科学研究費助成事業(科学研究費補助金)研究成果報告書

平成 24年 5月10日現在

機関番号:11301	
研究種目:基盤研究(A)	
研究期間:2009~2011	
課題番号:21246049	
研究課題名(和文) コヒーレント位相スピントランスファーマイクロ波発振磁性体の開発	
研究課題名(英文) Development of large STT microwave oscillation magnet with coherent phase- locking	t
研究代表者	
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	

研究成果の概要(和文):

1~2nm ϕ の強磁性金属ナノ接点を複数個含む独自考案の NOL(Nano-Oxide Layer)を用い、 安定した強磁性ナノ接点部をもつスピンバルブ薄膜素子を作製、その接点領域に閉じ込められ たナノ狭窄磁壁による磁気抵抗を利用した新規なマイクロ波発振磁性体の開発に取り組み、ナ ノ接点磁壁型磁気抵抗素子におけるスピントルク発振は、ナノ接点に狭窄された磁壁駆動であ ることを理論と実験より明らかにした。スピン偏極層と発振層の磁化配置が反平行に近い磁化 配置における高周波発振(強磁性共鳴周波数)において、0.13%のダイナミック磁気抵抗と磁気 抵抗換算発振出力 0.2µW(Q=600)を得ることに成功した。また、発振層が磁気渦構造となる磁 化配置において、世界で最も高いダイナミック磁気抵抗(2.5%)と磁気抵抗換算にして世界最 高の発振出力 1µW(Q=200)を得ることにも成功した。これらの発振は、Auto-Oscillation モデ ルにより説明することが可能であり、閾値電流を下げ、投入電流を増やすことで更なる高出力化 と高 Q 化を図ることが出来ることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文):

We have succeeded in obtaining good oscillation power in terms of magnetoresistance ratio with the confined domain wall type magnetoresistive devices, where $\sim 1\mu W(Q=200)$ and $0.2\mu W(Q=600)$ were confirmed in vortex structure and near anti-parallel state, respectively. These high level oscillations could be explained by Auto-Oscillation model, which means that larger power oscillation with higher Q-value is realized by decreasing threshold current to auto-oscillation mode. In addition, the high sensitivity of 1.5V/W in STT-FMR measurement was obtained in the confined domain wall MR devices. So, good transmitter/receiver performance of the miniaturized confined domain wall MR devices was verified in this study, leading to realization of wireless chip to chip communication (wireless 3D packaging).

交(寸汐	や定額	Į
~ • •		· · · · · ·	•

			(金額単位:円)
	直接経費	間接経費	合 計
2009年度	9, 000, 000	2, 700, 000	11, 700, 000
2010年度	21, 200, 000	6, 360, 000	27, 560, 000
2011 年度	3, 500, 000	1, 050, 000	4, 550, 000
総計	33, 700, 000	10, 110, 000	43, 810, 000

研究分野:工学

科研費の分科・細目:電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード:電気・電子材料(半導体、誘電体、磁性体、超誘電体、有機物、絶縁体、超伝導 体など)、マイクロ波発振磁性体

