

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18719

研究課題名（和文）半導体スピン素子における低抵抗バンドマッチスピン注入技術の創出

研究課題名（英文）Development of spin injection technology through energy-band symmetry matching in semiconductor-based spin devices

研究代表者

山田 道洋（Yamada, Michihiro）

大阪大学・大学院基礎工学研究科・特任准教授（常勤）

研究者番号：50778529

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、全ての半導体スピントロニクス技術の核となる半導体へのスピン注入技術に関して、絶縁障壁層を利用した従来の電極構造の概念を覆し、強磁性合金/金属原子層/半導体の直接接合を用いた革新的電極構造を用いて、高効率かつ低抵抗なスピン注入の実現を目指した。はじめに金属原子層材料の探索を行い界面磁性が性能指標である磁気抵抗比およびその温度依存性を支配することを明らかにした。さらに高スピン偏極材料のホイスラー合金の材料開拓によりスピン注入電極の熱耐性を向上させた。以上のことから、金属原子層材料の探索と設計指針について明らかにし、デバイス化に向けた高効率かつ低抵抗な革新的電極構造を開拓した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、原子層レベルで制御したエピタキシャル強磁性体/半導体界面を用いることで、数原子程度の界面磁性がスピン注入効率に対して影響を与えており、さらにその温度依存性がプロットで説明されることを明らかにした。これは、これまで実験的に観測が不可能であった強磁性体/半導体界面でのスピン注入機構に関する学理構築に資する成果である。さらに、これらの温度依存性や注入効率に関する知見は、室温でのスピン注入増大という工学的な意義もあり、今後の室温スピントロニクスデバイスの高性能化に向けた指針を示す。

研究成果の概要（英文）：The spin injection into semiconductor is core technology for development of semiconductor-based devices. In this study, we tried to develop the highly efficient and low resistive spin injection technique using novel ferromagnet/metal atomic layers/semiconductor structures without insulating tunnel barrier.

At first, we explored the effect of inserted metal species on spin transport properties. From the results, it was found that the interfacial magnetism depending on the metal species dominates magnetoresistance (MR) ratio and temperature dependence of the MR ratio. We also demonstrated the improvement of thermal stability of spin injection contact by utilizing appropriate Co-based Heusler alloys.

From the above, we revealed the important factor in spin injection interface and developed the novel contact structure with highly efficient and low resistive junctions for device applications.

研究分野：半導体工学

キーワード：ゲルマニウム スピン注入 ホイスラー合金

1. 研究開始当初の背景

現在、すべてのものを有機的にインターネットによりつなぎ、AIによって制御する超スマート社会に向けて、情報処理にかかるエネルギー消費の問題解決が不可欠である。低消費電力デバイスを実現する新規デバイスとして、従来の半導体電子デバイスで情報処理を担う電子の電荷だけでなくスピンを積極的に用いることで新機能を創出する半導体スピndeバイスの実現が期待されている。そこで鍵となるのが、半導体中のスピンの向きを揃った状態（スピン偏極状態）にする「半導体へのスピン注入技術」である。室温で実現可能であるという点で、すでにスピン偏極している強磁性体から半導体へのスピン注入技術が有力視されている。その一方で、強磁性体と半導体とのスピン抵抗の違いから半導体に注入されたスピンは強磁性体へと再吸収されてしまう。そこで従来研究では、このようなスピン再吸収を抑制する観点から強磁性体と半導体の間に絶縁トンネル障壁を挿入することでスピン注入が行われていた。しかしその一方で、挿入した絶縁体により界面抵抗が増大してしまうという問題があった。

そこで研究代表者らはこれまでに高スピン偏極ホイスラー合金と半導体Geを直接接合したショットキトンネル障壁を用いることで、低抵抗なスピン注入界面を実現してきた[図1(b),(d)]。特に、図1(c),(e)に示すようにFeを数原子層挿入することで、強磁性体/半導体界面での相互拡散を抑制し、エピタキシャルな界面を実現することで、バンドマッチスピン注入の可能性が見出されてきていた[1,2]。そこで、原子層レベルで制御された界面を用いて、スピン注入現象を解明し、高効率なスピン注入が実現できるのではないかと着想し、研究を開始した。

2. 研究の目的

本研究では、全ての半導体スピントロニクス技術の核となる「半導体へのスピン注入技術」に関して、これまでの「絶縁障壁層を利用した強磁性金属/絶縁体/半導体」といった従来の電極構造の概念を覆し、スピン伝導バンドマッチングの概念を積極的に利用した強磁性合金/金属原子層/半導体という新しい電極構造を開発することで、半導体スピントロニクス素子の電極構造の低抵抗化と高性能化を両立する新技术を創出する。これにより強磁性体/半導体界面のスピン注入現象を解明し、次世代のスピンMOSFETなどのスピndeバイス実現に向けた基盤技術を切り拓く。

3. 研究の方法

強磁性ホイスラー合金/金属原子層/半導体エピタキシャル界面を低温分子線エピタキシー法により作製した。強磁性ホイスラー合金としては $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$ 、半導体としてはGeを用いた。金属原子層としてはGe(111)面で原子配列などが整合する体心立方構造を有するクロム(Cr)、バナジウム(V)などもちいた。作製した強磁性ホイスラー合金/金属原子層/半導体界面の構造評価は高角散乱環状暗視野走査透過顕微鏡法(HAADF-STEM)像とエネルギー分散型X線分光法(EDX)により行い、横型スピンバルブ素子を作製することでスピン注入・伝導特性の評価を行った。さらに温度依存性についても評価を行い、スピン注入現象の詳細な検討を行った。

また、スピndeバイス作製に向けては、熱耐性の向上も必須であるため、金属原子層をFeとして、異なるホイスラー合金 $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$ 、 $\text{Co}_2\text{MnSi}$ 、 $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$ を成長させた場合のスピン信号強度に対する熱処理温度依存性を評価した。

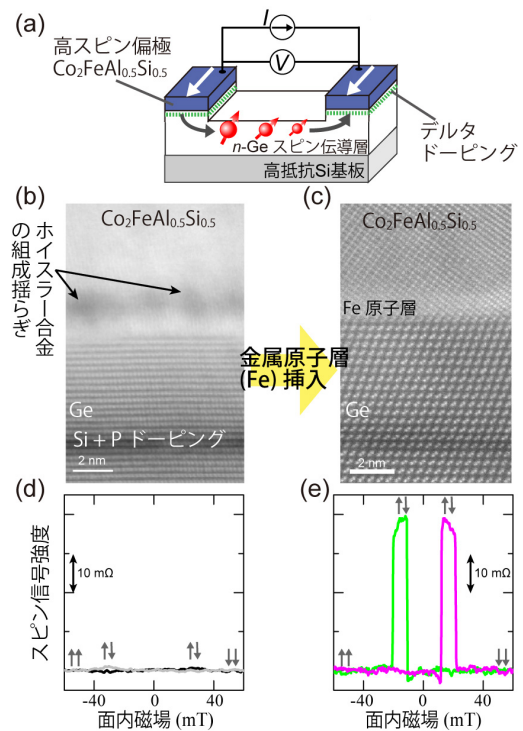


図1 (a)スピン記憶素子. (b),(d)従来の界面拡散による組成揺らぎのある $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Ge}$ 界面と(c),(e)Fe原子層挿入 $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Ge}$ 界面の電子顕微鏡像と室温スピン信号。

#### 4. 研究成果

##### (1) 強磁性合金/金属/半導体スピン注入・検出構造の作製

$\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  と Ge の間に Cr, V, Cu だけを挿入した場合には  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  の結晶性が低下することや磁性が著しく劣化していることから, Fe 原子層(~0.4 nm)をはじめに挿入し, 界面での相互拡散やホイスラー合金の結晶化を促進した. 図 2(a)-(c)の RHEED パターンに示すように非磁性金属原子層(Cr, V, Cu: ~0.4 nm)を挿入した場合にもストリークパターンが確認され, エピタキシャル成長していることが確認された. これらの試料に対して磁気特性を評価したところ飽和磁化はすべての試料で Ge 基板上に成長した  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  と同程度になっており良好な  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  膜が得られた. これらの強磁性ホイスラー合金/金属原子層/半導体界面の HAADF-STEM 像と EDX 元素マッピングの結果を図 3(a)-(c)に示す. Ge と Co の元素分布の界面が急峻であることから, 界面にある Fe 原子層が相互拡散を抑制している. また Cr と V に関しては図 3(d)に示すような明確な層構造が原子層レベルで制御されているが, Cu に関しては Cu と Fe が相分離しやすいことを反映して図 3(d)に示すように Cu と Fe が不均一に分布している.

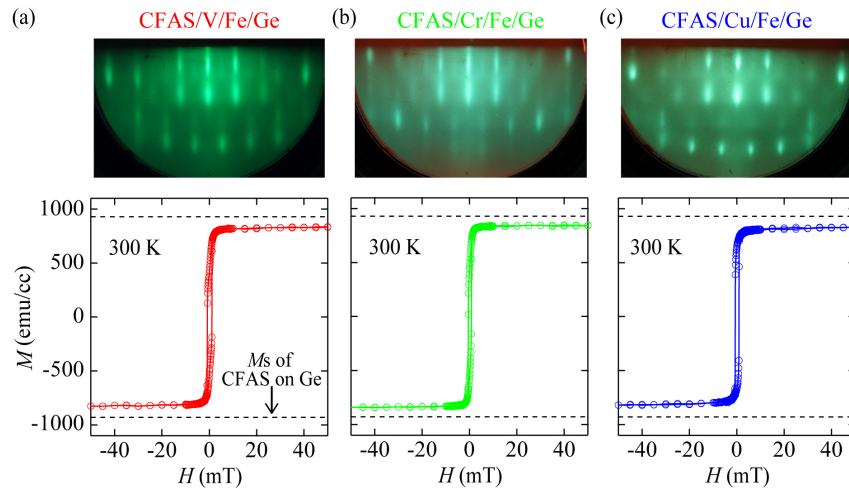


図 2 (a)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{V}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (b)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Cr}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (c)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Cu}/\text{Fe}/\text{Ge}$  構造の  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  表面に対する反射高速電子線回折(RHEED)パターンと磁気特性.

##### (2) 強磁性合金/金属/半導体電極構造とスピン信号の比較

これらのスピン注入電極を有する横型スピンバルブ素子を作製し[図 4(a)], スピン信号強度を比較した結果を図 4(b)-(g)に示す. すべてのスピンバルブ素子において界面の電流電圧特性は同程度となり, その強磁性/半導体界面の接合面積抵抗( $RA$ )は,  $\sim 0.2 \text{ k}\Omega\mu\text{m}^2$  と絶縁トンネルバリアを用いた場合と比較して約一桁以上低い値となり, 本研究で整備したセルによるドーピングによって低抵抗電極が形成されていることを確認した. 電極長手方向(y 軸)に外部磁場を掃引しながら抵抗変化を測定すると, すべての素子で磁化配置に依存した明瞭なスピン信号を観測した[図 4(b)-(g)]. V を挿入した場合[図 4(e)]には Fe だけを挿入した場合[図 4(b)]と比較して一桁程度減衰しており, Fe を挿入しなかった場合[図 4(c)]と同程度のスピン信号強度となっている. Cr を挿入した場合[図 4(g)]においても二桁程度の減衰が観測された. その一方で Cu を挿入した試料[図 4(d)]では, Fe だけを挿入した場合の半分程度ではあるものの, Cr, V と比較して大きなス

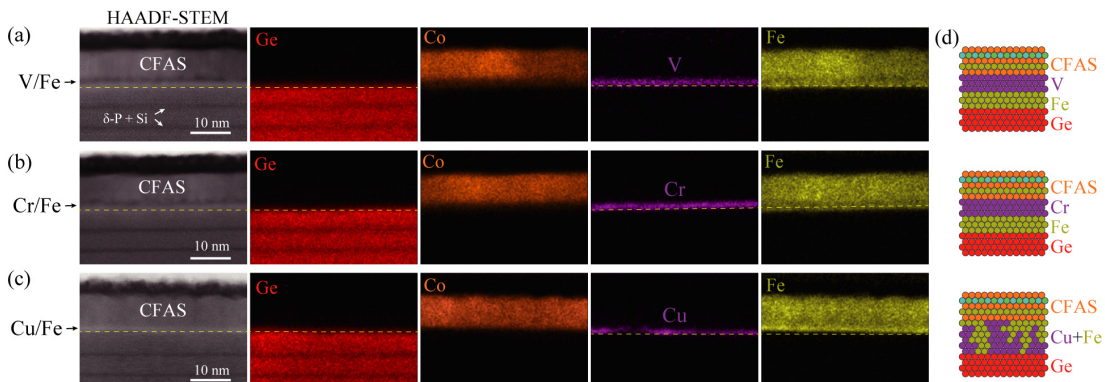


図 3 (a)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{V}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (b)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Cr}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (c)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Cu}/\text{Fe}/\text{Ge}$  高角散乱環状暗視野走査透過顕微鏡法(HAADF-STEM)像とエネルギー分散型 X 線分光法(EDX)による元素マッピング.

ピン信号が観測されている。これは、図 3(c)に示しているように、Cu が一様に分布しておらず、一部  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Fe}/\text{Ge}$  の構造が形成され、その領域を介してスピン注入検出が行われているためであると考えられる。わずかな原子層程度の非磁性層の挿入にも関わらず、スピン信号が著しく減衰することが明らかになった。理論計算の結果からも数原子層程度の非磁性金属層(C, Cr, Cu)を挿入した場合に界面のスピンモーメントが著しく低下することが明らかになっており実験結果と良い一致がみられた。そこで、界面のスピンモーメントの影響をさらに検証するために同様の Fe 原子層の上に強磁性体である Co 原子層を挿入した試料に対して評価した。やはり Fe 原子層の場合と同様に界面のスピンモーメントの増大と共にスピン信号は Fe 原子層と同程度に増大した。以上のことから、強磁性体/半導体界面において界面のごく近傍のスピンモーメントがスピン注入効率を支配していることが明らかになった[3]。

### (3) 界面磁性と磁気抵抗比の温度依存性

性能指標である磁気抵抗比(MR 比)の温度依存性を図 5 に示す。Fe 原子層を挿入した試料( $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Fe}/\text{Ge}$ )と非磁性層が界面に形成されている試料( $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Ge}$ )に対して 8 K から室温までの測定を行った。前述のように、界面に非磁性層がない Fe 原子層を挿入した試料では各温度で信号の増大が見られる。さらに温度依存性に注目すると、Fe 原子層を挿入した試料では温度依存性は、非磁性層が界面に形成されている試料( $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Ge}$ )と比較して緩やかになっており、室温での MR 比は 2 桁近く増大していることが明らかになった。今回用いている Ge スピン伝導チャンネルは高濃度ドーピングされており、抵抗率、スピン拡散長、界面抵抗などスピン伝導特性は、温度依存性がほとんどなく、界面のスピン偏極率の減衰が MR 比の温度依存性に影響していると考えられる。一次元拡散モデルと界面スピン偏極率の温度依存性に関する理論式により計算した結果を図 5 に実線と破線でそれぞれ示す。Fe 原子層を挿入した試料では理論式と良い一致を示しており、界面のスピン偏極率の  $T^{3/2}$  則で MR 比の減衰がよく説明されることが明らかになった。非磁性層が界面に形成されている試料( $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}/\text{Ge}$ )では、キュリー温度が低くそもそも  $T^{3/2}$  則に従っていないためより急激な MR 比の減衰を示した。以上のことから界面の磁気特性がそれぞれの温度における MR 比の向上に対してだけでなく、温度依存性にも影響することが明らかになった[4]。

### (4) 強磁性合金/金属/半導体電極構造とアニール耐性評価

スピンドバイスの実現に向けては、様々な熱プロセスが必要となるそのため、本研究で取り組んだ強磁性合金/金属/半導体電極構造のスピンバルブ素子に対して熱処理を行い室温ス

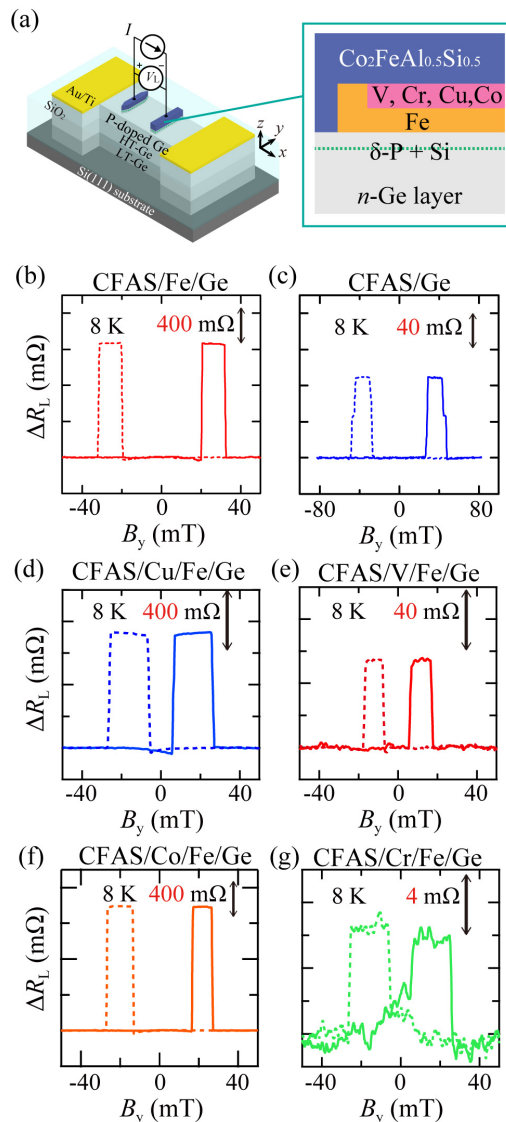


図 4 (a)横型スピンバルブ素子の概略図と電極の断面図. (b)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}(\text{CFAS})/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (c)  $\text{CFAS}/\text{Ge}$ , (d)  $\text{CFAS}/\text{Cu}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (e)  $\text{CFAS}/\text{V}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (f)  $\text{CFAS}/\text{Co}/\text{Fe}/\text{Ge}$ , (g) $\text{CFAS}/\text{Cr}/\text{Fe}/\text{Ge}$  電極を用いた試料の局所二端子スピン信号.

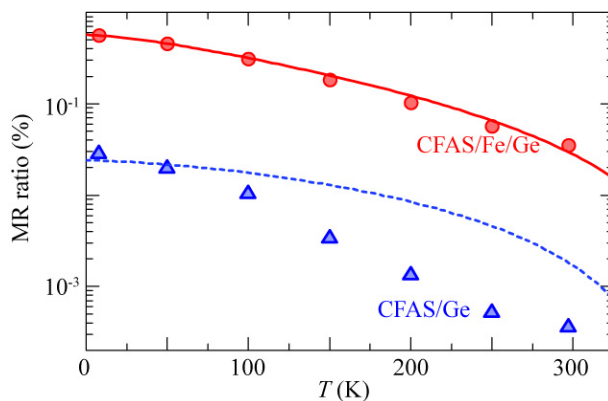


図 5  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}(\text{CFAS})/\text{Fe}/\text{Ge}$ (赤),  $\text{CFAS}/\text{Ge}$ (青)電極を用いた横型スピンバルブ素子の磁気抵抗比(MR 比)の温度依存性. 実線と破線は理論式から計算した曲線.

ピン信号のアニール温度依存性を調査した。アニール耐性の評価には金属原子層として Fe を用い、ホイスラー合金の材料を変えてスピバルブを作製し、熱耐性を評価した。アニールは、加工後の素子に対して、温度 100°C-300°C で高純度窒素ガス中にて 10 分間行った。素子アニール前のピン信号強度で規格化した値をアニール温度でプロットした結果を図 6 に示す。Co<sub>2</sub>FeAl<sub>0.5</sub>Si<sub>0.5</sub>/Fe/Ge(青)電極を用いた場合には規格化したピン信号の強度は単調に減少する一方で、Co<sub>2</sub>MnSi/Fe/Ge(赤)を用いた場合にはアニール温度が 100°C を超えたあたりから徐々にピン信号が増大し始め、250°C で 150%まで増大した。残念ながら 250°C よりもアニール温度を上げた場合には Co<sub>2</sub>FeAl<sub>0.5</sub>Si<sub>0.5</sub>/Fe/Ge と同様にピン信号は減衰してしましたが、非常に小さいピン信号ではあるが室温でも観測されており、ホイスラー合金を適切に選定することでアニール耐性が改善できる可能性を見出したと言える。現在、この原因については明らかになっていないが、構造評価などを進めて原因の追求を行っている。

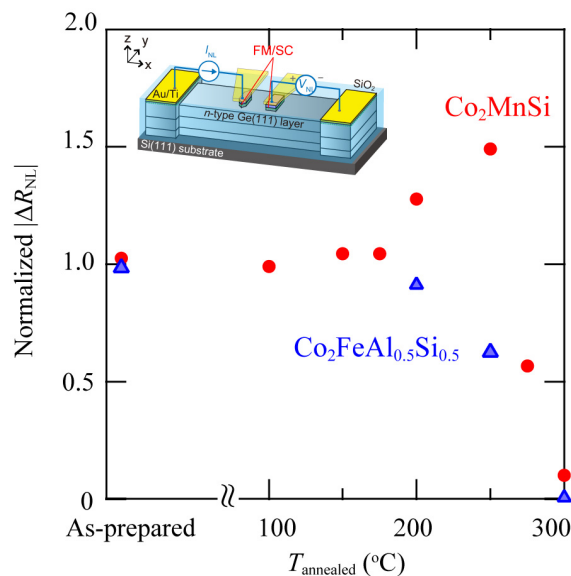


図 6 Co<sub>2</sub>MnSi/Fe/Ge(赤), Co<sub>2</sub>FeAl<sub>0.5</sub>Si<sub>0.5</sub>/Fe/Ge(青)電極を用いた横型スピバルブ素子に対する室温ピン信号のアニール温度依存性。

以上本研究では、(1)-(4)の課題に取り組んだ。これまで、強磁性体/半導体界面のスピ注入効率や性能指標である MR 比への影響については、界面抵抗やスピ伝導特性の影響などもあり、不明瞭な点があった。本研究では、原子層レベルで制御したエピタキシャル界面を用いることで理想的な界面を実現し、これまで解明が進んでいなかった強磁性体/半導体界面でのスピ注入機構を解明し、今後のスピ注入界面の設計指針について明らかにし、室温動作スピデバイス実現に向けた低抵抗かつ高効率な革新的電極構造を開拓したと言える。

#### [引用文献]

- [1] M. Yamada *et al.*, NPG Asia Materials **12**, 47 (2020).
- [2] K. Hamaya and M. Yamada, MRS Bulletin **47**, 584 (2022).
- [3] T. Naito *et al.*, Phys. Rev. B **105**, 195308 (2022).
- [4] M. Yamada *et al.*, IEEE Trans. Magn. **58**, 4100505 (2022).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 T. Naito, R. Nishimura, M. Yamada, A. Masago, Y. Shiratsuchi, Y. Wagatsuma, K. Sawano, R. Nakatani, T. Oguchi, and K. Hamaya	4. 巻 -
2. 論文標題 Significant effect of interfacial spin moments in ferromagnet-semiconductor heterojunctions on spin transport in a semiconductor	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamada Michihiro, Naito Takahiro, Sumi Kazuaki, Sawano Kentarou, Hamaya Kohei	4. 巻 -
2. 論文標題 Temperature dependence of two-terminal local magnetoresistance in Co-based Heusler alloy/Ge lateral spin-valve devices	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Magnetics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TMAG.2022.3145393	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Yamada Michihiro, Sumi Kazuaki, Naito Takahiro, Sawano Kentarou, Hamaya Kohei
2. 発表標題 Two-terminal magnetoresistance ratio in Co-based Heusler alloy/germanium lateral spin-valve devices
3. 学会等名 2022 Joint MMM-Intermag（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Nishimura, T. Naito, M. Yamada, A. Masago, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani, K. Sawano, and K. Hamaya
2. 発表標題 Influence of non-magnetic layers at Co <sub>2</sub> FeAl <sub>0.5</sub> Si <sub>0.5</sub> /Ge interface on spin injection/detection efficiency
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	本多 周太  (Honda Syuta)  (00402553)	関西大学・システム理工学部・准教授   (34416)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------