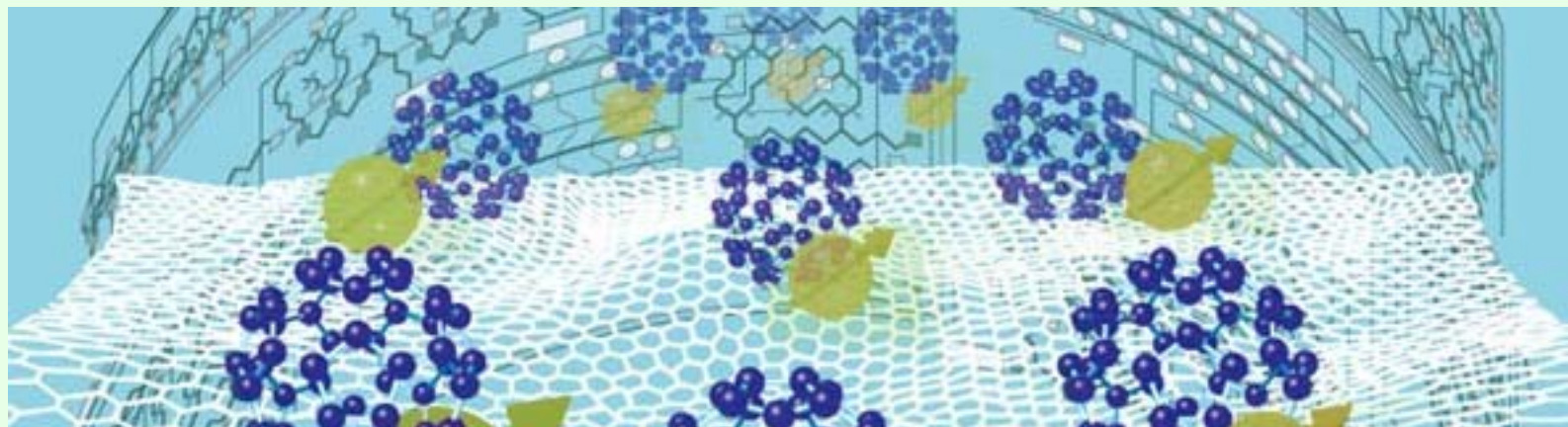


2008年3月8日ナノ未来科学研究拠点 2007年度コロキウム



いま、スピントロニクスが熱い —革新的次世代デバイスに向けて—

東京農工大学工学府／科学技術振興機構

佐藤勝昭



Contents

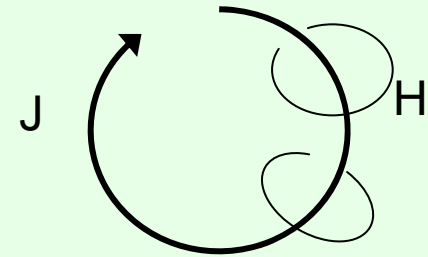
1. 電気と磁気の相互変換
2. ナノサイエンスと磁性の出会い
3. 巨大磁気抵抗効果(GMR)の発見
4. Spin Valve磁気ヘッドがハードディスクを変えた
5. 交換相互作用さえも人工的に制御
6. 室温での大きなトンネル磁気抵抗効果(TMR)の発見
7. 磁気トンネル素子(MTJ)とMRAM
8. MgO単結晶バリアの採用でブレークスルー
9. スピン注入磁化反転 の提案と実現
10. 大きなトピックス「スピン流」

この講演は、結晶工学分科会年末講演会の講演をもとにしたものです。

1. 電気と磁気の相互変換

- 電気→磁気: アンペールの法則

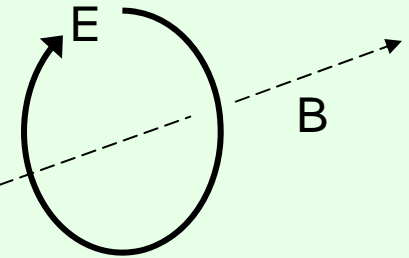
$$\nabla \times \mathbf{H} = \partial \mathbf{D} / \partial t + \mathbf{J}$$



- 磁気→電気: ファラデーの電磁誘導の法則

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B} / \partial t$$

- いずれの変換にも電磁気学、
したがって、コイルが使われておりました



- あとで述べますように、スピントロニクスによって電気・磁気の相互変換をコイルなしで行う道筋が拓けてきました。

1960年代から知られていた電気輸送と磁気の関係

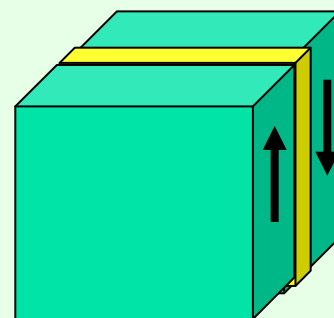
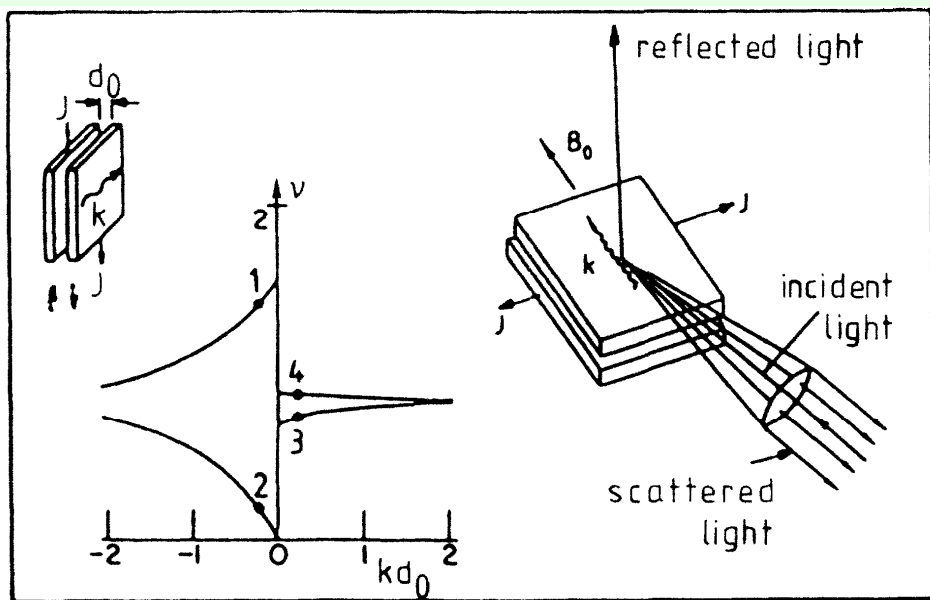
- Niの T_c 直下での抵抗の温度係数の増大: スピン2流体モデルとスピン散乱で説明されていました。
 - A. Fert and I.A. Campbell: Phys. Rev. Lett. 21 (1968) 1190.
- 強磁性体のAMR(異方性磁気抵抗効果)や異常ホール効果も1950年代から知られていました。
 - R.Karplus and J.M. Luttinger: Phys. Rev. 95 (1954) 1154
- 磁性半導体 $CdCr_2Se_4$ や EuO において T_c 付近での電気抵抗の増大がスピン散乱によって説明されていました。
- しかし、そのころの認識では、これらは「作りつけ」の効果であって、人間が制御できるとは考えもしなかった。

2. ナノサイエンスと磁性の出会い(1)

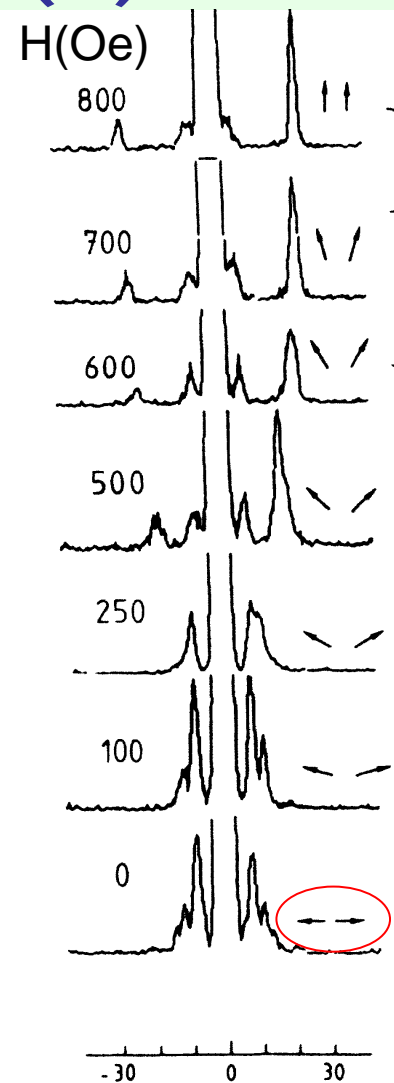
- 江崎によって拓かれた半導体超格子をはじめとするナノテクノロジーは、半導体における2次元電子ガス、量子閉じこめ、バンド構造の変調など半導体ナノサイエンスを切りひらき、HEMT, MQW レーザなど新しい応用分野を拓きました。
- 電子のドブロイ波長は半導体においては10nmのオーダーと長いため、比較的大きなサイズの構造の段階で量子効果が現れましたが、磁性体の3d電子はnm程度の広がりしか持たないため、nm以下の精密な制御が可能になった80年代まで待たねばなりませんでした。

ナノサイエンスと磁性の出会い(2)

- 1986年ドイツのグリーンベルグのグループは Fe/Cr(8 Å)/Fe の構造において、マグノン-ブリルアン散乱法により、Feの2層の磁化が反強磁性的に結合していることを発見しました。



P. Grünberg, R. Schreiber and Y. Pang: Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 2442.

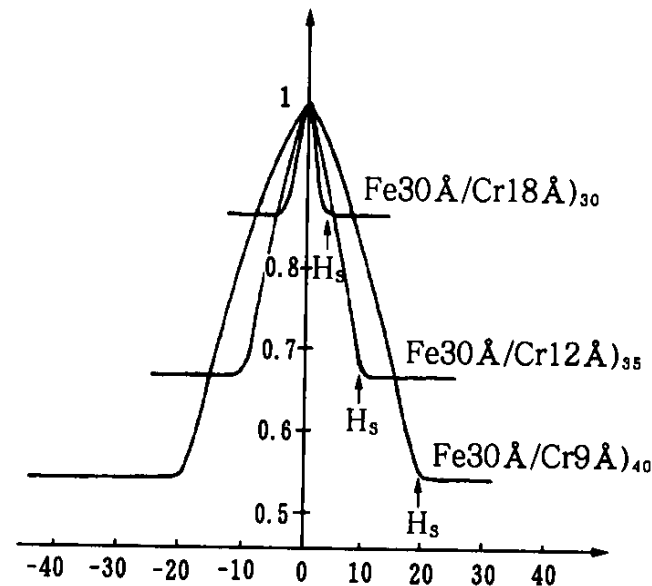
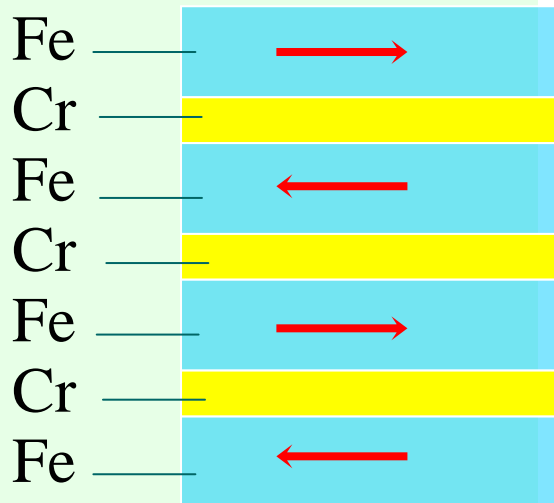


