

研究報告書

「ナノ構造スピン系の電界制御」

研究期間：平成20年10月～平成24年3月

研究者：野崎 隆行

1. 研究のねらい

電子が有する電荷とスピンの2つの自由度を同時に制御することによって、これまでの半導体デバイスに無い特徴を有する新規デバイスの創製を目指す研究分野を“スピントロニクス”と呼ぶ。これまでに強磁性トンネル接合における大きな磁気抵抗効果などの物理現象が発見され、固体磁気メモリなどの適用が進められている。スピントロニクスデバイスの最たる特徴の1つは強磁性を利用した不揮発性であり、待機電力の劇的な低減が期待されることである。一方で、情報の書き込みに対応するスピン状態の制御に関しては電流駆動が現在の主流であり、その高い消費電力が本質的な問題となっている。スピントロニクスデバイスが真に大容量、低電力駆動な不揮発性デバイスを提供するためには、電界によるスピン状態制御法の確立が将来的に重要となる。

本研究では、数原子層オーダーに超薄膜化した強磁性金属層における電圧誘起磁気異方性変化に着目し、応用上重要な磁気抵抗素子における電圧スピン状態制御技術の基盤確立を目指した。まずは超薄膜強磁性層を磁性電極とする強磁性トンネル接合素子を作製し、静電圧印加による磁気異方性変化を電氣的に検出することを試みた。さらに、スピンダイナミクスの基本現象である強磁性共鳴を高周波電圧印加によって励起することを試み、その基本物理解明を目指した。

2. 研究成果

1) 強磁性トンネル接合素子における電圧誘起磁気異方性変化の観測

電圧によるスピン状態の制御が可能となったとしても、磁気抵抗効果などの信号を出力する素子への適用が難しければ真に“使える”技術とはならない。そこで、超薄膜磁性層における電圧磁気異方性制御技術のトンネル磁気抵抗素子への導入を試みた。

原子レベルで平坦な超薄膜強磁性層を有するエピタキシャルトンネル磁気抵抗(TMR)素子を作製するため、分子線エピタキシー法を用いた。素子構造はMgO基板 / Cr / Au / 超薄膜 $\text{Fe}_{80}\text{Co}_{20}$ (t_{FeCo}) / MgO (t_{MgO}) / Fe(10 nm) / Auであり(図 1(a)参照)、AuとMgOでサンドイッチされた超薄膜FeCo層は界面磁気異方性による垂直磁気異方性を有する。この素子はキャパシタンスと見なせるため、電圧を印加するとFeCo / MgO界面には蓄積電荷が生じる。この蓄積電荷により強磁性層の3d軌道占有状態が相対的に変調され、スピン軌道相互作用を介して磁気異方性の変化が誘起される。

電圧印加による垂直磁気異方性を電氣的に検出するため、トンネル磁気抵抗(TMR)曲線のバイアス電圧依存性を調べた。トンネル磁気抵抗はMgOを介した上下強磁性層の相対角度に依存するため、TMR曲線の形状からFeCo層の磁化状態を知ることができる。

図 1(b)に $t_{\text{FeCo}} = 0.4 \text{ nm}$ 、 $t_{\text{MgO}} = 1.9 \text{ nm}$ のMTJ素子に膜面内方向に磁界(H_{ex})を印加して測定したTMR曲線の例を示す。バイアス電圧の符号は上部側がプラスとなる場合を正バイアスと定義した。トンネル抵抗、および磁気抵抗比の大きさはバイアス電圧に依存して変化するため、MR曲線の形状変化のみに着目することを目的として、縦軸は抵抗最大値($H_{\text{ex}} = 0 \text{ Oe}$)、最小値($H_{\text{ex}} = 5000 \text{ Oe}$)を用いて規格化した。超薄膜FeCo層は $t_{\text{FeCo}} = 0.4 \text{ nm}$ において垂直磁化膜となるため、ゼロ磁界において磁化相対角が90度となり、抵抗値は最大値を示す。面内磁界印加によってFeCo層の磁化は膜面内方向に磁化され、その磁化過程が抵抗の飽和挙動として観察される。つまり、この面内方向への飽和に必要な磁界がFeCo層の垂直磁気異方性の大きさを反映している。図 2(b)に示すように、飽和磁界は印加バイアス電圧に依存して明瞭に変化し、負バイアス印加が飽和磁界の増大、つまり垂直磁気異方性の増大を誘起することが確認された。これは磁気抵抗素子における電界スピン制御の初めての実証である。

