (Nagahama, Taro)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：20357651

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,600,000円、(間接経費) 5,580,000円

研究成果の概要(和文)：スピントロニクス分野ではMRAMやスピントルクRAMが注目を浴びている。とくにスピントルクRAMでは省電力な磁化反転技術として、スピン注入磁化反転を用いている。Slonczewskiは磁性絶縁体中に励起されるスピン波によって、高効率なスピン流生成が可能であることを示した。本研究ではエピタキシャルなフェライト層を含むMTJ素子の作製技術を確立するとともに、その磁気特性、および磁気抵抗効果の評価を行った。その結果、非磁性挿入層としてPtが適していることや、非磁性挿入により保磁力の増大が観測されるなどの新たな知見を得た。また電子線リソグラフィーを用いた微小素子を作製し、70%の磁気抵抗を観測した。

研究成果の概要(英文)：In the spintronics research fields, MRAM and STT-RAM have attracted much attention. In the devices, magnetic tunnel junctions (MTJs) are the most important elements. The STT-RAM employs the spin torque transfer magnetization reversal to switch the magnetization on very low power. In 2010, Slonczewski proposed that the magnetization is reversed effectively by the spin current generated by spin wave in magnetic insulator. However, the MTJs with magnetic oxide insulator are not reported so far. In this study, we fabricated the epitaxial MgO-MTJs with spinel ferrite oxide using reactive molecular beam epitaxy. From the RHEED and AFM observations, Pt is more appropriate for the insertion layer between Fe and ferrite layers than Cr and Au. Regarding the magnetization process, the saturation field was enhanced by insertion of the non-magnetic layer. The MTJ devices fabricated by e-beam lithography exhibited TMR effects of 70%.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用物性・結晶工学

キーワード：スピントロニクス フェライト トンネル磁気抵抗効果 スピン流

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは電子の電荷とともにスピンを活用するエレクトロニクス技術である。その最大の特徴は情報の不揮発性であり、省電力メモリの実現を目指して、多くの研究が行われている。その中でも最近特に注目を集めているのが、スピン注入磁化反転と呼ばれる技術である。通常磁性体中の磁化を反転させる際には外部から磁界を印加することによる。磁性体を用いたメモリや HDD など外部磁界により書き込まれる。しかし、磁界による磁化反転はエネルギー的にロスが多い方法である。さらに記録ビットが小さくなるとより大きな磁場が必要になるため、高密度化には向いていない。2000 年ごろから、直接電子のスピン角運動量を磁性体中に送り込むことにより磁化を反転させるという手法が提案され、実験的にも可能になってきた。これはスピン偏極した電流を磁性体中に流すことにより、角運動量を直接受け渡すことにより磁気モーメントの方向を変える方法で、スピン流によるスピントランスファートルクと呼ばれている。角運動量を直接移行するのでエネルギー的なロスが少なく、これまでより省電力なメモリの実現が期待されている。

このような研究ではスピン偏極電流が流れる物質、つまり金属・半導体磁性体に研究が集中し、様々な現象や材料が開発された。磁性絶縁体は電流は流さないため、直接スピン偏極電流を流すことはできないが、間接的にスピン流に関わることがわかってきた。例えば磁性絶縁体をトンネル障壁に用いれば、スピン選択的なトンネル現象が生じて高スピン偏極電流を生成することができる(スピンフィルター素子 APL 88 (2006)など)。また最近では東北大の斉藤らにより、磁性絶縁体中のスピン波によってスピンシグナルを伝搬する現象が発見された(Nature 464 (2010))。

そのような中、2010 年に Slonczewski によりさらなる省電力化の手法が提案された(Phys.Rev.B 82 (2010))。それは磁性絶縁体中に励起されるスピン波を利用してスピン注入磁化反転を行うというアイデアである。スピン波によりスピン流が生成されることはすでに知られており、スピンポンピングと呼ばれていた。Slonczewski はこの現象をスピン注入磁化反転型 TMR 素子に組み込むことにより、高効率なスピン注入ができることを示した。彼の計算によれば 1V 程度の電圧でスピン注入を行う場合、スピン偏極電流で行うよりも数十倍も効率よくスピンを注入できると予想された。そのような技術が実現されれば、現在の磁気抵抗型メモリの消費電力を大きく削減することが可能となり、モバイル機器等の高性能化に大きく貢献することが可能となる。さらに、スピン流生成部と TMR 部を分離した三端子素子の様な新規なスピントロニクスデバイスの開発も期待さ

れる。

研究代表者は、強磁性絶縁体を用いたスピントロニクス素子であるスピンフィルターの研究を行っており、その特性をよく理解している。本分野でのこのような研究の発展の中で、磁性絶縁体を用いた新デバイスの研究を発案するに至った。

2. 研究の目的

本研究の目的は、強磁性絶縁体とスピン流現象の関連を明らかにし、デバイス応用への可能性を探ることである。とくに強磁性絶縁体特有の現象を利用して、スピン流の生成効率を飛躍的に増大させることを目指す。

強磁性絶縁体中に熱流を発生させればスピン波(マグノン)を励起することができるが、マグノンは金属との界面において、s-d 相互作用を介して金属中にスピン流を生成する。この時例えば 1V のバイアス電圧がかかっていればスピン生成効率は通常の金属製スピン注入と比較して数十倍にもなることが理論的に示された。単純に考えれば 1eV の電子によって生成されるマグノンの数だけ増強されるということである。このことは通常の TMR 素子で観測されるマグノンの励起エネルギーが約 50 meV であることから説得力を持つ(JJAP38 (1999))。また熱だけでなく電圧を印加された電子のエネルギーをマグノンに変換することによっても同様の現象が引き起こされると考えられる。既存のスピン注入の数十倍という高効率のスピン流生成がなされるため、非常に省電力な不揮発メモリ素子の実現に貢献する。

しかし、一方でこのような現象を実現するためには MgO-TMR 素子と強磁性絶縁層を組み合わせた構造の素子を作製しなければならない。それぞれについて高度な作製技術が必要であるため、両者を併せ持つ多層膜の作製の報告はこれまででなされていない。そこで、我々はまず高品質な MgO-TMR 素子+エピタキシャル磁性酸化物という構造の多層膜を作製することを試みる。

このような研究は学術的にも大きな意味を持つ。既存のスピントロニクス研究はスピン偏極電流が流れる物質=金属・半導体に関する研究が主であった。磁性絶縁体はスピントロニクスの中でどのような役割を果たすことが出来るのか、新しい機能の発現が期待できるのか、さらにはそのような能力を特徴づける物性はどのようなものか明らかではなかった。本研究により、磁性絶縁体とスピン流の関連現象についての新規な知見が得られると期待される。

3. 研究の方法

材料選定に関してであるが、強磁性転移点であるキュリー点が室温よりも十分に高いこと、MgO-TMR 素子との結晶格子のマッチングがよくエピタキシャル成長可能であること、構造がある程度単純で製膜に困難を生じな

いことなどがあげられる。本研究においてはスピネル型酸化物である CoFe_2O_4 , Fe_3O_4 を用いることとした。これらはキュリー点は 800K 程度と十分に高温である。また、格子定数は 0.84nm 程度であり、 MgO の格子定数 0.42nm のちょうど 2 倍でエピタキシャル成長にも適している。また、これらは酸化物磁性体を用いたスピンフィルターに用いられるなどの報告もある。製膜法としては反応性分子線エピタキシー法を用いた。スパッタ法では酸素イオンなどの荷電粒子の影響により特性が影響されると言われている。また、PLD 法ではドロップレットが生成し、トンネル素子作製にはあまり適さない。MBE 法はエネルギー的には穏やかな方法であり、高品質の膜が得られると言われており、また、素子加工にも適した平坦な膜を得ることが可能である。酸化源としては、酸素ガスあるいは酸素ラジカルを用いた。最終的な膜の構造は

- (1) $\text{MgO}(100)/\text{Fe}50\text{nm}/\text{MgO}2\text{nm}/\text{CoFe}5\text{nm}/\text{NM}(\text{Au,Cr,Pt})3\text{nm}/\text{CoFe}_2\text{O}_45\text{nm}/\text{Cr}/\text{Au}$
- (2) $\text{MgO}(100)/\text{TiN}50\text{nm}/\text{Fe}_3\text{O}_450\text{nm}/\text{Cr}5\text{nm}/\text{Fe}3\text{nm}/\text{MgO}2\text{nm}/\text{Fe}50\text{nm}/\text{Au}$

である。まずは高品質な膜を得るために RHEED および AFM を用いてエピタキシャル成長と表面形状の評価を行った。その結果をフィードバックし、製膜条件の最適化を行った。

磁性層/非磁性層/磁性層のような構造の場合は磁性層間に磁気的な結合が生じて多層膜の磁化過程に大きな影響を与える場合がある。金属系の層間交換相互作用が典型的な例といえよう。このような現象があると、磁化過程に影響を与え、スピン流による制御性にも影響することが予想される。そこで、スピネル磁性層の場合に非磁性層と磁化過程に層間があるかどうか調べた。非磁性層を Wedge 層とし、磁気光学効果により非磁性層厚と磁化過程の層間を観測した。

スピン注入磁化反転の研究のためにはサブミクロンオーダーの微小トンネル接合素子が不可欠である。しかし、本研究のような磁性酸化物層を含んだトンネル接合素子の作製例はまだ無い。そこで、電子線リソグラフィを用いた微細素子加工プロセスの確立を行った。素子サイズは $100 \times 200\text{nm}$ 程度のものを目標とした。素子内が単磁区となると思われる大きさである。作製した素子について電気伝導特性および、磁気抵抗特性の評価を行った。

Slonczewski の理論を検証するためには磁性絶縁体に熱をいれて磁気伝導特性評価を行わなければならない。そこで、素子上に Pt 細線によるヒーター線を付加し、抵抗加熱により熱を加えつつ、磁気特性および磁気抵抗特性を評価することとした。

4. 研究成果

(1) 上記の膜構造を実現するためにスピネル酸化物のエピタキシャル成長が必要である。

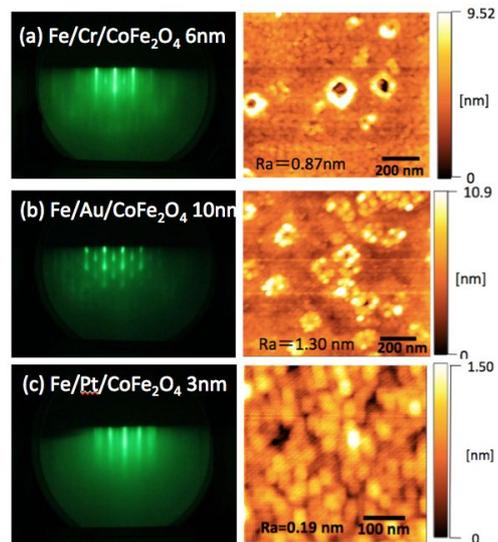


Fig.1 種々の挿入層上の CoFe_2O_4 膜の RHEED と AFM 像 (a) $\text{MgO}(100)/\text{Fe}/\text{Cr}/\text{CoFe}_2\text{O}_4$, (b) $\text{MgO}(100)/\text{Fe}/\text{Au}/\text{CoFe}_2\text{O}_4$, (c) $\text{MgO}(100)/\text{Fe}/\text{Pt}/\text{CoFe}_2\text{O}_4$.

そのためには $\text{CoFe}5\text{nm}/\text{NM}(\text{Au,Cr,Pt})3\text{nm}/\text{CoFe}_2\text{O}_45\text{nm}$ のように非磁性金属膜 (NM 膜) 上にエピタキシャル成長しなければならない。NM 膜は MgO -TMR 素子の磁性金属電極と CoFe_2O_4 間の磁気的な結合を切るはたらきがあるとともに、 CoFe_2O_4 内で生成されたスピン流を伝搬する層でもある。スピネル層が様々な非磁性層上にどのように成長するかは報告が少ないため、今回は Cr, Au, Pt の 3 種類の非磁性層上に CoFe_2O_4 薄膜を作製し、その成長を評価した。

図 1 は各非磁性層上に成長した CoFe_2O_4 層の RHEED と AFM 観察結果である。なお、成長条件は最適化してある。どの膜もエピタキシャル成長しているが、RHEED の結果から Cr と Pt 上は平坦性の良い膜が得られていることがわかる。さらに AFM の観察から Au と Cr 上ではやや大きめの凹凸が局所的に存在していることがわかり、素子作製に適しているのは Pt を用いた場合であることがわかった。しかし、Pt はスピン軌道相互作用の大きい元素であり、スピン寿命が大変短いことを考慮する必要がある。このような様々な材料の上にスピネル膜を成長、その表面形状を評価した報告はこれまでなく、スピネル酸化物膜成長の指針となる新しい知見を得ることができた。

(2) MgO 基板/ CoFe_2O_4 / Cr/Fe について Cr 層厚を変化させて Fe 層の磁化過程を調べた。 $\text{MgO}(100)$ 基板上に作製した場合は磁化過程は何も変化はなく、磁気的な結合はないことが確認された。一方で (110) 基板に成長した場合は明らかな保磁力の増大が観測された。また、Cr 厚が厚くなるにつれて保磁力は減少した。

ただし金属系の層間交換相互作用のような振動現象は観測されず、Cr 膜厚に対して単調減少を見た。そこで、格子定数の違いからくる歪の影響について調べるため、RHEED から面内格子定数の変化について調べた。飽和磁場と格子定数の変化について図2に示す。直接的な相関は見られないが、どちらも単調な変化を示した。また(111)についても同様の傾向が見られた。このようなスピネル磁性体の多層構造による磁気特性の変化が観測されたのは本研究が初めてである。また、素子内で活用する際に保磁力の制御法として積極的に活用することが出来ることわかった。

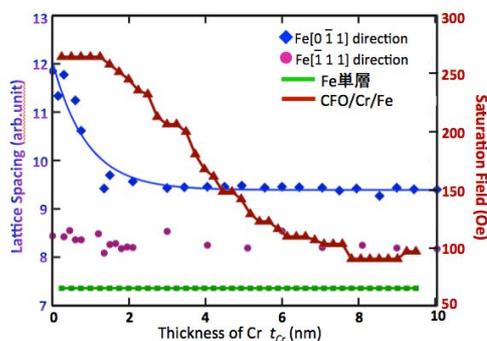


図 2 MgO(110)/Cr(Wedge)/Fe の飽和磁場および面内格子定数の Cr 層厚依存性。

(3)電子線リソグラフィーを利用し、スピネル層を含んだ微小素子作製をこころみた。作製したのは「研究の方法」でのべた2つの構造である。(1)はMgO-MTJの上部にスピネル層を付加した構造である。一方(2)はMTJの下部にスピネル層を付加した構造である。(2)の構造では磁気結合切断層にCrを用いることが可能であり、スピン軌道相互作用が大きいPtを用いるよりもスピン寿命の点で有利と考えた。加工には電子線リソグラフィー、Arイオンミリング、スパッタを用いた。プロセスの最適化を行った結果、素子サイズ100x200nmの素子の作製に成功した。磁気抵抗特性の測定では(1)の素子に関しては室温で70%のトンネル磁気抵抗効果を、(2)の素子に関しては50%程度の効果を観測した。なお、通常のMgO-TMR素子では120%のMRを観測した。また2つの素子でMR曲線の形状に大きな違いが観察された。(1)については非常に角型の良い通常のMTJで観察されるMR曲線が得られた。しかし、(2)のFe₃O₄が下部に付加された素子に関しては、MR曲線が複雑な形状を示している。あたかもMRがFe電極だけではなくFe₃O₄膜の磁化過程をも反映しているかのようである。詳細は今後良く調べる必要がある。

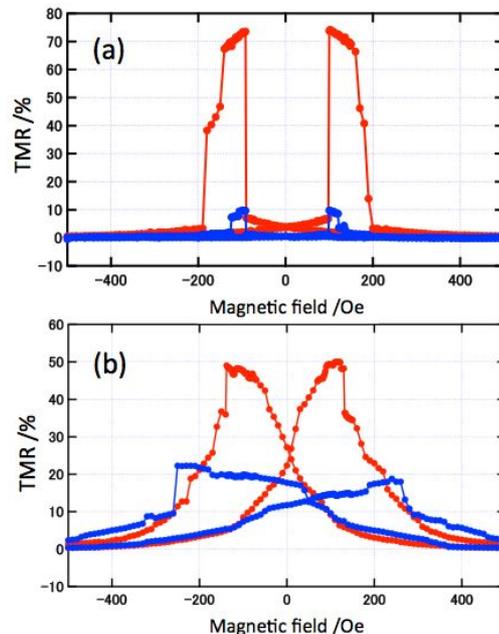


図3 作製した2つの微小TMR素子の磁気抵抗曲線。測定温度は室温
(a)MgO(100)/Fe50nm/MgO2nm/CoFe5nm/NM(Au,Cr,Pt)3nm/CoFe2O45nm/Cr/Au
(b)MgO(100)/TiN50nm/Fe3O450nm/Cr5nm/Fe3nm/MgO2nm/Fe50nm/Au

以上のように、スピネル磁性酸化層を含んだMgO-TMR素子を作製し、多くの新しい知見を得ることができた。これらは今後磁性酸化層を含んだスピントロニクス素子を作製する際の重要な指針を示すものである。

本研究は追加採用ということで研究機関がやや短かったこともあり、Slonczewskiの理論の検証にはまだ至っていない。現在Ptヒーター線を付加した素子の作製にかかっており、今年度以降もさらにスピネル磁性体とスピン流に関連について研究を重ねる。なお、本研究の成果は現在論文にまとめており、今年度中に投稿予定である。

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 0 件)

〔学会発表〕(計 11 件)

Taro Nagahama “Progress of Magnetic Tunnel Junctions Connection between Charge and Spin” (invited) The 14th RIES-Hokudai International Symposium 2013.12.12 CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom Sapporo, Japan

T. Nagahama, K. Tate, Y. Matsuda, N. Takahashi, T. Shimada “Magnetic properties of epitaxial Fe₃O₄ with various crystal orientations” MMM2013 2013年11

月 8 日, Denver, Colorado, USA

川井智博, 平谷俊悟, 長浜太郎, 島田敏宏
「CoFe₂O₄/Cr/Fe 系の磁化過程のCr膜厚依存性」第 37 回 日本磁気学会学術講演会 2013 年 9 月 3 日-6 日 北海道大学 札幌市

高橋 望, 平谷俊悟, 長浜太郎, 島田敏宏
「MgO-MTJ/Pt/CoFe₂O₄ の作製と磁気伝導特性」第 37 回 日本磁気学会学術講演会 2013 年 9 月 3 日-6 日 北海道大学 札幌市

楯 和也, 松田悠弥, 長浜太郎, 島田敏宏
「CoCr₂O₄ スピネルを用いたトンネル磁気抵抗素子の作製」第 37 回 日本磁気学会学術講演会 2013 年 9 月 3 日-6 日 北海道大学 札幌市

Taro Nagahama, Yuya Matsuda, Kazuya Tate, Toshihiro Shimada” The Fabrication of Magnetic Tunnel Junctions Including Spinel Ferrite Layers by Molecular Beam Epitaxy” 11th International Conference on Ferrites, 2013.4.15-18, Okinawa Convention Center, Ginowan, Okinawa Prefecture, Japan

川井智博, 平谷俊悟, 長浜太郎, 島田敏宏
「The interlayer exchange coupling in CoFe₂O₄/Cr/Fe systems」第 60 回応用物理学会春季学術講演会 2013 年 3 月 27 日神奈川工科大学 厚木市(神奈川県)

松田悠弥, 楯 和也, 高橋 望, 長浜太郎, 島田敏宏
「Fabrication of Fe₃O₄/Al₂O₃/Fe and Fe₃O₄/CoCr₂O₄/Fe tunnel junctions」第 60 回応用物理学会春季学術講演会 2013 年 3 月 27 日神奈川工科大学 厚木市(神奈川県)

T. Nagahama, Y. Matsuda, K. Tate, S. Hiratani, Y. Watanabe, T. Shimada” Fabrication of epitaxial films of magnetic spinel materials by molecular beam epitaxy method” (invited) ICAUMS2012 2012.10.3-5 Nara Prefectural New Public Hall, Nara

Y. Matsuda, K. Tate, S. Hiratani, Y. Watanabe, T. Nagahama, T. Shimada
“Magnetic property and magnetoconductance of high-quality Fe₃O₄ epitaxial film” ICAUMS2012 2012.10.3-5 Nara Prefectural New Public Hall, Nara

K. Tate, T. Nagahama, T. Shimada
“Magnetic properties of epitaxial spinel CoCr₂O₄ films grown by molecular beam epitaxy(MBE)” ICAUMS2012 2012.10.3-5 Nara Prefectural New Public Hall, Nara
〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

長浜 太郎 (NAGAHAMA, Taro)

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号 : 20357651

(2)研究分担者

()

研究者番号 :

(3)連携研究者

()

研究者番号 :