3. 巨大磁気抵抗効果(GMR)の発見(1)

- 1988年フェールのグループは、Fe/Cr人工格子において電気抵抗値の50%もの大きな抵抗変化を発見し巨大抵抗効果GMRと名付けました。



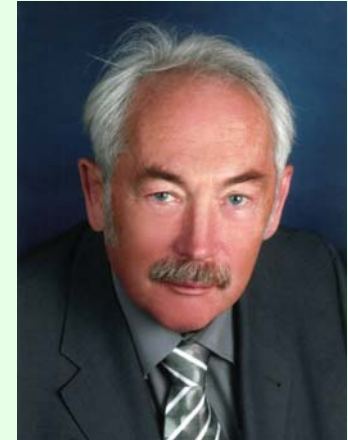
アルベール・フェール博士



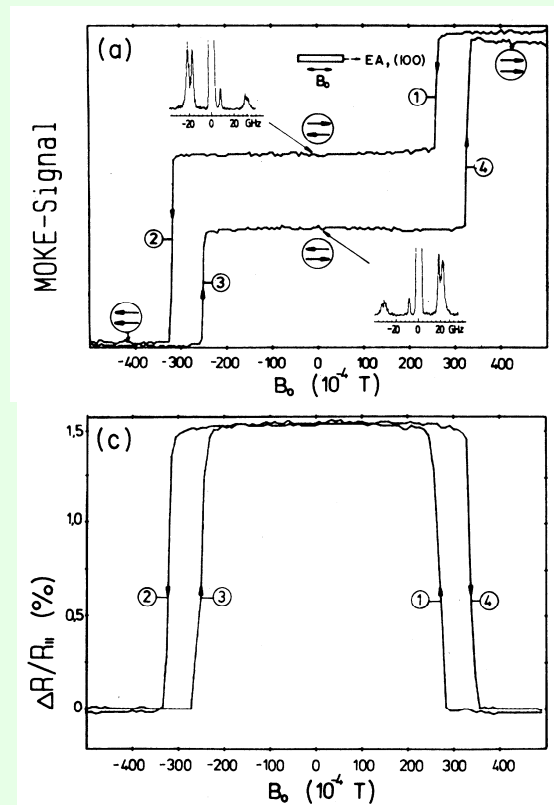
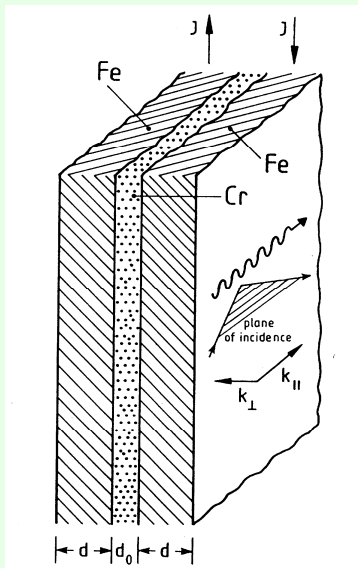
M.N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friedrich, J. Chazelas: Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472.

巨大磁気抵抗効果(GMR)の発見(2)

- 同じ時期、グリーンベルグのグループもFe-Cr-Feの3層膜でGMR効果を発見しました。



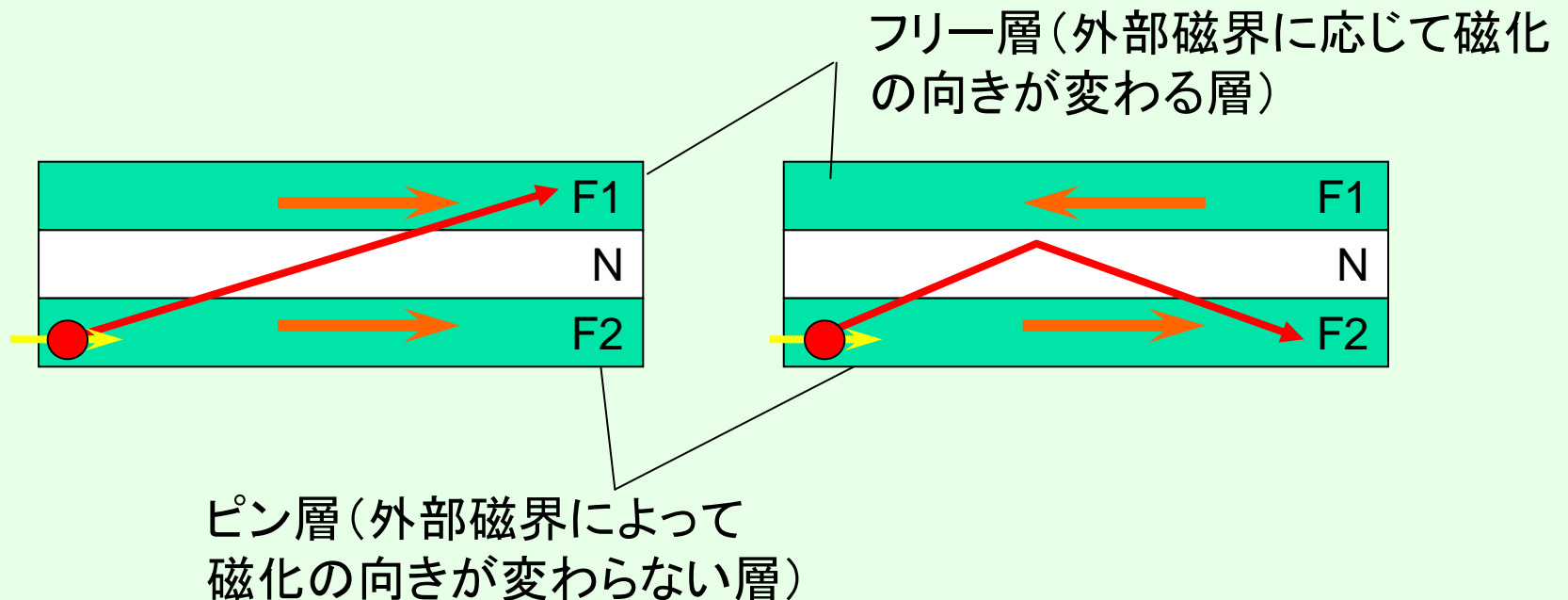
ペーター・グリーンベルク博士



G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbad, W. Zinn: Phys. Rev. B 39 (1989) 4828.

GMRの原理

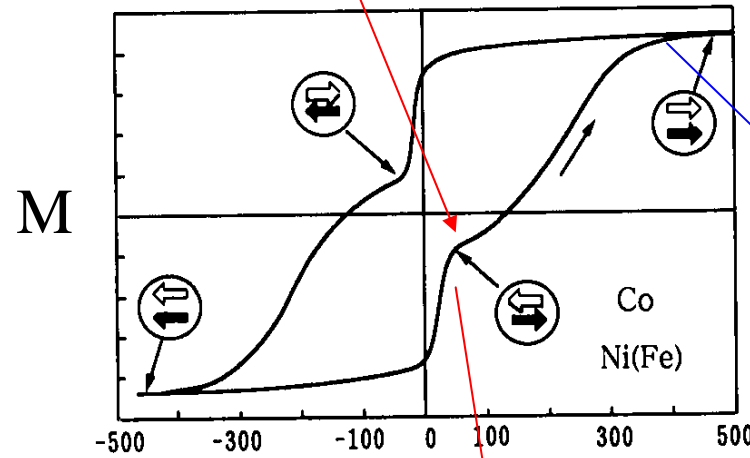
- 強磁性体(F1)/非磁性金属(N)/強磁性(F2)の構造において、F1, F2の磁化が平行なら界面でのスピン散乱を受けないため電気抵抗が低いのに対し、反平行ならスピン散乱を受け電気抵抗が高くなります。



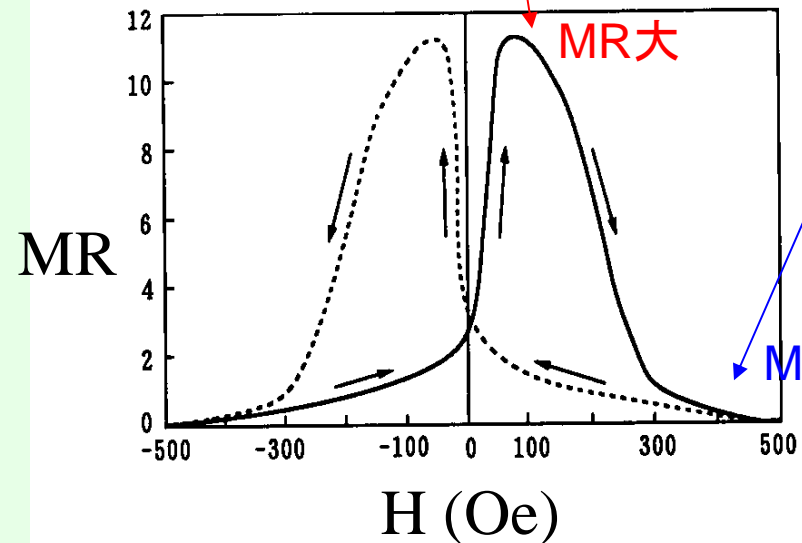
非結合系のGMR

- 新庄らは、ソフト磁性体とハード磁性体との3層構造を作れば、反平行状態を作れるのでGMRが得られることを見いだしました。

ここでNiFeは磁化反転するがCoは反転しないので反平行。

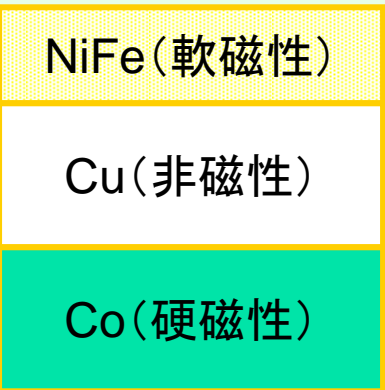


ここでCoが磁化反転して平行になる



MR小

フリー層



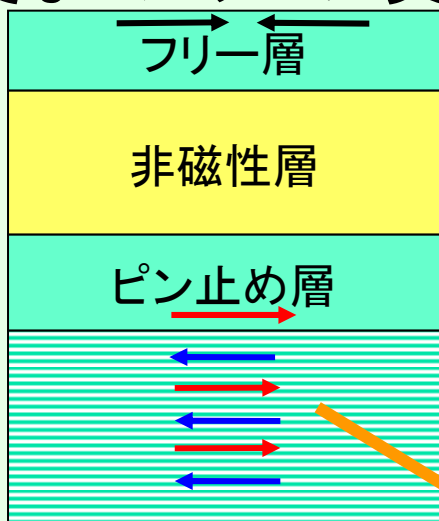
(わずかな磁界で磁化反転する)

固定層

(強い磁界をかけないと磁化反転しない)

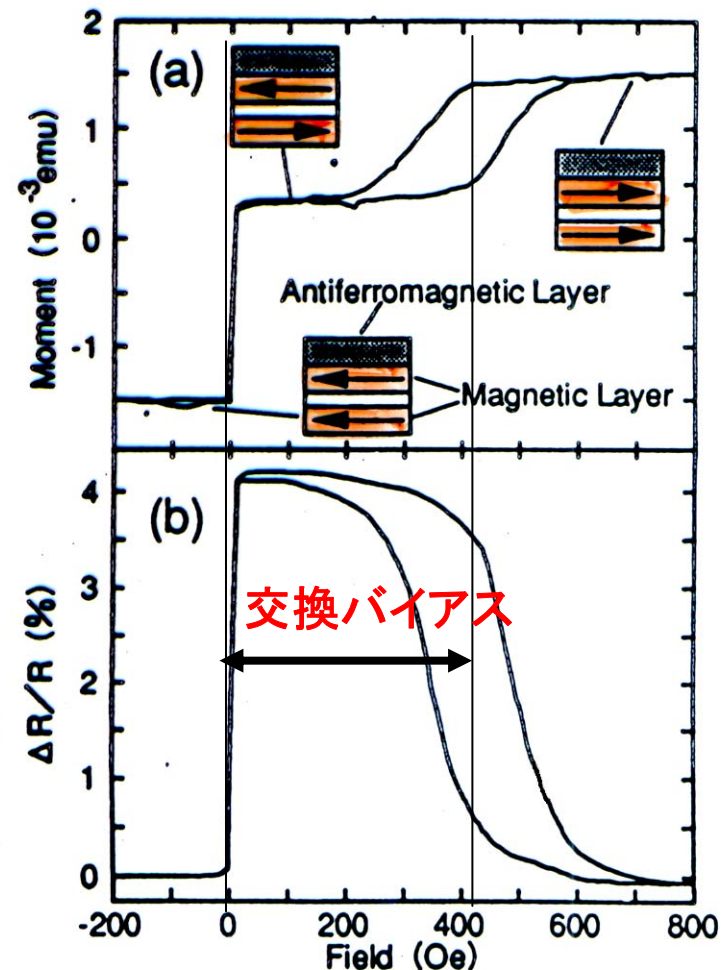
スピンバルブ

- IBMのParkinらは、NiFe/Cu/NiFe/FeMnの非結合型サンドイッチ構造をつくりスピンバルブと名付けました。
- 反強磁性体と強磁性体の交換結合による交換バイアスを用いることにより、わずかな磁界でフリー層が反転する高感度なセンサーが実現しました。



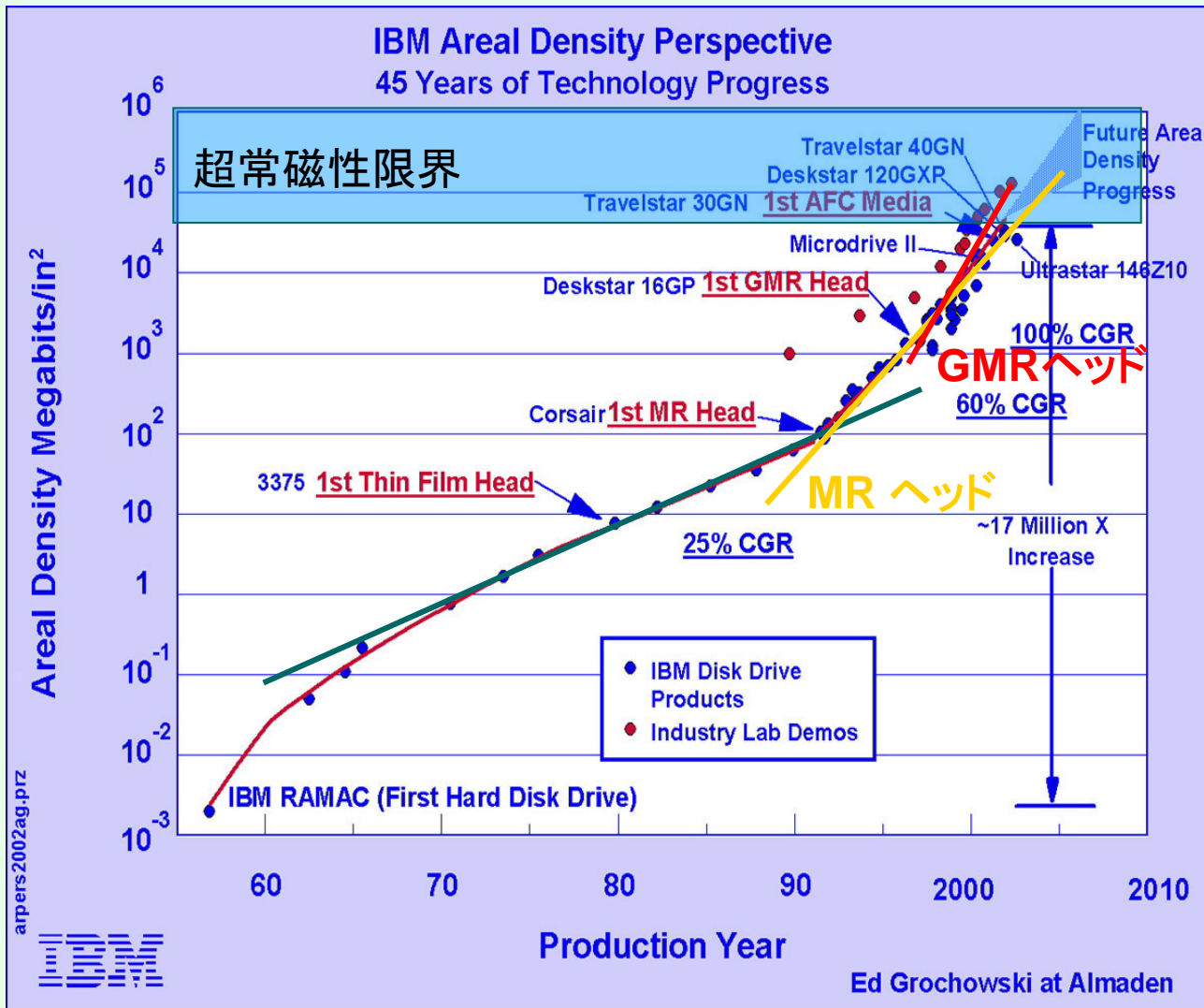
反強磁性層
(例 FeMn)

最近はSAF (Synthetic antiferromagnet) に置き換え



S. S. P. Parkin, Z. G. Li and David J. Smith: Appl. Phys. Lett. 58 (1991) 2710.

3. スピンバルブがハードディスクを変えた



■ Spin Valveの導入によって、微細な磁区から生じるわずかな磁束の検出が可能になり、HDDの高密度化がそれまでの10年10倍のペースから10年100倍のペースに急展開しました。

HDの記録密度の状況

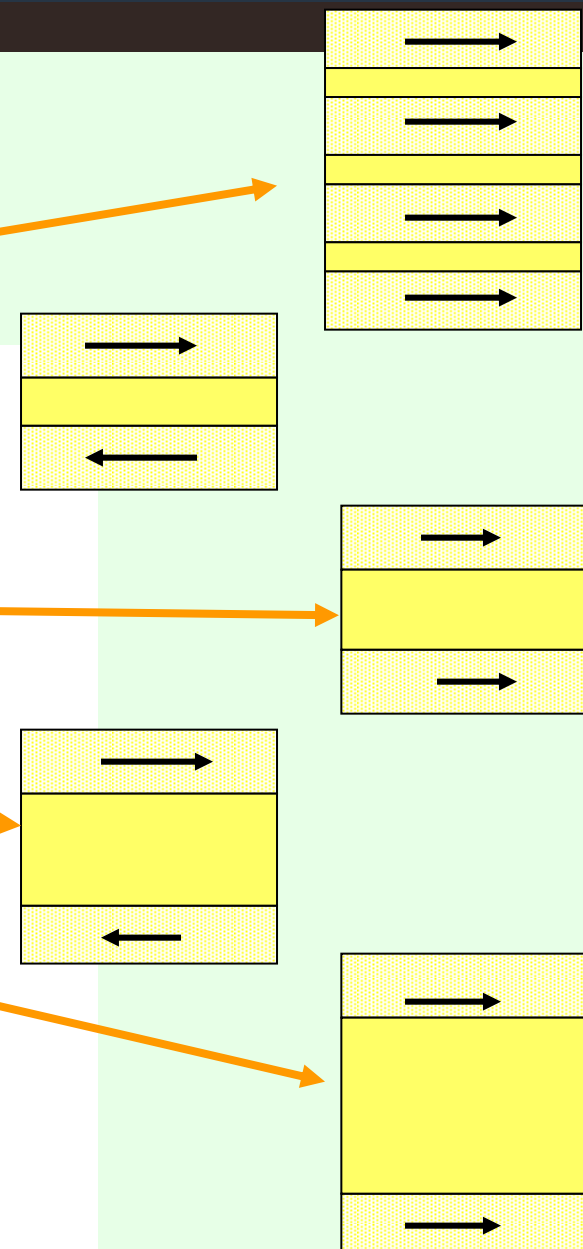
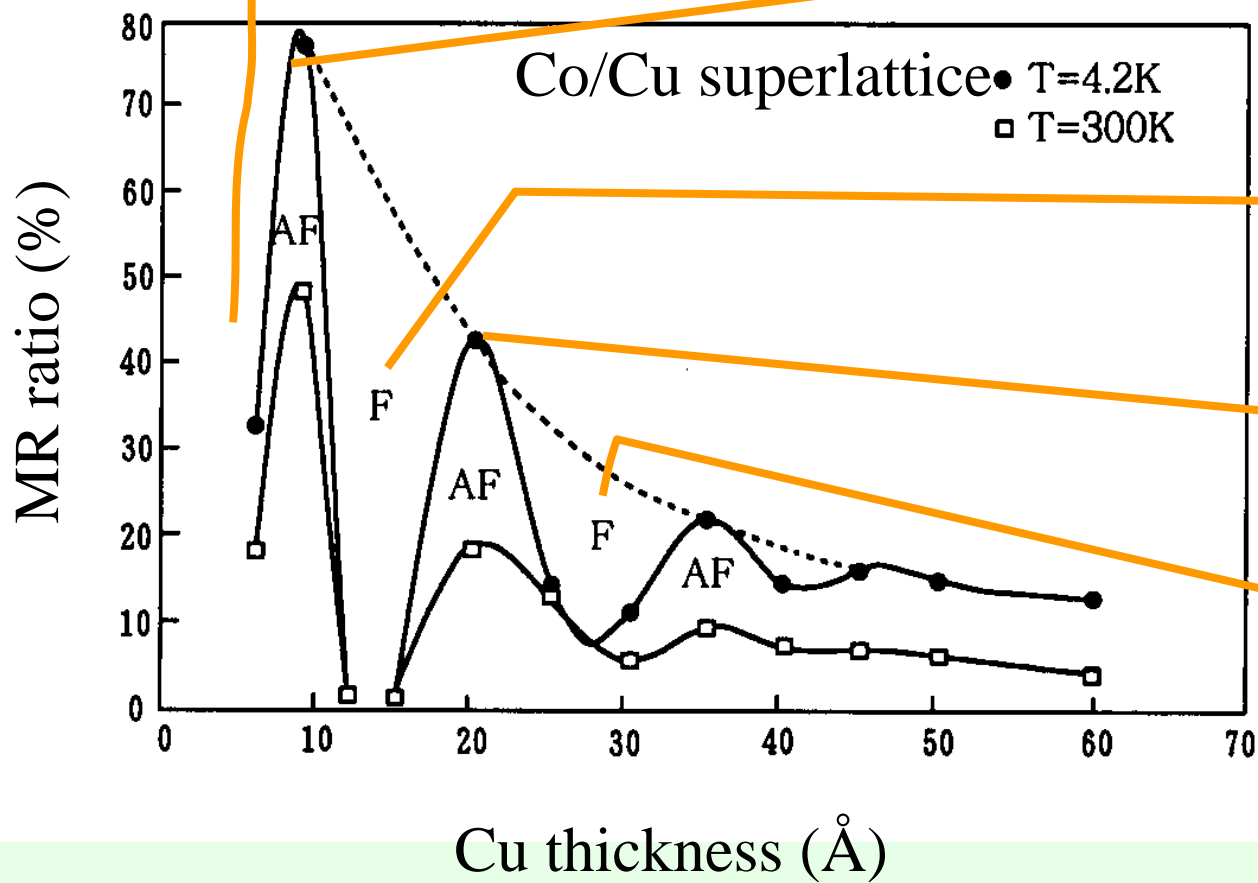


- HDの記録密度は、1992年にMRヘッドの導入によりそれまでの年率25%の増加率(10年で10倍)から年率60%(10年で100倍)の増加率に転じ、1997年からは、GMRヘッドの登場によって年率100%(10年で1000倍)の増加率となっています。
- **超常磁性限界**は、40Gb/in²とされていたが、AFC(反強磁性結合)媒体の登場で、これをクリアし、実験室レベルの面記録密度は2003年時点ですでに150 Gb/in²に達しました。しかし、面内磁気記録では十分な安定性を確保できず、市場投入された133Gb/in²を超える高密度記録は、垂直磁気記録によって実現しました。その後、200Gb/in²のHDDが投入され、1Tb/in²に向けて開発が進んでいます。
 - Y.Tanaka: IEEE Trans Magn. 41 (2005) 2834.

5. 交換相互作用さえも人工的に制御

- 同じ時期に、磁性／非磁性の人工格子において、磁性層間に働く交換相互作用が非磁性層の層厚に対して数ナノメートルの周期で、強磁性→反強磁性→強磁性→・・・と振動的に変化することが発見されました^[i]。ナノテクノロジーの確立によって、人類は、ついに交換相互作用さえも人工的に制御する手段を手にしたのです。
 - ^[i] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche: Phys. Rev. Lett. 64 (1990) 2304.

GMR 振動と層間結合



6. 室温での大きなトンネル磁気抵抗効果(TMR)の発見

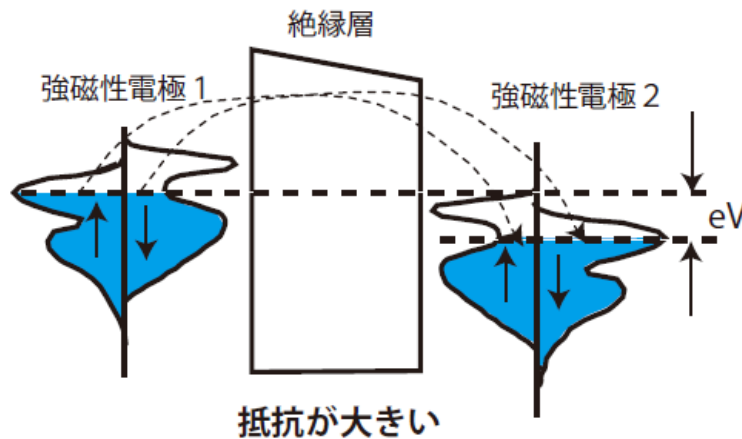
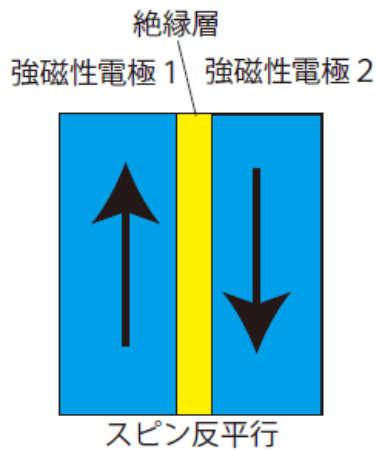
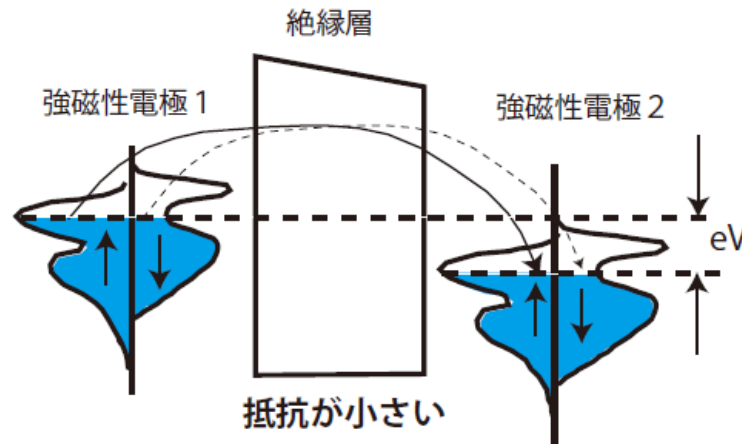
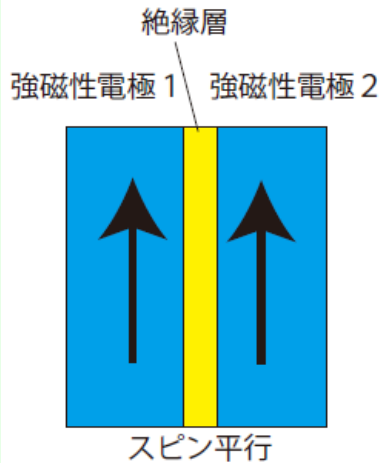
- 磁性と伝導の係にさらなるブレークスルーをもたらしたのは、Miyazakiによる1995年の磁気トンネル接合(MTJ)における室温での大きなトンネル磁気抵抗効果(TMR)の発見で、TMR比[1]は18%におよびました[2]。
 - [1] TMR比は、向かい合う2つの磁性層の磁化の向きが磁化の向きが平行のときの抵抗 $R_{\uparrow\uparrow}$ と反平行のときの抵抗 $R_{\uparrow\downarrow}$ との差を平行の抵抗で割った百分比で表されます。
$$\text{TMR}(\%) = (R_{\uparrow\uparrow} - R_{\uparrow\downarrow}) / R_{\uparrow\uparrow} \times 100$$
 - [2] T. Miyazaki, N. Tezuka: J. Magn. Magn. Mater. 139 (1995) L231.

7. 磁気トンネル素子(MTJ)とMRAM

- MTJとは2枚の強磁性体層で極めて薄い絶縁物を挟んだトンネル接合で、磁化が平行と反平行とで電気抵抗が大きく異なる現象です。スピン偏極トンネリング自体は、1980年代から知られていたおり [\[i\]](#)、磁性層間のトンネルについて先駆的な研究 [\[ii\]](#) も行われていたのですが、トンネル障壁層の制御が難しく、再現性のよいデータが得られていなかったのです。Miyazakiら [\[iii\]](#) は成膜技術を改良して、**平坦でピンホールの少ない良質のAl-O絶縁層の作製に成功**したことがブレークスルーとなりました。この発見を機にTMRは、世界の注目するところとなり、直ちに固体磁気メモリ(MRAM)および高感度磁気ヘッドの実用化をめざす研究開発が進められました。

- [\[i\]](#) R. Meservey, P.M. Tedrow, P. Flulde: Phys. Rev. Lett. 25 (1980) 1270.
- [\[ii\]](#) S. Maekawa, U. Gafvert: IEEE Trans. Magn. MAG-18 (1982) 707.
- [\[iii\]](#) T. Miyazaki, N. Tezuka: J. Magn. Magn. Mater. 139 (1995) L231

TMR(トンネル磁気抵抗効果)の原理



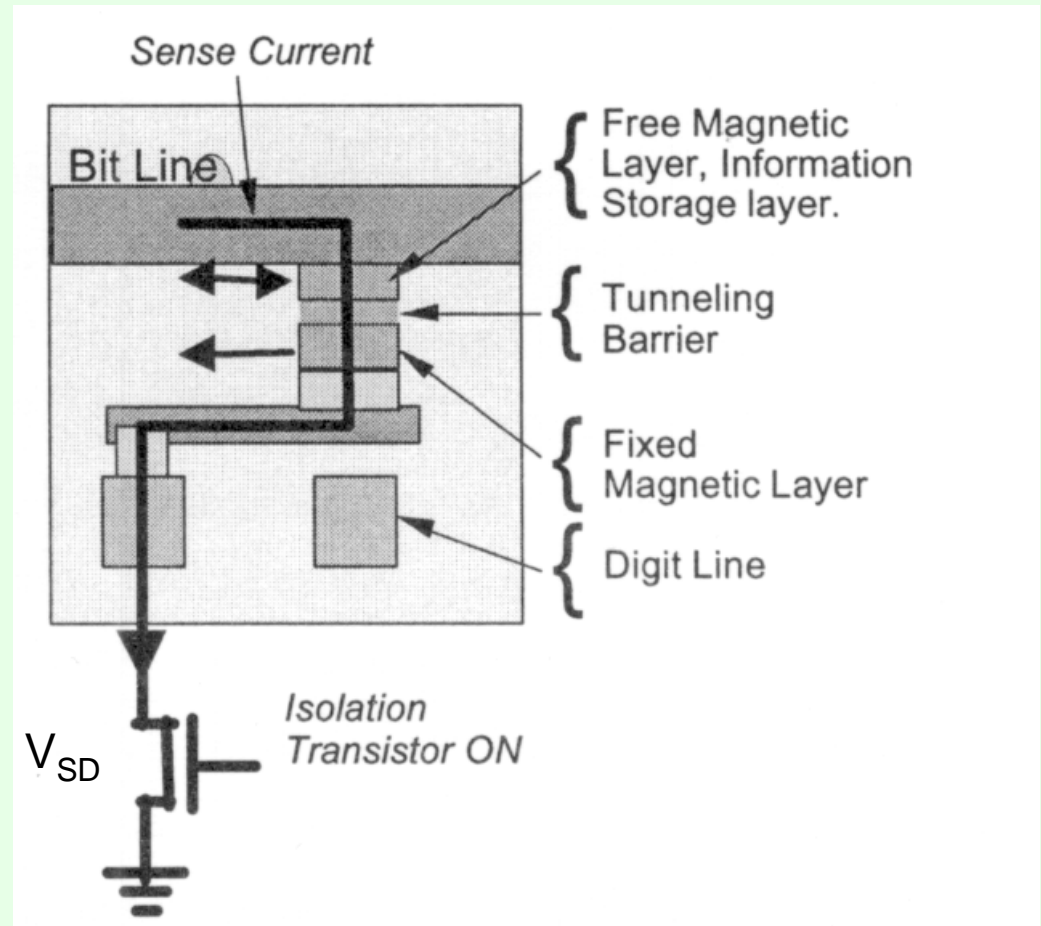
- TMRは磁性体のバンド構造を使って説明されます。
- フェルミ面における状態密度が上向きスピンの下向きスピンのように異なります。
- 両電極のスピンの平行だと、状態密度の大きな状態間の電子移動により低抵抗になります。
- 反平行だと、大きな状態と小さな状態の間の移動なので高抵抗になります。

MRAM(磁気ランダムアクセスメモリ)

- 記憶素子に磁性体を用いた不揮発性メモリの一種です。
- MTJとCMOSが組み合わされた構造となっています。
- 直交する2つの書き込み線に電流を流し、得られた磁界が反転磁界 H_K を超えると、磁気状態を書き換えることができます。しかし、電流で磁界を発生している限りは高集積化が難しいという欠点があります。
- MRAMは、アドレスアクセスタイムが10ns台、サイクルタイムが20ns台とDRAMの5倍程度でSRAM並み高速な読み書きが可能です。また、フラッシュメモリの10分の1程度の低消費電力、高集積性が可能などの長所があり、SRAM(高速アクセス性)、DRAM(高集積性)、フラッシュメモリ(不揮発性)のすべての機能をカバーする「ユニバーサルメモリ」としての応用が期待されています。
- このため、FeRAM(強誘電体メモリ)、OUM(カルコゲナイド合金による相変化記録メモリ)とともに、「ユニバーサルメモリ」としての応用が期待されています。

MTJ(磁気トンネル接合)とMRAM

- ビット線とデジット線に流した電流で磁界を作り、MTJにアクセス
 - 電流の作る磁界でMTJのフリー層を磁化反転
- 特定位置のMOSTランジスタのゲートをON
 - TMR(トンネル磁気抵抗効果)のため、フリー層の磁化の向きにより V_{SD} が異なる
- 構造がシンプル



MRAMの回路図

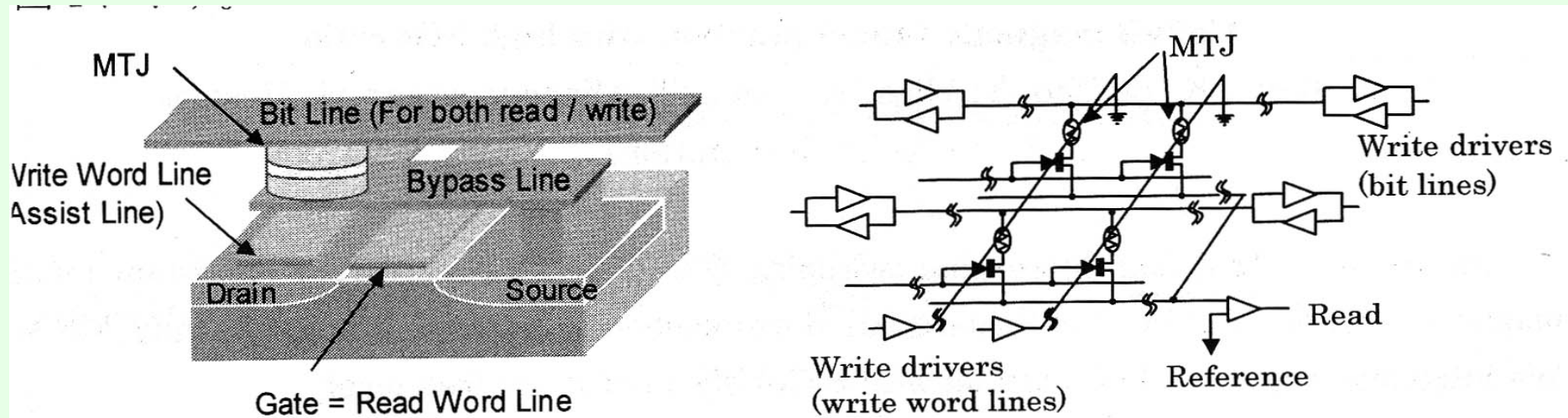


Fig. 1 Schematic of 1T1J type MRAM

- 鹿野他:第126回日本応用磁気学会研究会資料p.3-10

MRAM と他のメモリとの比較

	SRAM	DRAM	Flash	FRAM	MRAM
読出速度	高速	中速	中速	中速	中高速
書込速度	高速	中速	低速	中速	中高速
不揮発性	なし	なし	あり	あり	あり
リフレッシュ	不要	要	不要	不要	不要
セルサイズ	大	小	小	中	小
低電圧化	可	限	不可	限	可

8. MgO単結晶バリアの採用でブレークスルー

■2004年、TMRは革命的なブレークスルーを迎えます。Yuasaらはそれまで用いられてきたアモルファスAl-Oに代えてMgO単結晶層をトンネル障壁に用いることで、200%におよぶ大きなTMR比を実現しました[i]。その後もTMRは図1のように伸び続け、最近では500%に達しています[iii]。

■[i] S. Yuasa, A. Fukushima, T. Nagahama, K. Ando, Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L588.

■[ii] Y. M. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura, H. Ohno : Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 212507.

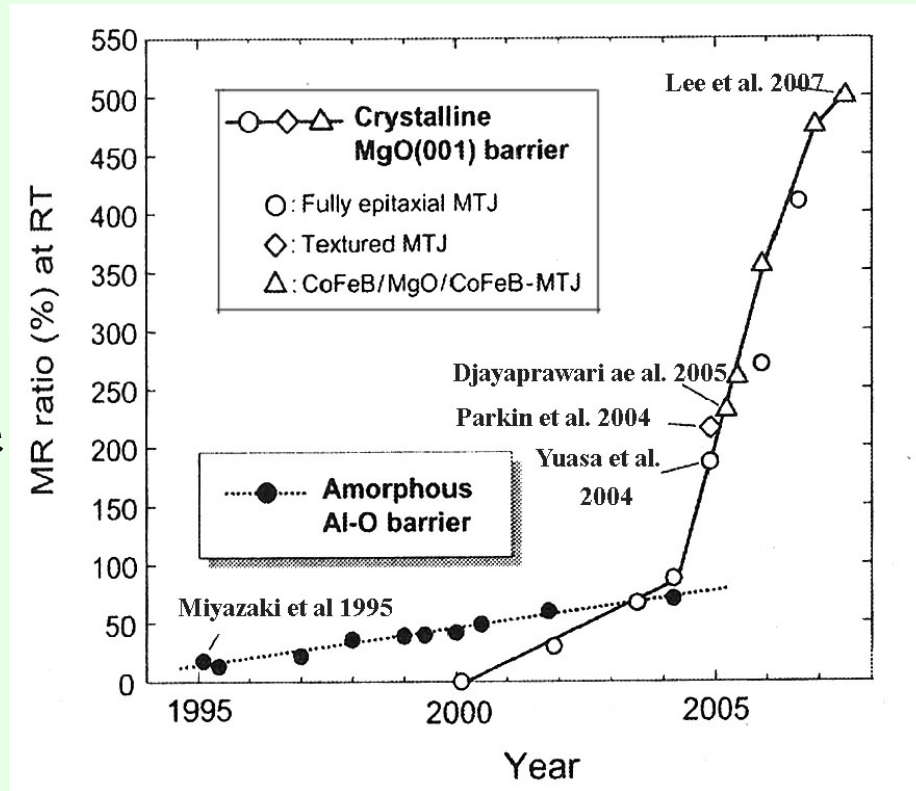


図1. トンネル磁気抵抗効果の進展のグラフ
[S. Yuasa: 第45回茅コンファレンス予稿集 (2007.8.19) p.19]

散漫散乱トンネルとコヒーレント・トンネル

■通常、トンネルする際スピンは保存され、散漫トンネルの場合TMRは一般に強磁性電極のスピン分極率 P ($i = 1, 2$)を用いて次のようなJullierの式で表されます。[1]

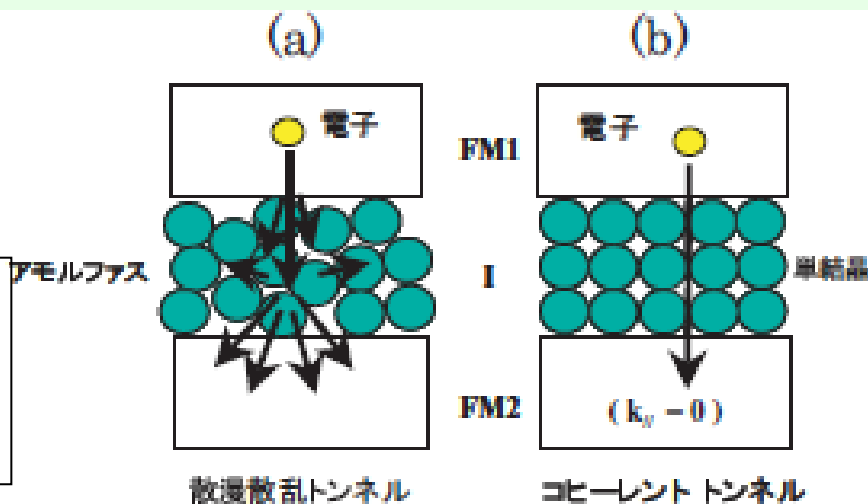
$$\text{TMR} = 2P_1P_2 / (1 - P_1P_2)$$

■MTJにおけるスピン分極率は磁性体固有のものではなく界面電子状態と関係し、バリア材料や界面性状に依存します。

■コヒーレントトンネルではエネルギーのほかに運動量が保存されるため、MRは電極のバンド構造を反映し、磁化が平行のときはトンネルできるが反平行のときはトンネルできません。そのため、1000%という巨大TMRが理論的に予測されました。[2]

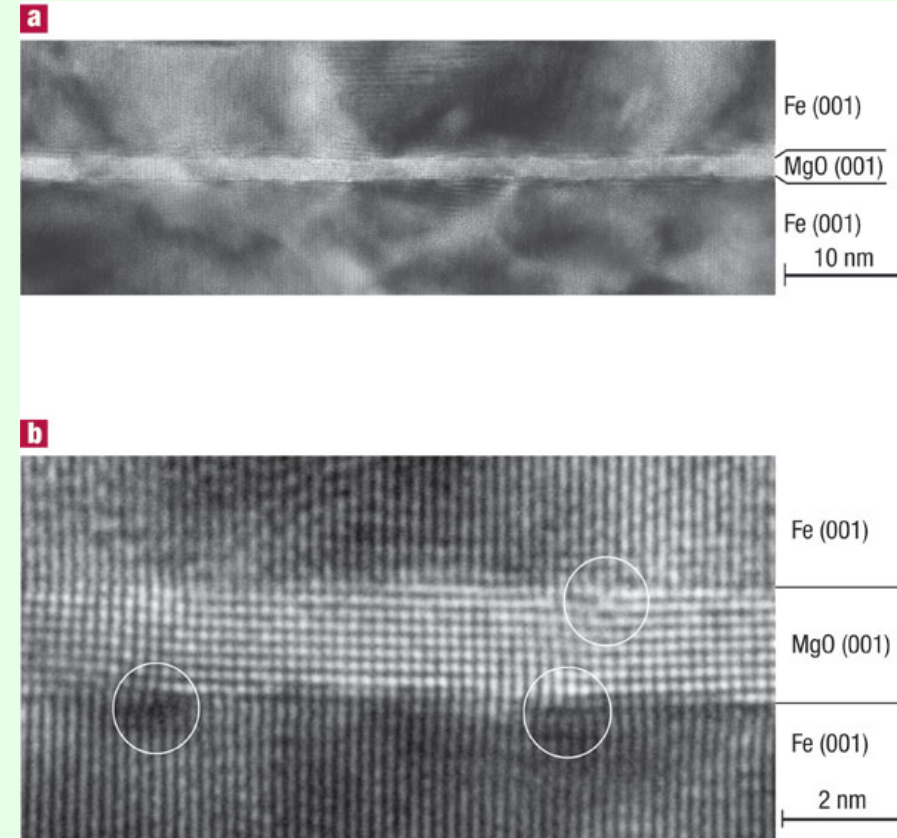
[1] M. Jullier, Phys. Lett. 54A, 225 (1975).

[2] W. H. Butler et al., Phys. Rev. B 63 (2001) 054416, J. Mathon and A. Umeski, Phys. Rev. B 63 (2001) 220403R



Fe/MgO/Fe構造のTEM像

- 理論の予測を受けて多くの研究機関が挑戦しましたが、成功しませんでした。
- YuasaらはFe(001)/MgO(001)/Fe(001)のエピタキシャル成長に成功し、トンネル層の乱れがほとんどない構造を得ています。また、界面でのFe酸化層も見られていません。
- 結晶性のよいMgOの成膜技術の確立があって初めてブレークスルーが得られたのです。まさに結晶工学の成果と言えるでしょう。



Nature Materials 3, 868–871 (2004)

Yuasaのこの結果は、JSTさきがけ神谷領域(ナノと物性)の第2期(2002-2005)における課題「超Gbit-MRAMのための単結晶TMR素子の開発」の成果です。

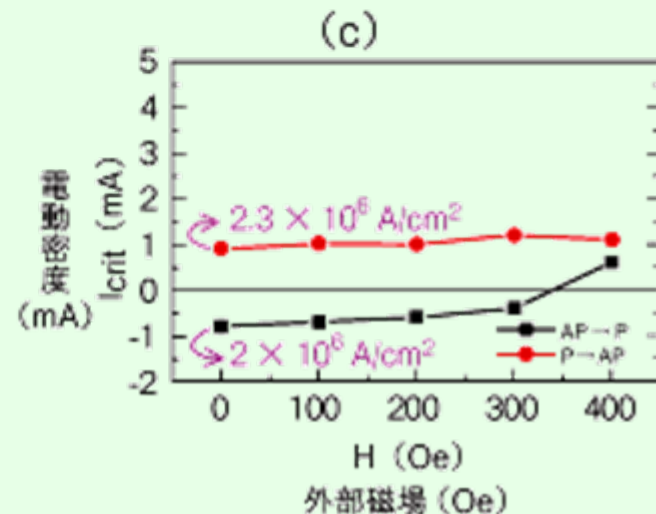
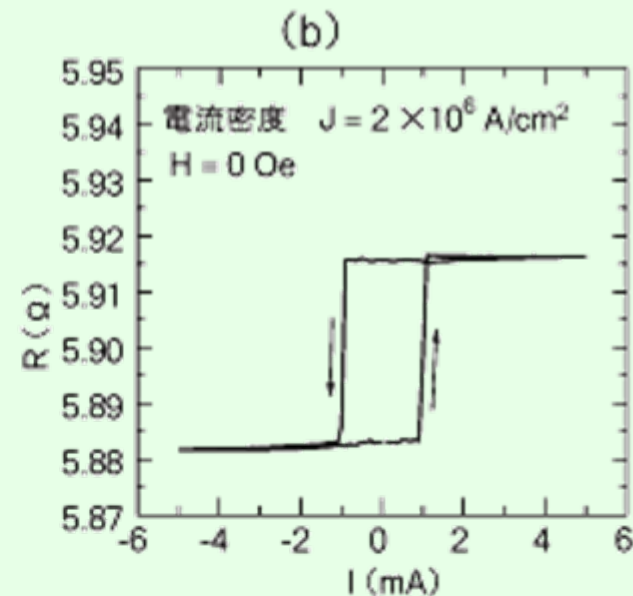
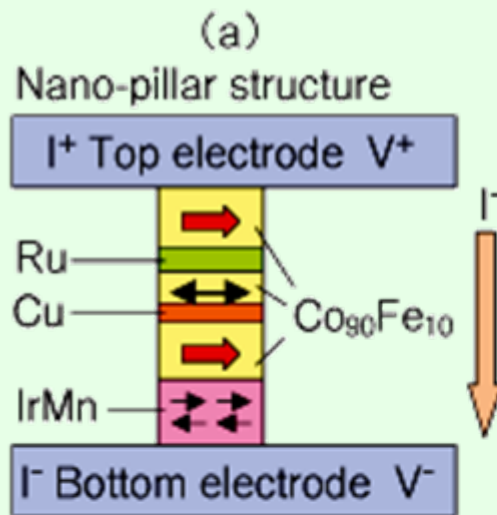
9. スピン注入磁化反転の提案と実現

- 1996年、新たなスピントロニクス分野としてスピン注入磁化反転のアイデアがSlonczewski [\[i\]](#) および Bergerら [\[ii\]](#) によって提案され、実験的に検証されました [\[iii\]](#)。強磁性電極からスピン偏極した電流を反平行なスピンをもつ対極強磁性電極に注入すると、スピン角運動量のトルクが対極電極の磁化にトランスファーされて磁化反転をもたらすというのです。
 - [\[i\]](#) J. Slonczewski: J. Magn. Magn. Mater. 159 (1996) L1.
 - [\[ii\]](#) L. Berger: Phys. Rev. B 54 (1996) 9353.
 - [\[iii\]](#) E. B. Myers, D. C. Ralph, J. A. Katine, R. N. Louie, R. A. Buhrman: Science 285 (2000) 865.

スピン注入磁化反転の実例

猪俣らの研究グループは、
IrMn/Co₉₀Fe₁₀/Cu/Co₉₀Fe₁₀
10 /Ru/Co₉₀Fe₁₀素子
([図a](#))を作成し、スピン注入
磁化反転の動作実験をしまし
た。

■この素子に直接電流を流したところ(スピン
注入)、電流の方向によって中央のCo₉₀Fe₁₀
合金層のスピンの向きが反転し、磁化が反
転することが観測されました([図b](#))。



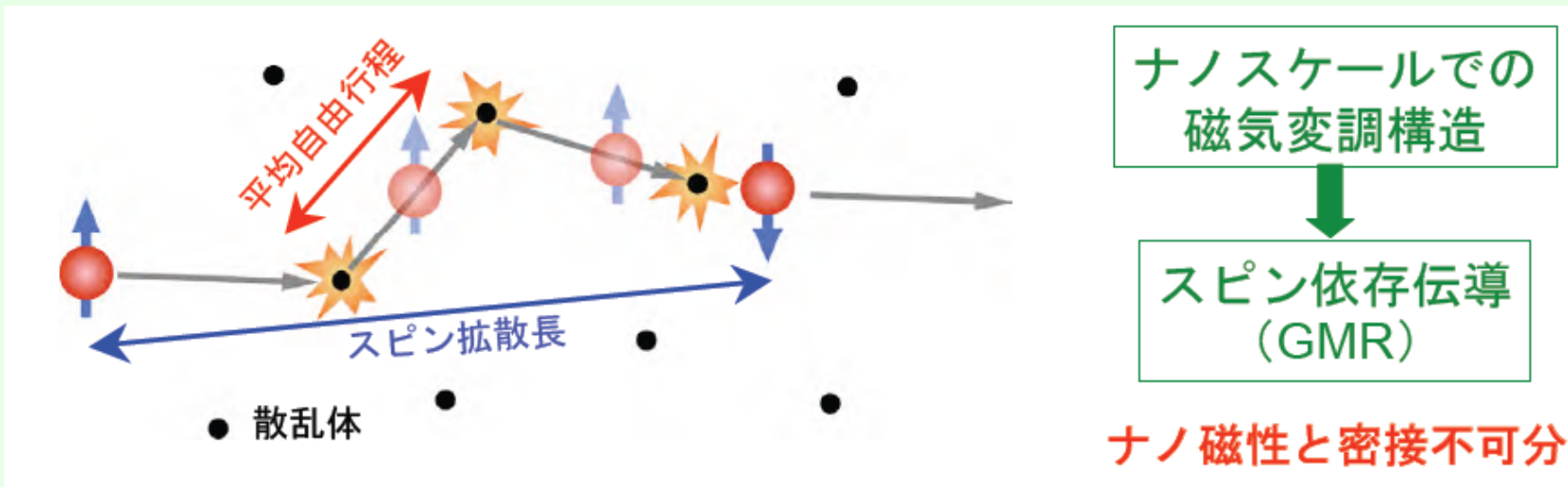
コイルによらず電流を磁気に変換

- 当初はGMR素子によって 10^7 - 10^8 A/cm²という大電流密度を必要としたので実用は無理であろうと言われましたが、現在ではMgO-TMR素子を用いて 10^6 A/cm²台の実用可能な電流密度にまで低減することができるようになりました^[ii]。
- これまではMRAMの記録のためには電流を流してそれが作る磁界で磁化反転をして記録していたので電力消費が集積化のネックでしたが、スピントルクを使うとMTJ素子に電流を流すことによって磁化反転できるので、高集積化が可能になります。
- かくして、ついに**人類は、コイルによらずに、電気を磁気に変換することに成功したのです。**

^[ii] 久保田均, 福島章雄, 大谷祐一, 湯浅新治, 安藤功児, 前原大樹, 恒川孝二, D. Djayaprawira, 渡辺直樹, 鈴木義茂: 日本応用磁気学会第145回研究会資料「スピン流駆動デバイスの最前線」(2006.1)p.43

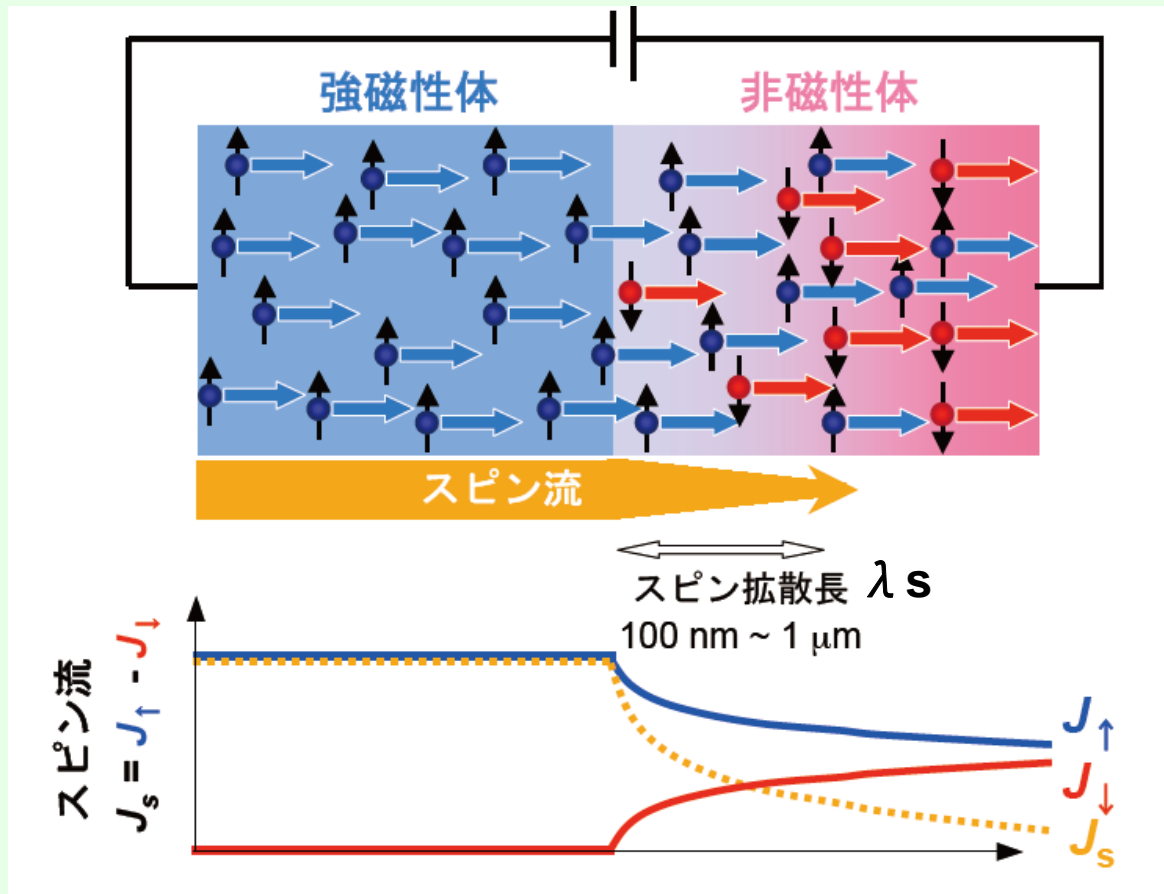
10. 大きなトピックス:「スピン流」

- 電荷の流れとしての電流は、平均自由行程(1-10nm)で表される散乱を受けますが、スピンの流れは電子の不純物やフォノンとの衝突の際にあまり散乱を受けないためスピン拡散長は平均自由行程よりかなり長く、強磁性金属で5-10nm、非磁性金属では100nm-1 μ mもあります。
- 非磁性の誘電体ではmmに達するものもあります。



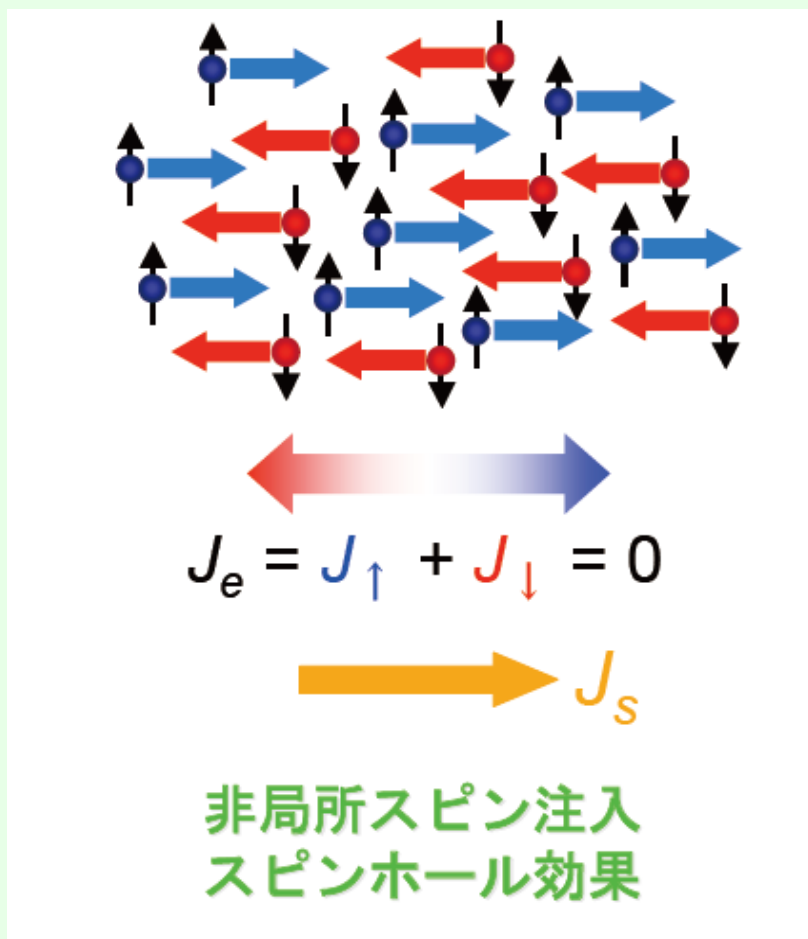
図は東北大高梨弘毅先生のご厚意による

(1) 電流を伴うスピンの流



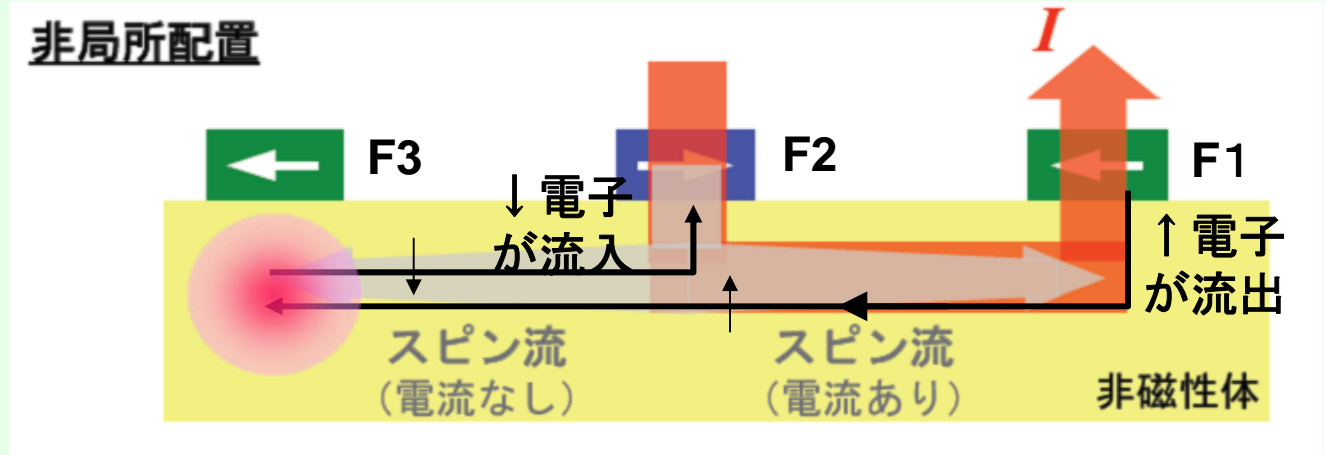
- **非磁性体**の中では本来 \uparrow スピンと \downarrow スピンの電子の数は等しいのです。
- **強磁性体**から \uparrow スピンをもつ電子が非磁性体への移動すると、界面からスピン拡散長 λ_s 離れたところまでは \uparrow スピンの数と \downarrow スピンの数がアンバランスな状態が生じます。
- このことを**スピン注入**が起きているといいます。

(2) 電流を伴わないスピンの流



- \uparrow スピンの電子が右方向に進み \downarrow スピンの電子が左方向に進むとすれば、電荷の流れとしての電流は流れません。
- 一方、スピンだけを見ると、 \uparrow スピンは右側に、 \downarrow スピンは左側に流れますから、 $J_{\uparrow} - J_{\downarrow}$ で定義されるスピンの流は右に向かって流れるのです。

スピン流を作る

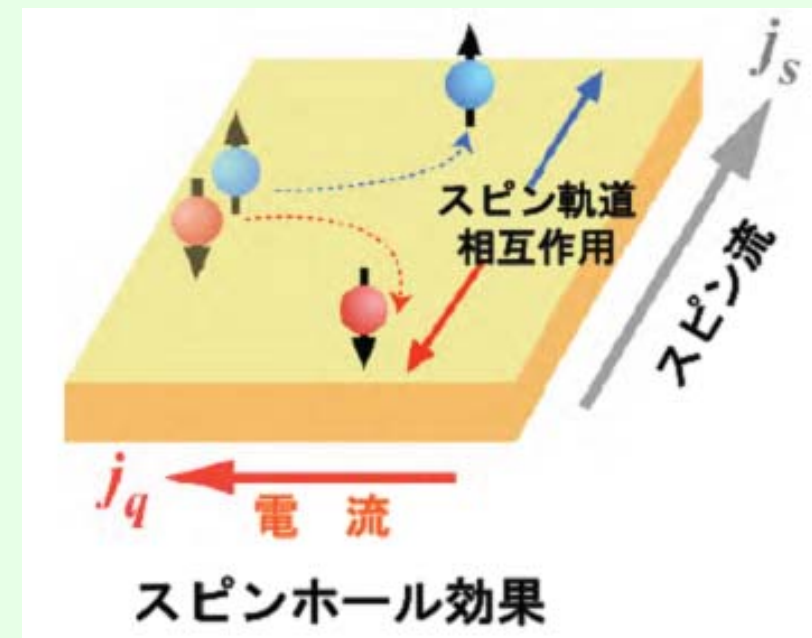


- 非磁性体に、3つの強磁性電極をつけて、F2の磁化はF1に反平行、F3の磁化はF1に平行としましょう。
- このとき、F2からF1に電流を流すと、F1から非磁性体に注入された↑スピン電子はF2には入れませんからF2・F3間に流れ出します。
- それでもF2からF1に電流を流さなければなりませんから、F2・F3間から↓スピン電子が流れ込みます。この結果、F2・F3間には正味の電流は流れませんが、スピン流($J_{\uparrow} - J_{\downarrow}$)は左に流れます。
- この結果、F3付近には**スピンの蓄積**が起きます。

スピン流を観る

(1) スピンホール効果

- スピン流の性質を端的に表しているのがスピンホール効果です。
- 普通のホール効果は磁界下に置かれたキャリアがローレンツ力で電流に垂直な方向に曲げられる効果です
- スピンホール効果では、電流が流れるだけで、スピン軌道相互作用の効果で↑スピンと↓スピンのキャリアが左右に分離され、電流 j_q と垂直方向にスピン流 j_s を生じるのです。

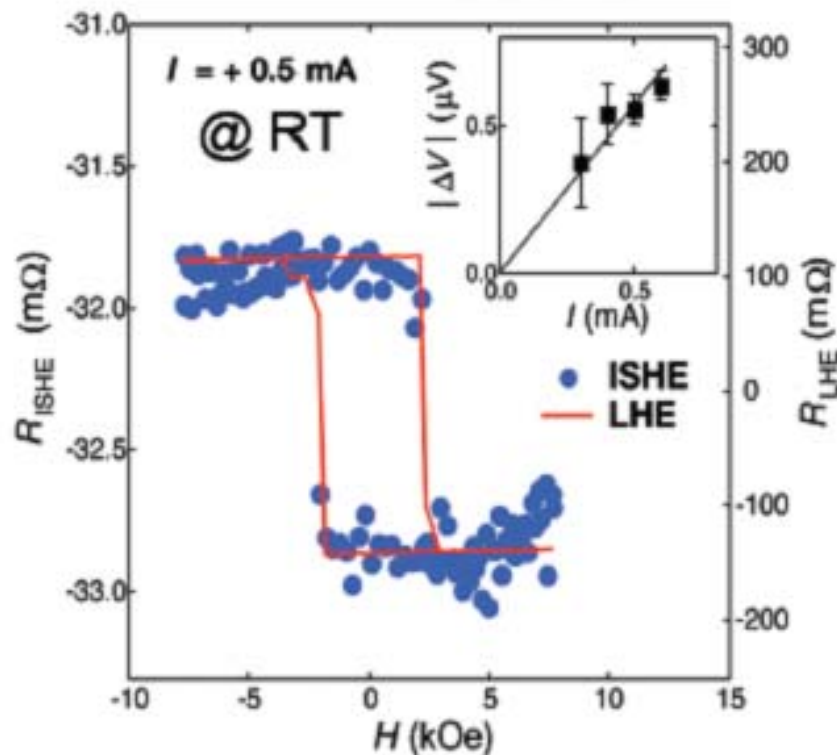
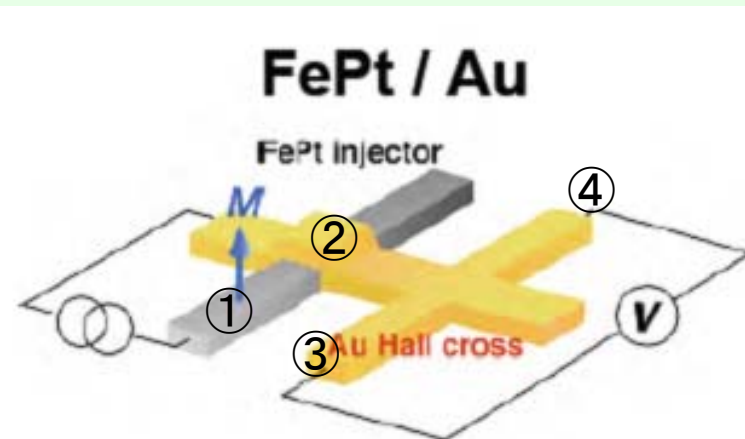


S. Murakami, N. Nagaosa, S.C.
Zhang: Science 301 (2003) 1348.

図は東北大高梨弘毅先生のご厚意による

スピンホール効果の実験

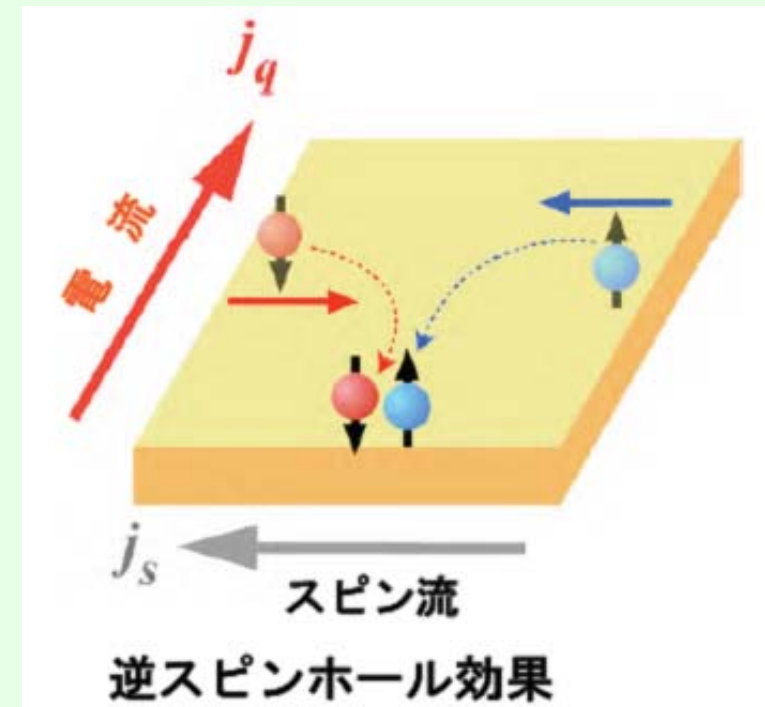
- 強磁性体FePt①からAu②に電流を流すことによって、非局所配置にあるAuバーの③④電極間に電圧が生じます。
- このことはFePtからAuに注入されたスピン流が拡散して、スピンホール効果をもたらしていると考えられています。



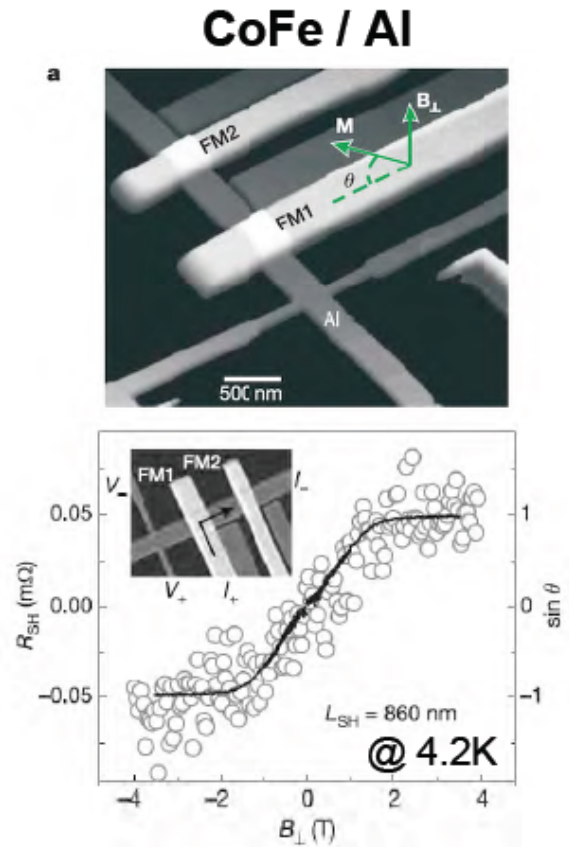
スピン流を観る

(2) 逆スピンホール効果

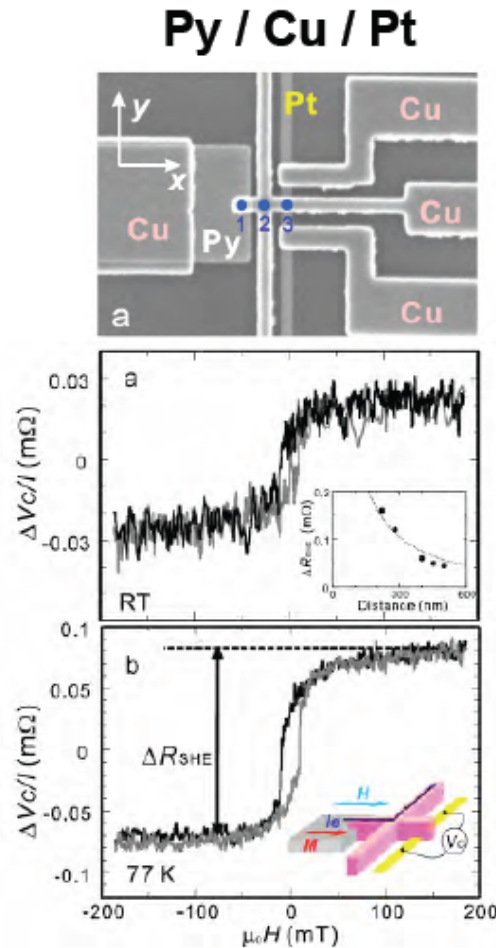
- スピンホール効果と逆にスピン流 j_s を流すと、垂直方向に電流 j_q が流れる効果があります。
- スピン軌道相互作用の効果で **↑スピンは左に**、**↓スピンは右に** 曲げられます。その結果、**スピン流 j_s** と垂直方向に **電流 j_q** が生じるのです。



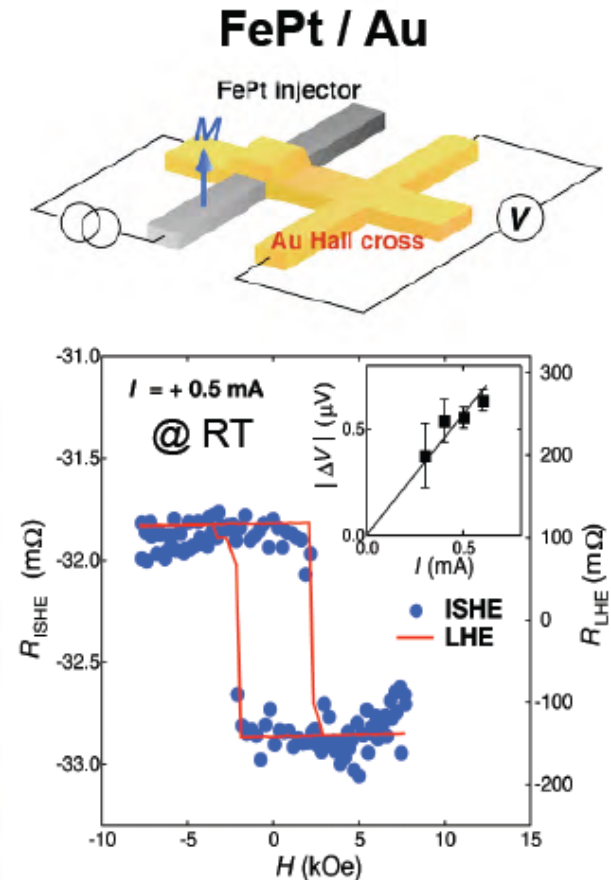
スピントール効果：最近の実験結果



S. O. Valenzuela, M. Tinkham,
Nature **442**, 176 (2006).



T. Kimura *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*,
98, 156601 (2007).

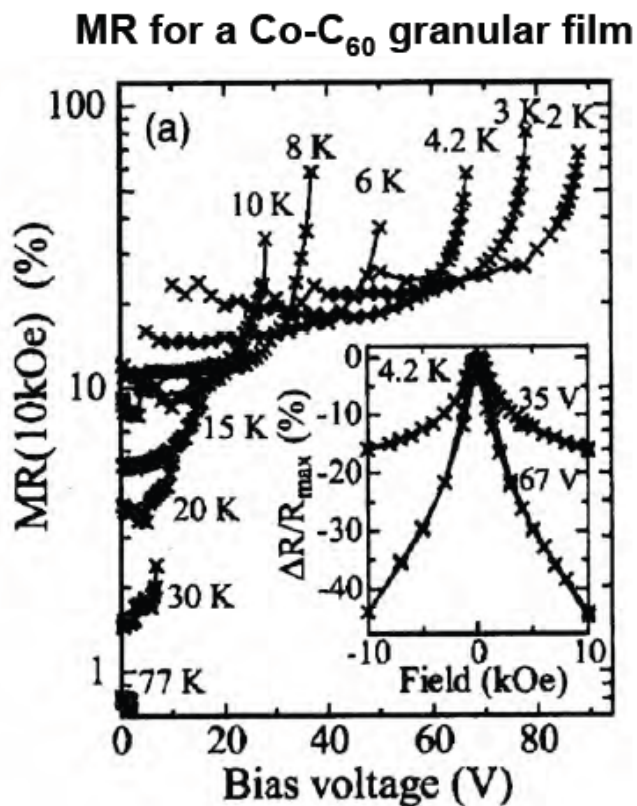


$$\alpha_H \sim 0.1$$

T. Seki *et al.*, **14pC-11**

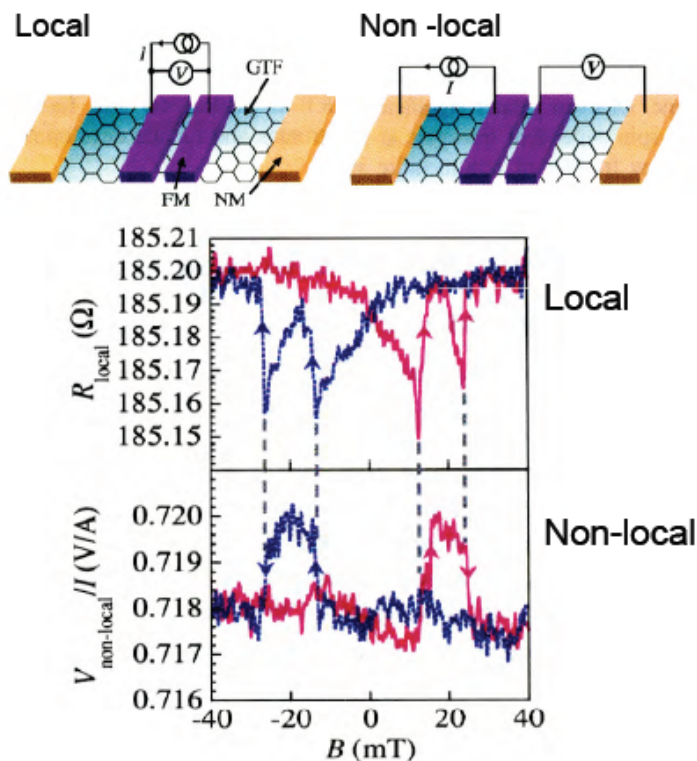
分子スピノエレクトロニクス

- フラーレン、グラフェン、ルブレンなどにおいては、スピン軌道相互作用の小さな炭素をスピン流が流れるので、スピン拡散長がきわめて長いので、大きなMR効果、スピン蓄積効果が期待されます。




S. Sakai *et al.*, Appl. Phys. Lett., 89 (2006) 113118.
境誠司ら, 13aC-12.

Spin injection into graphene at RT



M. Ohishi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) L605.
白石誠司ら, 14pC-10.



おわりに

熱い視線を浴びる発展途上分野

- このように、スピン注入、スピン蓄積、スピン緩和など**スピン流**の制御は、CMOSに代表されるSiのデバイスが限界を迎えつつあるいま、それに代わる新しい革新的次世代デバイス技術の芽として熱い視線を浴びているのです。
- スピン科学は、ナノという舞台を得て、大きく育ちつつあります。Nagaosaは、強磁性体における異常ホール効果をベリー位相という量子論の深淵のコンセプトで説明し、彼は固体の中に宇宙論が成立すると言っています [\[i\]](#)。
- この分野は進歩が速すぎて一時も目が離せないほどです。理論と実験がかみ合って、新しい世界が開かれる予感を感じます。

[\[i\]](#) 永長直人: 固体物理41 (2006) 877, 同42 (2007) 1, 同42 (2007) 487.