

強磁性単一電子トランジスタでのスピバルブ効果とそのデバイス応用

水柿 義直

電気通信大学 大学院情報理工学研究科 先進理工学専攻

〒182-8585 東京都調布市調布ヶ丘1-5-1

Device Application of Spin-Valve Effect in Ferromagnetic Single-Electron Transistor

Yoshinao Mizugaki

Department of Engineering Science, The University of Electro-Communications

1-5-1 Chofugaoka, Chofu, Tokyo 182-8585, Japan

E-mail: mizugaki@ee.uec.ac.jp

概要

本研究では、強磁性単一電子トランジスタでのスピバルブ効果を定量評価した。具体的には、常伝導体 (NC) の島電極を持つ強磁性単一電子トランジスタ (FM/NC/FM-SET) と超伝導体 (SC) の島電極を持つ強磁性単一電子トランジスタ (FM/SC/FM-SET) をそれぞれ作製し、測定した4状態の IV 特性から MRR を算出した。4状態とは、SETの IV 特性のしきい値電圧が最小 (SET-ON 状態) または最大 (SET-OFF 状態) と、リード電極間の磁化方向が平行状態または反平行状態とを組み合わせた、SET-ON 状態・磁化平行状態、SET-ON 状態・磁化反平行状態、SET-OFF 状態・磁化平行状態、SET-OFF 状態・磁化反平行状態である。FM/NC/FM-SET の MRR は強磁性体の偏極率から計算される理論値と同程度であった。一方、FM/SC/FM-SET の MRR は理論値を超える値となった。また、これらの SET では、島電極の材料によらず、SET-OFF 状態の MRR が、SET-ON 状態のそれよりも増大する、磁気抵抗比増大効果が確認された。磁気抵抗比増大の発生メカニズムとして提案されているコトンネリングによるモデル計算を行ったところ、実験結果をおおよそ再現した。

1 はじめに

単一電子トランジスタ (Single-Electron Transistor: SET) は電子の帯電効果とトンネル現象を利用したデバイスである。その特性には、クーロン閉塞 (Coulomb Blockade: CB) が観測される。

CB は、単一電子の帯電エネルギー $E_C = e^2/2C$ が熱エネルギー $k_B T$ よりも十分に大きい場合に現れる。ここで、 e, C, k_B, T は、それぞれ電気素量、接合容量、ボルツマン定数、絶対温度である。SET は微小容量を必要とするが、近年の微細加工技術の進歩がその実現を可能にしている。

また、SET の特性には用いる電極材料の物性も現れる。電極に強磁性体 (Ferromagnet: FM) を用いた FM/FM/FM-SET では、外部から磁界を印加すると電気抵抗が変化する。外部磁界により電気抵抗が変化するのを磁気抵抗効果と呼び、FM/FM/FM-SET においては、電極間の磁化方向が平行状態の電気抵抗よりも反平行状態の電気抵抗が大きくなる。さらに、FM/FM/FM-SET では CB が磁気抵抗に影響を及ぼすことが知られている [1, 2, 3]。

全ての電極が強磁性体で構成される SET については、これまで様々な研究が行われてきたが、島電極材料に着目した研究は少ない。そこで本研究では、島電極材料を強磁性体以外の常伝導体 (Normal Conductor: NC) や超伝導体 (Superconductor: SC) に変えた素子を作製し、その磁気抵抗比特性を評価した。本研究では常伝導材料に Cr を、超伝導材料に Al を用いた。

2 原理

2.1 FM リード電極を持つ SET の 4 状態

SET は直列接続された2個の微小トンネル接合と、それらの間の島電極に接続されたゲートキャパシタから構成される (図1)。2個の微小トンネル接合容量が等しく、SET に対称バイアスを印加した場合、CB しきい値の絶対値はゲート電荷が e の整数倍の時に最大になり、またゲート電荷が e の半整数倍のときに最小になる。図2(a)にSETの IV 特性を示す。以後、しきい値電圧が最小の状態を SET-ON 状態、最大の状態を SET-OFF 状態と呼ぶ。