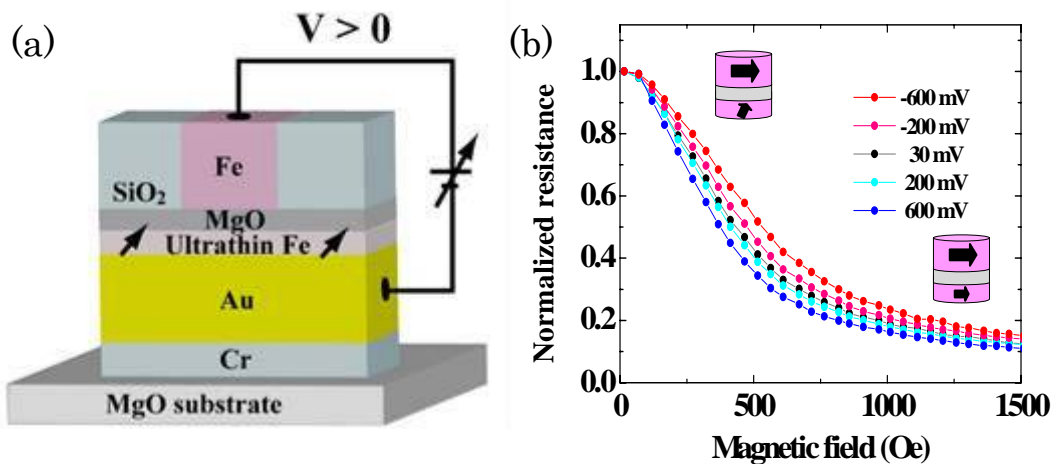


図 1 (a)超薄膜 FeCo 層を磁性電極とする強磁性トンネル接合素子模式図、(b)トンネル磁気抵抗曲線のバイアス電圧依存性

2) 電圧磁気異方性変化の定量評価

電圧印加による異方性エネルギー変化量の定量評価は電圧制御法の効率を見積もるためだけでなく、電圧効果の起源を理解する上で重要となる。1)において議論した TMR 曲線の飽和磁界変化からも半定量的な評価は可能であるが、共鳴周波数から異方性磁界を見積もる方法がより正確な評価と考え、マグノイズを用いた電気 FMR 測定を利用した評価を試みた。室温においては、熱エネルギーによりランダムな磁化ダイナミクスが励起されている。これは、磁気抵抗素子に直流電流を印加することで発生する高周波出力成分の測定により検出できる。特に強磁性層の共鳴周波数においては効率的にダイナミクスが励起されるため大きなノイズ(マグノイズ)が発生し、そのピーク値から共鳴周波数を知ることができる。

図 2(a)に $t_{\text{FeCo}} = 0.68 \text{ nm}$ 、 $t_{\text{MgO}} = 1.5 \text{ nm}$ のMTJ素子におけるマグノイズスペクトルのバイアス電圧依存性の例(正バイアスのみ。定義は1)と同じ)を示す。外部磁界(H_{ex})は面直方向に2500 Oe印加した。この膜厚ではFeCo層の磁化容易軸は膜面内であるが、有効反磁界が約

1500 Oe程度の垂直磁気異方性を有しているため、この測定条件下では磁化は膜面直方向に飽和している。図 2(a)より、バイアス電圧印加によってノイズのピーク値、つまり共鳴周波数が明瞭にシフトしていることが分かる。ピーク周波数をバイアス電圧に対してプロットすると、線形に変化していることが確認された(図 2(b))。

この測定条件下における強磁性共鳴周波数は以下の式で表わされる。

$$f_0 = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H_{ex} - H_{d,eff})(H_{ex} - H_{d,eff} + H_c)}$$

ここで、 γ はジャイロ磁気定数、 $H_{d,eff}$ は有効反磁界、 H_c は形状磁気異方性に起因する膜面内の反磁界成分である。固定バイアス電圧下において共鳴周波数の外部磁界強度依存性を調べることに、 H_c を見積もることができるため、バイアス電圧依存性では $H_{d,eff}$ のみがフィッティングパラメータとなり、各電圧印加下における垂直磁気異方性磁界を知ることができる。見積もられた $H_{d,eff}$ から、垂直磁気異方性エネルギー E_{perp} は以下の式により求められる。

$$E_{perp} = -\frac{1}{2} \mu_0 M_s H_{d,eff} \times t_{FeCo}$$

M_s はFeCo層の飽和磁化(1.52 T)である。見積もられた E_{perp} に t_{FeCo} をかけた値を図 2(b)の右縦軸に示す。この傾きが電圧による界面磁気異方性エネルギー変化率を示すことになり、本実験の場合は 37 fJ/Vmと見積もられた。この値は第1原理計算による理論予測(約 20 - 33 fJ/Vm)とほぼ同じオーダーである。本手法により、定量的に信頼性の高い異方性変化量の評価が可能であることが実証された。