1. 研究開始当初の背景

近年、100nm以下に微細加工された微小な 金属強磁性体薄膜素子(GMR/TMR 素子)にお いて、スピン偏極電流による磁化の反転現象 やスピン偏極電流によって誘起されるスピ ンダイナミクス(伝導電子スピンから局在モ ーメントへの Momentum のトランスファー) に起因したマイクロ波(GHz 帯)の発振が、米 国コーネル大学や NIST、Freescale より報告 され、新たなスピンデバイスシステムの開発 とその応用への期待が高まっている。しか しながら、スピン偏極電流駆動磁化反転につ いては、現在 MRAM(スピン RAM)への応用 研究が盛んに行われている一方、スピントラ ンスファートルクマイクロ波発振について は、その出力レベルが 10nWA⁻² (1mA の投入 電流で 0.1pW のマイクロ波出力)程度と実用 検討に入るには、あまりにも出力レベルが小 さく、いまだ応用研究には至っていなかった (S. Kaka et al, Nature, 437, 15 September 2005, 389-392. F. B. Mancoff et al, Nature, 437, 15 September 2005, 393-395)。したが って、本研究課題では、複数の強磁性ナノ接 点(導電チャネル:狭窄部)を含む極薄の絶縁体 層である NOL を用いたナノ狭窄磁壁型磁気 抵抗素子におけるナノ接点に狭窄された磁 壁に起因するマイクロ波発振ならびに、マル チチャネル間の位相同期に関する研究を行 い、高出力化への物理的指針を得ることを目 標とした。このようなナノ狭窄磁壁系では、 スピン波モードの Phase Locking やマイク ロ波電流そのものの電気的結合よるチャネ ル間の位相同期が期待され(S. M. Rezende et al, PRL (2007). B. Georges, A. Fert et al, APL (2008))、少なくとも NOL 中の導電チャ ネル数(強磁性ナノ接点数)倍に出力が増大す ることが期待された。また、この金属強磁性 体薄膜素子を用いたマイクロ波の発振は、微 小な磁性体抵抗(R)素子(<1µm 角)(本課題で はナノ狭窄磁壁型 MR 素子)の R がスピン偏 極電流からのスピントランスファートルク によりダイナミックな抵抗変化を生じ、電圧 がマイクロ波周波数で発振する、所謂自励発 振素子であるため、これまでの LCR 発振のよ うにLとCを組み合わせる必要がなく、マイ クロ波発振デバイスのフットプリント(専有 面積)をこれまでの壁(1mm 角)を突破し、ま さにナノサイズにまで小型化することが可 能となる。このことは、小型で低消費電力の 発振・検波素子を提供することが可能となる ものであり、伝送回路(アンテナ)との組み合 わせにより、小型で低消費電力の近距離無線 通信や LSI のインターコネクタ(無線配線)お よび生体情報通信や生体医療などのこれか らの発展が期待される無線分野に大きなイ ンパクトを与えるものであると考えた。

2. 研究の目的

本研究課題では、極薄(~1nm)の酸化物層中 に、1~2nm ϕ の強磁性ナノ接点(導電チャネ ル(金属伝導))を複数個形成した独自考案の NOL(Nano-Oxide Layer)を用い、安定した強 磁性ナノ接点部をもつスピンバルブ薄膜素 子を作製、その接点領域に閉じ込められるナ ノ狭窄磁壁による磁気抵抗を用いた新規な スピントランスファートルクマイクロ波発 振磁性体の開発を行い、実用化検討を可能に するための高出力化についての物理的指針 (特に磁気抵抗比と位相同期)を得ることを目 的とし、研究を行った。

3. 研究の方法

(1)ナノ接点の定量評価

マイクロ波発振特性を決める重要な物理 量の1 つである磁気抵抗比の向上指針を得 るべく、Conductive AFM などを用いたナノ 接点の超高真空その場観察法を確立し、ナノ 接点の比抵抗(電気伝導率)を定量的に 評価した。具体的には、ナノ狭窄磁壁型磁気 抵抗 (NCMR: Nano Contact Magnetoresistance)素子のスペーサ層にあたる NOL (Nano-Oxide Layer)表面を 0.1nm(1Å)程の 極薄の Au で E/B 蒸着法用いて被膜し、同じ

超高真空チャンバー内で 100°Cのその場熱処 理を施すことによりホール型のナノ接点に Au を埋め込み、探針とナノ接点間の接触抵 抗を極限的に下げることで、ナノ接点電流と トンネルノイズ電流を分離した。測定した サンプルは、面積抵抗(RA)が 1.5 Ω µm²のサン プルで、Au 被膜を行うことにより計測可能 な電流値の上限である 333nA のナノ接点電 流を計測することが出来た。また、電流像か ら求めたナノ接点占有率と平均直径および ナノ接点数と面積抵抗を用い、ナノ接点を構 成する Feo.5Coo.5 のフェルミ波長から単一ナ ノ接点の抵抗値(平均値)ならびに比抵抗を算 出した。

(2)ナノ接点純度とスピン分極率および磁気 抵抗比の向上

人為的に酸素を侵入させた $Fe_{0.5}Co_{0.5}(O)$ 膜 を作製することで、酸素の侵入による比抵抗 の変化、ならびに NCMR 変化率に大きく寄与 するバルク散乱スピン非対称係数(スピン分 極率)8 との関係を明らかにした。作製した $Fe_{0.5}Co_{0.5}(O)$ 膜は、膜厚 1nm または 2nm の $Fe_{0.5}Co_{0.5}$ 薄膜に対し、0.05kL という低酸化 強度の自然酸化を行った層を、何層にも積層 する方法で酸素を含んだ $Fe_{0.5}Co_{0.5}$ 薄膜を作 製した。 $Fe_{0.5}Co_{0.5}$ の膜厚を変えることで、酸 素の含有量を調整した。このように作製した Fe0.5Coo.5(O)膜に対し、CIP 配置の抵抗の膜 厚依存性から比抵抗 ρ を、Feo.5Coo.5(O)膜を CPPGMR-SV のフリー層に用いた Valet-Fert モデルによるフィッティングから バルク散乱スピン非対称係数 β を求めた。

(3)マイクロ波発振素子の試作研究

マイクロ波発振素子を試作し、その発振特 性の磁界印加角度依存性を調べることによ り、発振層磁化とスピン偏極層磁化の相対角 度と発振出力との関係を明らかにし、ナノ狭 窄磁壁型磁気抵抗素子における発振層のス ピントランスファートルク自励発振は、ナノ 接点に狭窄された磁壁駆動であることを理 論と実験より明らかにした。また、発振層の 膜厚を厚くし、ナノ接点構造における磁化の マイナーループ上で安定した磁気渦 (Vortex)を発振層に形成し、発振層の磁気構 造が磁気渦(Vortex)構造となる磁化配置にお ける発振特性とその解析も併せて行い、高発 振出力化への物理的指針を得た。

(4)フェーズロック機構の研究

素子の発振周波数相当の外部マイクロ波 電流を素子に注入する方法で、素子の電気結 合フェーズロック特性を評価するなど、複数 の素子間および接点間のフェーズロック機 構の理論および実験的解明を行い、素子間の 電気的フェーズロックを起こさせるための 素子出力および接点間の磁気的フェーズロ ックを起こさせるためのスピン波モードを 明らかにした。

4. 研究成果

(1)Conductive AFM などを用いたナノ接点 の超高真空その場観察法を確立し、ナノ接点 径、ナノ接点密度を求めることにより、ナノ 接点の比抵抗(電気伝導率)を定量的に評価 することに成功した。表面を 0.1nm(1Å)程 の極薄のAuで E/B 蒸着法用いて被膜し、同 じ超高真空チャンバー内で 100℃のその場熱 処理を施すことによりホール型のナノ接点 に Au を埋め込み、探針とナノ接点間の接触 抵抗を極限的に下げることで、ナノ接点電流 とトンネルノイズ電流を分離することに成 功、その電流像の閾値電流に対するナノ接点 数をプロットすることにより、閾値電流に 対してナノ接点数が変化しないプラトーな 領域を見出すことができ、ナノ接点電流とト ンネルノイズ電流を分離することに成功し た(図 1)。ナノ接点電流が計測されたナノ接 点の個数は 200nm 角に 18 個と見積もられ、 Au 被膜を行っていない電流像から求めた占 有率(0.20%)とナノ接点 18 個の平均直径 (1.4nm)、およびナノ接点数と RA を用い、ナ ノ接点を構成する Feo.5Coo.5 のフェルミ波長 から単一ナノ接点の抵抗値(平均値)ならびに

比抵抗を算出した。ナノ接点の直径が平均 で 1.4nm と電子伝導の平均自由行程以下に なっていることから、ナノ接点での電子伝導 は、拡散伝導(drude 抵抗)とバリスティック 抵抗(sharvin 抵抗)の両方を考慮する必要が あると考え、本研究では、ナノ接点の抵抗は その和であると仮定した[M.J. M. de Jong. Phys. Rev. B 49 7778 (1994)]。この方法で算 出された抵抗値は 660Ω、drude 抵抗成分の 比抵抗 ρ は約 60 μ Ωcm と求めることができ、 この比抵抗値は CIP 配置の抵抗の膜厚依存 性で求めた Fe0.5Co0.5 単層膜の比抵抗値 16.3µΩcm と比較しても約 3.7 倍と大きな値 となっていることが判った。この高比抵抗 ナノ接点は、Al₂O3酸化物面内に 1nm 程度の Fe0.5Co0.5 ナノ接点が共存していることを考 えると、Fe0.5Co0.5内部への酸素の侵入が予想 される。RA が $1.5\Omega\mu m^2$ の NCMR-SV でも、 1nm 程度のナノ接点の作製に成功している にも関わらず MR 変化率が 5%と低い値が得 られていることは、ナノ接点への酸素の侵入 が、スピンに依存しない散乱を引き起こし、 磁気抵抗比を低下させていることが推察さ れた。

(2)ナノ接点純度とスピン分極率および磁気 抵抗比の向上

人為的に酸素を侵入させた Feo.5Coo.5(O)膜を 作製することで、酸素の侵入による比抵抗の 増加、ならびに NCMR 変化率に大きく 寄与す るバルク散乱スピン非対称性係数(スピン分 極率)6の低下を明らかにした。作製した Fe0.5Co0.5(O)膜は、膜厚 1nm または 2nm の Fe0.5Co0.5 薄膜に対し、0.05kL という低酸化 強度の自然酸化を行った層を、何層にも積層 する方法で酸素を含んだ Fe0.5Co0.5 薄膜を作 製した。Fe0.5Co0.5の膜厚を変えることで、酸 素の含有量を調整した。このように作製した Fe0.5Co0.5(O) 膜に対し、CIP 配置の抵抗の膜 厚依存性から比抵抗 ρ を、Fe0.5Co0.5(O)膜を CPPGMR-SV のフリー層に用いた Valet-Fert モデルによるフィッティングから バルク散乱スピン非対称係数Bを求めた。そ れぞれ得られた比抵抗 ρ と β は、 [Fe0.5Co0.52nm/自然酸化]n では 37µΩcm と 0.75、[Fe0.5Co0.51nm/自然酸化]n では 76.7µΩcm と 0.35 と求めることができた。一 方、純 Fe0.5Co0.5の比抵抗 ρ と β は 16.3uΩcm と 0.82 であるから、酸素を侵入させることに よって比抵抗は増大し、逆に B は低下するこ とが実験的に明らかになった。 $\rho \ge \beta$ の関係 をプロットすると二次関数でフィッティン グすることができ、ナノ接点のρとβの関係 を実験的に求めることができた。

この ρ と β の関係から、上述した RA1.5 Ω µm²、MR 変化率 5%のナノ接点の比 抵抗 60µ Ω cm での β を見積もると 0.4~0.5 と

なり、産業技術総合研究所の今村グループに よる β と NCMR の理論計算と比較すると、 ほぼ同じ値となっていることが判った。以上 のことから、Fe0.5Co0.5内に酸素不純物が侵入 し、置換するとナノ接点の比抵抗が著しく増 大し、それに伴ってナノ接点のバルク散乱ス ピン非対称性係数が大幅に低下することが 判った。しかしながらこの結果は、高磁気抵 抗比化への重要な指針を示しており、何らか の還元効果を用いて酸素の侵入量を低下さ せ、比抵抗を純Fe0.5Coo.5に近づけることがで きれば、0.82 という高いバルク散乱スピン非 対称性係数から 100%を超える NCMR 変化 率が得られることが期待される(図 2)。事実 還元効果のある残存 Al や Si と高温熱処理を 組み合わせることで、RA0.5Qum²において、 ~40%の磁気抵抗比を得ることに成功してい





図 2 ナノ接点への酸素の侵入(クラスタ形成)と接点比 抵抗および接点のバルク散乱非対称係数(6)の関係、 ならびに高 NCMR 比への実験的指針

(3)最も重要なマイクロ波発振素子に関する

試作研究の成果をまとめると a)反平行に近い磁化配置における高周波発振、b)磁気渦構造磁化配置における高出力発振、c)Auto-Oscillation モデルによる発振特性の解析と発振出力設計の3点となる。

