科学研究費助成事業(科学研究費補助金)研究成果報告書

平成24年 6月 1日現在

機関番号:12608 研究種目:若手研究(B)
研究期間:2010~2011
課題番号:22760226
研究課題名(和文) シリコン上への高品質ハーフメタルフルホイスラー合金形成技術と スピン注入技術の創出
研究課題名(英文) Development of formation technologies of high-quality half-metal full-Heusler alloys on Si and spin-injection technologies
研究代表者
周藤 悠介 (SHUTO YUSUKE)
東京工業大学・像情報工学研究所・特任助教
研究者番号:80523670

研究成果の概要(和文):シリコン CMOS テクノロジーの微細化に頼らない新たな機能向上方 法として、"シリコン・スピントロニクス"が有望である.この技術の創出のためには、シリコ ンチャネル中への高効率スピン注入/検出/操作手法の確立が不可欠である.そこで本研究課 題では、高効率スピン注入源・検出器となる高品質ハーフメタル・フルホイスラー合金のシリ コン上への形成技術を創出し、さらにシリコンチャネル中でのスピン挙動の観察に適したデバ イス設計を行った.

研究成果の概要 (英文): "Silicon spintronics" is promising for improving functionalities of silicon CMOS technology without scaling. To develop this technology, methods of spin-injection/detection/manipulation for a Si channel must be established. Therefore, in this study, formation technologies of high-quality half-metal full-Heusler alloys, which can become high-efficient spin-injector/detector, on Si were developed. Furthermore, device structures which were suitable for observing behavior of spins were designed.

交付決定額

(金額単位:円) 間接経費 直接経費 合 計 2010年度 2,500,000 750,000 3,250,000 2011 年度 300.000 90.000 390.000 年度 年度 年度 総 計 2,800,000 840,000 3,640,000

研究分野:スピンエレクトロニクス,エピタキシャル,先端機能デバイス,磁性 科研費の分科・細目:電気電子工学・電子電気材料工学 キーワード:作成・評価技術,スピントロニクス材料

1. 研究開始当初の背景

(1)シリコン・スピントロニクスの創出 シリコン CMOS テクノロジーの微細化が物 理的限界を迎えつつある今,微細化に頼らな い高性能・高機能化が要求されている.その 方法の一つとして、キャリアのスピン自由度 を導入したスピントランジスタ、特にシリコ ン MOSFET をベースとしたスピン MOSFET[1]が、CMOS 回路へ整合するスピ ントロニクスデバイスとして非常に有望視 され, International Technology Roadmap for Semiconductors (ITRS)[2]の Emerging Research Devices(ERD)にも挙げられている. スピン MOSFET の提案を発端とし、シリコ ンテクノロジーにスピントロニクスを融合 した"シリコン・スピントロニクス"が新た な研究分野として確立しつつある.研究代表 者の所属するグループでは、スピン MOSFET 作製のための基盤技術の確立や, それを用いた CMOS ベースの新規ロジック 回路の創出を目指している[3,4].

(2) スピン注入/検出技術の確立 シリコン・スピントロニクス確立における最 大の課題は、シリコンデバイスのチャネル中 にどのようにスピンの偏りを持ったキャリ アを導入し、またどのようにその偏りを検出 するか、すなわち、シリコンチャネル中への スピン注入および検出技術の確立である.ス ピン注入・検出が効率良く行われるためには, スピン注入源となる強磁性体の開発、そして スピンの散乱体となる強磁性体/半導体界 面ラフネスの抑制が必須となる.最適なスピ ン注入源として、図1のようなフェルミ面の キャリアのスピン分極率が 100%となるバン ド構造を持つハーフメタル・フルホイスラー 合金が注目されている. その中でも構成原子 に Si や Ge を含み, CMOS プラットホーム への整合性の良いとされる Co₂FeSi・ Co₂FeGe が大変有望である.



(3) ハーフメタル・フルホイスラー合金 良い磁気特性や高いスピン分極率を持つ Co₂FeSi・Co₂FeGeを得るには,結晶構造の 高品質化・高規則化が鍵となる.これらは図 2 に示すような L_{21} 規則構造を持つことが理 想的である.研究代表者の所属するグループ では既に,SOI 基板を用いた Rapid thermal annealing (RTA)により, L_{21} 規則構造の含有 率(規則度)高い Co₂FeSi を得る方法を実証し ている[5].しかしながら,完全に L_{21} 規則化 した単結晶構造を得るまでには至っていな い.またスピン散乱体となる単結晶のSi チャ ネルとの接合界面の平坦性も明らかになっ ていない.



