

論文内容の要旨

論文題目

Enhanced Magnetoresistance in Ferromagnetic Single-Electron Transistor

(強磁性単電子トランジスタにおける磁気抵抗増大)

氏名 松田亮史

1975年にJulierによって見出された、Fe/GeO/Co 強磁性トンネル接合における抵抗が外部磁場に対して変化する現象、すなわちトンネル磁気抵抗 (TMR) 効果は、多くの関心を集め現在も盛んに研究が行われている。この TMR 効果は、(1)強磁性トンネル接合における伝導が強磁性体の磁化の相対角に依存し変わること、(2)両強磁性金属に保磁力差を持たせることで外部磁場により両強磁性体磁化の平行或いは反平行な配置が実現できることの2つの原因が相まって生じ、TMR 比 $\gamma \equiv (R_A - R_P)/R_P$ によって特徴づけられる。ここで R_A (R_P) は (反) 平行磁化配置における抵抗を表す。

トンネル接合のサイズをサブミクロンまで減少させると、接合に付随する静電容量 C が極めて小さくなり、接合に電子 1 個分の電荷が帯電したとする時に生じる単一電子帯電エネルギー $E_C = e^2/(2C)$ が低温で無視できなくなる。すなわち E_C が熱エネルギーより充分に大きくなる様な低温においては、電子のトンネリングが抑制されるクーロンブロッケードという現象が現れる。微小トンネル接合を用いた 1 電子のトンネリングを制御するデバイスは単一電子デバイスと呼ばれ、その中でも基本となる単一電子トランジスタ (SET) は、2つの微小トンネル接合とゲートキャパシタンスからなる 3 端子デバイスである。低温において、ゲート電圧により島電極の静電ポテンシャルを変化させることにより、一定の条件下でクーロンブロッケードが緩和され、抵抗が周期的に変化するクーロン振動が観測される。また、 I - V 特性において、ゲート電圧に依存した非線形特性が得られる。

強磁性トンネル接合系に微細加工を施し接合サイズを減少させた強磁性微小トンネル接合系では、電子の電荷とスピンを含む新奇な物理が現れ多くの注目が集まっている。1997年に大野等により、強磁性 Ni/Co/Ni-SET において磁気クーロン振動(MCO)と磁気抵抗増大という 2 つの現象が見出された。前者 (MCO) は、磁場による抵抗の周期的な変化であり、これは、ゼーマン効果を考慮した単一電子トンネリングに関する標準理論によって説明される。後者は、低温でクーロンブロッケードが顕著になると TMR 効果に起因する磁気抵抗が顕著に増大するという現象である。1 接合当たりのトンネル抵抗が $R_T = 35\text{k}\Omega$ である SET を用いた彼等の実験では、4.2K で 4%であった TMR 比が、20mK の低温では SET のオフ状態に対して 40%と 10 倍に増大し、一方オン状態に対して増大は現れなかった。彼等はこのオフ状態における TMR 増大を高次トンネル過程に基づいて議論した。同様の磁気抵抗増大は、強磁性トンネル接合 2 次元アレイにおいても観測されていたが、その後、東北大やドイツの研究グループでも報告された。強磁性 SET における、TMR 増大は単電子ト

ンネリングの標準理論では説明できず、コトンネリングをはじめとする高次のトンネル過程にその原因を求める理論が複数提案されている。しかし、それらの理論的予測と実験結果の定量的一致は未だ得られていない。従って、この現象のメカニズムは未だ解明されていない。

我々の研究の目的は、この TMR 増大のメカニズムを解明することである。そのために、量子抵抗 $R_Q (\equiv h/(2e^2) = 12.9\text{k}\Omega)$ を挟む広い領域のトンネル抵抗 R_T ($600\Omega \sim 3.3\text{M}\Omega$) を持つ 11 個の強磁性 SET を作製し、低温における TMR 増大を R_T に対して系統的に調べた。

強磁性 SET の作製は、Ge を挟んだ 3 層レジストに対して、標準的な電子線リソグラフィ法、2 方向斜め蒸着法を用いて行った。トンネルバリアの作製は、酸素雰囲気中での Al_2O_3 蒸着、或いは Ni のプラズマ酸化により行った。レジスト間に Ge 層を挟むことで、NiO トンネルバリア作製時のプラズマ酸化に対して微細加工パターンの保護をさせた。これにより、NiO トンネルバリアを有する SET のトンネル抵抗を、 600Ω から最大で $3.3\text{M}\Omega$ 迄高めることに成功した。また、 Al_2O_3 トンネルバリアを有する SET に対しても、 $22\text{k}\Omega \sim 410\text{k}\Omega$ という広範囲な R_T を持たせることに成功した。こうして作製した強磁性 SET のトンネル接合の大きさは約 $0.1\mu\text{m} \times 0.1\mu\text{m}$ である。磁場は、磁化容易軸方向となる SET のリード電極方向に印加して測定した。

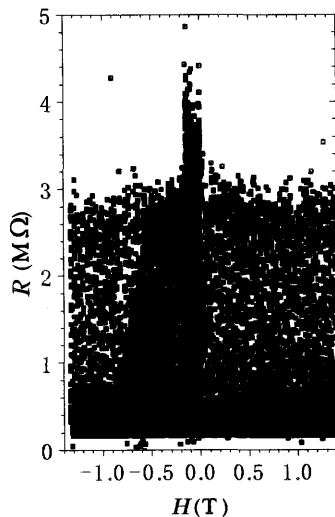


図1: TMR at $T = 26\text{mK}$ (デバイス#5)

作製した 11 個の強磁性 SET の 4.2K における TMR、また、希釈冷凍機を用い 25mK 迄冷却し、低温における R - T 依存性、 I - V 特性、クーロン振動等を測定することで、各デバイスの基本特性を表すパラメータ R_T 、 E_C 、 C_g 等を決定し、更に、低温で TMR の測定を行った。4.2K における TMR の測定では、 R_T の高い SET 程 TMR 比も高かった。また、 Al_2O_3 バリアを用いた SET の TMR 比は 3.8~7.5%、NiO を用いたものでは 1.1%~6.2% と後者が若干小さかった。これは、NiO トンネルバリア中での電子スピンの反転に起因しているものと思われる。低温における TMR の例として、 $R_T = 36\text{k}\Omega$ を持つデバイス#5 の 26mK における TMR を図 1 に示した。この図にはゲート電圧によるクーロン振動の抵抗変化が含まれ、上側の包絡線がオフ状態、下側がオン状態を表す。各温度に対して同様な測定を行い、11 個のデバイスに対して各温度で TMR の測定を行った。

磁場を固定して R - T 依存性を調べたところ、 $R_T > R_Q$ のデバイスでは、 $T \geq 0.3\text{K}$ でほぼ標準理論と一致する温度依存性が見られた。しかし、より低温ではそれよりも弱まった温度依存性しか見られなかった。これは、コトンネリングやホットエレクトロンによる影響が大きいと思われる。以下のデータ解析では、標準理論を仮定し、抵抗の温度変化を有効電子温度 T_e を通して考える。 T_e は低温で冷凍機温度よりも高く、ホットエレクトロンに起因する電子温度、或いはコトンネリングに起因する現象論的なパラメータを意味するが、いずれの場合も $E_C/k_B T_e$ が、クーロンブロッケードによる抵抗増大の程度を表すパラメータとなる。

TMR の増大は、図 2 にまとめられる。Y 軸に TMR 比の、4.2K での値からの増大率 $\gamma(T)/\gamma(4.2\text{K})$ をとり、X 軸に抵抗の温度依存性から決定した $E_C/k_B T_e$ を採用した。この図から、温度減少に対する TMR の増大の仕方が $R_T \geq R_Q$ である限り、 R_T によらず共通した特徴を持つことが分かった。すなわち $E_C/k_B T_e = 2 \sim 3$ 付近から TMR は序々に増加を始め、 $E_C/k_B T_e > 3$ に対して顕著に増大し、 $E_C/k_B T_e \sim 6$ で 10 倍に増大する。一方、 R_T が R_Q より小さな SET では、低温での抵抗変化は小さく、TMR の増大も小さかった。また、オン状態では、 R_T によらず TMR の増大は観測されなかった。

このことから、TMR 増大はクーロンブロッケードによって引き起こされていること

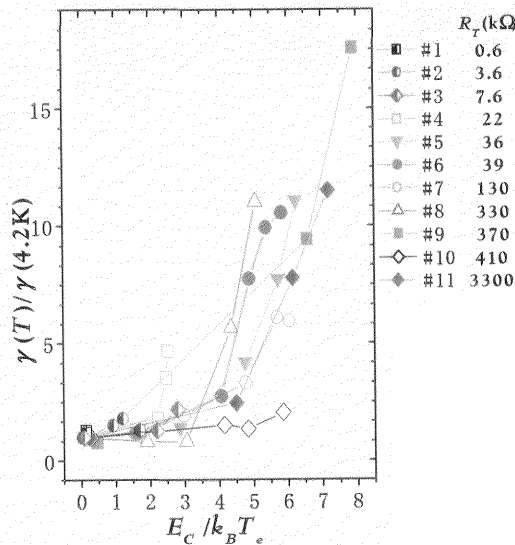


図2: TMR増大率- $E_c/k_B T_e$ 依存性

は明らかである。クーロンブロッケードによる抵抗の増大は T 、 R_T 、 E_c によって決定される。スピン散乱の影響を含めても、抵抗はこれらの量によって決定されるはずである。但し、その場合、これらの量は T 、 H に依存し得るだろう。スピン散乱の低温での減少は R_T の増大を引き起こす。しかし、オン状態では TMR の増大が観測されなかったことから、これによる TMR 増大のシナリオは否定される。また、 T を有効電子温度 T_e と考えた時、 T_e が磁化配置に依存して変化する様なことが起こり得るかを考察した。Co 島電極の磁化反転に伴う熱の島電極電子系への流入により、 T_e が磁化配置に依存して変化する事が予想されたが、Co 島電極磁化反転後の平行磁化配置に対する抵抗測定より、抵抗が一樣であることからその可能性は否定された。

次に実験結果を、TMR 増大機構として提案されている高次トンネル過程に基づく理論と比較検討した（ここでは、TMR 効果による R_T 変化のみを考慮しており、その T 依存性は考えていない）。高橋等は、強磁性 SET の TMR に関して、コトンネリングに基づいた理論予想を公表している。この理論では、クーロンブロッケードの顕著な低温において、TMR 比が 2 倍程度迄増大する。彼等の理論と比較するのに最もふさわしい $R_T \gg R_Q$ である SET を我々は有している。しかし、我々の実験結果とは定量的に異なった。また、大野等にならない、高次トンネル過程を繰り返した有効帯電エネルギー E_c^* の理論と実験結果を比較した。その結果、有効帯電エネルギー E_c^* の理論に基づく、低温での TMR 増大は $R_T \sim R_Q$ に対して最も顕著であり、 $R_T \gg R_Q$ に対して増大はなく、また、最大でも 1.4 倍にとどまり、定性的、定量的に実験結果を説明できない。従って、これら高次トンネリングに基づく理論予想

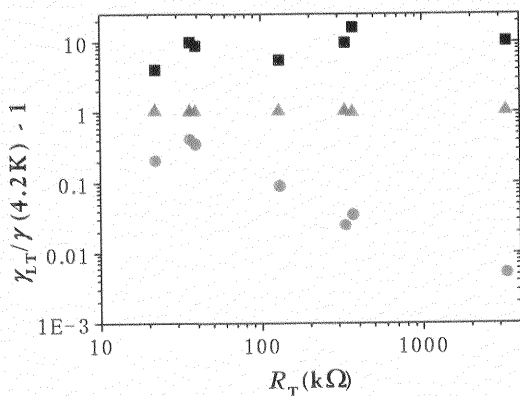


図3: TMR増大率の R_T 依存性

$R_T \geq 22\text{k}\Omega$ のデバイスに対して、最低温度で見積もった TMR 増大率と実験との比較

■ 実験値 ▲ コトンネリング ● 有効帯電エネルギー

は、TMR 増大の起源ではないということが判明した（図 3）。

そこで、 R_T と共に E_c も磁場によって変化を受けると仮定し（ T 依存は共に考慮していない）、標準理論を用いた計算結果を実験結果と比較検討した。その結果、約 3% の E_c の

増大を仮定すると、実験結果を大よそ再現した (図 4)。 E_C の磁場変化は接合容量 C の磁場変化を意味する。最近、海住等により $0.1\text{mm} \times 0.1\text{mm}$ のサイズの $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ 接合の実験で、この様な C 変化を示唆する結果が得られていた。彼等は、交流インピーダンスを磁場中で測定し、抵抗だけでなくキャパシタンスも磁場に対して変化することを見出した (tunnel magnetocapacitance (TMC) 効果)。その C 変化は 8% 程度となり、反平行磁化配置に対して減少する。これは、反平行磁化配置で E_C が増加するという我々の結果と一致する。

この様な E_C 変化をもたらす TMC 効果の起源としては、トンネルバリアを挟んだ強磁性体電極における電子の波動関数のバリアへのしみ出し方が、強磁性電極間の磁氣的相互作用に依存して変化し、実効的にバリア厚さの変化を生じるという予想、Chui 等によるスピンの蓄積と注入効果に起因するキャパシタンスの実効的な厚さが磁化配置に依存して変化するという予想、そして、Martineck による強磁性体の磁歪に起因する予想等があるが、まだ明らかになっていない。

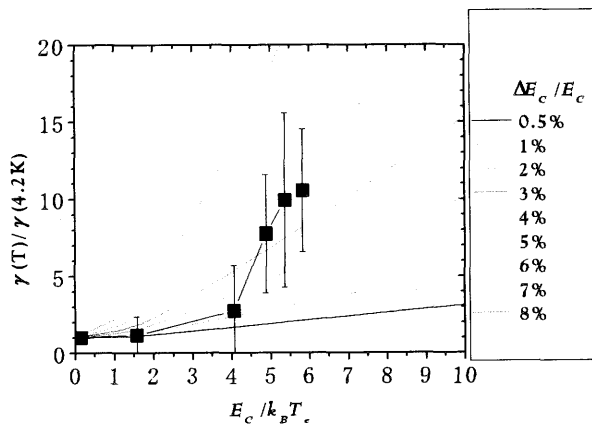


図4: TMR- $E_C/k_B T_e$ の理論計算と実験の比較

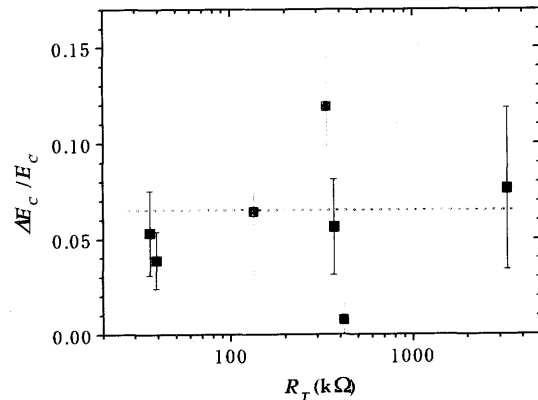


図5: $\Delta E_C/E_C$ の理論計算と実験の R_T 依存性 (最低温度に対する見積もり)

しかしながら、この約 3% の E_C 変化を仮定した理論曲線は、実験結果に見られる低温で特に顕著な TMR 増大を完全には再現できていない。コトンネリングによる寄与を含めて同様な計算を行なったが、低温での顕著な増大を表さなかった。

図 4 を詳しく見ると、実験結果は温度低下と共に E_C の磁場変化が増加した曲線に対応している。各デバイスの最低温度での実験データは、およそ 7% 程度の E_C の磁場変化を仮定した理論曲線に対応する (図 5)。従って、実験結果を詳細に説明するためには、温度低下と共に E_C の磁場変化が増加することが必要となる。

スピン散乱に起因する 1 電子のトンリングに必要な付加的なエネルギーは、この様な低温での E_C の増加をもたらす可能性の 1 つかもしれない。その例として、電子のマグノン吸収が起これば、電子のトンリングに必要なエネルギーは $E_C - \alpha$ (α はマグノンの励起エネルギー) と表せるだろう。マグノン励起は低温で減少することから、このエネルギーは $E_C - \alpha$ から低温において E_C に増大する。また、強磁性トンネル接合系におけるスピン蓄積効果は E_C の磁場変化が低温での増大をもたらす可能性を持っているが、我々のデバイスに対しては残念ながらあてはまらない。

この様に、強磁性 SET における TMR の増大を R_T に関して系統的に調べ、クーロンブロッケードによる抵抗の増大を決定するパラメーター T_e 、 R_T 、 E_C の H 或いは T 依存性に基づいて TMR 増大を議論してきた。その結果、磁場による E_C の変化が強磁性 SET における TMR 増大のメカニズムとして有力だと思われる。TMC 効果の起源についてはまだ明らかになっていないが、その様な E_C の変化は接合容量 C の磁場変化により生じていると思われる。より詳細に実験結果を表すためには、 E_C の磁場変化が低温で増加する必要がある。しかし、 E_C の温度変化の原因は、そもそも不明であるが TMC 効果の温度依存に関係するのか、スピン散乱に起因するのか、或いは別の理由であるのか現在のところ明らかではない。この問題及び TMC の起源解明は今後の課題である。