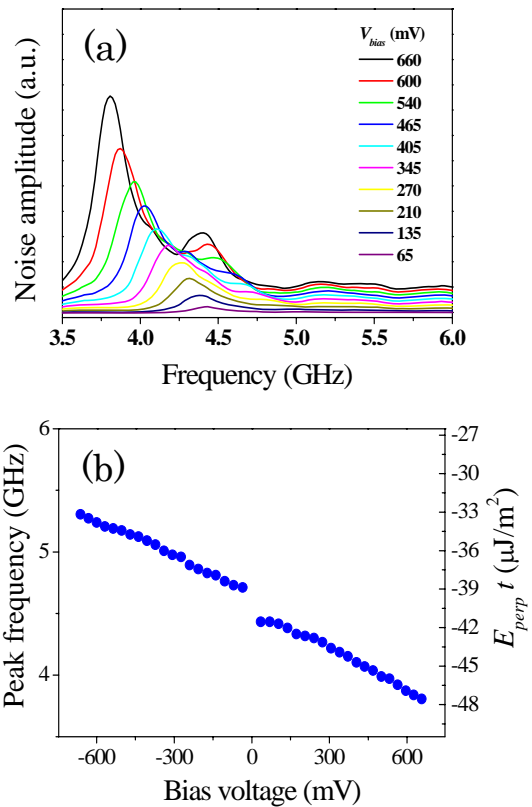


図 2 (a)バイアス電圧印加下におけるマグノイズスペクトルの例、(b) ノイズピーク周波数のバイアス電圧依存性

3) 電圧印加による強磁性共鳴励起

強磁性共鳴(FMR)はスピンのダイナミクスを理解する上で重要な基礎現象である。一方で、近年では磁気記録分野における高周波アシスト磁化反転や、スピン波・純スピン流の生成技術として応用分野でもその重要性が高まっている。本研究テーマでは、1)~2)において確立した強磁性トンネル接合素子における電圧磁気異方性制御技術を用いて、高周波電圧印加により FMR ダイナミクスを励起し、それを電気的に検出することを試みた。通常 FMR の励起には、静磁界下において、それと直交する方向に共鳴周波数に一致する高周波磁界を印加する。電圧印加によって生じる異方性変化は有効磁界の変化であるため、高周波電圧印加は高周波垂直磁界を印加することと等価であり、共鳴励起が可能であると期待される。FMR ダイナミクスの検出方法としては、磁気抵抗効果を介したホモダイン検波法を用いた。測定回

路模式図を図 3 に示す。静磁界下において、シグナルジェネレーターから印加された高周波電圧により FMR ダイナミクスが励起された場合、トンネル磁気抵抗効果を介して抵抗の振動成分が発生する。同じ周波数で素子に流れる微小トンネル電流とこの抵抗成分の積は直流電圧成分を生む。この信号をボルトメーターで検出することによって FMR ダイナミクスを電氣的に検出することができる。電流起因(電流磁界、スピントルク等)のダイナミクスによってもこの信号は生じるが、この影響を無視できるように本実験では素子の面積抵抗値を約 $10 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$ と高くし、かつ素子面積を $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ と大きく設計した。また、効率的に共鳴励起を行うため、FeCo膜厚は垂直磁気異方性の臨界膜厚(磁化容易軸の面内-面直間遷移が生じる膜厚)である 0.54 nm に設計した。