G 2. フルホイスフレ 日並 Co₂FeSiの規則構造(*L*2₁構造)

参考文献: [1]ITRS 2007 Edition. [2]S. Sugahara, IEE Proc. Circ. Dev. Syst., 152, 355 (2005). [3]S. Yamamoto, and S. Sugahara, JJAP, 48, 043001 (2009). [4]Y. Shuto, S. Yamamoto, and S. Sugahara, JAP, 105, 07C933 (2009). [5] Y. Takamura, R. Nakane, H. Munekata, and S. Sugahara, JAP, 103, 07D719/1-3 (2008).

2. 研究の目的

本研究課題では、シリコン CMOS テクノロ ジーの微細化に頼らない新たな機能向上の 方法として,スピントロニクスの概念をシリ コンテクノロジーに導入した"シリコン・ス ピントロニクス"を確立・展開する. その最 大の課題は、シリコンチャネル中へのスピン 注入/検出技術の確立である.本研究課題で は, 効率の良いスピン注入源となるハーフメ タル・フルホイスラー合金をシリコン上へ高 品質に形成する手法を確立し,また,最適設 計された Si チャネル・マルチターミナルデバ イスを用いてシリコン中でのスピンの挙動 を観察することによって、シリコン・スピン トロニクスのキーデバイスであるスピン MOSFET 作製のための基盤技術の確立を目 指す.

3. 研究の方法

(1)シリコン上ハーフメタル・フルホイス
ラー合金形成技術の確立
シリコン基板上へフルホイスラー合金
Co₂FeSi・Co₂FeGe 薄膜の高品質形成を行う.
形成手法は、①Germanium-on-insulator
(GOI)基板を用いた RTA 法による Co₂FeGe
薄膜の形成、②シリコン基板上へ堆積した
MgAl₂O₄絶縁膜上への RTA 法による
Co₂FeSi 薄膜の形成、の2 種類の方法を行う.

①GOI 基板を用いた RTA 法による Co₂FeGe 薄膜の形成

研究代表者の所属するグループでは SOI を 用いた Co₂FeSi の形成手法を確立していたが, これと同様の方法で,GOI 基板を用いた Co₂FeGe 薄膜の形成を試みる.各元素の堆積 方法は,超高真空の電子ビーム蒸着と分子線 エピタキシー(MBE)法を用いて行い,より高 品質となるように条件を選んで形成する.結 晶構造の観察・同定は X 線回折(XRD)法およ び透過電子顕微鏡(TEM)により行う.規則度 の計算は当グループで提案された拡張 Webster モデル[6]を用いる.

②シリコン基板上へ堆積した MgAl₂O₄ 絶縁 膜上への RTA 法による Co₂FeSi 薄膜の形成 研究代表者の所属するグループでは Si 基板 上へ形成した絶縁膜(SiO₂, SiON など)上に, アモルファス Si および各構成元素を堆積し, RTA 処理することによってやはり高品質の Co₂FeSi 薄膜を得る手法を確立している[7]. ここでは絶縁膜上により高品質のCo₂FeSi薄 膜を形成するため、絶縁膜に結晶性の MgAl₂O₄を用いて Co₂FeSi 層の高配向化を 狙う. MgAl₂O₄絶縁膜は, MgO と同様に対 称性軌道の電子を優先的に通す効果があり, これと高品質ハーフメタル強磁性体電極を 組み合わせることによって、スピンフィルタ ー効果が期待できるとされており,スピン注 入源として有用であると考えられる. 絶縁膜 の形成は真空一貫で行い、超高真空のスパッ タ法とラジカル酸化法を併用して形成のた めの最適な条件を探る. MgAl₂O₄絶縁膜上の Co₂FeSi 層は MBE を用いて成長し、高品質 な結晶の形成を狙う. MgAl₂O₄絶縁膜に対し てはX線光電子分光(XPS)を用いて各元素の 結合状態からその品質を評価する. また Co₂FeSi 層は同様に XRD による配向性・規 則構造の評価を行う.

(2) Si チャネル・マルチターミナルデバイスの設計

Si チャネル・マルチターミナルデバイスの設計を行う. Si チャネルへのスピン注入・検出 およびチャネル中でのスピンの挙動を把握 するためには、スピンバルブ効果、ハンル効 果、スピン拡散長、スピン寿命を観測する必 要がある. そのために適したチャネル構造・ 電極構造を、デバイスシミュレータを用いて 探る. 現段階で実行可能なプロセスや測定装 置の制限を踏まえ、これらの現象が信頼性高 く測定可能なデバイス構造を設計する.

