

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月15日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656223

研究課題名（和文）強磁性合金薄膜の微小面内領域におけるスピン偏極率制御法の開発とその応用

研究課題名（英文）Control of spin polarization of ferromagnetic alloys in a microscopic area in a Si platform

研究代表者

浜屋 宏平 (HAMAYA KOHEI)

九州大学・大学院システム情報科学研究所・准教授

研究者番号：90401281

研究成果の概要（和文）：

低温 MBE 法を利用して、強磁性ホイスラー合金を構成する元素(Fe, Co, Si)の結晶サイト置換を人為的に制御することで、 $L2_1$ - Co_2FeSi (CFS)/ $D0_3$ - Fe_3Si (FS) 2層構造を実現した。この積層薄膜を横型スピンドバイスのスピン注入電極へ応用するために独自の微細加工技術を開発し、同一基板上の微小領域内に性能の異なるスピンドバイスを作製することに成功した。高効率なスピン偏極電流の生成材料として期待されているホイスラー合金単結晶材料において、スピン偏極率の異なる薄膜を利用したデバイスを自在に配置する技術に発展すると期待される。

研究成果の概要（英文）：

We demonstrated high-quality $L2_1$ - Co_2FeSi (CFS)/ $D0_3$ - Fe_3Si (FS) bilayer structure by using molecular beam epitaxy (MBE). This bilayer was fabricated into lateral spin-valve devices (LSVs) with $L2_1$ - Co_2FeSi (CFS) and $D0_3$ - Fe_3Si (FS) electrodes. Even in a microscopic area in a same Si platform, we can obtain two different spin injectors consisting of single-crystalline Heusler compounds with the different spin functionalities. This work will open a way for intentional arrangement of various spin injectors for spintronic applications in the same Si platform.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

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：電気・電子材料，スピントロニクス，エピタキシャル成長

1. 研究開始当初の背景

強磁性薄膜/トンネル絶縁層/強磁性薄膜という積層構造からなる磁気トンネル接合(Magnetic Tunnel Junctions: MTJ)は、次世

代の低消費電力不揮発メモリデバイスとしての応用が期待されている。一般的にこのMTJの性能(トンネル磁気抵抗比:TMR比)は、上部および下部の強磁性電極のスピン偏極

率(P)に依存し、 $P_{\text{上部}} \times P_{\text{下部}}$ に依存する。スパッタリング法などの薄膜堆積プロセス技術を用いて作製するMTJ構造は、微細加工技術を利用する事で微小メモリの面内配列を作製可能である。この方法では、強磁性薄膜のスピンの偏極率(P)は基板面内で一様となるため、同一性能のMTJ素子しか集積することができず、応用範囲が狭いのが現状である。

2. 研究の目的

本研究では、異なる性能のスピンドバイスを微小領域に面内配置する新しい手法を開発する。具体的には、あらゆるスピンドバイスのスピン注入電極として注目される『強磁性ホイスラー合金薄膜』の結晶成長プロセスにおいて、ナノメートルオーダーの精密組成変調技術を導入し、膜厚方向にスピン偏極率(P)の異なる薄膜を積層する。その後、電極作製時に膜厚制御のエッチング工程を導入し、微小強磁性電極を有する横型デバイス構造を作製・集積し、微小領域内の異なるスピン生成源から制御された異なるスピン性能を取得する。最後に、本手法を利用して、異なる性能のスピンドバイスを有する横型スピンドバイ素子の面内自由配置・スピン機能実証を行う。

3. 研究の方法

本研究では、分子線エピタキシー(MBE)技術を利用して、ホイスラー合金の結晶構造における(A,C)サイトとBサイトの元素を巧みに置換する技術を開発した。我々は既に、合金中の構成元素の結晶サイト選択性が顕著であることを確認しており、Feは(A,C)サイトとBサイトの両方を占有するが、Coは(A,C)サイトを占有しやすいという性質がある。この性質を積極的に利用すると、薄膜成長過程においてCo/Feの組成変調を

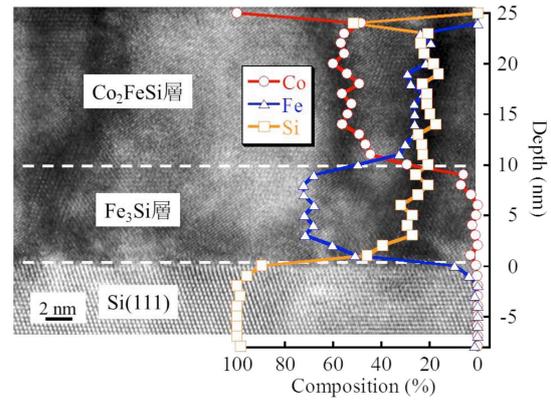


図 1. Si(111)上に低温 MBE 成長した強磁性合金 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}_3\text{Si}$ 積層薄膜の断面 TEM 写真と EDX 深さプロファイル。

精密に行う事で、(Co \Rightarrow Fe)制御された高品質ホイスラー合金積層膜を作製することができる。

4. 研究成果

図 1 には、低温 MBE 法(130°C 以下)で Si 基板上に作製した $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}_3\text{Si}$ 積層薄膜の断面 TEM 写真と EDX 深さプロファイルである。図中には示していないが、 Fe_3Si および Co_2FeSi と考えられる層の電子線回折パターンからは、高品質な $L2_1$ -構造および $D0_3$ -構造の形成が示唆される超格子反射が観測されており、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}_3\text{Si}$ 積層膜のクオリティーは、我々がこれまで検討してきた Si(111)上の単層薄膜のクオリティーとほぼ同等であることが判った。

また、EDX の深さプロファイルでは、Fe:Co:Si の急峻な組成変化を観測しており、意図的にデザインした通りの組成比を得ている。つまり、 $\text{Co}_2\text{FeSi} / \text{Fe}_3\text{Si}$ の積層膜が実現しており、界面において組成ブレなどはほとんど見られない。つまり、低温 MBE 法を駆使することで、急峻な界面を持つ $L2_1$ - $\text{Co}_2\text{FeSi} / D0_3$ - Fe_3Si の形成に成功したと言える。

次に、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}_3\text{Si}$ 薄膜を用いて横型

スピバルブ素子を作製し、純スピ流生成と検出を行うための素子加工プロセスを開発した。作製プロセスは次の通りである。まず、上記の $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}_3\text{Si}$ 薄膜の、 Co_2FeSi 薄膜のみを現有の低加速ドライエッチング技術を用いて電極構造に微細加工する。その後、 Co_2FeSi 電極を保護し、 Fe_3Si 電極を作製する。これにより、Si 基板上には、結晶構造も結晶の品質もほぼ同等の Co_2FeSi と Fe_3Si 電極が形成されている。最後に、Cu 配線を行なう直前で、 Co_2FeSi 専用の表面クリーニングプロセスを導入すると、 Fe_3Si も同一条件で洗浄表面を作製することが出来ることとなり、純スピ流の生成・検出が可能となる横型スピバルブ素子(図 2)が形成される。SEM 像(図 2)に示す通り、このデバイスでは Co_2FeSi 電極と Fe_3Si 電極がそれぞれ 2 本ずつ配置されており、 Co_2FeSi 同士、 Fe_3Si 同士、また Co_2FeSi - Fe_3Si 間での純スピ流の生成検出が検討できる構造となっている。

まず、隣接するすべての端子間での純スピ流の生成と検出を行った。代表的な測定の結果を図 3 に示す。(a)および(b)は、 Co_2FeSi -Cu- Co_2FeSi 構造 および

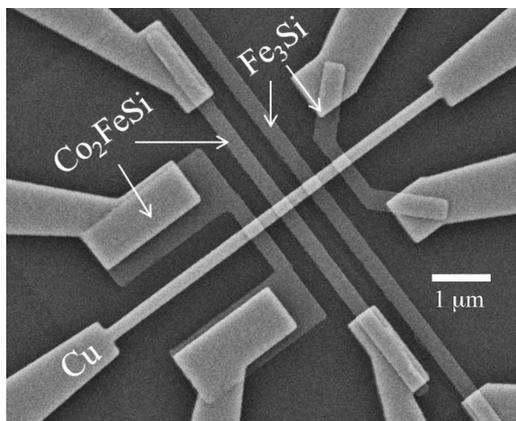


図 2. $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Fe}_3\text{Si}$ 2 層薄膜から作製した横型スピバルブ素子。新しく開発した微細加工プロセスを用いて、 Co_2FeSi および Fe_3Si 電極を同一基板上に実現。

Fe_3Si -Cu- Fe_3Si 構造における純スピ流の生成と検出の例(50 K)である。非局所配置における明瞭なスピ信号が観測されている。得られたスピ信号を一次元拡散モデルを用いて解析すると、 Co_2FeSi 電極、 Fe_3Si 電極それぞれのスピ偏極率は $P_{\text{Co}_2\text{FeSi}} = 0.49$, $P_{\text{Fe}_3\text{Si}} = 0.15$ と算出された。このスピ偏極率の大きさは、これまで単層薄膜で観測してきた値($P_{\text{Co}_2\text{FeSi}} = 0.72$, $P_{\text{Fe}_3\text{Si}} = 0.23$)に比べて比較的小さい値である。これは、2 層膜を微細加工して得られた結果であることと素子サイズが 1.5 倍ほどの大きい事などの影響であると考えている。注目すべきは、 $P_{\text{Co}_2\text{FeSi}} > P_{\text{Fe}_3\text{Si}}$ という関係を十分にデモンストレーションできていることである。これは、我々の低温 MBE 法を用いた元素置換技術が、強磁性合金のスピ機能を巧みに制御していることを示唆している。

以上のように、高効率なスピ偏極電流の生成材料として期待されているホイスラー合金単結晶材料において、スピ偏極率の異なる薄膜組成を同一プラットフォーム上に精密に配置する技術に発展すると期待される。

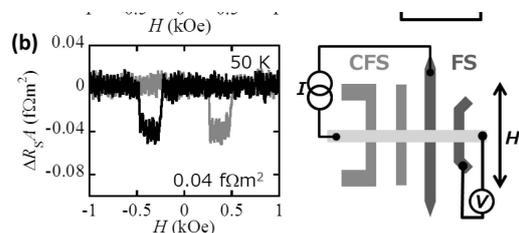


図 3. (a) Co_2FeSi 電極および (b) Fe_3Si 電極を用いた純スピ流の生成・検出。同一基板上で異なるホイスラー合金スピ源を実現している。

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 4 件)

- ①. S. Oki, K. Masaki, N. Hashimoto, S. Yamada, M. Miyata, M. Miyao, T. Kimura, and K. Hamaya “Sign determination of spin polarization in $L2_1$ -ordered Co_2FeSi using a Pt-based spin Hall device”, *Physical Review B*, 査読有, vol. 86, 2012, 174412-1~4.
[DOI: [10.1103/PhysRevB.86.174412](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.174412)]
- ②. S. Oki, M. Kawano, K. Tanikawa, H. Aoki, S. Yamada, M. Miyao, and K. Hamaya, “Generation and detection of a pure spin current using Co-based Heusler-alloy spin injector and detector: Comparison of Co_2MnSi and Co_2FeSi ”, *ECS Transaction*, 査読有, vol. 50 (10), 2012, 245-251.
- ③. S. Oki, S. Yamada, N. Hashimoto, M. Miyao, T. Kimura, and K. Hamaya, “Effect of addition of Al to single-crystalline CoFe electrodes on nonlocal spin signals in lateral spin-valve devices”, *Applied Physics Express*, 査読有, vol. 5, 2012, 063004-1~3.
[DOI: [10.1143/APEX.5.063004](https://doi.org/10.1143/APEX.5.063004)]
- ④. K. Hamaya, N. Hashimoto, S. Oki, S. Yamada, M. Miyao, and T. Kimura, “Estimation of the spin polarization for Heusler-compound thin films by means of nonlocal spin-valve measurements : Comparison of Co_2FeSi and Fe_3Si ”, *Physical Review B*, vol. 85, 2012, 100404(R) -1-5.
[DOI: [10.1103/PhysRevB.85.100404](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.100404)]

[学会発表] (計 5 件)

- ①. 浜屋宏平, “低温形成ホイスラー合金を用いた純スピン流の生成・検出”, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 2013 年 3 月 19

日, 神奈川工科大学. (招待講演).

- ②. K. Tanikawa, S. Oki, S. Yamada, K. Mibu, M. Miyao, and K. Hamaya, “Control of room-temperature spin polarization in Heusler-compound $\text{Fe}_{3-x}\text{Co}_x\text{Si}$ films grown on Si by substitution of Co for Fe”, The 12th Joint MMM/Intermag Conference, Jan. 14-18, 2013, Chicago, U.S.A.
- ③. S. Oki, M. Kawano, K. Tanikawa, H. Aoki, S. Yamada, M. Miyao, and K. Hamaya, “Generation and detection of a pure spin current using Co-based Heusler-alloy spin injector and detector: Comparison of Co_2FeSi and Co_2MnSi ”, PRiME 2012, ECS Pacific RIM Meeting 2012, F5-3425, 10/10, Hawaii, U.S.A.
- ④. S. Oki, S. Yamada, K. Tanikawa, M. Miyao, and K. Hamaya, “Low-temperature epitaxial growth of Co-based Heusler alloys on group-IV semiconductors”, The 7th International Conference on Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors, August 7, 2012, Netherlands.
- ⑤. S. Oki, N. Hashimoto, S. Yamada, T. Kimura, M. Miyao and K. Hamaya, “Giant spin accumulation at room temperature in $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Cu}$ lateral spin valves”, Intermag2012, FU-01, May. 2012, Vancouver, Canada.

[その他]
ホームページ等
http://nano.ed.kyushu-u.ac.jp/~hamaya_lab/index.html

6. 研究組織

研究代表者

浜屋 宏平 (HAMAYA KOHEI)

九州大学・大学院システム情報科学研究院
・准教授

研究者番号 : 90401281