

令和 6 年 5 月 29 日現在

機関番号：32612

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20359

研究課題名（和文）Si/Al界面のナノスケール傾斜制御と高効率スピンの生成に関する研究

研究課題名（英文）Nanometer thick compositional gradient control and spin torque generation at Si/Al interface

研究代表者

洞口 泰輔 (Horaguchi, Taisuke)

慶應義塾大学・理工学研究科（矢上）・特任助教

研究者番号：10964744

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究はSi-Al組成傾斜材料の作製と熱処理による組成勾配制御とスピン流変調に関する研究である。第一に実施したSi-Al傾斜材料/NiCuの全構造熱処理ではNiCuの磁化消失により、スピントルク評価が困難であった。そこで傾斜材料のみの熱処理プロセスを取り入れ、磁化消失問題を回避した。ST-FMR法によるスピン流評価の結果、熱処理後のスピン流生成効率は減少し、処理温度が高くなるほど効率も低下した。これは熱拡散による傾斜幅増大に伴うスピン流生成効率低下を示している。これにより熱処理による傾斜構造制御・スピン流変調手法を確立し、傾斜材料におけるスピン流生成機構解明に繋がる成果を得たといえる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子のスピン角運動量の流れであるスピン流は、省電力・高速な論理演算デバイス等への応用が期待されており、電流に代わる次世代電子デバイスの基本要素として盛んに研究されている。従来スピン流生成にはスピン軌道相互作用(SOI)の大きなPt等の物質が不可欠であったが、近年SOIを不要とする新奇スピン変換であるスピン渦度結合理論が提唱され、関心が高い。しかし渦度分布とスピン流強度の相関の実証報告はほとんどない。本研究で開発した成膜・熱処理条件による傾斜界面制御は、スピン渦度結合によるスピン流生成の物理解明に向けた画期的手法であり、希少な強SOI物質に頼らない革新的スピンデバイス開発へ貢献するものである。

研究成果の概要（英文）：This research focuses on the fabrication of Si-Al compositional gradient materials, the control of the composition gradient through annealing, and the modulation of spin current. Initially, the full structure annealing of Si-Al/NiCu resulted in the loss of NiCu magnetization, making spin torque evaluation difficult. Therefore, a process was adopted where only the gradient material underwent annealing, avoiding the issue. Spin current evaluation using the ST-FMR method showed that the spin current generation efficiency decreased after annealing, with higher annealing temperatures leading to further efficiency reduction. This indicates a decrease in spin current generation efficiency due to the increased gradient width caused by thermal diffusion. Consequently, this research established a method for controlling the graded structure and modulating spin current through annealing, leading to significant findings in understanding the spin current generation mechanism in gradient materials.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン流 スピントルク スピン渦度結合 磁化ダイナミクス

### 1. 研究開始当初の背景

電子のスピンの角運動量の流れである「スピン流」は、超省電力・高速なプログラマブル論理演算デバイス等への応用が期待されており、電流に代わる次世代電子デバイスの基本要素として盛んに研究されている。スピン流生成では、物質固有のスピン軌道相互作用(SOI)を用いた手法が主流であったため、SOIの強い白金(Pt)などの希少重金属が不可欠だった。しかし、弱SOI物質である銅の表面を自然酸化させるだけでPtに匹敵するスピン流が生成されることが発見されて以降、物質固有のSOIに頼らない新しい原理に基づくスピン流生成が注目されている。表面酸化銅のスピン流生成機構として、スピン過度結合が理論予測され、その実証実験が求められている。スピン過度結合とは、巨視的回転(渦度)と電子スピンの角運動量変換を起源とするスピン流生成理論である。電気伝導度 $\sigma$ が膜厚方向で勾配した表面酸化銅に電流 $j_c$ を印加すると、 $\sigma$ の勾配により電流渦 $\Omega = \nabla \times j_c$ が発生し、その創発磁場( $\propto \Omega$ )が伝導電子スピンに作用し、スピン流を生み出す。つまり、酸化銅から銅への空間的な組成傾斜がスピン流生成に重要な役割を果たす。電流渦による創発磁場はEinsteinらが発見した物質の回転運動に由来する創発磁場と同様に、SOIに依存しないと考えられている。つまり、スピン過度結合によるスピン流生成法は、希少な強SOI物質に頼らないスピデバイス実現の可能性を広げる全く新しい手法として期待されている。表面酸化銅では、スピン流生成効率が酸化時間に依存することが報告されており、電気伝導度の空間分布が巨大スピン流生成において重要な役割を果たすことが示唆されている。一方、化学的な反応と物理的な原子拡散が複雑に寄与する酸化プロセスは、暴露雰囲気(温度・湿度)に左右されやすく、更には組成の異なる安定な銅酸化物が複数存在する(CuO、Cu<sub>2</sub>Oなど)ため、電気伝導度勾配とスピン流強度の相関を系統的に調べるのが困難であり、系統的調査の手法開発が渴望されていた。

### 2. 研究の目的

本研究では、酸化銅に比べて再現性の良い組成傾斜を実現するため、電気伝導度の異なる金属Alと半導体Siの傾斜材料(図1)を独自開発し、制御性に優れた成膜プロセス条件を系統的に変化させて組成傾斜を人工制御することにより、スピン過度結合によるスピン流生成の実証と機構解明を行う。

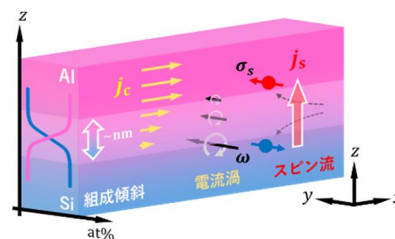


図1 SiAl 傾斜材料におけるスピン流生成

### 3. 研究の方法

#### (1) SiAl 組成傾斜材料の作製

マグネトロンスパッタリング装置を用いてSi/Al-Si/Al/NiCu/SiO<sub>2</sub>の複合膜を成膜した。SiO<sub>2</sub>層は酸化防止層である。中間のAl-Si層ではAl/Siの順で極薄層を交互に積層しており、成膜時のスパッタ原子の打ち込み効果や成膜後の相互拡散を利用してSiからAlへの組成傾斜形成を狙ったものである。

#### (2) アニール処理による組成傾斜構造の制御とスピントルク測定

まず、(1)で作製したSiAl傾斜材料複合膜に対して熱処理を行い、界面での原子拡散を促進させることで傾斜構造の制御を試みた。(i)全層成膜後に熱処理を施す場合、(ii)Si/Al-Si/Al成膜後に傾斜構造部分のみに熱処理を施す場合の2種類の熱処理プロセスを比較した。

次に、熱処理後の複合膜に対してフォトリソグラフィとArイオンミリングを用いて、スピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)法によるスピン流生成効率測定が可能なデバイスへと微細加工した。図2はST-FMR測定に用いた測定回路の概略図である。シグナルジェネレーター(SG)からBias Teeを介して印加した高周波電流がつくる交流の磁場およびスピン流は複合膜上層のNiCuの強磁性共鳴を励起する。このとき、磁化と電流の相対角に電気抵抗が依存する効果(異方性磁気抵抗効果)を介してデバイスの抵抗変化が生じ、印加電流との整流効果から生じる直流電圧を測定することで共鳴スペクトルが得られる。この共鳴スペクトル中で交流磁場と交流スピン流の寄与が反対称型関数と対称型関数として分離されることを利用してスピン流生成効率が評価される。

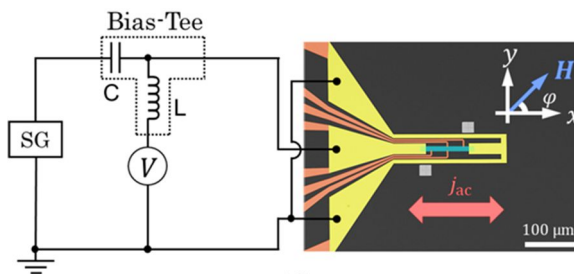


図2 ST-FMR法の測定系概略図

本研究では(i)と(ii)の2種類の熱処理プロセスにおいて熱処理温度とスピン流生成効率の関係を調査した。

## 4. 研究成果

### (1) Si/Al 組成傾斜材料の作製

図 3 は作製した Si/Al/NiCu/SiO<sub>2</sub> 膜と Si/Al(0.5 nm)/Si(0.5 nm)/Al/NiCu/SiO<sub>2</sub> 膜の断面透過電子顕微鏡観察像と膜厚方向の元素分析結果である。いずれの試料においても Si から Al への連続的な組成変化が見られ、その幅はそれぞれ 1.06 nm と 1.33 nm であった。Al-Si の極薄層を Si/Al 界面に挿入することで傾斜幅が増大しており極薄層挿入による傾斜構造制御が実現しているといえる。次の実験(2)においては熱処理前に最も大きなスピ流生成効率を示した Al(0.25nm)/Si(0.25nm)の極薄層挿入試料に対する熱処理の効果を調べた。

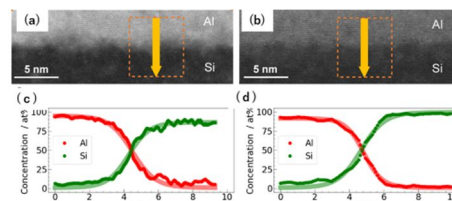


図 3 (a) Si/Al/NiCu/SiO<sub>2</sub> 膜と (b) Si/Al(0.5 nm)/Si(0.5 nm)/Al/NiCu/SiO<sub>2</sub> 膜の断面観察像およびそれぞれの膜厚方向の元素分析結果

### (2) アニール処理による組成傾斜構造の制御とスピトルク測定

#### (i) 全層熱処理の効果の検証

Si/Al(0.5 nm)/Si(0.5 nm)/Al/NiCu/SiO<sub>2</sub> 膜を成膜後に真空中 (< 10<sup>-4</sup> Pa) にて 150、250、350 の各温度で 30 分熱処理を加えた後、微細加工を施し ST-FMR 測定を行った。その結果 250 の熱処理後の試料では NiCu の飽和磁化が半減、300 の熱処理では強磁性共鳴信号が全く見えないという結果となった(図 4)。これは熱処理によって Al/NiCu 界面での原子混合が生じ、NiCu の磁化が失われたことが原因と考えられる。この Al/NiCu 界面拡散は本研究の目的である Si/Al 界面の熱処理制御とその評価の妨げになる。この問題を回避するため次項の Si/Al 傾斜材料のみの熱処理プロセスを検討するに至った。

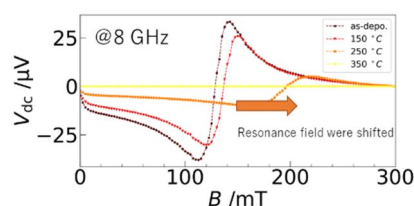


図 4 全層熱処理試料の ST-FMR スペクトルの熱処理温度依存性

#### (ii) Si/Al 傾斜材料のみに対する熱処理の効果

前項のとおり Al/NiCu 界面での原子混合に伴う NiCu の磁化消失がスピトルクの評価の妨げとなったため、NiCu 成膜前段階で傾斜材料部分のみの熱処理プロセスを導入した。傾斜材料層の成膜後に 150、250、350 の各温度で 30 分間の熱処理を施した試料を作製し、それぞれの試料に対し ST-FMR 測定を行った結果、熱処理前の試料よりもスピ流生成効率  $\xi_{FMR}$  が減少、さらに熱処理温度増加に伴って  $\xi_{FMR}$  が単調減少する傾向が見られた(図 5)。熱処理温度増加に伴って、Si/Al 界面の拡散促進により傾斜幅が広がると考えられるため、この単調減少は傾斜幅とスピ流生成効率の相関を示す証左である。

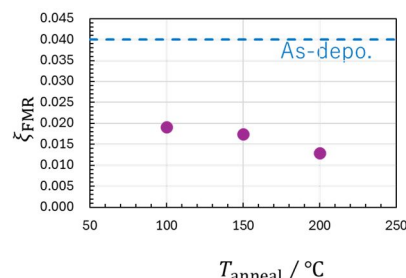


図 5 Si/Al 傾斜材料のみを熱処理した試料のスピトルク効率の熱処理温度依存性

以上より、本研究では、傾斜材料のスピトルク効率を最大化する成膜条件を確立、熱処理による変調に成功した。傾斜幅減少に伴いスピトルク効率が増大する傾向は電流渦とスピンの結合であるスピン渦度結合由来のスピン流生成を強く示唆している。しかし他の機構(軌道ホール効果等)の寄与を分離評価するには至らず、機構解明には検出磁性体の材料依存性調査等からの多角的検証が必要である。本研究で確立した成膜・熱処理によるスピトルク効率変調の手法は Si-Al のみならず汎用な材料組み合わせに適用可能であり、傾斜材料を用いたスピ流生成に関して設計指針と作成手法を提示する成果をあげたといえる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0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 高木 さゆり, 洞口 泰輔, 山野井 一人, 能崎幸雄	4. 巻 MAG-23-167-182 マグネティックス 研究会
2. 論文標題 Si/Al傾斜材料上に作製したPt/Co/Pt三層膜のSOTスイッチング実験 Experimental demonstration of SOT switching in a Pt/Co/Pt trilayer film fabricated on a Si/Al composition gradient material	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 電気学会研究会資料	6. 最初と最後の頁 51-56
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 無
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6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 洞口泰輔, C. He, Z. Wen, 大久保忠勝, 三谷誠司, 介川裕章, 藤本純治, 山野井一人, 松尾衛, 能崎幸雄
2. 発表標題 Si/Al組成傾斜材料における非相反スピン変換
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 洞口泰輔, 山野井一人, 松尾衛, 能崎幸雄
2. 発表標題 ST-FMR 測定における周波数依存アーティファクト
3. 学会等名 第46回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Horaguchi, C. He, Z. Wen, T. Ohkubo, K. Hono, S. Mitani, H. Sukegawa, J. Fujimoto, K. Yamanoi, M. Matsuo, and Y. Nozaki
2. 発表標題 Spin Torque Generation using Si/Al Compositional Gradient Material
3. 学会等名 AFM 2023 Development of Functional Materials for a Better World (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 洞口泰輔, 三谷誠司, 介川裕章, 山野井一人, 能崎幸雄
2. 発表標題 軽金属非酸化物を用いた高効率スピントルク FMR 励起
3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会 (2023年)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Horaguchi , C. He , Z. Wen , T. Ohkubo , S. Mitani , H. Sukegawa , J. Fujimoto , K. Yamanoi , M. Matsuo , and Y. Nozaki
2. 発表標題 Spin-Torque Gilbert Damping Modulation due to a Spin Current in Si/Al Compositional Gradient Material
3. 学会等名 MRM2023/IUMRS-ICA2023 Grand Meeting (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高木 さゆり, 洞口 泰輔, 山野井 一人, 能崎幸雄
2. 発表標題 Si/Al 傾斜材料上に作製した Pt/Co/Pt 三層膜の SOT スイッチング実験
3. 学会等名 マグネティックス研究会
4. 発表年 2023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

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
---------	---------