参考文献: [6] Y. Takamura, R. Nakane, and S. Sugahara, J. Appl. Phys. **105**, 07B109 (2009). [7] K. Hayashi, Y. Takamura, R. Nakane, and S. Sugahara, J. Appl. Phys., 107, 09B104 (2010).

4.研究成果(1)シリコン上ハーフメタル・フルホイスラー合金形成技術の確立

 ①GOI 基板を用いた RTA 法による Co₂FeGe 薄膜の形成
試料作製は以下のように行った.約2 nmに 薄層化した SOI(100)上に低温 MBE 法で単結 晶 Ge を成長した疑似 GOI(100)基板を用い, 超高真空電子ビーム蒸着法によって Co と Fe を連続堆積し, N₂雰囲気中で 750℃で4分間 の RTA を行った(図 3).作製した試料は深さ 方向に対し均一な組成で, Co, Fe, Ge の組 成はそれぞれ 57%, 23%, 20%であった.



図 3: RTA による Co₂FeGe 薄膜の形成手法.

試料の結晶構造評価は, XRD のω-20測定及 び面内のφ-2θχ測定によって行った. 図 4(a) に示すように、ω-20回折パターンには(220)、 (400)の基本格子線と(200)の規則格子線が観 測され、試料が(100)面と(110)面の2 つの配 向成分を含むことが分かった. その強度比か ら(100)配向成分が支配的であると考えられ る. また(200)回折から、Co₂FeGe 薄膜が B2 構造以上の規則構造を形成していることを 確認した. また面内のφ-2θχ測定を Si[001]と Si[011]方向から始めると、Co₂FeGe 薄膜の XRD パターンは、それぞれ(004)、(002)回折 と(022)回折を示した。図 4(b)に 20xをそれぞ れ(004), (022)回折の角度に固定し, 面内角 φ 方向に走査し測定したXRDパターンを示す. {004}, {022}回折の明瞭な4回対称性が確認 でき, 互いに 45°ずれていることから, Co₂FeGe 薄膜中の(100)配向成分は, エピタ キシャル膜であると結論した.



Co₂FeGe 薄膜の規則度を評価するため, 試料 煽り角 ψ と 20を, ぞれぞれ 54.6°, 26.9°に合 わせ, ϕ 走査を行ったところ, 4 回対称性の (111)回折ピークが観測されたことから, Co₂FeGe 薄膜が L2₁構造を有し, エピタキシ ャル膜であるという議論と整合した. 拡張 Webster モデルによって算出した規則度は, L2₁規則度 85%, B2 規則度 83%という高い 値を示した.

図5にCo₂FeGe 薄膜試料のTEM 像を示す. 結晶欠陥や粒界があるものの,全体的に均一 のコントラストを示すことから,ほぼエピタ キシャル膜であることがわかった. また高 解像度の観測からは,埋込酸化膜から直接エ ピタキシャル成長し,界面に異相の形成は無 かった.



図 5: Co₂FeGe 薄膜試料の TEM 像.

以上の結果より、GOI 基板上 Co₂FeGe 薄膜 の高品質形成法が見出された.この技術は、 現行の CMOS テクノロジーのみならず、次 世代の Ge チャネル・高移動度 MOSFET に 対しても適応可能と考えられ、将来の Ge チャネル・スピン MOSFET 作製のために非常 に有用な技術となる.

②シリコン基板上へ堆積した MgAl₂O₄絶縁 膜上への RTA 法による Co₂FeSi 薄膜の形成 最初に MgAl₂O₄ 絶縁膜の形成条件の最適化 を行った. Si(001) 基板上にスパッタにより MgAl2合金を堆積し、室温によるラジカル酸 化によってごく薄い MgAl₂O₄を形成した.ま た高品質化・結晶化のため形成後のアニール 処理も行った. XPS による評価から, MgAl₂ 膜厚が厚い(数 nm)の試料では 5 分間のラジ カル酸化では不十分となり、形成後のアニー ル処理が必要となるが、一方 MgAl2を 1nm とした試料では, ラジカル酸化時間あるいは 形成後のアニールに依らず、均一な MgAl₂O₄ 層が形成されることが分かった. 1nm の MgAl₂の酸化により MgAl₂O₄が 1.9nm とな り、トンネルバリアとして利用可能であるこ とが分かった. また MgAl₂O₄と Si 界面のサ ブオキサイド膜厚によって界面状態を調べ たところ、図6に示すように、ラジカル時間 及び800℃までのアニールの有無にかかわら ず,1原子層以下の膜厚を示したため,急峻 な界面が得られていることが示唆された.



図 6: 界面サブオキサイドのアニール温度依存性.

次に、得られたごく薄い MgAl₂O₄絶縁膜(中 心条件: MgAl2 膜厚 1nm, ラジカル酸化時間 5分, アニール温度 400℃, アニール時間 90 分)上に、MBE 法による Co₂FeSi 薄膜の成 長を試みた. 成長温度を室温, 100℃, 200℃ とし, RHEED および XRD による結晶構造 観察を行ったところ、他の配向成分もわずか に含むものの, 試料はおよそ 10°傾いた(110) 配向を持つ多結晶であることが分かった. XRD により規則構造を同定したところ,室温 成長ではA2, 100℃および 200℃の成長では B2 構造を示し、200℃の試料が最も高い規則 度を示すことが分かった.次に、Co₂FeSi成 長温度を 200℃と固定し, MgAl₂O₄絶縁膜の アニール温度依存性(400・600・800℃)を 調べた. 成長直後の RHEED 像は、全てにお いて多結晶を示すリングパターンであった が、400℃の試料に比べ600℃・800℃ではよ り強い配向性を示す、周期性のスポットのあ るリングパターンを示した(図 7). XRD 観察 から, 試料は(110)配向成分と(100)配向成分 を持ち, MgAl₂O₄絶縁膜のアニール温度の上 昇につれて、(110)配向成分のピークのみが強 くなることが分かった(図 8). 極点図の観測 から、この(110)配向成分は面内依存性を持た ないことがわかった. XRD による規則構造の 同定をおこなったところ、MgAl2O4絶縁膜の アニール温度が 600℃以上で L21 規則構造を 示す(111)規則格子線が観測され,800℃では それがより明確に観測されるようになった ことから、MgAl₂O₄絶縁膜のアニール温度の 上昇によってより規則性の高いCo₂FeSiが形 成されることが明らかとなった.



図 7:800℃アニールした MgAl₂O₄絶縁膜 上 Co₂FeSi 薄膜の成長後 RHEED 像.



図 8: (a) XRD ω-20回折パターンの MgAl₂O₄ 絶縁膜アニール温度依存性. (b) (220)回折ピ ークのψ依存性.

以上の結果から、Si 基板上にごく薄い結晶性 の MgAl₂O₄絶縁膜を介して、規則性の高い高 配向 Co₂FeSi 多結晶薄膜を形成する手法が見 出された.得られた Co₂FeSi/MgAl₂O₄/Si 構 造によって、ハーフメタル性がスピンフィル ター効果によってより増強され、Si チャネル に対して非常に高効率のスピン注入源とな ることが期待される.

(2) Si チャネル・マルチターミナルデバイ スの設計

シミュレーションにはシノプシス社の Sentaurus による 2 次元解析を用いた. 基本 的なデバイス構造を図9に示す.厚さ500μm のバルク Si 基板,低濃度 n ないし p 基板上 へ高濃度 n-Si エピタキシャル構造,および SOI 基板を想定した. 強磁性電極は PolySi で代用し, Fe と同程度の抵抗となるように仮 想的にドープ濃度を n=1×10²³cm⁻³ とした. また PolySi のドープ濃度をわずかに小さく (n=9.9×10²²cm⁻³)して 2 つの抵抗値 (R_{low} と R_{high})を設定し,強磁性電極の異方性磁気抵 抗(AMR)を再現した(AMR 比:1%). また、伝 導率ミスマッチを考慮し,各電極と基板との 間に薄い Si 酸化膜(=0.8nm)を挿入し、トン ネル注入型電極とした. 全デバイス長を 1mm とし、両端から 250µm の位置に幅 100µm の参照電極 1 と 2 (Ref1・Ref2) を 配置し, デバイスの中心近傍に幅 1µm の強 磁性電極1と2 (FM1・FM2) を配置した. Ref1 と FM1 を局所部, Ref2 と FM2 を非局 所部とした. バルク基板を用いたデバイスに おいて,局所部に 10µA の定電流を流し FM1 からの電子注入を行ったときの静電ポテン シャル分布と電流パスを図 10 に示す.静電 ポテンシャルの勾配は局所側だけでなく非 局所側にも分布し,電流パスが非局所側にも 形成されることが分かった.次に,FM1を固 定し, FM2 を遠ざけることによって, 非局所 電圧(*V*NL)の強磁性電極間距離(*D*)依存性を求 めた.静電ポテンシャル分布による VMLが現 れ,1の増加に応じてその絶対値が減少した. FM1 が Rlow と Rhigh の場合の VNL の差(Δ VNL) を図 11 に示す. Δ VnL が最大で数uV 変化し ており、FM1 の AMR が非局所側に影響する ことがわかった. さらにこのシグナルは1に 依存して指数関数的に減衰した. この観測シ グナルの挙動は非局所配置スピンバルブに おける非局所電圧の強磁性電極間の距離依 存性に良く似ている.また, Δ VNL は注入電 流の向きを変えるとΔV_{NL}の符合も反転する ことから, 非局所シグナルの検出のみでは,





図 10: バルク基板(n=1×10¹⁶cm⁻³)デバイスの 静電ポテンシャル分布および電流パス.



図 11: バルク基板(n=1×10¹⁶cm⁻³)デバイスの Δ K_Lの強磁性電極間距離 *1* 依存性.

静電ポテンシャルの基板への分布を抑える には、チャネル膜厚を局所チャネル長の1/10 ~1/100 程度に減ずれば良いことがシミュレ ーションにより分かったが、現実的には、エ ピタキシャル基板あるいは SOI 基板を用い る方法が有効である。図 12 に各デバイス構 造と、表面近傍でのポテンシャル分布を示す. 特に低濃度 p-Si 基板上へ膜厚 1.5μm 程度の 高濃度 n-Si をエピタキシャル成長した基板、 ないしは SOI 基板を用いれば、静電ポテンシ ャルはほとんど局所部のみの分布となり、非 局所側には勾配が無く、局所強磁性電極 AMR の影響が非局所部に及ばないことが分 かった.



図 12:エピタキシャル基板および SOI デバイ スの構造と表面近傍(10nm)の静電ポテンシ ャル分布.



図 13: 強磁性電極不均一性のワーストケー スのシミュレーションモデル,および静電ポ テンシャル分布と電流パスのシミュレーシ ョン結果.

また、電極の均一性も考慮する必要があるこ とが分かった. 電極や絶縁膜の品質が不均一 となった場合,局所的に電流が注入され,チ ャネル面内の静電ポテンシャルの不均一分 布が発生する. 図 13 に示すようなワースト ケース(チャネル端から局所的に電流注入) の場合、やはり AMR の影響が無視できなく なる.これを是正するには、作製プロセスを 改善し電極を非常に均一性良く形成する, あ るいはチャネル幅を小さく(やはり数µm 以 下)して、ポテンシャル分布が非局所側に及 ばないようにする必要があると分かった. 以上の結果から, Si チャネル中でのスピンの 挙動を観察する非局所マルチターミナルデ バイスの設計論が構築された.さらには,こ の設計論は、スピン MOSFET などの半導体 スピンデバイス設計・作製のための指針とも なり得る.

5. 主な発表論文等 (研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計1件)

①Y. Takamura, T. Sakurai, R. Nakane, Y. Shuto, and S. Sugahara, "Epitaxial germanidation of full-Heusler Co₂FeGe alloy thin films formed by rapid thermal annealing", Journal of Applied Physics, **109**, 07B768/1-3 (2011).

〔学会発表〕(計4件)

①<u>Y. Shuto</u>, Y. Takamura, and S. Sugahara, "Numerical simulation analysis of nonlocal multi-terminal devices for spin current detection in semiconductors", 55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2010), Atlanta, GA, USA, November 14-18, 2010, paper DD-04.

②Y. Takamura, T. Sakurai, R. Nakane, <u>Y.</u> <u>Shuto</u>, and S. Sugahara, "Comparative study of full-Heusler Co₂FeSi and Co₂FeGe

alloy thin films formed by rapid thermal annealing", 55th Annual Conference on Magnetic Magnetism and Materials (MMM2010), Atlanta, USA, November 14-18, 2010, paper CV-02. ③周藤悠介, 高村陽太, 菅原聡, "非局所配置 マルチターミナルデバイスの数値解析シミ ュレーション", 2010 年秋季 第71 回応用物 理学会学術講演会,長崎市,長崎, September 14-17, 2010, paper 16a-A-10. ④櫻井卓也, 高村陽太, 中根了昌, <u>周藤悠介</u>, 菅原聡, "RTA によるフルホイスラー合金 Co₂FeGe 薄膜のエピタキシャル形成", 2010 年秋季 第71回応用物理学会学術講演会,長 崎市, 長崎, September 14-17, 2010, paper 14p-F-7.

研究組織
研究代表者
周藤 悠介 (SHUTO YUSUKE)
東京工業大学・像情報工学研究所・特任助教
研究者番号:80523670

)

(2)研究分担者 ()

研究者番号:

(3)連携研究者 (

研究者番号: