

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5598975号
(P5598975)

(45) 発行日 平成26年10月1日(2014.10.1)

(24) 登録日 平成26年8月22日(2014.8.22)

(51) Int.Cl.

H 0 1 L 29/82 (2006.01)

F I

H 0 1 L 29/82

Z

請求項の数 2 (全 19 頁)

| | | | |
|-----------|------------------------------|-----------|---------------------|
| (21) 出願番号 | 特願2010-197047 (P2010-197047) | (73) 特許権者 | 503359821 |
| (22) 出願日 | 平成22年9月2日(2010.9.2) | | 独立行政法人理化学研究所 |
| (65) 公開番号 | 特開2012-54470 (P2012-54470A) | | 埼玉県和光市広沢2番1号 |
| (43) 公開日 | 平成24年3月15日(2012.3.15) | (74) 代理人 | 100100549 |
| 審査請求日 | 平成25年8月12日(2013.8.12) | | 弁理士 川口 嘉之 |
| | | (74) 代理人 | 100106622 |
| | | | 弁理士 和久田 純一 |
| | | (74) 代理人 | 100089244 |
| | | | 弁理士 遠山 勉 |
| | | (72) 発明者 | 福岡 康裕 |
| | | | 埼玉県和光市広沢2番1号 独立行政法人 |
| | | | 理化学研究所内 |
| | | (72) 発明者 | 大谷 義近 |
| | | | 埼玉県和光市広沢2番1号 独立行政法人 |
| | | | 理化学研究所内 |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 スピン注入源およびその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

非磁性導電体と、

前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と、

前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、

から構成され、前記強磁性体から前記非磁性導電体にスピンを注入するスピン注入源であって、

前記MgO膜は、界面抵抗 R_I ($\Omega \cdot \text{m}^2$)と膜厚 t (nm)の間に以下の関係が成立する、

スピン注入源。

【数1】

$$R_I \propto e^{\alpha \cdot t}, \quad 0.7 \leq \alpha \leq 1.2$$

【請求項2】

非磁性導電体と、

前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と、

前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、

から構成され、前記強磁性体から前記非磁性導電体にスピンを注入するスピン注入源であって、

前記MgO膜は、界面抵抗が $1 \sim 10^3 \Omega \cdot \text{m}^2$ であって、膜厚が2nm以上である、

10

20

スピン注入源。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、高いスピン注入効率を有するスピン注入源およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

電子のスピンを利用した高機能性素子の創出を目指す研究分野はスピントロニクスと呼ばれ、従来の半導体素子の技術限界を打破する新しい技術として期待されている。たとえば、スピン蓄積効果を利用した素子（スピン蓄積素子）は、 1 Tbit/inch^2 の記録密度を実現するハードディスクドライブの読み出しヘッドや不揮発性磁気メモリへの応用が期待されている。しかしながら、その出力信号は一般的な報告で数 μV 、最大でも数十 μV 程度である。この微弱な信号を増大させることが、実用化に向けての大きな課題である。

10

【0003】

面内スピンバルブでは、非磁性体と強磁性体の接合面に電流を流すことによって、非磁性体内にスピンが注入・蓄積される。面内スピンバルブにおける接合面は、オーミック接合とトンネル接合の2種類に分類できる。オーミック接合では、強磁性体と非磁性体とが直接接合され、界面抵抗が小さいことを特徴とする。このとき、強磁性体はスピン抵抗が小さく、非磁性体はスピン抵抗が大きいため、両者のスピン抵抗は非整合であるために効率的なスピン注入は困難となり、スピン蓄積抵抗変化 R_S は1 m程度と小さい。トンネル接合では、強磁性体と非磁性体の間に絶縁層が設けられ、界面抵抗が大きいことを特徴とする。スピン抵抗の非整合が解消されるためトンネル接合では大きな R_S を実現できる。しかし、印加電圧の増加とともにスピン注入効率が下がってしまうので、スピンバルブ信号電圧はそれほど大きくならない。

20

【0004】

本発明者らは、強磁性体（NiFe）、MgO、非磁性体（Ag）からなるスピン注入素子において、従来のトンネル接合よりも低抵抗なMgO層を用いても、スピン抵抗の非整合を解消できることを見いだした（非特許文献1）。ここで、MgO層の電気抵抗は従来のトンネル接合に用いられるものよりも2桁程度小さい。スピン蓄積電圧はスピン蓄積抵抗変化と電流の積で表せ（ $V = R_S \times I$ ）、低抵抗なMgOではより大きな電流を印加できるため、スピンバルブ信号を大きくすることができる。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2004-186274号公報

【特許文献2】特開2004-342241号公報

【特許文献3】特開2005-19561号公報

【特許文献4】特開2005-135462号公報

【特許文献5】特開2007-155854号公報

40

【特許文献6】特開2007-294710号公報

【非特許文献】

【0006】

【非特許文献1】Y. Fukuma, et al., "Enhanced spin accumulation obtained by inserting low-resistance MgO interface in metallic lateral spin valves", Applied Physics Letters, vol. 97, 012597 (2010)

【非特許文献2】S. Takahashi and S. Maekawa, "Spin injection and detection in magnetic nanostructures", Physical Review B, vol. 67, 052409 (2003)

【非特許文献3】S. O. Valenzuela and M. Tinkham, "Spin-polarized tunneling in room-temperature mesoscopic spin valves", Applied Physics Letters, vol. 85, 5914

50

(2004)

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は、従来よりもさらにスピン注入効率の高いスピン注入源を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記の課題を解決するために、本発明に係るスピン注入源は、非磁性導電体と、前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、から構成され、前記MgO膜は、300 ~ 500 で熱処理されたものであることを特徴とする。この熱処理は、30分 ~ 60分間施されることが好ましい。

10

【0009】

本発明に係るスピン注入源は、非磁性導電体と、前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、から構成され、前記MgO膜は、酸素欠損量が5%以上17%以下である、と特定することもできる。

【0010】

また、本発明に係るスピン注入源は、非磁性導電体と、前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、から構成され、前記MgO膜において、界面抵抗 R_I ($\Omega \cdot \text{m}^2$)と膜厚 t (nm)の間に以下の関係が成立する、と特定することもできる。

20

【数1】

$$R_I \propto e^{\alpha t}, \quad 0.7 \leq \alpha \leq 1.2$$

【0011】

また、本発明に係るスピン注入源は、非磁性導電体と、前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、から構成され、前記MgO膜において、界面抵抗が $1 \sim 10^3 \Omega \cdot \text{m}^2$ であって、膜厚が2nm以上である、と特定することもできる。

30

【0012】

また、本発明に係るスピン注入源の製造方法は、非磁性導電体と、前記非磁性導電体上に形成される導電性を有するMgO膜と前記MgO膜を介して前記非磁性導電体上に形成される強磁性体と、から構成されるスピン注入源の製造方法であって非磁性導電体、MgO膜、強磁性体の順で積層された膜構造を作製する工程と、前記MgO膜に、300 ~ 500 で熱処理を施す工程と、を含むことを特徴とする。

【発明の効果】

【0013】

本発明に係るスピン注入源によれば、スピン注入効率を従来よりも向上させることができる。

40

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】本実施形態に係るスピン注入源の基本構造を示す図である。

【図2】実施例に係るスピン蓄積素子の走査型電子顕微鏡像を示す図である。

【図3】実施例に係るスピン蓄積素子におけるスピン注入用電極の透過型電子顕微鏡による断面像を示す図である。

【図4】実施例に係るスピン蓄積素子におけるMgO膜の界面抵抗の膜厚依存特性を示す図である。

50

【図 5】実施例に係るスピン蓄積素子を用いたスピン注入実験の結果であり、スピン蓄積抵抗の変化を示す図である。

【図 6】実施例に係るスピン蓄積素子のスピン蓄積抵抗変化の MgO 膜界面抵抗依存特性を示す図である。

【図 7】実施例に係るスピン蓄積素子のスピン蓄積量 V の印加電流依存特性を示す図である。

【図 8】実施例に係るスピン蓄積素子のスピン蓄積抵抗変化 R_s の印加電流依存特性を示す図である。

【図 9】実施例に係るスピン蓄積素子のスピン蓄積量 V の印加電流およびスピン注入電極・スピン検出電極間距離に対する依存特性を示す図である。

10

【図 10】実施例に係るスピン蓄積素子における MgO 界面のスピン分極率及び銀のスピン拡散長の印加電流依存特性を示す図である。

【図 11】比較例（熱処理無し）のスピン蓄積素子における MgO 膜の界面抵抗の膜厚依存特性を示す図である。

【図 12】比較例（熱処理無し）のスピン蓄積素子におけるスピン蓄積抵抗変化 R_s の印加電流依存特性を示す図である。

【図 13】熱処理温度と MgO 膜の界面抵抗の関係を示す図である。

【図 14】熱処理温度とスピン蓄積抵抗変化の関係を示す図である。

【図 15】熱処理温度と MgO 界面のスピン分極率および銀のスピン拡散長の関係を示す図である。

20

【図 16】熱処理したスピン蓄積素子の断面 TEM 像 (A) と、導電性 MgO 膜の組成面分析結果 (B - E) を示す図。

【発明を実施するための形態】

【0015】

< 構造 >

本発明に係るスピン注入源の基本構造は、図 1 A に示すように、非磁性体 21、導電性 MgO 層 22、強磁性体 23 の三層構造である。非磁性体 21 および強磁性体 23 の間に電圧を印加して、導電性 MgO 層 22 を通じてスピン注入が行われる。スピン注入用電極は、素子構造や素子機能の目的に応じて任意に増やすことができる。図 1 B では、非磁性体の異なる側に、導電性 MgO 層 22 / 強磁性体 23 と導電性 MgO 層 24 / 強磁性体 25 の二つの電極を設け、強磁性体 23、25 間に電圧を印加して非磁性体 21 にスピン注入している。図 1 C では、非磁性体の同じ側に、導電性 MgO 層 22 / 強磁性体 23 と導電性 MgO 層 24 / 強磁性体 25 の二つの電極を設け、強磁性体 23、25 間に電圧を印加して非磁性体 21 にスピン注入している。

30

【0016】

図 1 B、1 C に示すスピン注入源においては、スピン注入電極を 2 つ利用しているので、非磁性体 21 中のスピン蓄積量を図 1 A のスピン注入源と比較して 2 倍にできる。ただし、強磁性体 23 と強磁性体 25 の磁化の向きを反平行にする必要がある。これは、一方のスピン注入電極では強磁性体から非磁性体へと電流が流れているが、他方のスピン注入電極においては非磁性体から強磁性体へと電流が流れ、その向きが反対であるためである。非磁性体層に蓄積されるスピンの向きは、強磁性体の磁化の方向と電流の向きに依存する。強磁性体 23 と 25 の磁化が同方向の場合、電流の向きが反対であるために、両スピン注入電極から非磁性体 21 へと流れるスピンが互いに相殺されてしまう。強磁性体 23 と 25 の磁化方向を互いに反平行状態にすることで、両スピン注入電極から非磁性体 21 へと流れるスピンの向きを同一にでき、図 1 A の場合と比較して 2 倍のスピン流が非磁性体へと注入されることになる。

40

【0017】

強磁性体 23、25 に用いる材料としては、Ni、Fe、Co およびその合金、Co-Fe-B 等のアモルファス材料、Co-Mn-Si や Co-Cr-Fe-Al 等のホイスラー材料、La-Sr-Mn-O 等の酸化物材料、GaMnAs 等の強磁性半導体材料な

50

どが利用できる。また、上記の中から一種を選択して強磁性体薄膜としても良いし、複数を
選択して多層薄膜として構成しても良い。また、磁気特性や化学特性を制御するために、
Ti、V、Cr、Mn、Cu、Zn、B、Al、G、C、Si、Ge、Sn、N、P、
Sb、O、S、Mo、Ru、Ag、Hf、Ta、W、Ir、Pt、Au等の非磁性体元素
を適宜添加しても良い。

【0018】

なお、強磁性体層の膜厚は、読み出し時のノイズや磁気特性を考慮すると、2nm以上
であることが望ましい。また、強磁性体の磁化方向を一方向に強く固定する目的で、Mn
Ir、MnPt、MnRh等の反強磁性体層を強磁性体上に設置することも好ましい。

【0019】

非磁性体21は、Cu、Au、Ag、Pt、Al、Pd、Ru、Ir、Rh等から選択
される非磁性体導電性金属、又は、GaAs、Si、TiN、TiOを主成分とする導電
性化合物などを利用できる。

【0020】

導電性MgO層22、24は、作製後に熱処理を行って酸素欠損量を多くして界面抵抗
を低くしたものである。熱処理を施す点が非特許文献1のスピン注入源（以下、「比較例
」と呼ぶ）と異なる点である。本実施形態における導電性MgO層の特性については、ス
ピン注入源の製造方法を説明した後に詳細に説明する。

【0021】

<製造方法>

次に、本実施形態に係るスピン注入源の製造方法について説明する。スピン注入源は、
Si基板やガラス基板やMgO基板などの上に作製される。

【0022】

リフトオフ法で作製する場合、始めに基板上にレジストを塗布する。その後、電子線描
画装置、ステッパーを利用し、スピン注入源の電極パターンを作製する。その形状は任意
に選択でき、実際の素子応用には検出用電極パターン等も必要であるために、スピン注入
源の電極パターンと同時に作製する。細線パターンが形成された基板は、超高真空薄膜形
成装置内に搬送される。図1Aおよび図1Cに示す構造を作製するときには、非磁性体薄
膜21、MgO薄膜22、24、強磁性体薄膜23、25を順次製膜する。図1Bに示す
構造を作製するときには、強磁性体薄膜23、MgO薄膜22、非磁性体薄膜21、Mg
O薄膜24、強磁性体薄膜25を順次製膜する。強磁性体膜や非磁性体膜には上述したよ
うな材料を用いることができる。薄膜製作方法は、スパッタ法、電子ビーム加熱蒸着法、
分子線蒸着法等から薄膜材料に応じて、最適なものを選択できる。MgO薄膜22、24
には酸素欠損を導入する必要があるために、MgOの単結晶体や多結晶体を蒸着源として
利用し、超高真空内で蒸着することが望ましい。その酸素欠損の量は、蒸着源に供給する
パワーによって制御できる。例えば、高温に加熱すれば酸素欠損の量は増加する。また、
複雑な構造を作製する場合、多層レジスト構造（例えば、MMA/PMMA）を利用した
3次元リフトオフパターンを作製し、蒸着源と基板との相対角度を調整し、蒸着元素の基
板への入射角度を調整する必要がある。薄膜製作後、リフトオフを行うことでスピン注入
源を得ることができる。

【0023】

第2の方法としてイオンミリングなどのエッチング法で作成することもできる。図1A
に示す構造を作製するときには、基板上に非磁性体/MgO/強磁性体の多層膜構造を作
製する。薄膜製作方法は、スパッタ法、電子ビーム加熱蒸着法、分子線蒸着法等から薄膜
材料に応じて、最適なものを選択できる。MgO薄膜には酸素欠損を導入する必要がある
ために、MgOの単結晶体や多結晶体を蒸着源として利用し、超高真空内で蒸着するこ
とが望ましい。この多層膜にレジストを塗布し、電子線描画装置、ステッパーを利用し、ス
ピン注入源用電極パターンを作製する。その後、Arイオンミリング等を利用し、スピン
注入源を得ることができる。

図1Bに示す構造を作製するときには、始めに基板上に強磁性体/MgO膜を作製する

10

20

30

40

50

。このMgO膜上にレジストを塗布し、電子線描画装置、ステッパーを利用し、下部スピ
ン注入電極構造を作製し、Arイオンミリング等により、下部スピ
ン注入電極（22と23）を削りだす。その後、MgOの表面清浄化処理を行い、非磁性体薄膜を作製する。非
磁性体薄膜上にレジストを塗布し、電子線描画装置、ステッパーを利用し、非磁性体構造
を作製し、Arイオンミリング等により非磁性体電極21を削りだす。その後、非磁性体
電極の表面清浄化処理を行い、MgO/強磁性体膜を作製する。強磁性体薄膜上にレジス
トを塗布し、電子線描画装置、ステッパーを利用し、上部スピ
ン注入電極構造を作製し、
Arイオンミリング等により上部スピ
ン注入電極（24と25）を削りだす。更に、多層
膜構造等利用する場合は、上記の作製過程を繰り返し利用できる。上述のように、強磁性
体23と25の磁化の相対方向は、磁場等を利用して反平行状態にする必要がある。

10

図1Cに示す構造を作製するときには、始めに基板の上に非磁性体膜を作製する。この非
磁性体薄膜上にレジストを塗布し、電子線描画装置、ステッパーを利用し、非磁性体電極
構造を作製し、Arイオンミリング等により、非磁性体電極21を削りだす。その後、非
磁性体表面清浄化処理を行い、MgO/強磁性体薄膜を作製する。非磁性体薄膜上にレジ
ストを塗布し、電子線描画装置、ステッパーを利用し、スピ
ン注入電極構造を作製し、A
rイオンミリング等により第1のスピ
ン注入電極（22と23）と第2のスピ
ン注入電極（24と25）を削りだす。この場合も、強磁性体23と25の磁化の相対角度を反平行
状態にする必要がある。

【0024】

MgO層の酸素欠損量を増やすために、必要に応じてMgO層作製後、あるいは素子構
造作製後に、高真空（ 10^{-5} Torr程度）や水素雰囲気（窒素97%+水素3%）中で熱処
理する。素子構造や材料により条件は変える必要があるが、300～500、30～6
0分間の熱処理が好ましい。

20

【0025】

<実施例>

スピ
ン注入源の特性評価のために、図2に示すスピ
ン蓄積素子を作製した。図2は作製
したスピ
ン蓄積素子の走査型電子顕微鏡（SEM）像である。スピ
ン注入電極11が本発
明に係るスピ
ン注入源に相当する。このスピ
ン注入源の評価のために、スピ
ン検出用電極
12も設置してある。以下図2に示すスピ
ン蓄積素子の製造方法を説明する。まず、Si
/SiO₂基板上に2層電子線レジスト（MMA/PMMA）を作製した。電子線ビーム
描画装置により、素子構造パターンを描画した。その後、この基板を超高真空蒸着装置内
（ 10^{-8} Torr程度）に搬送し、電子ビーム蒸着によりNiFe（Py）膜を20nm、M
gO膜を8nm、Ag膜を50nm基板上に作製した。ここでは、スピ
ン注入用強磁性体
/MgO電極11およびスピ
ン検出用強磁性体/MgO電極12を得るために、NiFe
膜およびMgO膜の基板への入射角度は45度とした。Ag膜は通常の入射角度90度で
作製した。リフトオフを行い、図2のような素子構造を得た。その後、窒素（97%）+
水素（3%）雰囲気中、400で30分間の熱処理を行った。（熱処理条件の詳細につ
いては後述する）

30

【0026】

・MgO層の酸素欠損量

40

図3に、透過型電子顕微鏡（TEM）により測定したスピ
ン注入用強磁性体/MgO電
極（図2の11）の断面像を示す。MgO層32はNiFe細線31を均一に覆っている
ことが分かる。このMgO層の組成分析をエネルギー分散X線分光（EDX）法により行
った。熱処理前と比較して、酸素の比率が約6%減少していた。

【0027】

・MgO層の界面抵抗

図4に、図2のスピ
ン蓄積素子において、端子14と端子16に電流源を接続し、端子
18と端子13に電圧計を接続して測定したNiFe/MgO/Ag界面抵抗のMgO膜
厚依存性を示す。この界面抵抗 R_I の膜厚 t_{MgO} 依存性は指数関数で表わされる。

【数 2】

$$R_I(f\Omega m^2) \propto e^{0.76t_{MgO}(nm)} \quad \cdot \cdot \quad (式 1)$$

図 4 中の実線は実験値からのフィッティング線を表す。また、この界面の電流 電圧特性は直線的変化を示しており、電気伝導性を示す MgO 膜という特徴をもつ。

【0028】

・ スピン蓄積量

続いて、スピン注入実験を行った。スピン注入実験では、端子 14 と端子 18 に電流源を接続し、0.2 mA の電流を印加した。スピン流は、強磁性体 31 から MgO 層 32 を通じて非磁性体 33 中に注入される。その後、スピン流は非磁性体細線を検出電極 12 方向へと拡散する。このため、電圧計を端子 13 と端子 15 に接続することにより、スピン蓄積のスピン方向とスピン検出用強磁性体電極 12 の磁化方向に依存した信号を検出できる。その結果を図 5 に示す。図 5 には低温 (10 K) と室温 (RT = 300 K) での測定結果を示している。

【0029】

磁場を変えることにより、スピン注入用電極 11 とスピン検出用電極 12 の磁化方向を変化させた。初めに、1000 Oe 程度の高磁場を強磁性体細線方向に印加した。この時、スピン注入用電極 11 およびスピン検出用電極 12 の強磁性体の磁化方向は磁場印加方向である。磁場をゼロに戻し、反対方向に印加すると約 -400 Oe で検出用電極 12 の磁化が反転している。このために、抵抗値は小さくなっていることがわかる。その後、さらに磁場を大きくすると、約 -500 Oe で注入用電極 11 の磁化も磁場方向に反転し、高抵抗状態に戻る。両方の強磁性体の磁化反転が起きた後、今度はプラス方向に磁場を戻す。すると、約 400 Oe で検出用電極 12 の磁化が反転し、その後約 600 Oe で注入用電極 11 の磁化が反転していることがわかる。この平行、反平行状態の磁化配列に起因した電圧変化 V は、非磁性体中のスピン蓄積量に比例する。 $V = R_s \times I$ を大きくするためには、印加電流を大きく、かつ抵抗変化 (スピン蓄積抵抗変化) が大きな素子が好ましい。

【0030】

図 5 からわかるように、本実施例によるスピン蓄積素子では、スピン蓄積抵抗変化 R_s が低温 (10 K) で約 100 m Ω 、室温 (300 K) でも約 50 m Ω という大きな値を示すことがわかった。

【0031】

スピン蓄積抵抗変化 R_s の MgO 膜界面抵抗の依存性を調べるために、MgO 膜の膜厚が異なる複数の素子でのスピン蓄積抵抗変化を測定した。その結果を図 6 に示す。非特許文献 2 に報告された 1 次元スピン流回路モデルによる R_s の理論式は、次式で表される。

【数 3】

$$\Delta R_s = 2R_{SN} \frac{\left(P_i \frac{R_{SI}}{R_{SN}} + P_F \frac{R_{SF}}{R_{SN}} \right)^2 e^{-\frac{d}{\lambda_N}}}{\left(1 + 2 \frac{R_{SI}}{R_{SN}} + 2 \frac{R_{SF}}{R_{SN}} \right)^2 - e^{-\frac{2d}{\lambda_N}}} \quad \cdot \cdot \cdot \quad (式 2)$$

ここで、 R_{SN} は Ag (非磁性体) のスピン抵抗、 P_i は MgO 界面のスピン分極率、 R_{SI} は MgO 界面のスピン抵抗、 P_F は NiFe (強磁性体) のスピン分極率、 R_{SF} は NiFe のスピン抵抗、 d はスピン注入用電極とスピン検出用電極間の距離、 λ_N は Ag のスピン緩和長である。 R_{SN} 、 R_{SI} 、 R_{SF} はそれぞれ、

10

20

30

40

50

【数 4】

$$R_{SN} = \frac{2\rho_N\lambda_N}{t_N w_N} \quad \dots (式3)$$

$$R_{Si} = \frac{2R_i}{w_F w_N} \left(\frac{1}{1-P_i^2} \right) \quad \dots (式4)$$

$$R_{SF} = \frac{2\rho_F\lambda_F}{w_F w_N} \left(\frac{1}{1-P_F^2} \right) \quad \dots (式5)$$

10

で表わされる。ここで、 ρ_N は A g の抵抗率、 t_N は A g の膜厚、 w_N はスピン蓄積が生じている A g 細線の幅、 R_i は M g O の界面抵抗値、 w_F は N i F e 細線の幅、 ρ_F は N i F e の抵抗率、 λ_F は N i F e のスピン拡散長である。各材料の抵抗値、細線の幅等は実験により決められる。このために、 P_F 、 ρ_F 、 P_i 、 ρ_N をフィッティングパラメータとして図 6 の実験結果を再現した。

【0032】

図 6 の点は実験値、実線および破線は理論曲線を示している。室温において $P_F = 0.3$ 、 $\rho_F = 5 \text{ nm}$ 、 $P_i = 0.45$ 、 $\rho_N = 300 \text{ nm}$ 、低温の 10 K において $P_F = 0.35$ 、 $\rho_F = 5 \text{ nm}$ 、 $P_i = 0.45$ 、 $\rho_N = 300 \text{ nm}$ が得られた。ここで注目すべき点は、従来技術により作製されたトンネル接合のスピン蓄積素子における P_i は 0.2 程度であるのに対して、本発明のスピン注入源においては 2 倍以上大きな 0.45 を示していることである。また、後述するように熱処理を行わない導電性 M g O 膜を用いた比較例よりも大きな P_i を示している。大きな P_i は、高いスピン注入効率をもつことを示しており、本発明のスピン注入源が高い性能をもつことを示している。

20

【0033】

図 7、8 に、これらスピン蓄積素子のスピン蓄積量 V および $R_s (= V/I)$ の印加電流依存性を示す。界面抵抗 0.5 f m^2 、 3.2 f m^2 、 12 f m^2 、 215 f m^2 は、M g O 層の膜厚 0 nm 、 1.2 nm 、 2.5 nm 、 6.2 nm に対応する。図 7 からわかるように、印加電流 I と共に V は単調に増加している。図 8 は、 R_s の電流依存性を示す。全ての素子において、1 mA までは顕著な R_s の電流依存性はない。通常のトンネル接合においては、1 μ A 以上で R_s は著しく減少する（非特許文献 3）。このように、本発明のスピン注入源においては、従来の技術のトンネル接合と比較し、著しく印加電流依存性を向上できる。

30

【0034】

ここで、この印加電流の増加に伴う R_s の減少の理由を調べるために、界面抵抗値 124 f m^2 (M g O 膜厚 5.5 nm) のスピン蓄積素子の V の依存性を調べ、理論式によるフィッティングを行った。その結果の一例を図 9、10 に示す。図 9 においては、点の実験値、線の理論式である。図 10 は、強磁性体および M g O 界面のスピン分極率の印加電流依存性（左目盛り）と、非磁性体のスピン緩和長（右目盛り）を示す。いずれの素子においても、N i F e ($P_F = 0.35$) および M g O 界面 ($P_i = 0.45$) のスピン分極率の印加電流依存性はなく、A g のスピン緩和長が減少することで R_s が減少していることがわかった。つまり、本発明のスピン注入源は印加バイアス依存性がなく、非常に安定してスピン注入源として機能していることがわかった。

40

【0035】

以上のように、本発明のスピン注入源では、高いスピン注入効率を有する（スピン分極率 P_i が従来のトンネル接合の 2 倍以上）とともに、大きな電流（ $\sim 1 \text{ mA}$ ）を印加してもそのスピン注入効率が維持される。すでに述べたように、スピン注入量（蓄積量）は印加電流とスピン分極率の積に比例するので、本発明のスピン注入源を用いたスピン蓄積素

50

子ではスピン蓄積量が約 $100 \mu V$ (スピン蓄積抵抗変化 R_s : 約 $100 m$ 、印加電流: $1 mA$) となり、従来のトンネル接合を用いたスピン蓄積量の約 $10 \mu V$ と比較して信号強度を一桁以上大きくすることができる。

【0036】

< 比較実験例 >

上記と同じ形状および材料の素子であるが、熱処理を行わない素子を作製した(非特許文献1に記載のスピン注入源)。MgO層には比較的少量の酸素欠損を含み、比較的高抵抗状態である。なおここで、「高抵抗」というのは熱処理後のMgO層と比較した場合のことであり、比較例に係るMgO層は従来のトンネル接合に用いるMgO層と比較すれば低抵抗であり、導電性を有する。比較例における界面抵抗値のMgO膜厚依存性を図11に示す。図11中の実線は実験値からのフィッティング線を示す。この界面抵抗の膜厚依存性は指数関数で表わされる。

【数5】

$$R_I(f\Omega m^2) \propto e^{1.3t_{MgO}(nm)} \quad \dots (式6)$$

【0037】

この素子における R_s の界面抵抗依存性を図12に示す。このような高抵抗MgO界面をもつ素子においては、MgO膜厚 $1 nm$ 以上の界面抵抗 $100 f m^2$ 以上の領域で、 R_s は急速に減少していることがわかる。また、この素子におけるMgO界面のスピン分極率は 0.11 であり、従来の技術のトンネル接合同程度であるが、本発明のMgO界面のスピン分極率よりも著しく小さい。このために、この素子においてはスピン注入効率が低く、 R_s は小さな値となっている。

【0038】

< その他の実施例 >

上記と同じ形状および材料のスピン蓄積素子を作製した。この素子のMgO層の厚さは $2.0 nm$ である。素子作製後、 300 、 400 、 500 の温度で、窒素(97%) + 水素(3%) 雰囲気中で30分間の熱処理を行った。その後、スピン注入電極NiFe/MgO/Ag界面の抵抗測定を行った結果を図13に示す。熱処理前は、 $1055 f m^2$ と高抵抗状態であったが、熱処理後、界面抵抗値は 300 では $94 f m^2$ に、 400 では $41 f m^2$ に、 500 では $5 f m^2$ にそれぞれ大幅に減少している。