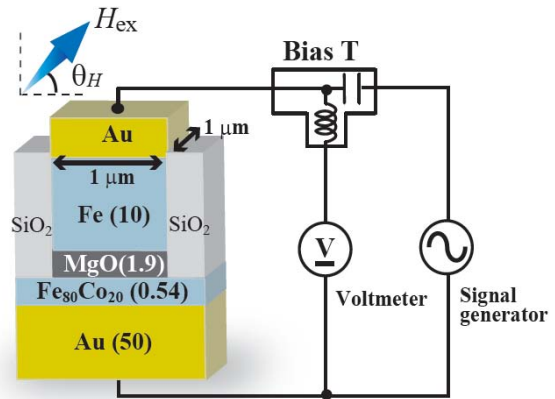


図 3 (a)バイアス電圧印加下におけるマグノイズスペクトルの例、(b) ノイズピーク周波数のバイアス電圧依存性

図 4(a)にホモダイン検波信号の外部磁界強度依存性の例を示す。高周波電力 -15 dBm 、外部磁界(H_{ex})仰角を 55 度に固定して測定を行ったところ、明瞭な分散型のスペクトルが観測された。図 4(b)は共鳴周波数の外部磁界依存性であり、実験結果は仰角磁界下における強磁性共鳴の理論式で再現できることが分かった(赤線)。

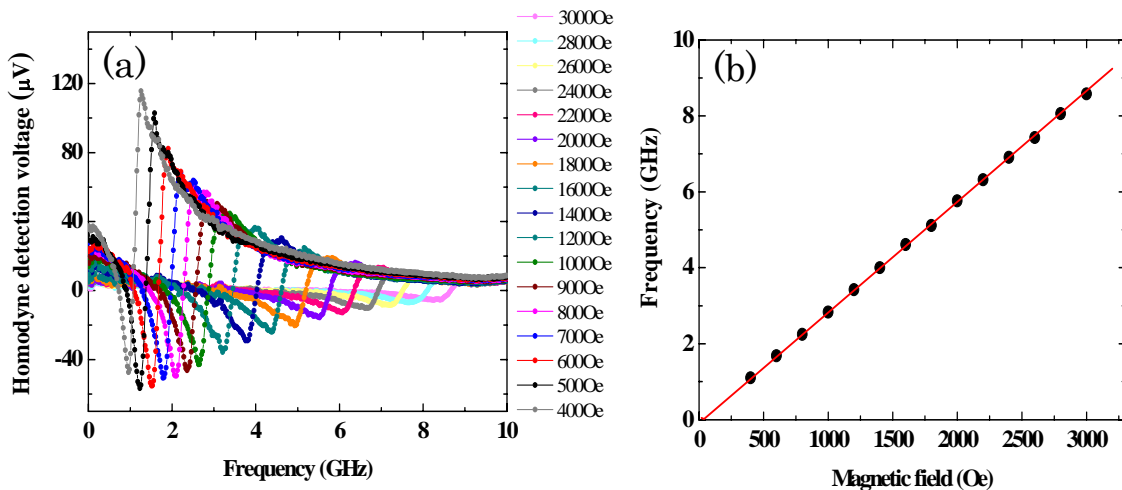


図 4 (a)ホモダイン検波信号スペクトルの外部磁界強度依存性、(b)外部磁界に対する共鳴周波数変化。赤線は理論式によるフィッティング結果を示す。

上述の通り、本実験条件では電流による影響が十分小さくなるように設計しているが、観測された信号が電圧効果を起源とすることをより厳密に議論するために、信号強度の外部磁界印加仰角依存性を調べた。

電圧効果を駆動力とする場合、信号のピーク強度は、以下の式で表わされる。

$$V_{dc,peak} \propto MR \frac{\gamma \partial H_{d,eff}}{\partial V} \cos \theta \sin^2 \theta V_p^2$$

ここでMRIは磁気抵抗比、 $\frac{\gamma \partial H_{d,eff}}{\partial V}$ は電圧による垂直磁気異方性変化率、 θ は仰角、 V_p は印

加高周波電圧のピーク値である。この仰角依存性は電圧トルクが $\sin \theta \cos \theta$ に依存し、TMR効果による信号検出感度が $\sin \theta$ に依存することによる結果である。一方、電流(スピントルク)を起源とする場合、その依存性は $\sin^2 \theta$ となるため、信号強度の仰角依存性を調べることで、信号の起源を明らかにすることができる。

図5に外部磁界強度2000 Oe、高周波電力-15 dBm条件下におけるホモダイン検波信号強度の仰角依存性結果を示す。仰角約55度において信号強度は最大値を取り、 $\sin^2 \theta \cos \theta$ 関数で説明できることが確認された。

以上の議論より、本実験で電圧を駆動力とする強磁性共鳴励起に成功したと結論づけることができる。共鳴歳差角を基準として共鳴ダイナミクスの励起効率を見積もった所、電圧効果によって素子内で消費される消費電力は電流駆動型の約1/1000であることも確認され、電圧制御の有効性を実証することができた。電圧印加による強磁性共鳴励起実験は材料、測定温度によらずこれまでに例が無く、本研究が初めての報告である。

