

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6月2日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656438

研究課題名（和文）強磁性絶縁体を用いた Si への室温スピン注入

研究課題名（英文）RT spin injection to Si using ferromagnetic insulator

研究代表者

高橋 有紀子 (TAKAHASHI YUKIKO)

独立行政法人物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・主幹研究員

研究者番号：50421392

研究成果の概要（和文）：本研究は、強磁性絶縁体の Co フェライトのスピンフィルター効果を活用して室温で Si へ効率よくスピン注入することを目的としている。熱酸化よりも酸化力の強いラジカルおよびオゾン酸化を行った結果、電子のホッピング伝導の原因となる逆位相境界や酸素欠陥の密度には違いがみられず、室温でのスピンフィルター効果はいずれも同程度であることが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this work is to realize the high efficiency spin injection to Si at RT by applying the spin-filter effect of Co ferrite. Two kinds of oxidation method, radical and ozone, were tried to obtain high quality Co ferrite without antiphase boundaries (APB) and oxygen defects which act as the hopping sites for electron conduction. It was found that the number of the density of APBs and defects in the Co ferrite made by the radial and ozone are similar to that by the thermal oxidation and the spin-filter effect at RT was quite low compared with that at 10 K.

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	2,500,000	750,000	3,250,000

研究分野：スピントロニクス

科研費の分科・細目：材料工学、構造・機能材料

キーワード：スピンフィルター

1. 研究開始当初の背景

スピンの自由度を利用して新規デバイスの創製を目指すスピントロニクスと既存の半導体エレクトロニクスとを融合させることにより、スピンの特長である不揮発性を最大限に利用した低消費電力デバイスが期待されている。このような半導体スピントロニクスデバイスの開発には、高スピン偏極電流を半導体中へ室温で効率よく注入することが鍵となる。しかし、現在のところそれに成功したものはない。

高スピン偏極電流源の開発は半導体スピントロニクスの実現には必要不可欠であり、

強磁性絶縁体を用いたスピンフィルター素子によって高スピン偏極電流を生成することができる。強磁性絶縁体の伝導帯は交換分裂をしており、バリア高さにスピン依存性がある。トンネル確率はバリア高さに指数関数的に効いてくるので一方のスピンのみを選択的に取り出すことができる（スピンフィルター効果）。強磁性絶縁体は半導体とのコンダクタンスミスマッチが小さいためにスピンを効率よく半導体中へ注入できるという利点がある。そのため、キュリー点が室温以上のスピネル系フェライトを用いたスピンフィルター素子の開発がなされ

ている。しかし、室温で高いスピフィルター効果を得るには電子のホッピングサイトになる欠陥などのない高品質なスピネルフェライトが欠かせない。さらに、スピフィルター層として用いるためには、1 nm 程度の薄い欠陥のないスピネルフェライト薄膜が必要であるが、現在までにそれに成功したものはない。現在のところ室温でのスピフィルター効率は 8 % が最高の値⁽¹⁾であり実用化するには小さすぎる。

我々は Co フェライトを用いたスピフィルター素子の開発を行ってきており、室温で 8 %、10 K で 44 % の世界最高のスピフィルター効率を達成している⁽¹⁾。しかし、スピフィルター効率の温度依存性が大きく、これを向上させる必要がある。スピフィルター効率の大きな温度依存性は、電子が欠陥準位をホッピングする過程で起こるスピフロップに起因することが明らかとなっており、欠陥のない完全な Co フェライトを作製する革新的な技術が必要である。

半導体へのスピン注入は GaAs を中心に研究が行われており、室温で約 50 % の高いスピン注入効率が報告されている⁽²⁾。しかし、現在の電子産業を支えているのは Si であり、高度に発達した Si テクノロジーとスピントロニクスが融合することにより革新的な半導体スピントロニクスデバイスが実現することを考えると、Si へ効率よくスピンを注入する必要がある。

参考文献 (1) Y.K. Takahashi *et al.*, *APL* **96**, 072512 (2010). (2) X. Jiang *et al.*, *PRL* **94**, 056601 (2005)

2. 研究の目的

スピンの自由度と極限に発達した Si テクノロジーを融合した半導体スピントロニクスの実現には室温で Si へスピンを効率よく注入する必要があるが、それに成功した者はいない。本研究では、強磁性絶縁体の 1 つでありキュリー点が室温よりも高い Co フェライトを用いて、そのスピフィルター効果を活用することにより実現する。鍵となるのは、欠陥のない Co フェライトを作製する革新的技術の開発であり、本研究では、ラジカルまたはオゾン酸化法を用いた層状成長により高品位な Co フェライトの作製に挑戦する。さらに、Si 上に欠陥のない Co フェライトを作製して、室温でのスピン注入を実現することを目的とする。