①反平行に近い磁化配置における高周波発 振

ナノ接点磁壁磁気抵抗素子における発振 層のスピントランスファートルク自励発振 は、ナノ接点に狭窄された磁壁駆動であるこ とを理論と実験より明らかにした。産業技術 総合研究所の今村グループが提唱するナノ 接点に狭窄された磁壁振動駆動のマイクロ 波発振においては、スピン偏極層と発振層の 磁化配置が反平行に近い配置状態で磁壁振 動駆動の高い周波数(50~100GHz)をもつマ イクロ波の自励発振が励起することが、理論 シミュレーションの結果より明らかにされ た。そしてより詳細なシミュレーションの 結果、スピン偏極層と発振層の磁化の相対角 が125度から160度の間にあるときのみ磁壁 振動駆動のマイクロ波発振が励起されるこ とが示された。そこで、印加する磁場の方向 をスピン編極層の磁化の方向に対して角度 を持たせる実験を行い、理論の検証を行った。 その結果、相対角が140度近傍でのみ強い発 振が励起されることが、周波数帯は10GHz程 度の強磁性共鳴周波数と理論とは異なるも のの実験的にもナノ接点磁壁磁気抵抗素子 の自励発振は、磁壁振動駆動であることが検 証され(図3)、高出力発振および高周波発振へ の設計指針を得た。また、この設計指針に基 づき設計した素子において、0.13%のダイナ ミック磁気抵抗を得るともに、磁気抵抗換算 発振出力 0.2µW(∠R/R=0.05 で 0.001µW) と 600 の Q 値を得ることに成功した(図 4)。 併せて、Mixer のような特別のデバイスを用 いる必要がなくなるマイクロ波自励発振素 子自体による周波数変調効果も明らかにす るなど応用展開上重要な成果を導きだした。







図 4 磁気抵抗換算発振出力 0.2µW(∠R/R=0.05 で 0.001µW)と 600 の Q 値を得ることに成功

②磁気渦構造磁化配置における高出力発振

発振層の磁気構造が磁気渦構造となる磁 化配置において、世界で最も高いダイナミッ ク磁気抵抗(2.5%)を得(図 5)、磁気抵抗換算 にして世界最高の発振出力 1 μ W(\triangle R/R=0.2 で 0.2 μ W)と 200 のQ値を得ることに成功し た(図 6)。この結果は、発振層の膜厚を厚く し、ナノ接点構造における磁化のマイナール ープ上で安定した磁気渦を発振層に形成す ることにより得られる。その結果として磁 気抵抗換算にして世界最高の発振出力 1 μ W(\triangle R/R=0.2 で 0.2 μ W)を得ることが出 来たものである。



図 5 発振時における MR 変化率の見積もり



図 6 磁気抵抗換算にして世界最高の発振出力: 1µW(∠R/R=0.2 で 0.2µW)

③Auto-Oscillation モデルによる発振特性の 解析と発振出力設計

磁気渦構造磁化配置における高出力発振 について、Slavin の Auto-Oscillation モデル による発振特性の解析を行った。発振出力 の逆数のバイアス電流依存性より、算出した 閾値電流(Ith)の前後で発振モードが熱励起か らスピントルク励起へと移行、移行後の高出 力自励発振は、Slavin の Auto-Oscillation モ デルで説明可能なことが判った。フィティン グより求めた発振有効体積が発振層(フリー 層)体積の 92%となることからも、フィティン グの妥当性は裏付けられている。この解析 結果より、閾値電流と発振エネルギーの関係 が求められ、更なる高出力発振と狭線幅(高 Q)の設計指針を得、閾値電流 La を下げて、投 入電流 Ide を増加させることで、10 倍以上の 出力増大(図 7)と 1/20 の狭線幅(300kHz、

Q~3000)(図 8)が見込めることが明らかとなり、発振出力設計を確立することが出来た。



図7 閾値電流 Itaを下げて、投入電流 Itaを増加させるこ とで、10 倍以上の出力増大



図 8 1/20 の狭線幅(300kHz、Q~3000)が見込まれる

- 5. 主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計16件)
- 原著論文(査読有);16件
- T. Kaneko, S. M. Noh, <u>K. Miyake, M.</u> <u>Sahashi</u>, and H. Imamura, "Spin wave modes in magnetic nanodisks under in-plane magnetic field", Mesoscale and Nanoscale Physics, arXiv:1202.6464v1(2012)
- <u>K. Miyake</u>, S.M. Noh, T. Kaneko, H. Imamura, and <u>M. Sahashi</u>, "Study on High Frequency 3D Magnetization Precession Modes of Circular Magnetic Nano-Dots using CPW VNA FMR(invited)", IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, (掲 載決定)
- <u>K. Miyake</u>, Y. Saki, A. Suzuki, S. Kawasaki, <u>M. Doi</u>, and <u>M. Sahashi</u>, "Modification of Magnetic Nanocontact Structure by a Bias-Voltage-Induced Stress and its Influence on Magnetoresistance Effect in TaOx Nano-Oxide Layer Spin Valv", Japanese Journal of applied physics, (掲載 決定)

- Naoki Shimomura, Kazuya Sawada, Tomohiro Nozaki, <u>Masaaki Doi</u>, and <u>Masashi Sahash</u>i, "Demonstration of magnetoelectric effect in ultrathin Cr2O3/Fe2O3 nano-oxide layer by training effect", Appl. Phys. Lett., (掲載決定)
- Y. Okuotmi, <u>K. Miyake, M. Doi</u>, H. N. Fuke, H. Iwasaki, and <u>M.</u> <u>Sahashi</u>, , "Spintransfer torque driven ferromagnetic resonance in nano-contact magnetoresistive devices and its characteristics", Journal of Applied Physics, 109, 07C727 (2011)
- S. Noh, D. Monma, <u>K. Miyake</u>, <u>M. Doi</u>, and <u>M. Sahashi</u>, "Damping Constant Influence on Spin Dynamics in Field Generating Layer of STO for MAMR Writing Head", Journal of Physics: Conference Series, 266, 012061 (2011)
- S. Noh, D. Monma, <u>K. Miyake, M. Doi</u>, T. Kaneko, H. Imamura, and <u>M. Sahashi</u>, "Spin Dynamics in Ferromagnetic Resonance for Nano-Sized Magnetic Dot Arrays: Metrology and Insight Into Magnetization Dynamics", IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 47, 2387 (2011)
- Y. Shiokawa, M. Shiota, Y. Watanabe, T. Otsuka, <u>M. Doi</u>, and <u>M. Sahashi</u>, "Oxidation and Annealing Process: Morphological Change and Nanocontact MR in Spin Valves With FeCo–AlOx NOL Spacer", IEEETRANSACTIONS ON MAGNETICS, 47, 3470 (2011)

〔学会発表〕(計84件)

 Y. Kozono, Y. Okutomi, <u>K. Miyake</u>, S. Hashimoto, H. Iwasaki, and <u>M.</u> <u>Sahashi</u>, "NCMR based spin-torque microwave generator and detector with high signal purity", The 19th International Conference on Magnetism, Busan, Korea, 2012年7月 10日(査読あり) (他 83 件)

〔図書〕(計1件)
<u>佐橋政司・土井正晶・三宅耕作</u>
「スピントロニクスの基礎と材料・応用技術の最前線」シーエムシー出版
監修:高梨弘毅 2009年6月30日発行 229-247
ページ

〔産業財産権〕 ○出願状況(計2件) 1. 名称: MAGNETIC RECORDING MEANS AND MAGNETIC RECORDING SYSTEM 発明者: Mikio Matsuzaki, Koichi Shinohara, Tatsuo Shibata, <u>Masashi Sahashi</u>, Tomohiro Nozaki 権利者: TDK Corporation 種類:特許 番号: U.S. Provisional Patent Application Serial No.: 61/614,646 出願年月日: March 23, 2012 国内外の別:国外(USP)

 名称:マイクロ波発振素子 発明者:<u>佐橋政司、土井正晶</u>、今村裕志 権利者:産業技術総合研究所 種類:特許 番号:特願 2008-280431 出願年月日:手続補正書提出日:2011年 12月 国内外の別:国内

〔その他〕 ホームページ等

http://www.ecei.tohoku.ac.jp/sahashi/in dex

6.研究組織
(1)研究代表者
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

(2)研究分担者

土井 正晶(DOI MASAAKI)
東北学院大学・工学部電子工学科・教授
研究者番号:10237167
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:20374960