【0039】

これらの素子において、スピン注入実験を行い、 $10 K$ の低温における R_s のアニール温度依存性を図14に示す。ここでは、強磁性体細線幅を $120 nm$ で固定し、スピン蓄積用の非磁性体細線の幅を $150 nm$ 、 $200 nm$ 、 $250 nm$ と変化させてMgO界面の接合サイズの影響も調べた。熱処理前の高抵抗試料においては $0.6 m$ 程度と小さな信号であったが、熱処理温度と共に R_s は増加し、 500 の熱処理に対して R_s は減少している。

【0040】

この界面のスピン分極率 P_i を、先述と同様にスピン注入・検出電極間距離の異なる試料の R_s を測定し、1次元スピン流回路モデルとの比較により決定した。その結果を図15に示す。MgO界面のスピン分極率 P_i は熱処理温度と共に増加している。スピン分極率は、 300 で $P_i = 0.22$ 、 400 で $P_i = 0.33$ 、 500 で $P_i = 0.53$ である。なお、熱処理前は測定信号が小さくスピン分極率の決定は不可能であった。また、銀のスピン拡散長も熱処理の増加とともに増加しているが、これは熱処理により銀の電気抵抗率が減少しているためである。

【0041】

以上のように、作製後のMgO膜に対して熱処理を加えることでスピン蓄積抵抗変化 R_s が増加することが分かる。 400 の熱処理で R_s が最も大きくなることから、3

10

20

30

40

50

00 から500 の間に最適な処理温度が存在することが分かる。500 の熱処理において、MgO界面のスピンの分極率が増加しているにもかかわらず R_s が減少しているのは、この界面抵抗値が 5 f m^2 と小さい値であるためである。もちろん、500 の熱処理後においても R_s は十分大きい値を示しており、500 以上の温度で熱処理した場合も熱処理なしと比較して高い効果が得られることは見て取れる。もっとも、より高い効果を得るためには十分な界面抵抗値があることが望ましく、スピン蓄積素子において、大きなスピン蓄積を実現するには界面抵抗値は 10 f m^2 以上が望ましい。

【0042】

また、上述した実施例において膜厚を 2 nm とした場合は、界面抵抗値が 8.8 f m^2 (式1、図4)であり、そのスピンの分極率は $P_i = 0.45$ である。また、比較例において膜厚を 2 nm とした場合は、界面抵抗値が 1181 f m^2 (式6、図11)であり、そのスピンの分極率は $P_i = 0.11$ である。

【0043】

以上より、膜厚 2 nm における界面抵抗値とスピンの分極率の関係をまとめると次表のようになる。

【表1】

| | 熱処理前 | 300℃ | 400℃ | 500℃ | 実施例 熱処理・有 (2nm換算) | 比較例 熱処理・無 (2nm換算) |
|---------|------|------|------|------|-------------------------|-------------------------|
| 界面抵抗値 | 1055 | 94 | 41 | 5 | 8.8 | 1181 |
| スピンの分極率 | - | 0.22 | 0.33 | 0.53 | 0.45 | 0.11 |

スピンの分極率は比較例において 0.11 であり、これよりも十分に大きいスピンの分極率 0.2 以上を達成するためには、膜厚 2 nm の導電性MgO膜では界面抵抗値を $5 \sim 90 \text{ f m}^2$ とする必要がある。もちろん膜厚 2 nm は一例であり、導電性MgO膜の厚さは 2 nm に限られない。

一般に、導電性MgO膜の界面抵抗 R_i と膜厚 t の関係は、 $R_i = b \cdot \exp(at)$ のように2つのパラメータによって表される。ここで、 a と b の間には相関があつて、 a の減少とともに b も減少するという傾向がある。膜厚 2 nm で界面抵抗 5 f m^2 の場合 $a = 0.7$ 、膜厚 2 nm で界面抵抗 90 f m^2 の場合 $a = 1.2$ と見積もれる。したがって、界面抵抗値 R_i (f m^2) と膜厚 t (nm) の間に以下の関係が成立する導電性MgO膜を用いることで、スピンの分極率 0.2 以上を達成することができる。

【数6】

$$R_i \propto e^{\alpha t}, \quad 0.7 \leq \alpha \leq 1.2$$

【0044】

また、これら試料をEDXによりMgOの組成分析を行った。MgO層のMgとOの組成比を厳密に測定することは非常に困難であるために、定性的評価を行った。熱処理前の試料においても酸素欠損は存在し、そのMgO層の組成は MgO_{1-x} とする。 300 、 400 、 500 の熱処理により、その組成は $\text{MgO}_{1-(+0.03)}$ 、 $\text{MgO}_{1-(+0.06)}$ 、 $\text{MgO}_{1-(+0.12)}$ と変化していた。このために、熱処理による界面抵抗の減少には酸素欠損が大きく影響していることが明らかになった。また、図16に 500 で熱処理した試料の断面TEM像(A)および組成の面分析測定結果(B~E)を示す。 400 の熱処理においてはMgO中へのFe、Niの拡散は見られなかったが、 500 の熱処理した試料においては明確にMgO層中にFe原子が拡散していることがわかった。このように、熱処理やMgO層作製中に微量な金属原子を拡散させることはMgOの界面抵抗を小さくするのに有効な手段である。

【0045】

熱処理前の酸素欠損量の厳密な測定は困難であるが、TEM像によりMgO結晶格子が見えているため、それほど大きな酸素量の変化はないと考えられる。熱処理前の酸素欠損量は広く見積もっても2%~5%程度であると考えられる。したがって、熱処理後のMgO膜の酸素欠損量は、300、400、500の熱処理それぞれについて、5%~8%、8%~11%、14%~17%と考えられる。すなわち、熱処理により効率が向上したスピンの蓄積素子におけるMgO膜における酸素欠損量が5%~17%である。

【0046】

<その他>

本発明のスピンの注入源において、導電性MgO膜を介在させることでスピンの注入効率が向上するのは、MgO膜によって非磁性体と強磁性体のスピンの抵抗の非整合が解消されるためである。MgO膜のスピンの抵抗は、スピンの注入対象の非磁性体のスピンの抵抗と同程度またはそれ以上にすることが好ましい。スピンの抵抗は式3~式5のように表せるため、具体的な素子構造においてはMgO膜の界面抵抗 R_i を注入対象の非磁性体の特性（抵抗率やスピンの拡散長）に合わせて調整することで、適切なスピンの抵抗が得られる。スピンの注入対象が非磁性体金属である場合には、抵抗率やスピンの拡散長などの特性は概ね一定であり、図6からもわかるようにMgOの界面抵抗を $1\text{ f}\cdot\text{m}^2$ 以上、より好ましくは、 $10\text{ f}\cdot\text{m}^2$ 以上とすることが好ましい。MgOの界面抵抗の上限値に関しては、スピンの蓄積抵抗変化の界面抵抗依存が飽和する $10^3\text{ f}\cdot\text{m}^2$ 以下程度とすることが好ましい。

【0047】

また、導電性MgO膜の膜厚が薄い場合にはスピンのフィルタとしての機能が十分に果たせないためスピンの注入効率がそれほど向上しないと考えられる。スピンのフィルタとしての機能を十分に発揮するためには、 1 nm 以上、より好ましくは 2 nm 以上の膜厚が必要であると考えられる。なお、スピンのフィルタ機能の点からは膜厚の上限値は設けられず、MgO膜の界面抵抗値が上記の範囲に収まるような膜厚であればどのような膜厚であっても良いが、現実的に 10 nm 程度を上限とすることが好ましい。

【0048】

なお、スピンの注入効率の向上のためには導電性MgO膜の界面抵抗を減少させれば良い。上述のように、MgO膜作製時に多少の酸素欠損を導入し、その後、水素雰囲気下や真空中で熱処理することにより酸素欠損を導入することが簡易で好ましい製造方法である。ここで、MgO膜作製時に酸素欠損を導入しているのは熱処理による酸素欠損の導入を容易にするためである。

しかしながら、最終的に必要な導電性が得られればその製造方法は上述の方法に限られない。たとえば、MgO膜の作製条件を調整して上述の酸素欠損（界面抵抗）を持つMgO膜を作製して、熱処理を行わない方法も考えられる。また、MgO膜作製時には酸素欠損を導入せずに、熱処理のみによって酸素欠損を導入してもかまわない。また、MgO膜に金属原子を拡散させてMgO膜の界面抵抗を減少させてもかまわない。

【0049】

本実施例に係るスピンの蓄積素子（図2）では、スピンの検出用電極12についても熱処理したMgO膜を用いているが、スピンの検出用電極については、素子機能の目的等に応じてトンネル接合やオーミック接合なども適宜採用可能である。

【符号の説明】

【0050】

- 11 スピンの注入用電極
- 12 スピンの検出用電極
- 13, 14 スピンの蓄積用非磁性体細線
- 15, 16, 17, 18 測定用非磁性体電極
- 21 非磁性体
- 22 MgO層
- 23 強磁性体

10

20

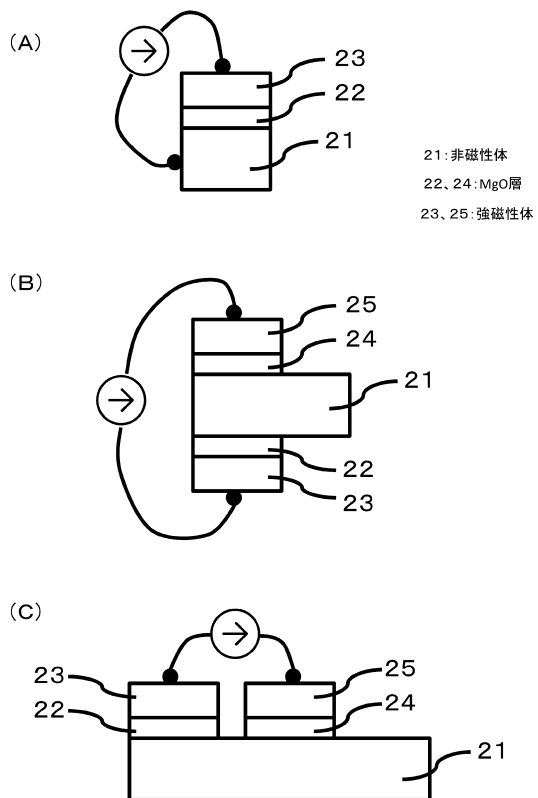
30

40

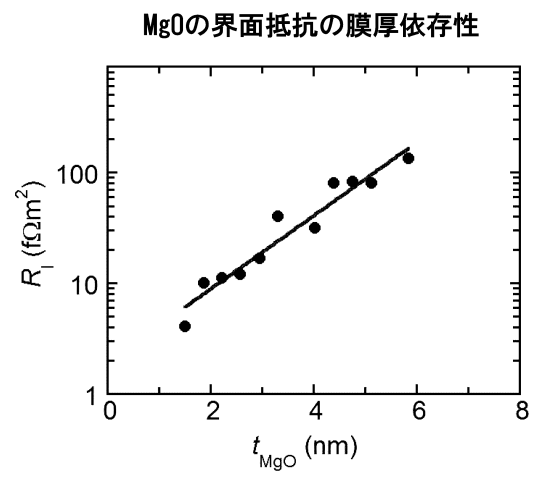
50

2 4 MgO層
2 5 強磁性体

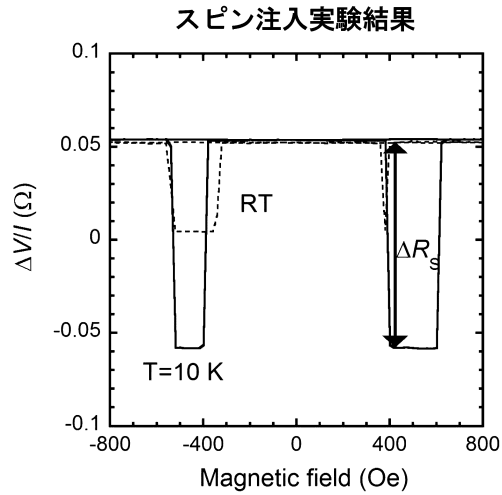
【図 1】



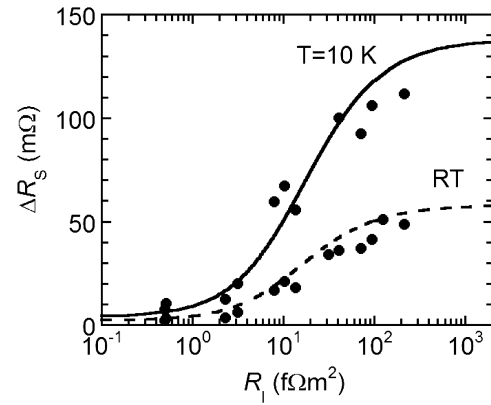
【図 4】



【図 5】



【図 6】

スピン蓄積抵抗変化 ΔR_s の界面抵抗依存性

【図 7】

実施例のスピン注入源を利用したスピン蓄積素子の $d=300\text{nm}$ におけるスピン蓄積量の印加電流依存性

I (mA)

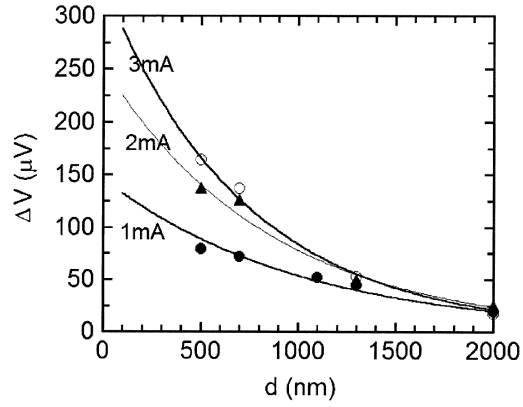
【図 8】

本実施例のスピン注入源を利用したスピン蓄積素子の $d=300\text{nm}$ における ΔR_s の印加電流依存性

I (mA)

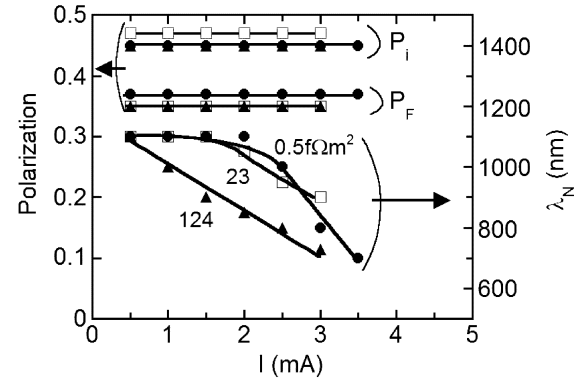
【図 9】

本実施例のスピニ注入源を利用したスピニ蓄積素子の
 ΔV の印加電流およびスピニ注入・検出電極間距離依存性



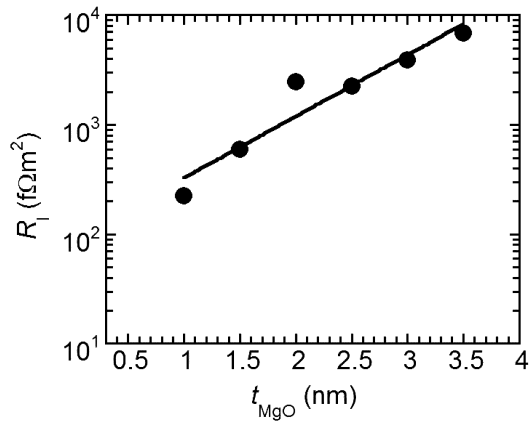
【図 10】

本実施例のスピニ注入源を利用したスピニ蓄積素子の
スピニ分極率 P_i , P_F および銀のスピニ拡散長 λ_N の
印加電流依存性



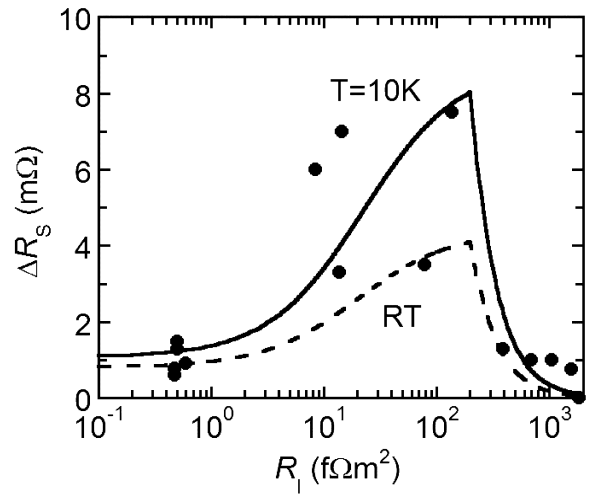
【図 11】

比較例のMgO界面抵抗の膜厚依存性

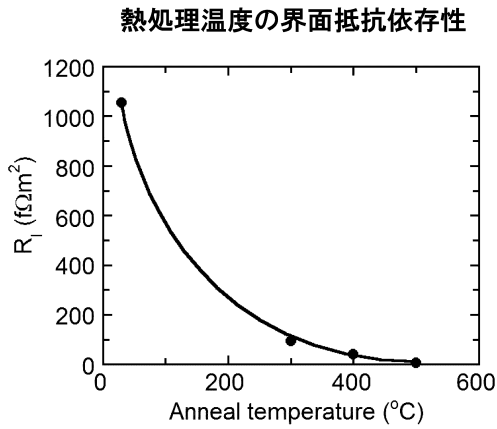


【図 12】

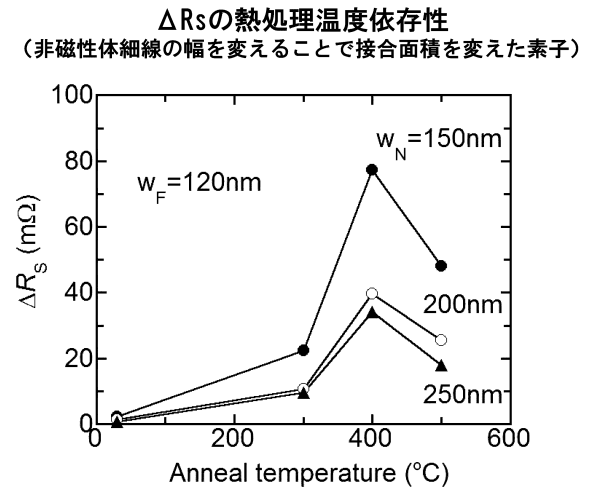
比較例を利用したスピニ蓄積素子の
 ΔR_s の界面抵抗依存性



【図 1 3】

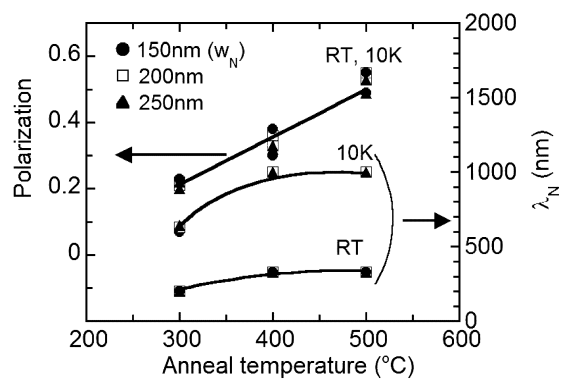


【図 1 4】

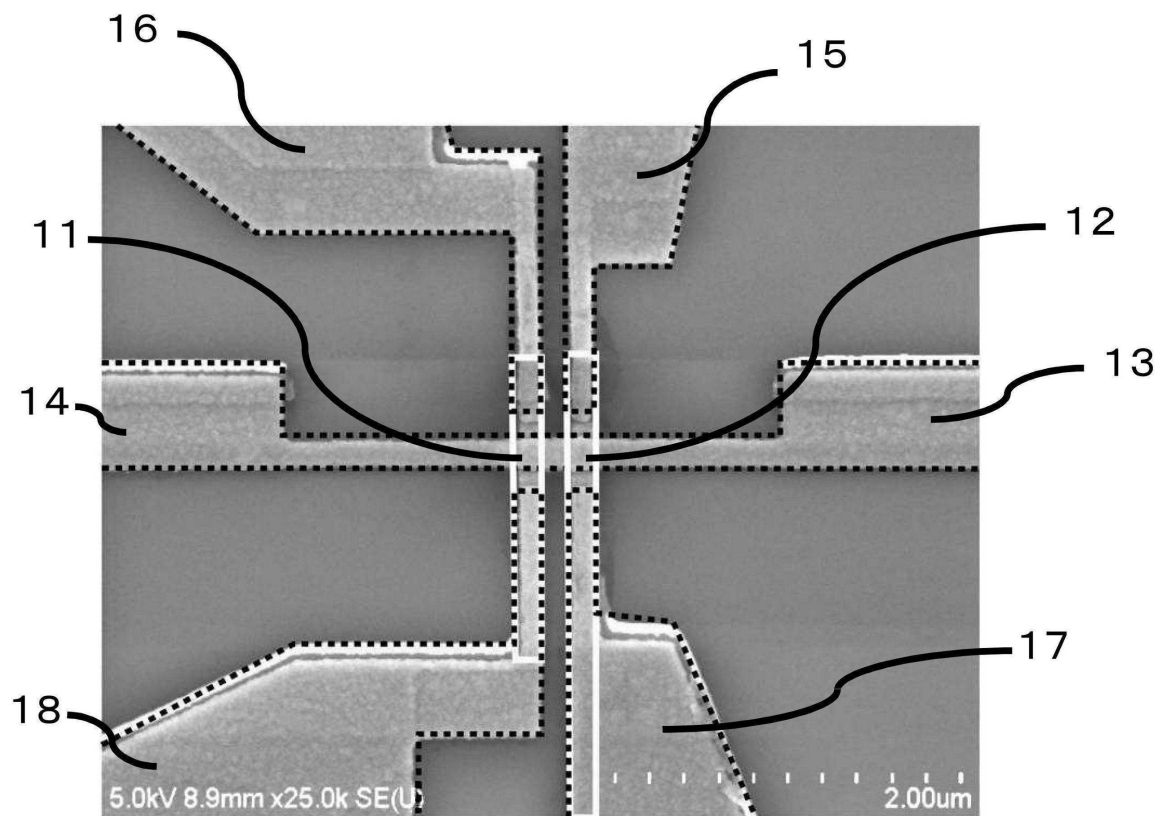


【図 1 5】

MgO界面のスピンド分極率および銀のスピンド拡散長の熱処理温度依存性
(非磁性体細線の幅を変えることで接合面積を変えた素子)



【図2】



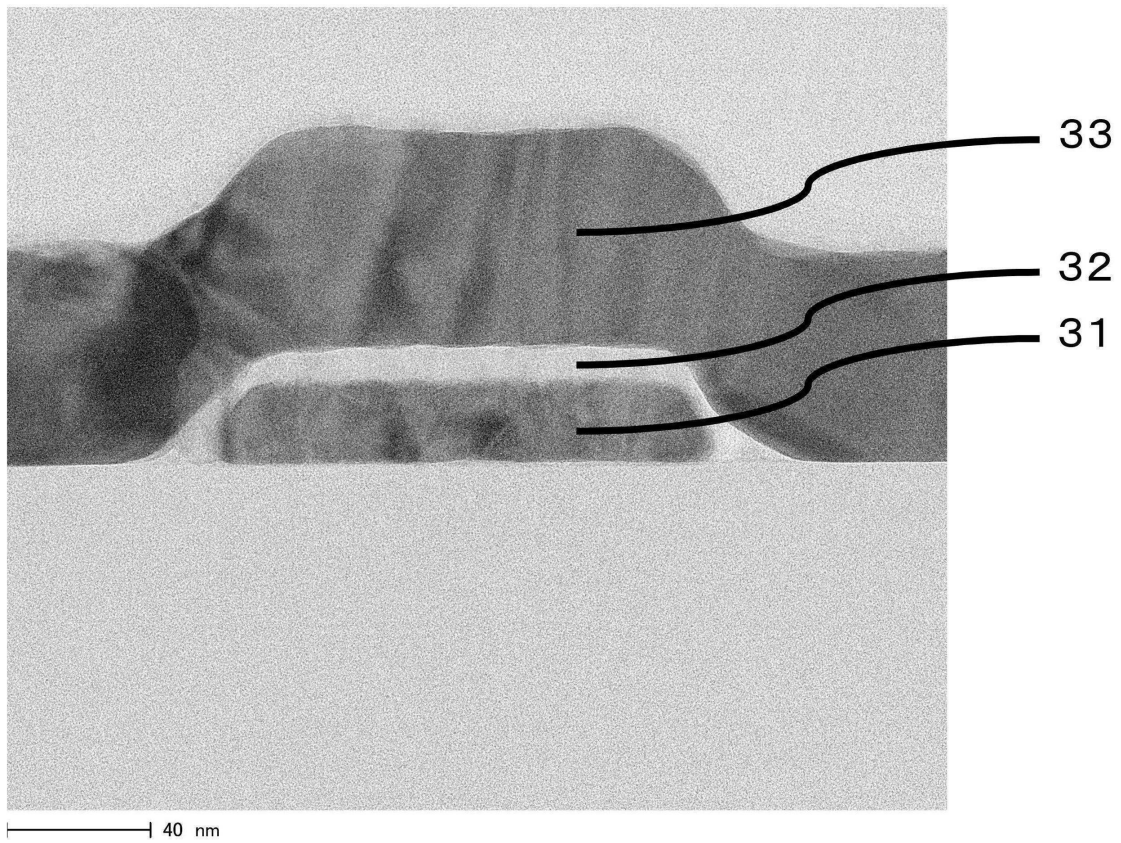
11: スピン注入用強磁性体/MgO電極

12: スピン検出用強磁性体/MgO電極

13、14: スピン蓄積用非磁性体細線

15、16、17、18:
測定用非磁性体電極

【図 3】



33: スピン蓄積用非磁性体細線、Ag

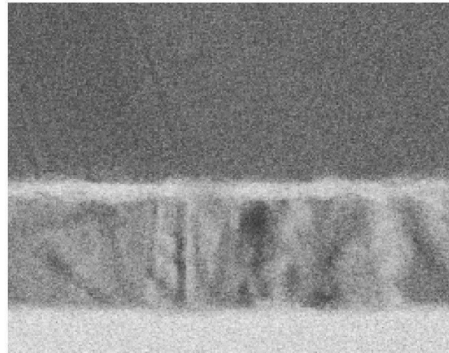
32: MgO層

31: 強磁性体層、NiFe

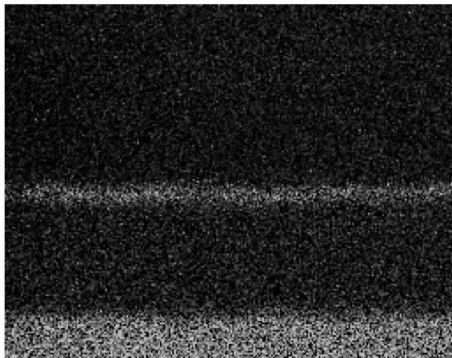
【図 16】

500℃で熱処理したスピン蓄積素子の断面TEM像(A)
と組成面分析結果 (B-E)

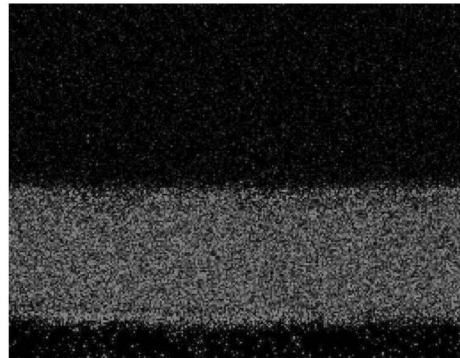
(A)



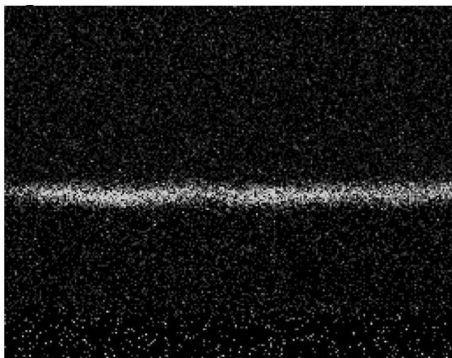
(B) O



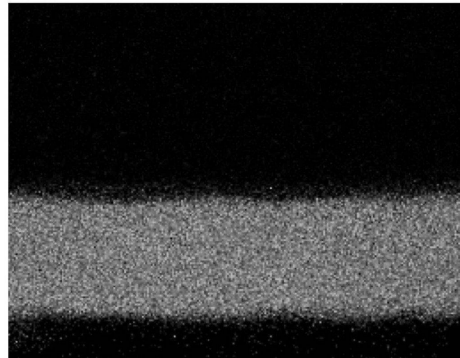
(D) Fe



(C) Mg



(E) Ni



フロントページの続き

審査官 外山 毅

(56)参考文献 特開2009-059807(JP,A)

特開2010-074171(JP,A)

特開2006-210391(JP,A)

特開2010-109319(JP,A)

Y.Fukuma et.al, Enhanced spin accumulation obtained by inserting low-resistance MgO in
terface in metallic lateral spin valves, APPLIED PHYSICS LETTERS, 米国, American Insti
tute of Physics, 2010年 7月 9日, 97/012507, p.1-3

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01L 29/82