3. 研究の方法

Co フェライトのスピフィルター効果を利用して Si へスピン注入するためには、①欠陥のない Co フェライトの作製、②Si 基板上への Co フェライトの作製、③Co フェ

ライトから Si へのスピン注入、という手順で研究を進める。

①については、熱酸化法よりも強い酸化力を持つと考えらるラジカルまたはオゾン酸化法と層状成長により酸素欠陥と APB を低減した Co フェライトを形成し、室温で 50% を超えるスピフィルター効果を得ることを目標とする。②については①で最適化した方法で Si 基板上に欠陥のない Co フェライトを実現する。③については、電流回路とスピン流の回路が別の非局所測定により行う。

4. 研究成果

MgO(001)単結晶基板を用い、その上に TiN(30)/Cr(1)/Pt(2)/Fe₂Co(1.5)/MgO(1)/Co(5)/Pt(10)の層構造を持つ多層膜を作製した。括弧の中の数字は膜厚であり、単位は nm である。成膜は超高真空スパッタ装置を用い、DC および RF マグネトロンスパッタ法により行った。MgO は電子ビーム蒸着により行っている。TiN は基板温度 600°C において Ar と N₂ をスパッタガスとして RF スパッタ法により作製、その他の層は Ar 雰囲気中において室温で成膜を行った。Fe₂Co 層を作製した後、基板加熱をしながらラジカル酸化またはオゾン酸化を行った。ラジカル酸化は酸素にエネルギーを加えることで生成される不対電子を持つ酸素ラジカルを用いた酸化方法で、ラジカルは反応性が高いために酸化還元反応を起こす。酸化能力という観点からは熱酸化よりも高い酸化力を持つと考えられる。同様にオゾンも熱酸化よりも高い酸化力を持つ。これらの高い酸化力を利用して酸素欠陥の減少を狙っている。本研究では、初年度にラジカル酸化を、次年度にオゾン酸化を行ったが、

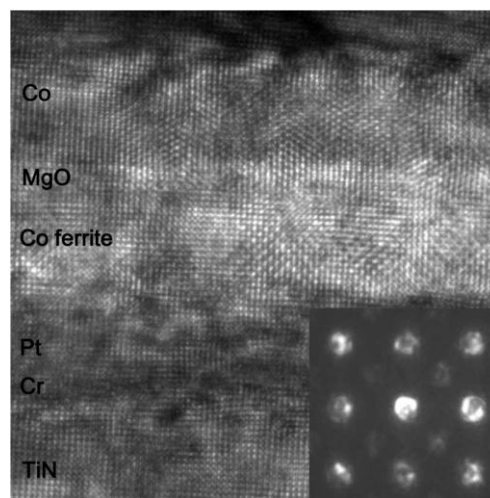


Fig. 1 多層膜の断面 TEM 像。

欠陥量としては同等であったので、オゾン酸化の実験結果を例に報告する。

様々な基板温度でオゾン酸化を行った結果、室温では酸化が起こらなかったが、50°C以上の温度で酸化が起こり、100°Cで Fe_2Co の体積が約2倍に変化した。150°C以上では、 Fe_2Co の体積が2倍以上に増加する。バルクのCoフェライトと比較すると酸化による体積増加は約2倍となるが、それ以上の体積増加が起こっている理由については現在のところ明らかではない。電子顕微鏡(TEM)像とナノビーム電子回折像をFig. 1に示す。膜はMgO単結晶基板の上にエピタキシャル成長をしており、ナノビーム電子線回折像からスピネル構造が形成されていることがわかる。スピンフィルター素子の特性は100°Cで酸化したサンプルを用いた。

スピンフィルター素子には強磁性トンネル接合型を用いた。スピンフィルター効果を検出するために強磁性電極層(Co)をつけている。上部強磁性層のCoとの強磁性結合を切るためにCoフェライトとCoの間にMgOを1nm挿入している。なお、MgOによるスピンフィルター効果はないことを確認している。磁気抵抗曲線(図2)から求められる磁気抵抗比は室温で-1.2%、10 Kで-10.1%であった。測定温度の増加に伴い、磁気抵抗比が大きく減少する理由について検討するためにCoフェライトの電流・電圧特性を評価した。その結果Coフェライトのバリア高さは、0.4 eV程度となり、室