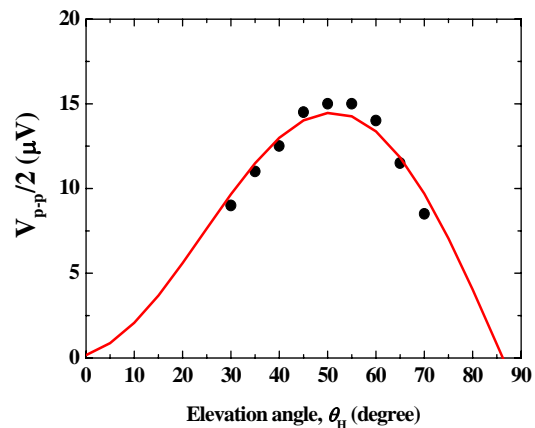


図5 ホモダイン検波信号強度の外部磁界印加仰角依存性。フィッティングパラメーターとして仰角シフト $\Delta\theta = 3.7$ 度を用いている。

3. 今後の展開

本研究により、電圧磁気異方性制御を利用したFMRダイナミクス励起に成功した。今後はこのFMR励起を利用した低電力スピン波・純スピン流生成の実証を目指したい。また、より高効率なスピンダイナミクス制御を実現するために、強磁性層/絶縁層界面構造制御やhigh-k絶縁層の適用などにより電圧誘起異方性変化の増大を目指す。また、ゲート電圧印加によるスピン制御を利用した新規3端子スピントロニクスデバイスの基本動作実証も試みたい。これらの基盤技術の確立により、待機電力だけでなく、駆動電力も低電力でかつ大容量、高速動作可能なスピントロニクスデバイスの実現に近づくと期待している。

4. 自己評価

さきがけ研究がスタート時は、固体素子における電圧磁気異方性制御に成功したばかりであったが、絶縁層に数 μm オーダーのポリイミドを含んでいたため、異方性変化の観測に数100Vの高電圧を必要とし、応用とはかけ離れた技術のイメージが強かった。本研究期間において、まず最初に応用上重要な強磁性トンネル接合素子において、1V以下の低電圧印加による磁気異方性制御の実現、さらに異方性変化量の定量評価技術の確立を行った。これらの

開発技術を駆使することにより、研究提案時の大きな第1目標であった電圧強磁性共鳴励起に世界で初めて成功した。電圧による異方性制御は今まさに世界的なブームとなりつつある技術であるが、本さきがけ研究による強力な推進を受け、本研究分野をけん引することができたと言える。一方で、第2目標に掲げていた電圧純スピン流もしくはスピン波励起に関しては、Kaiserslautern 工科大学の Hillebrands 教授との共同研究を進めたが、観測にまでは至らなかった。1つの理由は電圧効果が 1nm 以下と超薄膜で観察される現象であるのに対し、スピン波の伝搬距離は膜厚に反比例して短くなることが挙げられる。今後の電圧効果増大の研究により、数 nm オーダーの比較的厚い薄膜において効率的な電圧効果を実現し、伝搬距離を長くすることでこれらの技術を実現したい。

5. 研究総括の見解

本研究では、膜厚1nmオーダーの極薄ナノ構造磁性体に絶縁体を介して電界を印加することにより、磁気異方性の起源となっている電子軌道を直接操作し、磁化反転を含めたスピンをダイナミックに制御できる革新的技術を確立することを目標としたものである。その結果、1nm以下の超薄膜強磁性層を有するトンネル接合素子を作製し、膜面内方向へ外部磁場を加えることで、負バイアス下で飽和磁界の増大、すなわち垂直磁気異方性の増大等を観測することで、電圧磁気異方性制御に初めて成功し、スピン制御の現実的で新たな手段を獲得できた意義は非常に大きい。さらに、同様な素子を用いて高周波電界印加による強磁性共鳴励起にチャレンジしホモダイン検波測定を行うことで、電界による磁気異方性変化を起源とする分散型のスペクトルを観測できたことで、電界による強磁性共鳴励起の実証に世界で初めて成功し、また消費電力として従来のスピントルク励起と比べて約1/1000の低電力動作であることを実証できた。これらスピン制御と強磁性共鳴励起手法を新たな手段で獲得できたことは、スピントロニクス分野への多大な貢献であり、今後のスピン関連応用展開も十分に期待され、大きく評価できるものである。今後のさらなる飛躍と世界のトップランナーを引き続き堅持して頂きたい。

6. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. T. Nozaki, Y. Shiota, M. Shiraishi, T. Shinjo, and Y. Suzuki, Voltage-induced perpendicular magnetic anisotropy change in magnetic tunnel junctions, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 022506 (2010).
2. T. Nozaki, Y. Shiota, M. Shiraishi, T. Shinjo, and Y. Suzuki, Electrical Detection of Changes in Voltage-induced Magnetic Anisotropy in Magnetic Tunnel Junctions, *J. Magn. Soc. Jpn.* **34**, 289 (2010).
3. Y. Suzuki, H. Kubota, A. Tulapurkar, and T. Nozaki, Spin control by application of electric current and voltage in FeCo-MgO junctions, *Phil. Trans. R. Soc. A* **28**, 3658 (2011).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 1 件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物等)

【招待講演】

1. T. Nozaki, Voltage-control of perpendicular magnetic anisotropy in fully epitaxial magnetic tunnel junctions, SPIE 2010 NanoScience+Engineering, San Diego, United States, August, 2010.
2. T. Nozaki, Voltage-induced magnetic anisotropy change in ultrathin Fe(Co)/MgO junctions, MRS Spring Meeting and Exhibit, San Francisco, California, United States, April, 2011.
3. T. Nozaki, Voltage control of magnetic anisotropy in an ultrathin ferromagnetic metal film, 5th International Workshop on Spin Currents, Sendai, Japan, July 2011.
4. T. Nozaki, Voltage induced magnetization dynamics in an ultrathin FeCo layer, 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Scottsdale, Arizona, United States, October, 2011.
5. 野崎隆行、FeCo/MgO 接合系における電界誘起磁気異方性制御、日本物理学会 2011 年秋季大会 領域 3,5,9 合同シンポジウム「垂直磁気異方性はどこまで理解されたか」、富山、2011 年9月

【学術講演】

<国際会議>

1. T. Nozaki, T. Maruyama, Y. Shiota, M. Shiraishi, T. Shinjo, and Y. Suzuki, Voltage control of perpendicular magnetic anisotropy in epitaxial Au/ultrathin Fe/MgO/Fe junctions, ICMFS2009, Berlin, Germany, July 2009. (口頭)
2. T. Nozaki, S. Murakami, Y. Shiota, T. Shinjo, and Y. Suzuki, Voltage control of magnetic anisotropy in Au/ultrathin Fe(Co)/MgO and Au/ultrathin Fe/Au/MgO junctions, 55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Atlanta, United States, November, 2010. (ポスター)
3. T. Nozaki, Y. Shiota, S. Murakami, F. Bonell, T. Shinjo, and Y. Suzuki, 2nd ASRC International Workshop on Magnetic Materials and Nanostructures, Tokai, Japan, January 2012. (ポスター)

<国内会議(口頭発表)>

1. 野崎隆行、塩田陽一、白石誠司、新庄輝也、鈴木義茂、bccFe(001)/MgO/接合における電圧誘起磁気異方性変化 II、2009 年春季応用物理学会学術講演会、筑波、2009 年 3 月
2. 野崎隆行、塩田陽一、白石誠司、新庄輝也、鈴木義茂、Au/Fe/MgO/Fe トンネル接合における電圧誘起磁気異方性変化、2009 年日本磁気学会学術講演会、長崎、2009 年 9 月
3. 野崎隆行、塩田陽一、白石誠司、新庄輝也、鈴木義茂、FeCo/MgO/Fe トンネル接合におけるバイアス電圧誘起磁気異方性変化、2010 年春季日本物理学会学術講演会、岡山、2010 年 3 月
4. 村上真一、塩田陽一、野崎隆行、白石誠司、新庄輝也、鈴木義茂、Au/Fe/Au/MgO 構造における垂直磁気異方性とその電圧制御、2010 年春季日本物理学会学術講演会、岡山、2010 年 3 月
5. 村上真一、塩田陽一、野崎隆行、新庄輝也、白石誠司、鈴木義茂、Ag/超薄膜 Fe/MgO 接合における電界誘起磁気異方性制御、2010 年秋季応用物理学会学術講演会、長崎、2010 年、

9 月

6. 野崎隆行、塩田陽一、村上真一、Frederic Bonell、新庄輝也、鈴木義茂、超薄膜 FeCo 層における電界強磁性共鳴励起、2011 年日本磁気学会学術講演会、新潟、2011 年 9 月