SET のリード電極に強磁性体を用いる場合を考える前に、薄い絶縁膜を強磁性体1と強磁性体2で挟んだ強磁性トンネル接合の磁界応答特性について説明する。強磁性トンネル接合の電気伝導はスピンの状態密度に依存し、電極間の磁化方向が平行状態 (parallel)、反

平行状態 (antiparallel) の抵抗値を R_P, R_{AP} とすると, $1/R_P \propto (D_1 D_2 + d_1 d_2)$, $1/R_{AP} \propto (D_1 d_2 + d_1 D_2)$ で表される. ここで, D_1 と D_2 は FM1 と FM2 のフェルミ準位での多数スピンの状態密度, d_1 と d_2 は FM1 と FM2 のフェルミ準位での少数スピンの状態密度を表す. $D_1 > d_1, D_2 > d_2$ であるので, $1/R_P > 1/R_{AP}$, すなわち $R_P < R_{AP}$ となる.

ここで, 図 1 のドレイン電極に強磁性体 1 を, ソース電極に強磁性体 2 を用いた SET に, 外部磁界 H を印加した場合の抵抗と磁界の関係について考える (図 2(b)). 島電極は常伝導体として, 強磁性体 1 と強磁性体 2 の保磁力 H_{C1} と H_{C2} には $H_{C1} < H_{C2}$ の関係があるとす. また, 電子がトンネル障壁および島電極中を通過する際にスピン反転は起きないと仮定する. (1) $H < 0$ の時, (適切な磁気履歴を経ることで) 両電極間の磁化方向は平行状態になっているとする. すなわち, ソース電極から島電極中を伝播してくる電子の多数スピンとドレイン電極中の多数スピンは一致している. 印加磁界を徐々に大きくして 0 にする. さらに印加磁界を反転させ, (2) $H_{C2} > H > H_{C1}$ となった時, 強磁性体 1 の磁化が反転し, 強磁性体 1 と強磁性体 2 の間は反平行状態となる. この状態では, ソース電極から島電極中を伝播してくる電子の多数スピンは, ドレイン電極中では少数スピンになる. そのため, 抵抗が平行状態よりも高くなる. そして (3) $H_{C1}, H_{C2} < H$ になると, 強磁性体 2 も磁化反転が起こり, 再び平行状態になる. ただし, (1) の状態とは反対の磁化方向である. ここで, R_P と R_{AP} の比を磁気抵抗比 (Magnetoresistance Ratio: MRR) と呼び, 以下の式 (1) で表される. また, バイアス電圧が同一の場合は, 平行状態, 反平行状態の電流を I_P, I_{AP} とすると, 式 (2) のように電流のみで表せる. さらに, 強磁性体 1, 強磁性体 2 のトンネル電子のスピン偏極率 P_1, P_2 を用いると式 (3) のように表せる [1].

$$MRR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} \quad (1)$$

$$= \frac{I_P - I_{AP}}{I_{AP}} \quad (2)$$

$$= \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2} \quad (3)$$

以上のように, リード電極に FM を持つ SET は, SET の特性と外部磁界に対して特性が変化するスピバルブ素子としての特性を併せ持ち, SET-ON 状態・平行状態, SET-ON 状態・反平行状態, SET-OFF 状態・平行状態, SET-OFF 状態・反平行状態の 4 状態をとる.

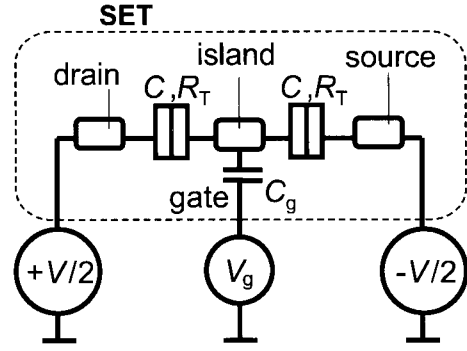


図 1: SET の構造.

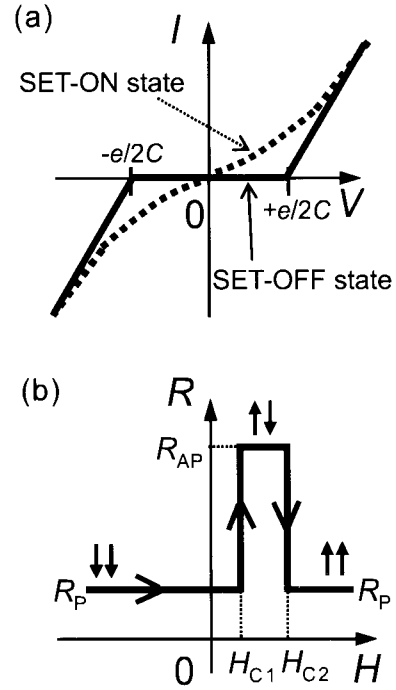


図 2: (a) SET の ON 状態と OFF 状態での IV 特性. (b) FM/NC/FM-SET における RH 特性.

2.2 FM/SC/FM 素子

前節では, リード電極に強磁性体を, 島電極に常伝導体を用いた素子の 4 状態について説明した. 本節では, リード電極に強磁性体, 島電極に超伝導体を用いた素子の特性について文献 [4, 5] にて説明されている内容を簡単に説明する.

超伝導体においては, 図 3(a) に示したように, フェルミ準位付近に超伝導ギャップ 2Δ が現れる. これにより, FM/SC/FM-SET においては, その IV 特性のしきい値電圧に $2\Delta/e$ が加えられる点が島電極が常伝導体の場合と異なる (図 3(b)).

また, 反平行状態において FM/SC/FM 素子は FM/NC/FM 素子とは異なる振る舞いを示すことが知られている. 平行状態ではソース電極から島電極にスピン偏極した電子がトンネルし, さらに島電極中に蓄積す

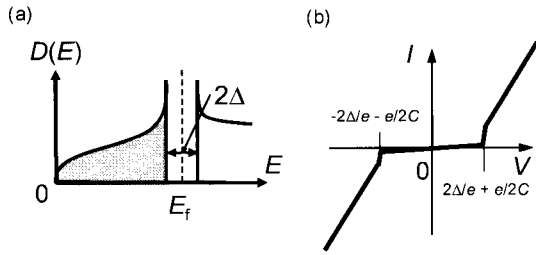


図 3: (a) 超伝導体中の電子状態密度 $D(E)$. 2Δ は超伝導ギャップを表す. (b) FM/SC/FM 素子の IV 特性.

ることなく、ドレイン電極へトンネルする。それに対し、反平行状態では、ソース電極とドレイン電極の多数スピンの不一致であるため、ソース電極から島電極へトンネルしてきたスピン偏極電子は島電極中に蓄積する。スピン偏極された電子が超伝導体中に蓄積されると、超伝導体のフェルミ準位付近で発生している超伝導ギャップの縮小が起こる。この超伝導ギャップの縮小により、FM/SC/FM 素子では反平行状態にて抵抗値が減少することになる。

2.3 磁気抵抗比増大現象とコトンネリングモデル

1997 年、大野らは強磁性 SET において、SET-ON 状態の MRR に比べて SET-OFF 状態の MRR が増大することを発見した [1].

大野らは Ni と Co を用いて Ni/Co/Ni-SET を作製した。この素子の MRR は 4.2K で約 4% だった。その一方、CB が現れる 20mK の低温では、SET-ON 状態の MRR は 4.2K 時と同じ約 4% であったのに対し、SET-OFF 状態では約 40%、すなわち SET-ON 状態の MRR の 10 倍の値となった。このような磁気抵抗比増大現象を説明するモデルがいくつか提案されている。ここでは、本研究で仮定しているモデルについて説明する [2, 3].

このモデルにおいて磁気抵抗比増大現象は、SET-ON 状態と SET-OFF 状態の電気伝導プロセスの変化に起因すると考えられている。SET-ON 状態の電気伝導では接合を電子が一つずつトンネルする 1 次トンネルが支配的である。そのため、電流はトンネル抵抗 R_T に反比例する。一方、SET-OFF 状態では、クーロン閉塞により 1 次トンネルが禁止される。しかし、 n 個の接合を別々の電子が同時にトンネルするコトンネリングが電気伝導を担うため、電流がわずかに流れる。SET においては 2 個の接合を同時にトンネルするため、電流は R_T^2 に反比例する。よって、SET-OFF 状態の MRR は、SET-ON 状態の特性のトンネル抵抗を R_{on} とした時、以下の式 (4) で表すことができる。

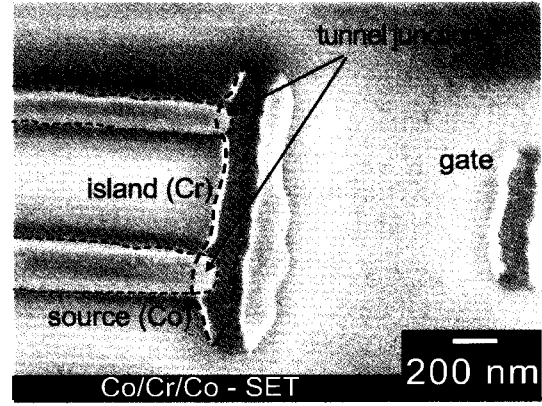


図 4: Co/Cr/Co-SET の SEM 像.

$$\begin{aligned} MRR_{cot} &= \frac{I_{off,P} - I_{off,AP}}{I_{off,AP}} = \frac{1/R_{on,P}^2 - 1/R_{on,AP}^2}{1/R_{on,AP}^2} \\ &= \frac{R_{on,AP}^2 - R_{on,P}^2}{R_{on,P}^2} \end{aligned} \quad (4)$$

3 素子の作製及び測定方法

3.1 素子の作製

今回作製した素子の SEM 像を図 4, 図 5 に示す。強磁性体には Co を、常伝導体には Cr を、超伝導体には Al を用いた。二層レジストと電子ビームリソグラフィを用いてレジスト架橋を形成し、そこに二段階斜め蒸着法と熱酸化によって微小トンネル接合を作製した [6]. Co/Cr/Co-SET のトンネルバリアは Co 電極直下に Al を 3 nm 堆積させ、0.2 Torr の一定圧力下で 10 分間酸化して作製した。Co/Al/Co-SET のトンネルバリアは Al 表面を 0.2torr の一定圧力下で 2 分間酸化して作製した。同一物質で構成される強磁性リード電極間の反平行状態を実現する工夫として、リード電極の幅を変えて反転磁界に差を持たせた [4, 7]. この場合、細い電極の方が反転磁界は大きくなる。また、島電極が超伝導体の素子は、強磁性電極からの漏れ磁場により超伝導性が失われる可能性がある [8]. それを防ぐため、リード電極が島電極を乗り越えるような形状とした。表 1 に作製素子の寸法を示す。表中の S, W, s, d, i はそれぞれ、トンネル接合の面積、リード電極幅、ソース電極、ドレイン電極、島電極を表す。

3.2 測定方法

測定には簡易型希釈冷凍機を用いた [9]. これにより 100mK 程度の低温環境を実現した。磁界はクライオスタットに備えられた超伝導マグネットを用いて発生させ、基板表面の強磁性電極の長さ方向に対して平行に

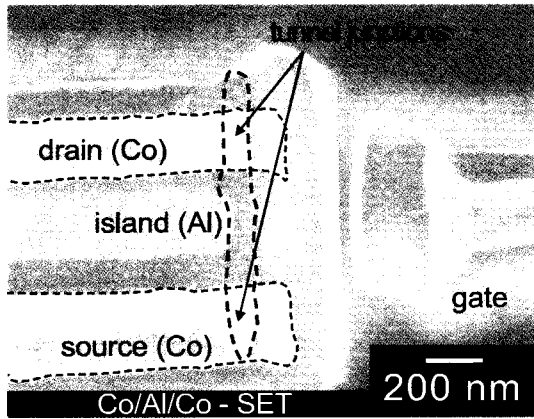


図 5: Co/Al/Co-SET の SEM 像.

表 1: 作製素子の寸法. 'S' は接合面積, 'W' は電極幅, 's' はソース, 'd' はドレイン, 'i' は島電極を表す.

	S (μm^2)		W (nm)		thick. (nm)	
	s	d	s	d	s,d	i
Co/Cr/Co	0.019	0.006	260	170	40	20
Co/Al/Co	0.028	0.028	320	240	45	25

印加した. 素子が平行状態または反平行状態になる磁界を印加し, SET-ON 状態または SET-OFF 状態となるようにゲート電圧を印加しながら, グランド電位から対称に $\pm V/2$ の電圧を印加して 4 状態の IV 特性を測定した. なお, Δ の磁界依存性による特性の差異を排除するために, 平行状態, 反平行状態の IV 特性を同一磁界下で測定した. その手順としては以下の通りである. 平行状態および反平行状態の両方を実現できる磁界を H_{meas} として説明する. ここで, $H_{C1} < H_{\text{meas}} < H_{C2}$ の関係にあるとする. (1) H_{C2} (約 3 kOe) よりも強い磁界 (約 10 kOe) を素子に印加 (平行状態). (2) 印加磁界を徐々に弱め, H_{meas} に固定して, IV 特性を測定 (平行状態). (3) 磁界をさらに弱め, 磁界を反転させ, 約 -10 kOe まで磁界を挿引 (平行状態, ただし, 磁化方向は (1)~(2) とは逆向きである). (4) 約 -10 kOe から正方向の H_{meas} まで磁界を挿引し, そこで磁界を固定し, IV 特性を測定 (反平行状態). このような手順により, 同一磁界で平行状態, 反平行状態を実現した.

4 実験結果

4.1 4 状態の IV 特性

図 6 に島電極が常伝導体である Co/Cr/Co-SET の 4 状態それぞれのしきい値電圧付近の IV 特性を示す. 図 6 の SET-ON 状態と SET-OFF 状態の違いから -80 μV の SET-OFF 状態のしきい値電圧を確認した. また, 平行状態と反平行状態の違いから, 反平行状態の

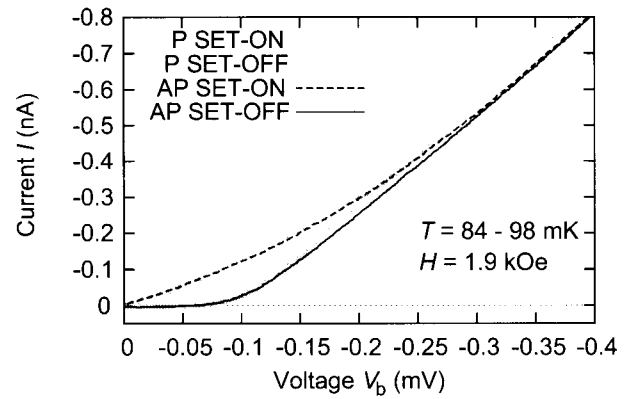


図 6: Co/Cr/Co-SET の 4 状態それぞれのしきい値電圧付近の IV 特性.

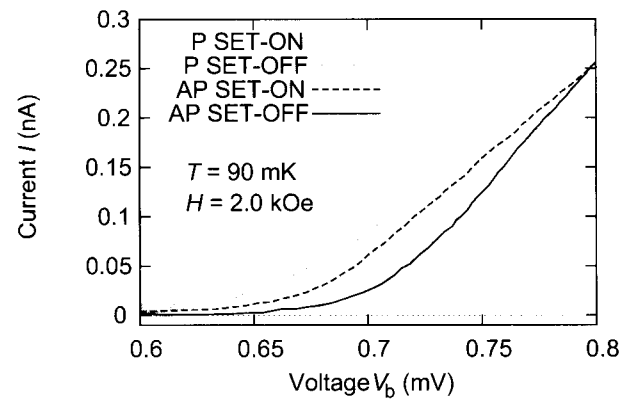


図 7: Co/Al/Co-SET の 4 状態それぞれのしきい値電圧付近の IV 特性.

抵抗が増加したことを確認した. 平行状態と反平行状態ではしきい値電圧に変化はなかった.

図 7 に島電極が超伝導体である Co/Al/Co-SET の 4 状態それぞれのギャップ付近の IV 特性を示す. この特性には超伝導ギャップ $2\Delta/e$ と CB 領域の $e/2C$ が含まれている. SET-ON 状態に注目すると, 平行状態のしきい値電圧は 640 μV であったのに対し, 反平行状態のしきい値電圧は 660 μV と 20 μV 大きくなった. これは, これまでに FM/SC/FM-SET において観測されていたスピン蓄積効果によるギャップ電圧減少とは逆の特性である [5, 4]. この特性は, SET-OFF 状態でも観測され, 平行状態での 650 μV に対し, 反平行状態では 700 μV であった. なお, 今回の FM/SC/FM-SET の超伝導ギャップ $2\Delta_{\text{Al}}$ は, SET-ON 状態・平行状態のしきい値電圧から求めたところ 640 μeV であった.

4.2 磁気抵抗比の算出

図 6 の SET-ON 状態の平行・反平行状態の IV 特性から Co/Cr/Co-SET の MRR (MRR_{on}) を, 図 6 の SET-OFF 状態の平行・反平行状態の IV 特性から

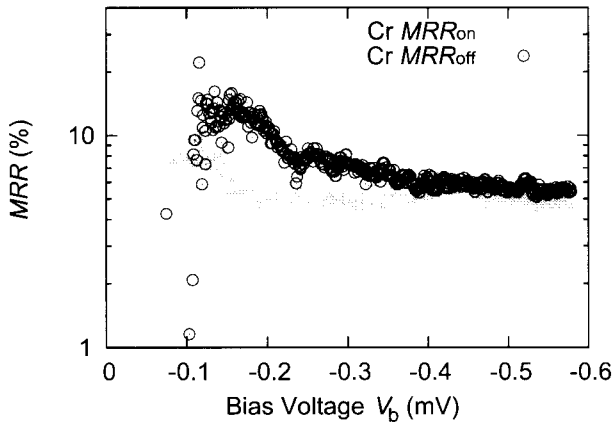


図 8: Co/Cr/Co-SET の $MRR-V_b$ 特性.

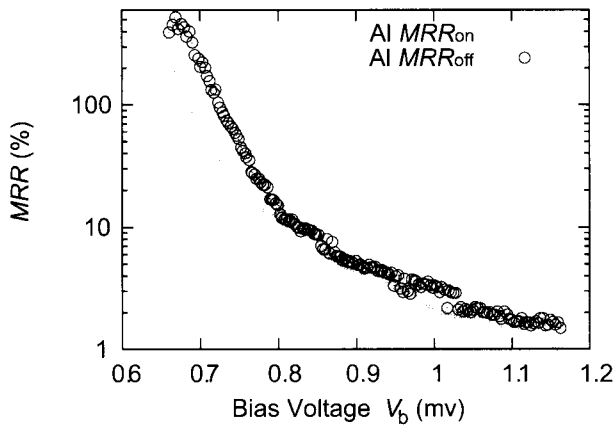


図 9: Co/Al/Co-SET の $MRR-V_b$ 特性.

MRR (MRR_{off}) をそれぞれ算出した。算出する際には、バイアス電圧の差が1%未満であれば同一バイアスとし、式(2)を使用した。Co/Al/Co-SETの MRR は図7の4状態から同様に算出した。算出結果を図8と図9に示す。

島電極が常伝導体のCo/Cr/Co-SETの MRR_{on} はバイアス電圧が $-110\mu V \sim -160\mu V$ 付近で10%だったのに対し、 MRR_{off} はバイアス電圧が $-120 \sim -160\mu V$ の範囲で16%であった。 MRR_{on}, MRR_{off} ともに $-0.38\mu V$ 以下の電圧では5%程度であった。

一方、島電極を超伝導体にしたCo/Al/Co-SETの MRR_{on} は、バイアス電圧が $630\mu V$ 付近で290%の最大値をとり、 MRR_{off} はバイアス電圧が $670\mu V$ 付近で最大値510%をとった。 MRR_{on}, MRR_{off} ともに $1000\mu V$ 以上の電圧では1.5%程度になった。

5 考察

以下、高バイアス下 (SET-ON 状態と SET-OFF 状態の IV 特性が一致する電圧領域) と、低バイアス下 (SET-ON 状態と SET-OFF 状態の IV 特性が不一致である領域) に分け、さらに低バイアス下については

SET-ON 状態と SET-OFF 状態それぞれについて考察する。また、Coのトンネル電子の偏極率35%から[10], 式(3)を用いてCo接合の理論値を算出し、27.9%を得た。

5.1 高バイアス下の MRR について

まず、高バイアス下の MRR について考える。高バイアス下では、島電極材料に関わらず、理論値よりも小さな値となった。我々のCo薄膜のトンネル電子のスピンの偏極率を測定したところ、11.6%~19.7%の値が得られており、この値から式(3)を用いて MRR を算出すると、2.7%~8.1%となる。本研究の高バイアス下の MRR はこの値に近いと言える。つまり、高バイアス下にはCoのトンネル電子の偏極率のみで MRR が決定されていると考えられる。

5.2 低バイアス下での MRR_{on} について

図8および図9からわかるように、 MRR_{on} の低バイアス下において島電極が常伝導体のCo/Cr/Co-SETでは理論値の範囲内であったのに対し、島電極が超伝導体のCo/Al/Co-SETでは理論値を越える値をとった。つまり、島電極に超伝導体を用いたことで、 MRR の値が大きくなった。これは、4.1節で述べた通り、Co/Al/Co-SETにおいて、反平行状態でしきい値電圧が $20\mu V$ 増大したことで、SET-ON状態の平行状態と反平行状態の電流値 I_P と I_{AP} に大きな相違が現れ、理論値を越える MRR となったと考えられる。この様に反平行状態でしきい値電圧の増加する原因については、現在検討中である。

5.3 低バイアス下での MRR_{off} について

図8および図9に示す、低バイアス下の MRR_{off} に注目する。島電極材料によらず、Co/Cr/Co-SETとCo/Al/Co-SETのどちらにおいても、 MRR_{on} に比べて MRR_{off} の増大を確認した。そこで今回は、2.3節で述べたコトンネリングモデル式(3)を用いて、SET-ON状態の平行状態・反平行状態の IV 特性から MRR_{cot} を算出し、 MRR_{off} と比較した。

図10と図11に結果を示す。これらから分かるように、 MRR_{off} が MRR_{on} よりも増大しているバイアス領域で、 MRR_{cot} が MRR_{off} とほぼ一致した。これは、今回の MRR_{off} の増大は、コトンネリングモデルで説明できることを示している。

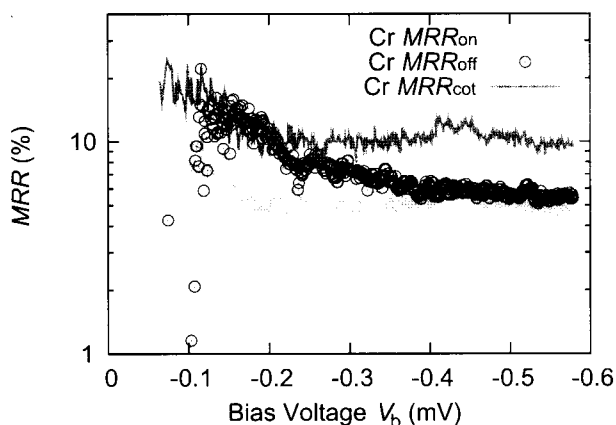


図 10: Co/Cr/Co-SET の $MRR-V_b$ 特性とコトンネリングモデル計算結果.

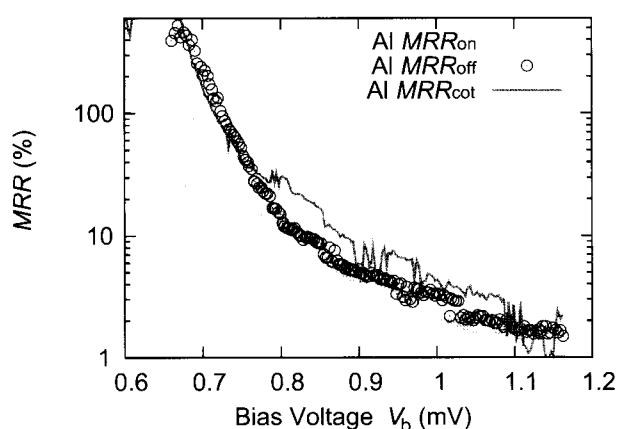


図 11: Co/Al/Co-SET の $MRR-V_b$ 特性とコトンネリングモデル計算結果.

6 まとめ

本研究では、強磁性単一電子トランジスタでのスピンバルブ効果の定量的評価とデバイス応用を目指し、島電極材料が常伝導体である Cr、および超伝導体である Al にと素子を作製し、その MRR に関する特性評価を行った。高バイアス下の MRR は Co が持つトンネル電子のスピン偏極率で決定されていた。SET-ON 状態の低バイアス下では常伝導体の島電極を持つ Co/Cr/Co-SET の MRR は、Co のトンネル電子のスピン偏極率から算出される理論値の範囲内であったのに対し、超伝導体の島電極を持つ Co/Al/Co-SET の MRR は理論値以上の値をとった。つまり、強磁性リード電極を持つ SET においては、島電極を超伝導体にするだけで、大きな MRR をとると考えられる。また、SET-OFF 状態の低バイアス下では Co/Cr/Co-SET、Co/Al/Co-SET 共に MRR_{off} の増加を観測した。これらについては、コトンネリングを考慮したモデル計算を行い、どちらの SET についても実験値と近い結果を得た。

参考文献

- [1] K. Ono, H. Shimada, and Y. Ootuka, "Enhanced magnetic valve effect and magneto-coulomb oscillations in ferromagnetic single electron transistor," J. Phys. Soc. Jpn., vol. 66, no. 5, pp. 1261–1264, 1997.
- [2] H. Bruckl, G. Reiss, H. Vinzelberg, M. Bertram, I. Monch, and J. Schumann, "Enhanced magnetoresistance of permalloy/Al-oxide/cobalt tunnel junctions in the coulomb blockade regime," Phys. Rev. B, vol. 58, no. 14, pp. R8893–R8896, 1998.
- [3] J. Shirakashi, and Y. Takemura, "Tunnel magnetoresistance on ferromagnetic single-electron transistors with multiple junction," J. Appl. Phys., vol. 89, no. 11, pp. 7365–7367, 2001.
- [4] J. Johanson, M. Urech, D. Haviland, and V. Korenivski, "Suppression of superconductivity due to spin imbalance in Co/Al/Co single electron transistor," J. Appl. Phys., vol. 93, no. 10, pp. 8650–8652, 2003.
- [5] S. Takahashi, H. Imamura, and S. Maekawa, "Spin Imbalance and Magnetoresistance in Ferromagnet /Superconductor/Ferromagnet Double Tunnel Junctions," Phys. Rev. Lett., vol. 82, no. 19, pp. 3911–3914, 1999.
- [6] G. J. Dolan, "Offset masks for lift-off photoprocessing," Appl. Phys. Lett., Vol. 31, pp. 337–339, 1997.
- [7] Y. Mizugaki, H. Hakii, M. Moriya, K. Usami, T. Kobayashi, and H. Shimada, "Tunnel magnetoresistance in ferromagnet-superconductor-ferromagnet single-electron transistors with different lead spacings up to $50\mu\text{m}$," Jpn. J. Appl. Phys., vol. 46, no. 37, pp. L901–L903, 2007.
- [8] T. W. Clinton and M. Johanson, "Magneto quenched superconducting valve with bilayer ferromagnetic film for uniaxial switching," Appl. Phys. Lett., vol. 76, no. 15, pp. 2116–2118, 2000.
- [9] Y. Ootuka, T. Uchiyama, and H. Shimada "One-day dilution refrigerator," Cryogenics, vol. 33, pp. 923–925, 1993.
- [10] P. M. Tedrow and R. Meservey, "Spin Polarization of Electrons Tunneling from Films of Fe, Co, Ni, and Gd," Phys. Rev. B, vol. 7, no. 1, pp. 318–326, 1973.