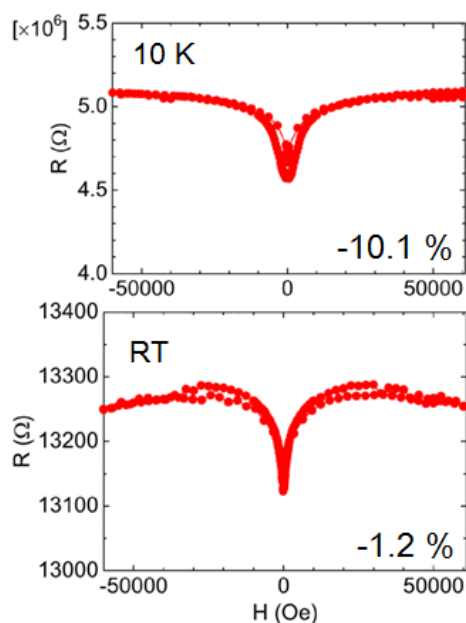


Fig. 2 100°Cでオゾン酸化したCoフェライトを用いて作製したスピンフィルター素子の磁気抵抗曲線

温の熱エネルギーよりも十分に大きいこと

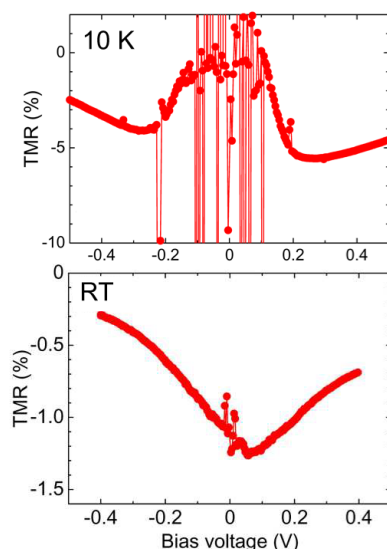


Fig. 3 磁気抵抗比のバイアス電圧依存

が明らかとなった。すなわち、Coフェライトのバリア高さが低くて室温の磁気抵抗比が減少しているのではなく、熱励起された電子がCoフェライト中の欠陥をホッピング伝導している間にスピンのフリッピングが起こることがわかる。また、オゾン酸化法により作製されたCoフェライトは、熱酸化法により作製されたものと同程度のバリア高さを示しているため、電子のホッピングサイトとなるAPBや酸素欠陥の量が同程度であると考えられる。Fig. 3に室温と10 Kで測定した磁気抵抗比のバイアス電圧依存性を示す。10 Kでは、バイアス電圧の増加とともに、磁気抵抗比の絶対値が大きくなり、0.2 V付近で極大を持った後減少する。このような特徴的なバイアス依存性は、Coフェライトの完全にスピン偏極した伝導バンドを介した伝導(Fowler-Nordheimトンネル)によるものであることがわかる。TMR比が極大を示すバイアス電圧はCoフェライトの交換分裂に対応しており、その値は熱酸化法により作製したものよりも若干大きな値となっている(熱酸化法で作製したCoフェライトでは約0.17 V)。一方で、バルクで見積もられている交換分裂は1.28 eVとなっており、この差の原因については現在検討中である。また、TMR比が負を示すのは、Coフェライトのバンドギャップが、多数スピンバンドよりも少数スピンバンドの方が小さく、伝導が主に少数スピンによって起こるためである。一方室温ではバイアス電圧の増加とともに単調に磁気抵抗比が減少することがわかる。これは、Coフェライトのスピン偏極した伝導バンドを介した伝導ではなく、酸素欠陥等による電子のホッピング伝導が起こり、それによりスピンフリッピングが起きていると考えられる。

以上のことから、熱酸化よりも酸化力の

強いラジカルやオゾン酸化法を用いることにより Co フェライトが形成可能であることがわかった。しかし、電子のホッピングサイトとなる APB や酸素欠陥の量には大きな違いがないことが明らかとなった。現在のところ、電子のホッピング伝導の原因となっている欠陥として APB と酸素欠陥を上げているが、どちらか dominant かはわかっていない。スピネル酸化物の APB は基板との格子定数の違いによっても導入されることが知られている。今後 Co フェライトと格子定数の近い基板や下地を用いることにより APB の発生を抑え、ホッピング伝導を担っている欠陥の種類同定、その制御を行っていく予定である。

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 0 件)

[学会発表] (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 有紀子 (TAKAHASHI YUKIKO)
独立行政法人物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・主幹研究員
研究者番号：50421392

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし