

3 端子スピン蓄積デバイスにおける Hanle 効果信号の解析

高村陽太^{1,2}, 悪七泰樹¹, 周藤悠介¹, 菅原聡¹

(¹東工大像情報, ²東工大電子物理)

Analysis of Hanle-effect signals observed in three-terminal spin-accumulation devices

Y. Takamura^{1,2}, T. Akushichi¹, Y. Shuto¹, and S. Sugahara¹

(¹Imaging Sci. and Eng. Lab., Tokyo Inst. of Tech., ²Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

はじめに

Si チャネルへのスピン注入/検出や Si チャネル内でのスピンドイナミクスを理解は、スピン MOSFET¹ 等の Si スピンデバイスを実現するために極めて重要となる。これまで、これらの現象はスピンバルブトランジスタ、4 端子非局所デバイス、3 端子スピン蓄積(3T-SA)デバイスなどによる Hanle 効果の測定によって解析が行われてきた。特に 3T-SA デバイスによる評価は、デバイスプロセスの容易さから最も広く用いられている評価法である。しかし、3T-SA デバイスにおいて観測される信号にはスピン注入源のトンネル障壁やその Si との界面にトラップされたスピンによる Hanle 効果による信号も重畳されることや、また解析に用いられている単一の Lorentz 関数だけでは表せない信号の観測なども報告されており、得られた信号が真に Si チャネルに蓄積したスピンによるものか、慎重に検討する必要がある。

本研究では、3T-SA デバイスで観測される Hanle 効果による信号をスピン拡散方程式のインパルス応答を用いて解析を行った。Si チャネルに蓄積したスピンによる Hanle 効果の信号波形は Lorentz 型とはならず、トラップスピンによる信号波形(Lorentz 型)と分離できることを明らかにした。さらに、高品質の CoFe/MgO/Si 接合をスピン注入源とした 3T-SA デバイスを作製し、このデバイスによって観測された Hanle 効果による信号波形は上記の 2 つの関数形の重ね合わせを用いることで精度よくフィットできることを明らかにした。

解析方法

Hanle 効果は、1 次元のスピン拡散方程式のインパルス応答²を求め、このインパルス応答に磁場による歳差運動因子を掛け、入力とともに時間で畳み込みを用いることで定式化できる。

$$S(x, B) = \lim_{t \rightarrow \infty} \int_0^t s_0 \frac{x}{\sqrt{4\pi D(t-t')}} e^{-\frac{x^2}{4D(t-t')}} e^{-\frac{t-t'}{\tau_{sf}}} \cos \omega_L(t-t') u(t') dt' \quad (1)$$

ここで、 D は拡散定数、 τ_{sf} はスピン緩和時間、 ω_L はラーモア周波数、 $u(t)$ は入力である。この被積分関数(インパルス応答)は、従来 Hanle 効果の解析に用いられてきた畳み込み積分の被積分関数の関数形と異なることに注意が必要である(時間に対する畳み込みの場合こちらが正しい)。有限の幅を持った電極下のスピン蓄積による Hanle 効果は、式(1)をさらに位置 x に関して畳み込みと電極幅に渡る積分を実行することで定式化できる。一方、トラップスピンに関しては、トラップされたスピンに対するレート方程式を用いて Hanle 効果の表式を求めることができる。チャネルに蓄積したスピンに対する Hanle 効果信号は、非 Lorentz 型の関数となるが、トラップスピンの Hanle 効果信号は Lorentz 型の関数となる。これらのスピンが共存する場合は、上記 2 種の関数形の重ね合わせになる。

実験結果

Fig. 1 に作製した 3T-SA デバイスを示す。スピン注入源の構造は、CoFe/MgO/ n^+ -Si (P; $4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) である。MgO は、Si 清浄表面に超高真空スパッタで成膜した Mg のラジカル酸化によって形成し、ラジカル酸素アニールによって高品質化してある。CoFe は分子線堆積法により成膜した。

このデバイスによって観測された Hanle 効果信号を Fig. 2 に示す(灰色のドット)。また、この観測結果は、単一の Lorentz 関数では精度よくフィットできず、チャネルでのスピン蓄積による Hanle 信号(破線)とトラップ電子に対する Hanle 信号(点線)の重ね合わせ(実線)を用いることで精度よくフィットできた。これは、Si チャネル内に蓄積されたスピンによる Hanle 効果の存在を意味する。フィッティングから求めた Si チャネル中のスピン緩和時間とトラップスピンの緩和時間は、それぞれ 240 ps と 30 ps となった。

本研究で開発した 3T-SA における Hanle 効果の信号解析法は、チャネルに蓄積したスピンとトラップスピンによる Hanle 効果の信号を分離できるため、蓄積スピンのみの評価が可能となる。

参考文献

- 1) S. Sugahara, IEE Proc.: Circuits Devices Syst. **152**, 355 (2005).
- 2) Y. Takamura, T. Akushichi, A. Sadano, T. Okishio, Y. Shuto, and S. Sugahara, J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

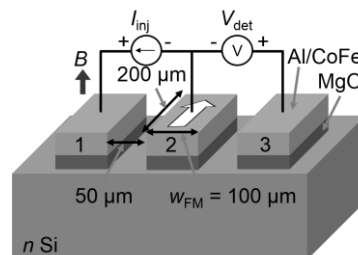


Fig. 1 3T-SA device.

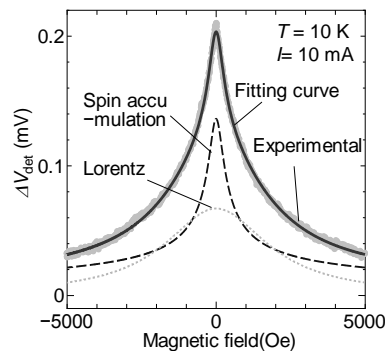


Fig. 2 Hanle-effect signal and fitting curves.

ラジカル酸素アニールによる高品質トンネル障壁を有する CoFe/MgO/Si および CoFe/AlO_x/Si コンタクトを用いたスピン蓄積の評価

患七泰樹¹, 高村陽太², 周藤悠介¹, 菅原聡¹

(¹ 東工大像情報, ² 東工大電子物理)

Spin accumulation using CoFe/MgO and AlO_x/Si contacts with high quality tunnel barriers prepared by radical-oxygen annealing

T. Akushichi¹, Y. Takamura², Y. Shuto¹, and S. Sugahara¹

(¹ Imaging Sci. and Eng. Lab., Tokyo Inst. of Tech., ² Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

はじめに

MOSFET にキャリアスピンによる機能を付加したスピン MOSFET¹ は, CMOS ロジックシステムのエネルギー削減効率を究極的に高められる不揮発性パワーゲーティングのキー・デバイスとして注目されている². スピン MOSFET を実現するために最も重要な課題の一つは Si チャネルへの高効率スピン注入・検出の実現である. CoFe/MgO/n-Si, CoFe/AlO_x/n-Si トンネルコンタクトは Si へのスピン注入・検出の検証に広く用いられているスピン注入源である. これらのトンネル障壁である MgO や AlO_x は主に電子線蒸着法やプラズマ酸化法によって形成されている^{3,4}. 今回, 我々は Si 基板上に堆積した Mg 薄膜および Al 薄膜のラジカル酸化によって MgO, AlO_x 薄膜を形成し, さらにラジカル酸素アニールによって高品質化した MgO, AlO_x 薄膜をトンネル障壁とする CoFe/MgO/n-Si, CoFe/AlO_x/n-Si スピン注入源を作製して, スピン蓄積の評価を行った. ラジカル酸素アニールによるトンネル障壁の膜質改善によってスピン蓄積信号に顕著な変化が現れた. この詳細について報告する.

実験方法

スピン注入源として, Al(100nm)/CoFe(30nm)/MgO/n⁺-Si および Al(100nm)/CoFe(30nm)/AlO_x/n⁺-Si トンネルコンタクトを作製した. Pドープ n⁺-Si 基板のキャリア濃度は $4 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ である. トンネルコンタクト構造の作製はスパッタ/ラジカル酸化/分子線堆積 (MBD)・マルチチャンバーシステムを用いて真空一貫で行った. 超高真空中での熱処理によって Si の清浄表面を形成し, この Si 表面に室温でスパッタ法を用いて Mg または Al を 0.5nm 堆積した. 次に, 室温でラジカル酸化を行い, トンネル障壁を作製した. この後, ラジカル酸素雰囲気中でのトンネル障壁のアニールを 400°C で 30 分間施し高品質化した. 次いで, MBD 法を用いて 400°C で CoFe を堆積した. 比較用のサンプルとしてラジカル酸素アニールを施していないトンネルコンタクトも作製した. スピン注入の評価として, 図1に示す 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, Si チャネルに蓄積されたスピンの Hanle 効果の観測を行った.

実験結果

図2に CoFe/MgO/Si および CoFe/AlO_x/Si コンタクトによるスピン注入測定およびス

ピン抽出測定の結果を示す. (a)および(b)が AlO_x トンネル障壁, (c)および(d)が MgO トンネル障壁の場合である. (b)と(d)がトンネル障壁形成後にラジカル酸素アニールを行ったものである. この結果から, ラジカル酸化による室温形成トンネル障壁を用いた場合には, どちらのトンネル障壁でもスピン注入・抽出測定で得られた信号はともにローレンツ関数でよくフィッティングできることがわかった. 一方, ラジカル酸化後にラジカル酸素アニールを行ったサンプルでは, 得られた信号をローレンツ関数のみでは, 精度よくフィッティングすることができなかった. トラップスピンはローレンツ型のスピン蓄積信号となるが, Si 中の蓄積スピンについてはローレンツ型とはならず, ローレンツ型よりシャープな形状の信号となる⁵. そこで, この二つの関数形を仮定して, フィッティング解析を行った. ラジカル酸素アニールのないものはローレンツ関数のみでフィットできるのに対して, ラジカル酸素アニールを行ったサンプルでは 2 つの関数の重ね合わせによって, フィッティングできた. これらの結果は, トンネル障壁の形成後にラジカル酸素アニールを行うことによって, トラップスピンによる信号(ローレンツ関数)が減少し, Si へのスピン注入成分が現れることを示している. ラジカル酸素アニールによるトンネル障壁の膜質と界面の高品質化は Si チャネルへのスピン注入に有効である.

参考文献

- 1) S. Sugahara, IEE Proc. Circuits, Devices & Sys. **152**, 355 (2005).
- 2) S. Yamamoto, *et al.*, Electronics Lett. **47**, 1027 (2011).
- 3) T. Uemura, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 132411 (2012).
- 4) T. Inokuchi, *et al.*, J. Appl. Phys. **111**, 07C316 (2012).
- 5) Y. Takamura, *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

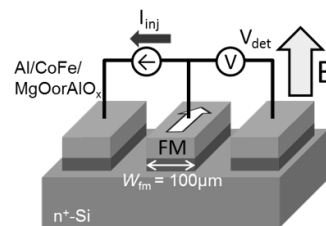


Fig. 1 3T spin accumulation device

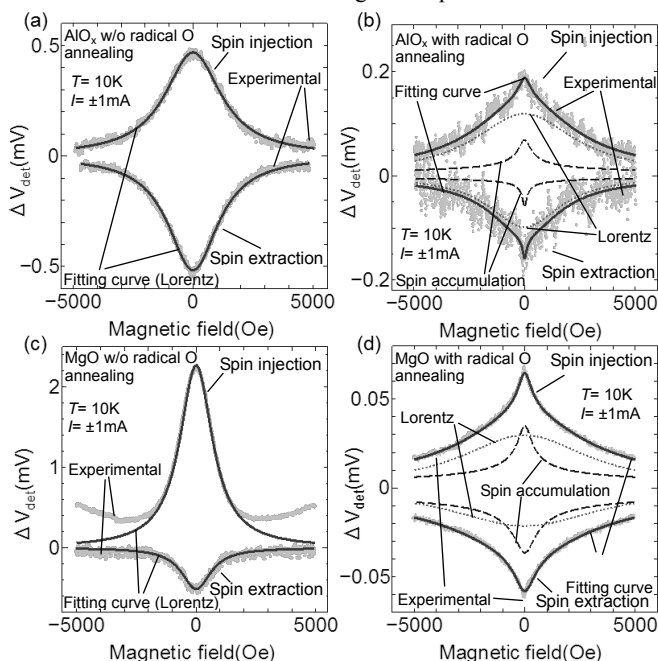


Fig. 2 Hanle-effect signals at 10K for spin injection and extraction measurements using CoFe/MgO/Si and CoFe/AlO_x/Si spin injectors, and their fitting curves (a) AlO_x tunnel barrier without radical-oxygen annealing (b) AlO_x tunnel barrier with radical-oxygen annealing (c) MgO tunnel barrier without radical-oxygen annealing (d) MgO tunnel barrier with radical-oxygen annealing.

B2 型 $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}/\text{MgO}/\text{Si}$ スピン注入源の作製と評価

川目悠¹, 悪七泰樹¹, 周藤悠介¹, 高村陽太², 菅原聡¹

(¹ 東工大院像情報, ² 東工大電子物理)

Preparation and characterization of a B2-ordered $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}/\text{MgO}/\text{Si}$ spin injector

Y. Kawame¹, T. Akushichi¹, Y. Shuto¹, Y. Takamura², and S. Sugahara¹

(¹Imaging Sci. and Eng. Lab, Tokyo Inst. of Tech., ²Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

はじめに

近年, 低消費電力集積回路のキーデバイスとして, MOSFET 型のスピントランジスタであるスピン MOSFET が注目されている[1]. スピン MOSFET を実現するためには, スピン注入および検出の高効率化が重要となる. ハーフメタル・フルホイスラー合金 $\text{Co}_2\text{FeSi}_{1-x}\text{Al}_x$ (CFSA)は, B2 構造でも十分なハーフメタル性を示し[2], また室温に比べてキュリー温度($\sim 1100\text{K}$)が十分に高く, さらに Si とのバリアハイトを十分に低減させることが可能であるため, Si チャネルに対する高効率スピン注入源の強磁性電極として極めて有望である[3]. 今回, 我々は Si チャネルへのスピン注入源として実績のある MgO トンネルコンタクト上に, 分子線堆積(MBD)法を用いて高品質 CFSA 薄膜の形成を実現した. さらに, CFSA/MgO/Si 接合をスピン注入源とする 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, スピン注入・抽出の評価を行った.

実験方法

作製したサンプル構造は CFSA(30nm)/MgO(3nm)/ n^+ -Si($4 \times 10^{19}\text{cm}^{-3}$)である. サンプルは, MBD/ラジカル酸化/スパッタ装置を超高真空下で接続したマルチチャンバーシステムを用いて, 真空一貫で作製した. MgO は, マグネトロンスパッタを用いて Si 基板に Mg を 1.5nm 堆積し, 室温でラジカル酸化を行った後, ラジカル酸素を照射しながらアニールを行うことにより膜質を改善した. 次に, MBD 法により $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}$ を基板温度 400°C で堆積した. スピン注入源の構造評価は, XPS, XRD (規則度の解析には本研究室考案の拡張 Webster モデル[4]を用いた), TEM を用いた. また, スピン注入の評価は, 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, 蓄積スピンの Hanle 効果測定を用いた.

実験結果

まず, XPS によって界面構造の評価を行った. MgO と Si の界面にサブオキไซด์が MgO の室温形成時から存在したが, 400°C までのラジカル酸素アニールでも変化せず, この界面構造は安定であることがわかった(Si の酸化は進まない). 次に, 400°C でラジカル酸素アニールを施したサンプル上に MBD 法により, CFSA を堆積した. XRD による極点図解析から, CFSA が面内無配向の(100)配向柱状多結晶であることを確認した. また, 明瞭な(200)規則格子線が観測され(Fig.1), CFSA が少なくとも B2 構造を有していることがわかった. 拡張 Webster モデルを用いて算出した B2 規則度は約 63%であった. TEM 観察から, CFSA 薄膜は柱状配向した多結晶であることを確認した. この結果は XRD と一致した. また, MgO/Si 界面には, 大きなラフネスは観測されず, 急峻な界面が形成されていることがわかった(Fig.2). 次に, CFSA/MgO/Si をスピン注入源とする 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, Hanle 効果の測定を行った(Fig.3). スピン抽出測定では, 明瞭な Hanle 信号が得られたが, スピン注入測定では得られなかった. 抽出側で得られた Hanle 信号は, ローレンツ関数ではフィッティングすることは出来ず, Si チャネルに蓄積したスピンを表現できる解[5]をローレンツ関数と重ね合わせることでフィッティングが可能となった. この結果は, CFSA/MgO/Si トンネル接合を用いたスピン抽出の実現を示唆するものである.

参考文献

- (1)S. Sugahara, IEE Proc. Circuits Devices Syst. **152**, 355 (2005).
- (2)T.M.Nakatani et al., J. Appl. Phys. **102**, 033916 (2007).
- (3)Y. Kawame et al., the 12th Joint MMM-Intermag Conference, paper EI-06 (2013).
- (4)Y. Takamura, et al., J. Appl. Phys. **105**, 07B109 (2009).
- (5)Y. Takamura, et al., J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

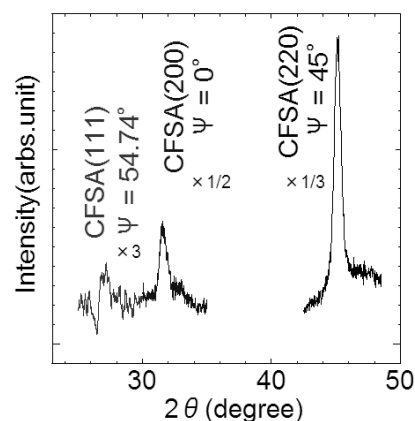


Fig. 1 XRD superlattice lines for a CFSA film formed on a high quality MgO/Si structure.

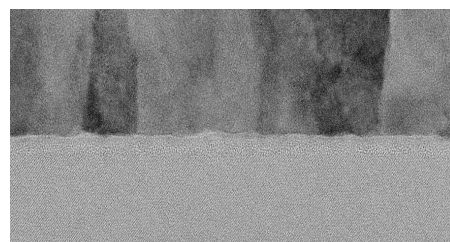


Fig. 2 TEM image of the fabricated CFSA/MgO/Si structure

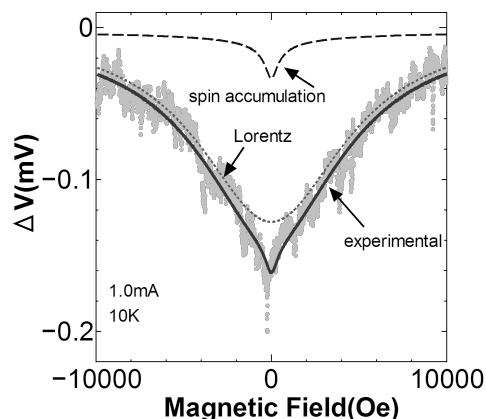


Fig. 3 Hanle-effect signal and its fitting curve

CoFe/TiO₂/Si トンネルコンタクトの作製とそのスピン注入源への応用

高橋克典¹, 悪七泰樹¹, 周藤悠介¹, 高村陽太², 菅原聡¹

(¹ 東工大像情報, ² 東工大電子物理)

Fabrication of a CoFe/TiO₂/Si tunnel contact and its application for spin injector

K. Takahashi¹, T. Akushichi¹, Y. Shuto¹, Y. Takamura², and S. Sugahara¹

(¹ Imaging Sci. and Eng. Lab., Tokyo Inst. of Tech., ² Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

はじめに

スピン MOSFET[1]を実現するためには Si チャネルに適合したスピン注入源の開発が重要になる。特に、オン状態におけるチャネル抵抗を考慮した設計が、スピン注入効率とデバイス性能から重要になる。スピン MOSFET の実現が期待されるナノスケールのチャネルでは、チャネル抵抗は非常に低く、これまで研究が進められている AlO_x や MgO をトンネル障壁としたスピン注入源では、抵抗が大きすぎて適切ではない。今回、我々はナノスケールのチャネルに適合したスピン注入源のトンネル障壁として、TiO₂を提案する。TiO₂は Si との接合において伝導帯側に 0.1eV 程度の低いエネルギー障壁を形成[2]することから、CoFe₂Si_xAl_{1-x}などの低仕事関数の強磁性金属を用いることで、非常に低いトンネル障壁(低抵抗)のスピン注入源を実現できると期待される。また、TiO₂は低抵抗の MTJ として研究されていたこともあり、TMR も観測されている[3]。したがって、強磁性金属/TiO₂/Si トンネルコンタクトはスピン MOSFET のスピン注入源として有望である。ラジカル酸化を用いた TiO₂/Si 構造の形成と、これを用いたスピン注入源の検討について報告する。

実験方法

Si 上への TiO₂の形成では、界面におけるシリサイドの形成を防ぐために、まず室温で Si 上に Ti をスパッタで堆積し、さらに室温でラジカル酸化を行うことで TiO₂の形成を行った。次いで、膜質の向上のために、この TiO₂/Si 構造形成後に、ラジカル酸素雰囲気中でアニールを行った。界面構造を XPS によって評価を行い、電気特性はダイオードを作製して、電流密度-電圧(*J-V*)特性から評価した。さらに、3 端子スピン蓄積デバイスを作製して、Si へのスピン注入を評価した。

実験結果

はじめに、室温でラジカル酸化によって形成した TiO₂/Si およびラジカル酸素アニール処理した試料を XPS によって評価した。Fig. 1(a),(b)に Ti2p スペクトル, Si2p スペクトルをそれぞれ示す。室温でのラジカル酸化後 400°C のラジカル酸素アニールまでは界面にサブオキシドが観測されるのみで界面構造に劣化がないことがわかった。一方、500°C でラジカル酸素アニールを行うと Si⁴⁺(SiO₂)は観測されないものの、Si のサブオキシドの増大が確認され、界面構造が変化したことがわかった。次にラジカル酸素アニールの効果を Al/CoFe/TiO₂/n⁺-Si(P;4×10¹⁹cm⁻³)/Al 構造のダイオードを作製し、*J-V* 特性から評価した。室温でラジカル酸化のみを行った試料ではバラツキが大きかったが、400°C でラジカル酸素アニールを行うことで、特性のバラツキは大きく減少した。ピンホールなどの欠陥が減少したと考えられる。また、この *J-V* 特性から、TiO₂と Si との間の障壁高さはおよそ 0.1eV 程度と見積もることができた。次に、CoFe/TiO₂/n⁺-Si(P;4×10¹⁹cm⁻³)をスピン注入源としたスピン蓄積デバイスの作製を行い、蓄積スピンの Hanle 効果の測定を行った。Fig. 2(a),(b)に結果を示す。注入および抽出で明瞭な Hanle 信号の観測に成功した。また、得られた波形はローレンツ関数のみではフィッティングすることができず、Si チャネルに注入された蓄積スピンの Hanle 効果を正しく表現できる関数形[4]を加えることで、波形を再現することができた。この結果は、CoFe/TiO₂/n⁺-Si トンネルコンタクトによって、Si チャネルへスピン注入できたことを示唆する。

参考文献

- 1) S. Sugahara, IEE Proc. Circuits, Devices & Sys. **152**, 355 (2005).
- 2) J. Robertson, J. Vac. Sci. Technol. B **18**, 1785 (2000).
- 3) J. Gang. Zhu, and C. Park, Mater. Today, **9**, 36(2006).
- 4) Y. Takamura, *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

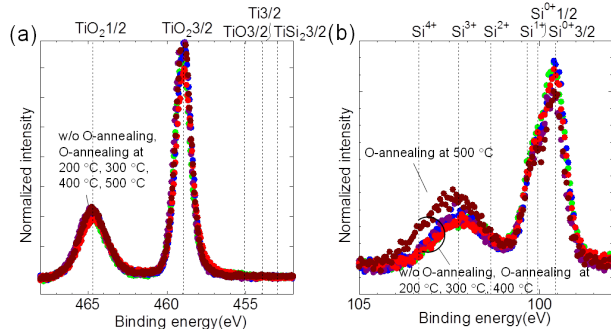


Fig. 1 (a) XPS Ti2p spectra and (b) Si2p spectra for an as-oxidized TiO₂/Si sample at room temperature and TiO₂/Si samples with radical oxygen annealing at 200°C, 300°C, 400°C, and 500°C

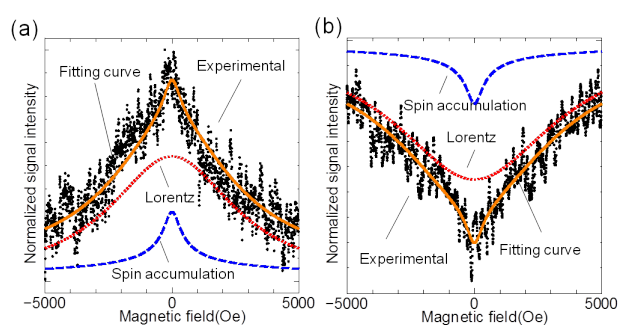


Fig. 2 Hanle-effect signals at 10K for (a) spin injection and (b) spin extraction measurements. Their various fitting curves are also shown.

GaAsにおける四端子非局所スピバルブ信号と Hanle 信号のゲート制御

宮川拓望, 秋保貴史, 蝦名優也, 山本眞史, 植村哲也
(北海道大学)

Gate control of spin-valve signal and Hanle signal in GaAs observed by a four-terminal nonlocal geometry

T. Miyakawa, T. Akiho, Y. Ebina, M. Yamamoto, and T. Uemura,
(Hokkaido Univ.)

はじめに

スピントランジスタをはじめとする半導体スピ機能デバイスの実現には、強磁性体電極から半導体へのスピ注入、および、チャンネル中を伝導するスピ偏極電流のゲート制御が必須である。スピ注入に関してはこれまで盛んに研究がなされ、Si や GaAs, Ge などさまざまな半導体チャンネルにて実証がなされている。一方、ゲート制御に関しては三端子 Hanle 効果測定により観測される強磁性体電極直下へのスピ蓄積信号のゲート制御が報告されている[1]ものの、半導体チャンネル中を伝導するスピ偏極電流により生成されるスピ信号のゲート制御に関する報告例はない。今回、我々は GaAs チャンネルにおける四端子非局所スピバルブ信号および Hanle 信号のゲート制御を実証したので報告する。

実験方法

p 型 GaAs (001) 基板上に p-GaAs バッファ層 ($\text{Be} = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 250 nm), ud-Al_{0.3}Ga_{0.7}As (50 nm), n⁻-GaAs (Si = $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, 700 nm), n⁺-GaAs (Si = $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 30 nm), Fe (10 nm) を MBE 法により成長した。その後、Ar イオンミリング、EB リソグラフィ等を用いて p-i-n 接合型バックゲートを有する横型スピ輸送デバイスに加工した。Fig. 1 に示すように、電極 1, 3 間に一定の電流 (I_{bias}) を流し、電極 2, 4 間の電圧 (V_{NL}) を計測する cross nonlocal 配置にて、スピバルブ信号と Hanle 信号のゲート電圧 (V_G) 依存性を 77 K にて測定した。 V_G は接地された電極 3 を基準に、p 型バックゲートに印加した。

結果と考察

Fig. 2 に、 $I_{\text{bias}} = 20 \mu\text{A}$, $V_G = 0, -1.5, -2.5 \text{ V}$ のときのスピバルブ信号と Hanle 信号を示す。 $I_{\text{bias}} > 0$ のとき、スピ偏極電子は電極 3 から n-GaAs に注入される。 Fig. 2 に示すように、スピバルブ信号および Hanle 信号の大きさは V_G により明瞭に変化しており、このことから、GaAs チャンネルを流れるスピ偏極電流のゲート変調が実証された。スピ注入の標準的なモデルによれば、スピバルブ信号の変化量 (ΔV_{NL}) はチャンネルのシート抵抗 (ρ_{sh}) に比例する。しかしながら、今回の結果では、 V_G を 0 から -2.5 V まで変化させた時に、 ρ_{sh} はおよそ 5 倍となったのに対して、 ΔV_{NL} はおよそ 2 倍となり、両者は一致しなかった。このことは、 ΔV_{NL} の V_G による変化は単に ρ_{sh} の変化だけでは説明できず、その他の要因、例えば、スピ注入効率が V_G により変化することなども考慮する必要があることを示唆している。

謝辞 本研究は JSPS 科研費 25286039 の助成を受けて行われた。

1) Y. Ando et al., APL **99**, 132511 (2011).

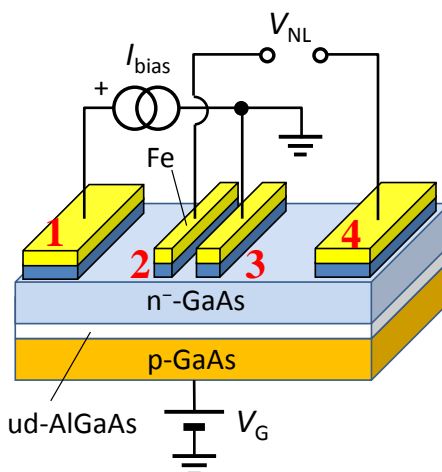


Fig. 1. Schematic device structure and circuit configuration.

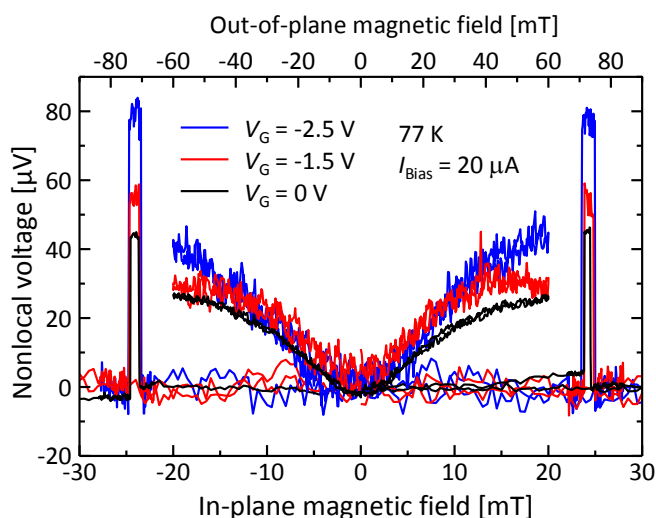


Fig. 2. Spin-valve signals and Hanle signals at $I_{\text{bias}} = 20 \mu\text{A}$ for $V_G = 0, -1.5, \text{ and } -2.5 \text{ V}$.

GaAs における過渡 oblique Hanle 信号に対する核磁気共鳴の影響

蝦名優也, 秋保貴史, 山本真史, 植村哲也
(北海道大学)

Influence of nuclear magnetic resonance on transient oblique Hanle signals in GaAs

Y. Ebina, T. Akiho, M. Yamamoto, and T. Uemura,
(Hokkaido Univ.)

はじめに

近年, 強磁性体電極から半導体に注入された電子スピンの核スピンの効率的に偏極される動的核スピン偏極(DNP), 及び, 核磁気共鳴(NMR)による核スピン制御が量子情報デバイスへの応用の観点から注目されている. 最近, 我々は, DNP に要する時間スケールよりも早い時間スケールで外部磁場を掃引する過渡 oblique Hanle 効果測定により, GaAs における核スピンの外部磁場の変化に対する過渡応答特性や DNP による核磁場の生成時間を明らかにした[1]. 本研究の目的は, DNP により生成された核スピン偏極に対する NMR の過渡 oblique Hanle 信号に及ぼす影響を明らかにすることである.

実験方法

半絶縁性 GaAs (001)基板上に undoped-GaAs バッファ層 (250 nm), n^- -GaAs (700 nm, $\text{Si} = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$), n^+ -GaAs (30 nm, $\text{Si} = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$), Fe (10 nm)を MBE 法により成長した. その後, Ar イオンミリング, EB リソグラフィー等を用いて横型スピン輸送デバイスに加工した (Fig. 1). 過渡 oblique Hanle 効果測定は 4.2 K で非局所配置において行った. 外部磁場 (\mathbf{B}_{ob})は $\mathbf{B}_{\text{ob}} = B_{\text{ob}}\mathbf{u}$ (\mathbf{u} は $(\sin 13^\circ, 0, \cos 13^\circ)$ の単位ベクトル)の条件で印加した. 初期状態として核磁場を生成するため, $B_{\text{ob}} = +40 \text{ mT}$, $I = -10 \mu\text{A}$ 印加のもとで 150 秒待機した後非局所電圧 (V_{NL})の B_{ob} 依存性を測定した. B_{ob} は +40 mT から -40 mT $\sim 0.38 \text{ mT/s}$ の速さで掃引し, RF 磁場は Fig. 1 における y 軸方向に印加した.

結果と考察

Fig. 2 に, RF 磁場がない場合と 175kHz の RF 磁場を照射した場合それぞれの oblique Hanle 測定結果を示す. RF 磁場がない場合, 生成された核磁場に由来する二つのサイドピークが観測された. 一方, RF 磁場のもとでは, 両サイドピークの大きさは減少し, 負側のピークは完全に消失した. この原因を明らかにするため, 非局所信号 (V_{NL}/I) が極小となる磁場の値 (Fig. 2 の緑色矢印) の RF 周波数依存性を評価したところ, ^{71}Ga に対する磁気回転比から見積もられる共鳴磁場に相当するところで非局所信号が低下することがわかった. また同様に, 変化量は小さいものの, ^{69}Ga (Fig. 2 の橙色矢印) や ^{75}As (Fig. 2 の黒色矢印) の NMR に起因した非局所信号の変化も観測された. これらのことから, RF 磁場印加に伴う過渡 oblique Hanle 信号の変化は, NMR による核磁場の消失が原因であることがわかった. 従来の定常状態での oblique Hanle 信号測定では NMR による信号変化は共鳴磁場のところだけで生じるのに対し, 過渡信号に対しては共鳴磁場以外のところでも見られ, NMR の検出が容易であることが示された. このことは, 核スピンの外部磁場の変化に対する過渡応答特性を評価できることに加え, 本手法の特徴の一つである.

謝辞

本研究は JSPS 科研費 25286039 の助成を受けて行われた.

参考文献

- 1) T. Akiho *et al.*, PRB **87**, 235205 (2013)

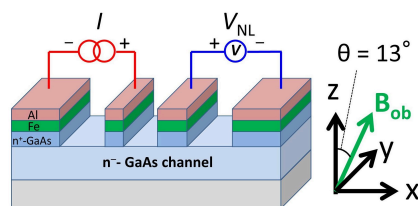


Fig. 1 : Schematic diagram of device structure.

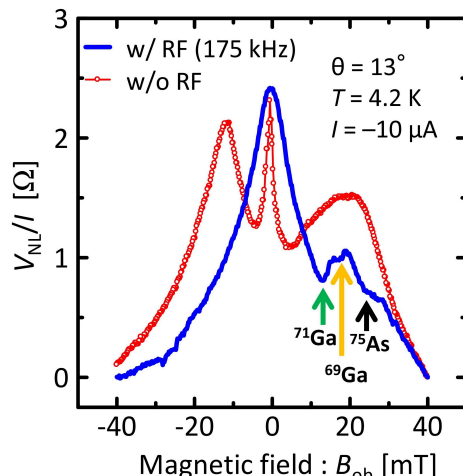


Fig. 2 : B_{ob} dependence of V_{NL}/I with and w/o RF magnetic field, where V_{NL} is the nonlocal voltage, and I is the injection current.

逆ペロブスカイト Co_3FeN 薄膜の異方性磁気抵抗効果

安藤 弘紀、榊原 英樹、河合 俊介、植田 研二、浅野 秀文
(名大院工)

Anisotropic magnetoresistance effect of anti-perovskite Co_3FeN thin films

H. Ando, H. Sakakibara, S. Kawai, K. Ueda, H. Asano
(Nagoya Univ.)

はじめに

逆ペロブスカイト窒化物磁性体 Co_3FeN は、高い負のスピンの分極率¹⁾を持つ強磁性材料であり、同じ逆ペロブスカイト窒化物磁性体同士だけでなく酸化物ペロブスカイトとの格子整合性がよいため、積層構造で多様な応用が期待できる。現在、分子線エピタキシー(MBE)法により SrTiO_3 基板(格子ミスマッチ: -4.1%)上に 450°C で作製された報告²⁾があるが、本研究では、反応性スパッタ法を用いて、積層構造作製に有利な低温成長 Co_3FeN 薄膜を作製し、ハーフメタル性を評価するために異方性磁気抵抗効果³⁾について調査した。

実験方法

反応性マグネトロンスパッタ法により Co_3Fe ターゲットを用いて Co_3FeN 薄膜($\text{La}_{0.18}\text{Sr}_{0.82}$)($\text{Al}_{0.59}\text{Ta}_{0.41}$) $\text{O}_3(001)$ 基板(LSAT 基板)(格子ミスマッチ: -2.8%)上に、ガス圧は 2.5 Pa、膜厚 50-100nm で、スパッタガス $\text{Ar} + 8-10\%\text{N}_2$ 、基板温度は $250-350^\circ\text{C}$ の範囲で作製した。

実験結果

Fig. 1 に膜厚 50 nm、窒素濃度 10% で作製した Co_3FeN 薄膜の面直格子定数と半値幅の基板温度依存性を示す。基板温度 275°C 以上で $\text{Co}_3\text{FeN}(00l)$ ピークが観測された。 300°C 以下の低温でも、理論値に近い格子定数でロッキングカーブの半値幅も比較的狭い Co_3FeN が得られていることが分かった。基板温度 300°C で作製した試料で、 $\text{Co}_3\text{FeN}(200)$ ピークの面内 ϕ スキャンにおいて 4 回対称ピークが観測でき、LSAT 基板上に cube-on-cube にエピタキシャル成長していることが分かった。また、この薄膜は $M_s = 1350 \text{ emu/cc}$ の磁化と小さな保磁力 $H_c = 25 \text{ Oe}$ の強磁性であり、 $R_a = 0.56 \text{ nm}$ と素子の下部電極に適した小さな値が得られた。Fig. 2 は Co_3FeN 薄膜の異方性磁気抵抗効果を測定したもので、負の AMR 比が得られた。負の AMR 効果はハーフメタルの必要条件³⁾であるが、DOS の計算値¹⁾を考慮すると、この薄膜はマイノリティスピン電子が伝導を主に担っていると考えられ、 Co_3FeN のハーフメタル性を示唆している。講演では Co_3FeN の特性評価としてアンドレーエフ反射を用いてスピンの分極率を求め、AMR 効果との関連についても議論する。

参考文献

- 1) Y. Takahashi *et al.*, J. Magn. Magn. Mater, **323**, 2941, (2011).
- 2) T. Sanai *et al.*, J. Crystal Growth, **357**, 53, (2012).
- 3) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn, **81**, 024705, (2012).

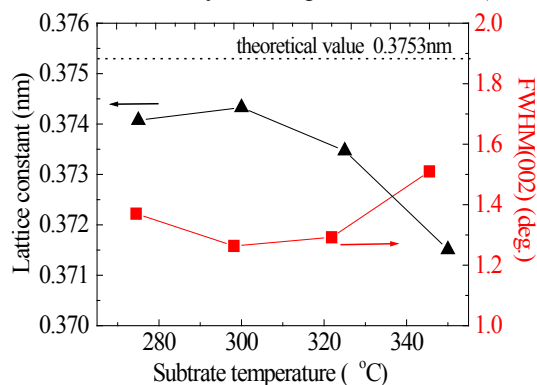


Fig. 1. Lattice constant (triangles line) and FWHM (squares line) plotted against substrate temperature of Co_3FeN thin films.

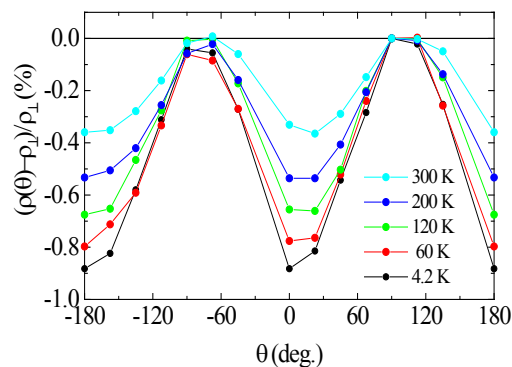


Fig. 2. Resistance changes of Co_3FeN films as a function of the magnetic-field direction θ measured with respect to the sensing-current direction. The current I flowed along $\text{Co}_3\text{FeN}[100]$. The applied magnetic field was 4 kOe.

γ' -Fe₄N 擬単結晶薄膜の異方性磁気抵抗効果 ～規則度依存性～

鹿原 和樹¹, 角田 匡清¹, 古門 聡士²
(¹東北大, ²静岡大)

Anisotropic magnetoresistance effect in pseudo single crystal γ' -Fe₄N films ~degree of order dependence~

K. Kabara¹, M. Tsunoda¹, and S. Kokado²
(¹Tohoku Univ., ²Shizuoka Univ.)

1. はじめに

我々はこれまでに、 γ' -Fe₄N 薄膜で負の異方性磁気抵抗 (AMR) 効果が観測されることを見出し[1]、理論予測[2]された Fe₄N の少数スピン電子伝導の証拠であることを示した[3]。また Fe₄N 擬単結晶薄膜で電流を Fe₄N[100]方向に流した場合、50 K 以下の温度で AMR 比の大きさが急激に増大し、AMR 曲線に $\cos 40$ 成分が重畳する特徴的な変化を示す[4]が、その起源については明らかとなっていない。Fe₄N の特異なスピン依存伝導は、ペロブスカイト構造の体心位置に存在する N 原子と面心位置に存在する Fe 原子との電子軌道混成が原因である[2]ことから、本研究では N 原子位置の規則度を変化させた擬単結晶 γ' -Fe₄N 薄膜を作製し、AMR 効果と規則度との関係について調べた。

2. 実験方法

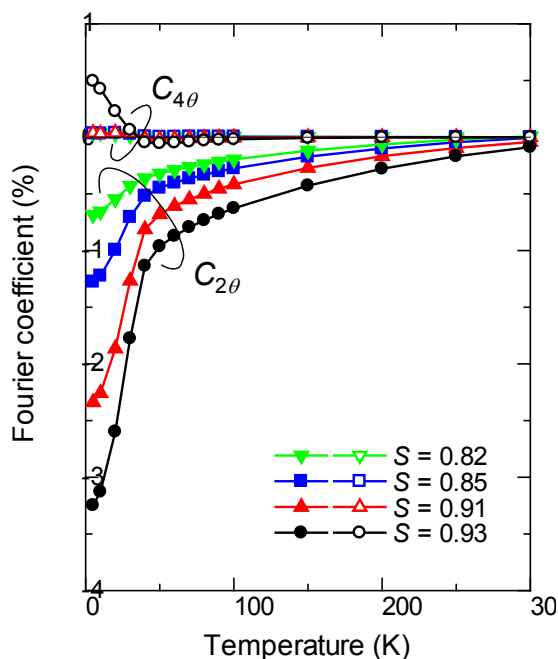
反応性スパッタ法を用い MgO(100)単結晶基板上に 50 nm 厚の Fe₄N 擬単結晶薄膜をエピタキシャル成長させた。成膜直後の Fe₄N 薄膜を、成膜装置内で 50~300°C の範囲で温度を変えて 15 分間熱処理した。冷却後、酸化防止層として 2 nm 厚の Ta 薄膜を Fe₄N 薄膜に堆積させた。試料の構造解析は XRD により行い、Fe₄N(100) と Fe₄N(200)の回折線強度比から N 原子位置の規則度 (S) を求めた。各熱処理温度に対応して $S = 0.82 \sim 0.93$ の試料が得られた。各試料を 0.2 mm 幅×7 mm 長のストライプ状に加工し、直流 4 端子法で Fe₄N[100]方向の電気抵抗 (R) を 5~300 K の温度範囲で測定した。30 kOe の直流磁界を膜面内に印加し、印加磁界方向と電流方向の間の角度 (θ) の関数として R (AMR 曲線) を測定した。 $\theta = 0$ (90°) における抵抗値 $R_{//}$ (R_{\perp}) を用いて、AMR 比を $(R_{//} - R_{\perp}) / R_{\perp}$ と定義した。

3. 実験結果

図には各試料の AMR 曲線から求めた $\cos 2\theta$ ($\cos 4\theta$) 成分のフーリエ係数 $C_{2\theta}$ ($C_{4\theta}$) の測定温度依存性を示す。ここで $2C_{2\theta}$ が AMR 比に相当する。50 K 以下での AMR 比の大きさの急激な増大と $\cos 4\theta$ 成分の重畳現象が、 S の低下に伴って徐々に消失してゆくことが判った。著者らによる最近の AMR の理論[5]によれば、結晶場が AMR に及ぼす効果として、スピン軌道相互作用によるスピン混成から生じる従来の $\cos 2\theta$ 形状の AMR 効果[3,6]に加えて、 d_x 軌道と d_y 軌道のエネルギー差 (Δ) とフェルミ準位における両軌道の状態密度差に応じた $\cos 2\theta$ 成分、ならびに正方晶歪に伴う d_x 内の軌道分裂に応じた $\cos 4\theta$ 成分が、AMR 曲線に重畳することが示されている。N 位置の不規則化ならびに測定温度の上昇は Fe₄N の電子構造の結晶場分裂を低減させる結果、低温における AMR 効果の特徴的な変化が S の低下に伴って低減したものと考えられる。

参考文献

- 1) M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Express **2** (2009) 083001.
- 2) S. Kokado et al., Phys. Rev. B **73** (2006) 172410.
- 3) S. Kokado et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 024705.
- 4) M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Express **3** (2010) 113003.
- 5) S. Kokado et al., Phys. Status Solidi C **11** (2014) 1026.
- 6) S. Kokado et al., Adv. Mater. Res. **750-752** (2013) 978.



ハーフメタルホイスラー合金薄膜における異方性磁気抵抗効果の定量解析

桜庭裕弥¹、古門聡士²、平山悠介¹、古林孝夫¹、介川裕章¹、李松田¹、高橋有紀子¹、宝野和博¹
(¹ 物材機構、² 静岡大院工)

Quantitative analysis of anisotropic magnetoresistance effect in half-metallic Heusler compounds films
Y. Sakuraba¹, S. Kokado², Y. Hirayama¹, T. Furubayashi¹, H. Sukegawa¹, S. Li¹, Y. K. Takahashi¹,
and K. Hono¹
(¹NIMS, ²Shizuoka Univ.)

はじめに

1990年代より理論的に提唱されたCo基フルホイスラー合金系材料のハーフメタル性は、高いスピン偏極率を反映した巨大な磁気抵抗効果やスピン蓄積効果などにより実験的に実証され、室温での高いスピン偏極率を利用した次世代HDD用磁気ヘッドなどへの応用が期待されている。しかしながら応用上の課題として、室温におけるスピン偏極率の更なる改善に加え、デバイス作製上の熱処理温度や膜厚の制限への対応など解決すべき問題は残されている。従って、デバイス応用実現のためには、ホイスラー合金の材料組成・熱処理温度・膜厚等を系統的に変化させた上でそれらのスピン偏極率を評価し、更なる最適化を図る必要がある。しかしながら、室温でのスピン偏極率の評価には、巨大磁気抵抗素子など面倒な微細加工を必要とするデバイス作製が伴うため、材料探索やデバイス作製条件の最適化を効率的に行うことは非常に困難である。

近年、古門らにより強磁性体における異方性磁気抵抗効果(AMR)を包括的に取り扱う新たな理論モデルが提案され、ハーフメタル材料のAMR効果の符号は必ず負になることが示された¹⁾。これに基づきYangらは $\text{Co}_2\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 薄膜試料におけるAMR効果を系統的に評価し、高いスピン偏極率が得られる $x \leq 0.6$ においては古門らの予測通りAMRが負になり、AMR効果の測定がハーフメタル材料探索の指針となることを示した²⁾。本研究ではこれらの知見を更に発展させるために、 Co_2MnZ , Co_2FeZ ($Z = \text{Al}, \text{Si}, \text{Ga}, \text{Ge}$)系の種々の薄膜試料におけるAMR効果を系統的に定量評価し、合金組成、規則度、並びにCPP-GMR素子における磁気抵抗効果の大きさと総合的に解析することにより、AMR効果の符号及び絶対値とスピン偏極率の相関に関する知見を得ることを目的とした。

実験方法

超高真空スパッタ装置によって Co_2MnZ , Co_2FeZ 薄膜(50 nm)をMgO単結晶基板上に室温成膜し、熱処理温度を300–650°Cまで変化させた。AMR効果は電流方向を固定し、外部磁場(5kOe)を薄膜面内方向で回転させることにより評価した。ホイスラーの価電子数 N_V を正確に評価するために、ICP分析によって組成分析を行い N_V とAMRの相関について評価した。

実験結果

作製した Co_2FeZ , Co_2MnZ 系薄膜試料のAMR比を価電子数 N_V に対してプロットした結果、ハーフメタルギャップを反映するAMRの正負の変化が明瞭に確認された(Fig.1)。また従来のCPP-GMRの実験結果との比較により、高い負のAMR効果が得られる組成と L_{21} 規則状態において、大きなMR比や ΔR_A が得られる定量的相関が明瞭に確認された。本研究により、簡便なAMR効果の測定により材料のスピン偏極率に関する知見が得られることが確認された。³⁾

参考文献 1) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024705 (2012). 2) F. Yang *et al.*, Phys. Rev. B, **86**, 020409R (2012) 3) Y. Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104**, 172407 (2014).

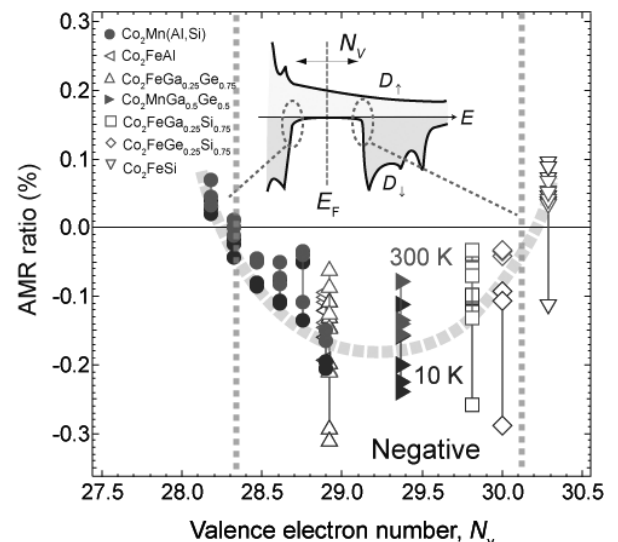


Fig. 1 Total valence electron number N_V dependence of AMR ratio in Co_2MnZ and Co_2FeZ ³⁾

Co₂(Fe, Mn)(Si, Al)ホイスラー合金の磁気抵抗効果

Magnetoresistances Effects in Co₂(Fe, Mn)(Si, Al) Heusler Alloys

矢子 ひとみ、窪田 崇秀、高梨 弘毅

(東北大金研)

H. Yako, T. Kubota, and K. Takanashi

(Institute for Materials Research, Tohoku Univ.)

はじめに

電子の持つ電荷とスピンの2つの自由度を応用して新機能を創製するスピントロニクス分野は急速な発展を見せており、デバイスの高性能化を実現するために高いスピン分極率を有する材料の開発が進められている。特に、ハーフメタルホイスラー合金は高いスピン分極率を有していることから注目を集めている。最近、桜庭等により異方性磁気抵抗効果(AMR)における抵抗変化率とその符号が、ハーフメタル性と相関を示すことが報告された¹⁾。本研究では、5元系ホイスラー合金 Co₂(Fe, Mn)(Si, Al)について、AMR効果の合金組成、試料作製条件ならびに測定温度依存性について報告を行い、ハーフメタル性との関係について議論する。

実験方法

MgO (100) 基板を 650°C でフラッシングした後、基板加熱を行いながら Co₂Fe_{0.5}Mn_{0.5}(Si_{1-x}Al_x) (CFMSA) を 50 nm 成膜した。基板加熱温度は、300°C, 400°C, 500°C, 600°C とした。x = 0, 1 の 4 元ホイスラー合金については合金ターゲットを用い、5 元ホイスラー合金の成膜時には Co₂(Fe, Mn)Si (CFMS) および Co₂(Fe, Mn)Al (CFMA) ターゲットからの同時スパッタにより成膜した。ホイスラー合金成膜後は、酸化防止のためにキャップ層として Au を 2 nm 成膜した。試料の抵抗値は直流 4 端子法により 100 μA の電流を試料に流して測定した。

AMR 効果は、2 kOe の磁場を磁化容易軸方向に印加することで磁化を飽和させ、試料を薄膜面内方向で回転させることで評価した。結晶構造は X 線回折 (XRD) 装置、また、磁化を試料振動型磁力計 (VSM) によりそれぞれ評価した。

実験結果

作製した全試料は、XRD 測定の結果エピタキシャル成長していることを確認した。また、基板加熱温度 500°C で作製した CFMA、CFMSA、CFMS についてはいずれも L₂₁ 規則構造に起因する超格子反射を確認した。VSM 測定の結果、L₂₁ 構造が得られた試料の飽和磁化はバルク値程度の値であった。Fig. 1 に CFMA、CFMSA、CFMS 薄膜の室温における AMR 曲線を示す。横軸の角度は、電流と磁化(磁場)が直行する場合を 0° と定義した。全ての試料において負の AMR 効果が観測された。また、AMR 比の絶対値は CFMSA 薄膜において 0.3% と最大となることが分かった。講演では、AMR 比の試料作製条件(基板加熱温度)依存性ならびに面直通電型の巨大磁気抵抗素子の磁気抵抗変化率との関係についても議論する予定である。

謝辞

本研究の一部は、日本学術振興会 科研費 基盤研究 (S) (No. 25220910) 並びに、情報ストレージ推進機構 (SRC) による支援を受けて行われた。

参考文献

1) Y. Sakuraba et al., Appl. Phys. Lett., **104**, 172407 (2014).

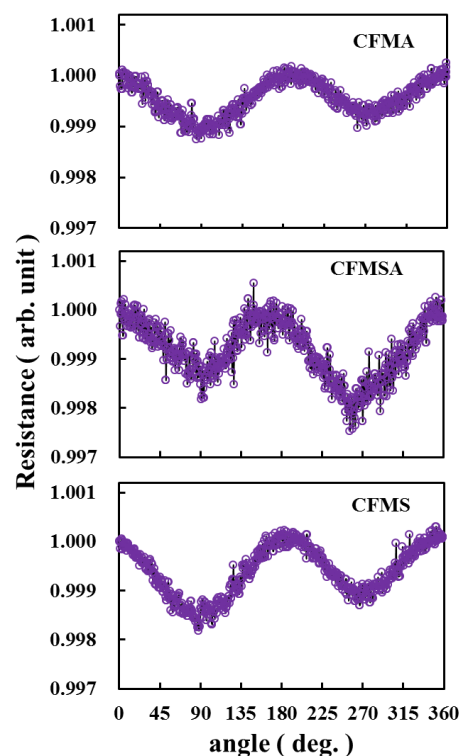


Fig. 1 Angular dependence of electrical resistance in CFMA, CFMSA and CFMS films at room temperature.

bcc 型 Cu 基合金をスペーサー層に用いた CPPGMR

古林孝夫、高橋有紀子、宝野和博
物質・材料研究機構

CPPGMR using Cu-based bcc alloys for a spacer layer

T. Furubayashi, Y.K. Takahashi, K.Hono

National Institute for Materials Science

はじめに

これまで CPPGMR 素子のスペーサー層としては fcc 金属である Cu あるいは Ag が多く用いられており、Co 基ホイスラー合金磁性層との組み合わせにより大きな MR 値が得られている。スペーサー層としてホイスラー合金と同じ bcc 構造の材料を用いることにより、界面で良好なバンド整合性が得られ MR が改善されるという予想から、これまで L2₁ 型 Cu₂RhSn [1] や B2 型 NiAl [2] が試みられてきたが顕著な効果は得られていない。これらの合金ではスピン拡散の効果が大きいため MR が本来の値に比べ減少しているのではないかと考えられる。そこで本研究では、同様の結晶構造を持ちスピン拡散の効果が小さいと考えられる材料として、原子番号が比較的小さくまた磁性元素を含まない B2 型 CuZn 合金及び D0₃ 型 Cu₃Al 合金をスペーサー層に用いることを試みた。Cu₃Al は高温相であるがスパッタ膜としては作成できる可能性がある。

実験

磁性層としてはホイスラー合金 Co₂Fe(Ga_{0.5}Ge_{0.5}) (CFGG)を用いた。擬スピンバルブ型 CPPGMR 素子作製のため、MgO(001)単結晶基板上に sub/Cr(10)/Ag(100)/CFGG(10)/CuZn or Cu₃Al(5)/CFGG(10)/Ag(5)Ru(8)、括弧内は膜厚(nm)、の積層構造でマグネトロンスパッタにより成膜した。製膜後にアニールを行い、微細加工により CPP 型素子を作成した。

結果

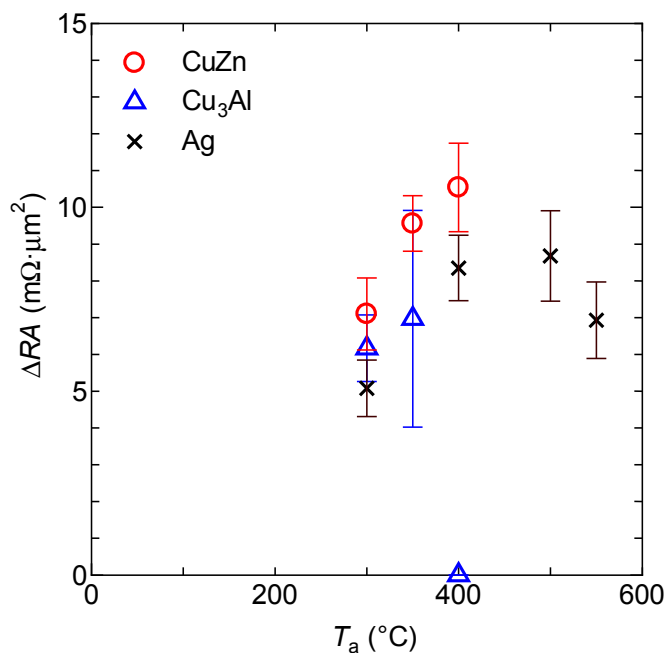
X線回折の結果、MR測定用試料と同様の基板と下地層を用いてCFGG上に作成した20nm厚のCuZnは(001)方位にエピタキシャル成長したB2構造をとることがわかった。Cu₃Alは(001)方位のエピタキシャル成長が確認されたが、D0₃規則構造を示す回折線は見られず、A2不規則構造であると考えられる。

図に室温で測定した抵抗変化×素子面積 (ΔRA) をアニール温度 T_a に対して示した。比較のため Ag スペーサーを用いた同じ強磁性層、膜厚の素子の結果 [3] も示しているが、比較的低い T_a で Cu 基合金を用いた方が明らかに高い ΔRA が得られている。Ag スペーサーの場合に比べ界面散乱のスピン非対称性が增强されることにより MR が増大していると考えられる。

本研究は JSPJ 科研費 2224609、25249087 の助成を受けたものである。

参考文献

- [1] K. Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 222501 (2009).
[2] N. Hase *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 440 (2011).
[3] H.S. Goripati *et al.* J. Appl.Phys. **113**, 043901 (2013).



Crystal orientation dependence of band matching in CPP-GMR pseudo spin-valves with $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ge}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})$ Heusler alloy and NiAl spacer

Jiamin CHEN^{1,2}, T. Furubayashi², Y. K. Takahashi², and K. Hono^{2,1}

¹University of Tsukuba, ²National Institute for Materials Science

According to the Valet–Fert model¹, the MR ratio depends not only upon the bulk spin polarization and the resistivity of ferromagnetic (FM) layers, but also upon the interfacial spin asymmetry that is a function of the lattice and band matching at the FM/non-magnetic metal (NM) interfaces². It is highly relevant, therefore, to study whether or not the crystal orientation relationship between the Heusler layers and a spacer layer affects the interfacial spin scattering asymmetries or MR outputs. In our previous study of (001) and (110) epitaxial CPP-GMR devices, we found the change of crystal orientation in $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ (CFGG)/Ag system had introduced a different lattice mismatch at CFGG/Ag interface resulting in various MR outputs. The influence of lattice matching on the interfacial spin scattering asymmetry is considered to be the main reason for the ΔRA value difference³. However, how the band matching changes according to different crystal orientation is still unclear to us, because both lattice matching and band matching change when we alter the crystal orientation in CFGG/Ag system. To focus only on the band matching influence, we prepared CPP-GMR PSVs consisting of CFGG and B2 NiAl alloy for a spacer⁴. This combination is free of lattice matching influence depending on the crystal orientation because both alloys have the same bcc structure. The effects of the crystal orientation on band matching were examined by comparing with the devices' MR output in (001) and (110) orientations.

Pseudo spin valves (PSVs) in (110) orientation with the layer structure of sapphire/Ta(20)/W(100)/NiAl(10)/CFGG(10)/NiAl(2,5)/CFGG(10)/NiAl(5)/Ru(8) and (001) orientation with structure of MgO(001)/Cr10/Ag(100)/NiAl(10)/CFGG(10)/NiAl(2,5)/CFGG(10)/NiAl(5)/Ru(8) (unit: nm) were fabricated using an ultrahigh vacuum magnetron sputtering machine. The films were annealed at temperatures ranging from 300 to 600 °C after the deposition. The microstructure was characterized by XRD, HADDF-STEM and EDS mapping.

Figure 1 summarizes ΔRA against the annealing temperature T_a . At the T_a of 300 and 600 °C, Both (110) orientation and (001) orientation devices show similar ΔRA values. When the spacer thickness reduces from 5nm to 2nm, the MR outputs improve slightly. These results suggest that there is no or very small orientation dependence of band matching on MR output.

Figure 2 shows the plot of the saturation magnetization/unit film area (M_s/A) value as a function of t_F . The intercept of the t_F vs. M_s/A plot represents the thickness of the magnetic dead layer at CFGG/NiAl interface. Both films in two different orientations show negligibly small dead layer thickness, which indicates a good lattice matching between the CFGG and NiAl layers. This result proves that the films are comparable and free of lattice matching influence on MR output.

This work was partly supported by JSPS Grant-in-Aid for Scientific Research (A) 22246091 and (A) 25249087.

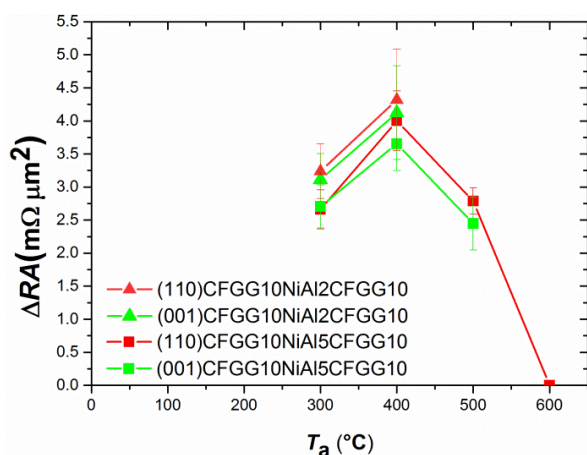


Fig.1 Annealing temperature dependence of ΔRA of the film stack in (110) and (100) orientation with NiAl spacer.

[1] Valet and A. Fert, Phys. Rev. B **48**, 7099 (1993).

[2] K. Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 222501 (2009).

[3] J. Chen *et al.*, J. Appl. Phys. in press.

[4] N. Hase *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 440 (2011).

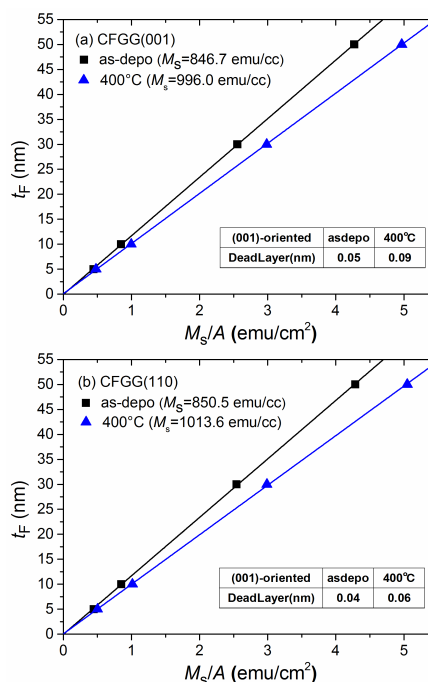


Fig.2 Plots of M_s/A versus CFGG layer thickness (t_F) (a) in a (001)-oriented CFGG film and (b) in a (110)-oriented CFGG film.

CPP-GMR pseudo spin-valves using ferromagnetic Heusler layer $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$ and nonmagnetic Heusler spacer Cu_2CrAl

Y. Du^{1,2}, T. Furubayashi², Y. K. Takahashi², Y. Sakuraba², K. Hono^{2,1}

¹Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

²National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

The current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices utilizing Co-based full Heusler alloys in the past few years have drawn much attention due to their potential application in the read sensors of ultrahigh density hard disk drives. Recent studies by Li *et al* and Sakuraba *et al* have demonstrated large MR ratio of over 50% and resistance change-area (ΔRA) product of $\sim 12 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$ by depositing epitaxial CPP-GMR film stacks on MgO (001) single-crystalline substrates. In these works, Ag was adopted as the spacer layer. On the other hand, other spacer materials have been proposed theoretically and experimentally. Nikolaev *et al* realized the all-Heusler CPP-GMR devices with ferromagnetic Co_2MnGe (CMG) and nonmagnetic Rh_2CuSn (RCS) Heusler films. Desirable band matching for the majority spins of CMG and RCS was proved by band calculations and finally the ΔRA of $4 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$ was achieved. Another work by Ko *et al* demonstrated the possible usage of Heusler spacer Cu_2CrAl (CCA) for the CPP-GMR devices, yet no experimental work was done. In this work we investigated the CPP-GMR properties of pseudo spin-valves using ferromagnetic Heusler layer $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$ (CFGG) and nonmagnetic Heusler spacer CCA.

Thin film of Cr(10)/Ag(100)/CFGG(15)/CCA(20)/Ag(5)/Ru(8) was sputter-deposited on MgO(001) substrates and annealed from 300°C to 400°C. The CCA films with different compositions were investigated by using different sputtering targets. The structural properties were examined by XRD, HAADF-STEM and EDS mapping. For the CPP-GMR properties, film stack of Cr(10)/Ag(100)/CFGG(5)/CCA(t_N)/CFGG(5)/Ag(5)/Ru(8) was deposited and annealed at 300°C before the microfabrication. Four-probe measurement was performed for transport properties.

For CCA thin films with the composition of $\text{Cu}_2\text{Cr}_{0.72}\text{Al}$, as shown in Figure 1, CCA (002) peak that indicates B2 ordering appears when annealed above 300°C. Better $L2_1$ ordering is observed when performing the Phi scan for the films. CPP-GMR devices with 10 nm CFGG and 5 nm CCA demonstrated MR ratio of 4-5%. On the other hand, when increasing the Cr content in the $\text{Cu}_2\text{Cr}_x\text{Al}$ films from $x=0.72$ to $x=1$, the MR ratio decreases dramatically, and this indicates that excess Cr is detrimental to improve the MR output. Finally, in Figure 2 we summarized the MR ratio as a function of the CCA thickness (t_N varies from 2.8-5.0 nm), possible interlayer exchange coupling in the elliptical CPP-GMR devices may explain the MR oscillation.

Reference

- 1) Li *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 042405
- 2) Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101** (2012) 252408
- 3) Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94** (2009) 222501
- 4) Ko *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95** (2009) 202502

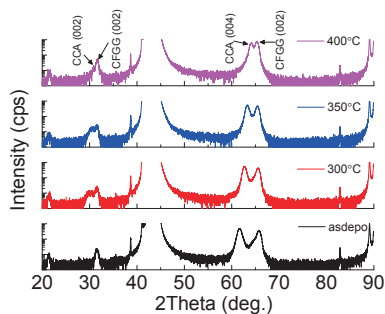


Figure 1 XRD profiles for film stack of MgO/Cr10/Ag100/CFGG15/CCA20/Ag5/Ru8. (units in nm)

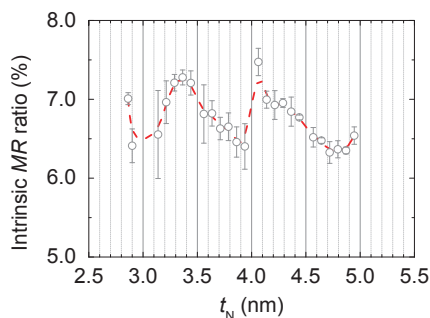


Figure 2 MR ratio as a function of CCA spacer thickness.

Co₂(Fe,Mn)Si 合金を用いた高出力スピントルク発振素子

関剛斎、桜庭裕弥[†]、荒井礼子*、今村裕志*、高梨弘毅
(東北大金研、*産総研ナノスピントロニクス、[†]現: 物材機構)

High power spin torque oscillator using a Co₂(Fe,Mn)Si alloy

T. Seki, Y. Sakuraba[†], H. Arai*, H. Imamura* and K. Takanashi
(IMR, Tohoku Univ., *AIST, [†]Present affiliation: NIMS)

はじめに

ナノサイズの巨大磁気抵抗(GMR)素子あるいは磁気トンネル接合(MTJ)素子では、直流電流(I_{dc})と外部磁場(H)を調整することでスピントルクとダンピングトルクが拮抗した状態を実現でき、磁化が定常的な歳差運動を示す。この現象はスピントルク発振と呼ばれ、歳差運動に起因して素子抵抗が時間的に振動するため、素子端に高周波電圧(V_H)が発生する。スピントルク発振素子は、ナノ素子単体で構成され、発振周波数が磁場や電流によって可変であるという特徴から、チップ間通信用素子、レーダー、あるいは小型マイクロ波発生源などへの応用が検討されている。しかしながら、応用に向けて解決すべき課題があり、発振出力の増大と発振純度(Q 値)の向上が重要な課題である。発振出力は磁気抵抗(MR)比の 2 乗に比例するため、大きな MR 比が得られる MTJ 素子をベースとしたスピントルク発振素子が研究開発の主流となっている[1]。しかしながら、MTJ 素子は高電圧印加によるトンネルバリアにおける絶縁破壊が懸念され、加えて GMR 素子と比較して Q 値の向上が難しい。

そこで、我々は GMR 素子をベースとしたスピントルク発振素子において、発振出力の向上などの特性改善を試みてきた。ホイスラー合金の一部は 100%のスピン分極率が理論予測されるハーフメタルと呼ばれる物質群であり、大きな GMR 効果を期待できる。これまでに、Co₂MnSi (CMS)ホイスラー合金を GMR 素子の強磁性層に用いることにより、室温で 36.4%の MR 比を報告し[2]、GMR 素子においても高い発振出力を得ることに成功した[3,4]。本研究では、出力の更なる増大を目指し、CMS よりも大きな GMR 効果を示す Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si (CFMS)ホイスラー合金[5]を用いて、様々な外部磁場方位においてスピントルク発振特性を系統的に評価した。

実験

超高真空対応マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(100)単結晶基板上に薄膜試料を作製した。薄膜の積層構造は、MgO 基板 || Cr (20 nm) | Ag (40 nm) | CFMS (20 nm) | Ag (5 nm) | CFMS (3 nm) | Ag (2 nm) | Au (5 nm)であり、CFMS 層は室温で成膜後 500 °C でアニールすることにより L₂₁構造への規則化を促進した。作製した薄膜を、100 nm × 170 nm サイズのピラーへと微細加工した。2 端子法により MR 曲線を測定したところ、30 %の MR 比が得られた。さらに、電極抵抗などの寄生抵抗を差し引くと、MR 比は 48%となった。

図 1 に $I_{dc} = 3$ mA を印加した時の高周波スペクトルを示す。 $H = 3$ kOe を素子の面垂直方向に印加した場合、9.5 GHz に線幅の狭い発振ピークが観測された。面内磁場における測定結果と比較すると、発振出力および Q 値を向上の観点から、垂直磁場が有効であることが確認された。さらに測定条件の最適化により、出力が 23.7 nW、Q 値が 1124 の発振が観測された。講演時にはマイクロマグネティクスの計算結果をもとに、励起されている発振モードについても議論する。

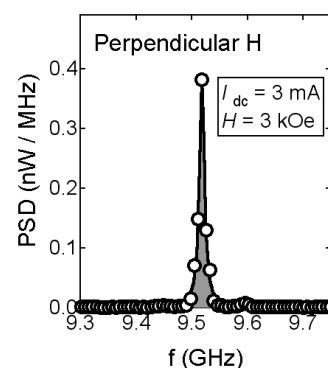


Fig. 1 Power spectral density (PSD) for the device with the GMR stack of CFMS / Ag / CFMS.

本研究の一部は、「先端スピントロニクス材料と伝導現象(ASPIMATT)」の支援を受けて遂行された。また、植田正輝氏、大倉遼氏にはサンプル作製および測定に関してご協力頂いた。

参考文献

- [1] H. Maehara *et al.*, *Appl. Phys. Exp.*, **6**, 113005 (2013). [2] Y. Sakuraba *et al.*, *Phys. Rev. B*, **82**, 094444 (2010). [3] R. Okura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 052510 (2011). [4] T. Seki *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **113**, 033907 (2013). [5] Y. Sakuraba *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 252408 (2012).

垂直磁化 Ta/CoFeB/MgO フリー層を用いた

3 端子磁壁移動型 MRAM の動作原理

谷川博信、鈴木哲広、末光克巳、大嶋則和、北村卓也、大河内拓雄*、小嗣真人*、木下豊彦*、
 小山知弘**、千葉大地**、吉村瑤子***、上田浩平***、小野輝男***、苅屋田英嗣
 (ルネサスセミコンダクタマニュファクチャリング、*JASRI、**東京大、***京都大)

Operating principle of a three-terminal domain wall device
 with perpendicularly magnetized Ta/CoFeB/MgO free layer

H. Tanigawa, T. Suzuki, K. Suemitsu, N. Ohshima, T. Kitamura, T. Ohkochi*, M. Kotsugi*, T. Kinoshita*,
 T. Koyama**, D. Chiba**, Y. Yoshimura***, K. Ueda***, T. Ono***, E. Kariyada
 (RSMC, *JASRI, **Tokyo Univ., ***Kyoto Univ.)

はじめに

電流誘起磁化反転現象は、Magnetic random access memory (MRAM)に代表される磁気デバイスの記録書き込み技術として幅広く研究開発が行われている。記録書き込み時と読み出し時の電流経路が異なる3端子構造は、記録読み出し時の誤書き込みが無いという利点がある。本講演では、フリー層に垂直磁気異方性を有する Ta/CoFeB/MgO 積層膜を用いた3端子磁壁移動型 MRAM を試作・評価し、フリー層の磁化反転機構について調べた結果を述べる。

3 端子磁壁移動型 MRAM

Fig. 1 に試作した磁壁移動型 MRAM の概念図と測定配置を示す。磁化の向きが固定されている2つのハード層がフリー層の直下に設置されている。2つのハード層は磁化の向きが互いに反平行な状態であり、ハード層からの漏洩磁場によってフリー層の磁化方向を制御することで、フリー層に単一の磁壁を導入することができる。記録書き込み時には2つのハード層間にパルス電流を印加し、読み出し時にはハード層と MTJ 層の間に電流を印加して MTJ 抵抗値を検出する。フリー層線幅 130 nm において、書き込み電流値 0.16 mA の低電流書き込み、および MR 比 80% の良好な読み出し特性を得ている¹⁾。しかしながら、ハード層境界に導入された磁壁が電流駆動していると仮定すると、その方向は電流と同方向であることになる。上記の磁壁移動方向は、報告されている CoFeB フリー層の磁壁移動方向と逆である²⁾。フリー層の磁化反転機構を調べるため、フリー層のみの場合の磁壁電流駆動現象を電氣的検出および磁区観察、および3端子素子の電流-抵抗特性におけるハード層磁化方向依存性を調べた。その結果、電流印加による磁壁生成とその磁壁の駆動によってフリー層の磁化反転が完了していることが明らかとなった³⁾。

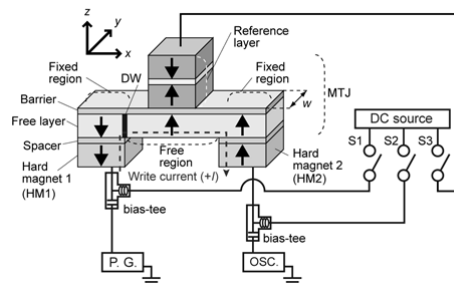


Fig. 1 Schematic illustration of the three-terminal DW device and experimental setup.

参考文献

- 1) T. Suzuki *et al.*, Symp. VLSI Technology Dig. Tech. Pap., 2013, p. 138.
- 2) S. Fukami *et al.*, Appl. Phys. Lett. **98**, 082504 (2011).
- 3) H. Tanigawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 063001 (2014).

MTJを一括加工した磁壁移動型 MRAM の電流書き込み特性

末光克巳、鈴木哲広、谷川博信、北村卓也、苅屋田英嗣
(ルネサスセミコンダクタマニュファクチャリング)

Writing properties of domain wall MRAM devices using one step etching process for MTJ films
K. Suemitsu, T. Suzuki, H. Tanigawa, T. Kitamura, E. Kariyada
(RSMC)

はじめに

垂直磁化を用いた磁壁移動型 MRAM 素子として、MTJ を磁化自由層と参照層で 2 回加工する構造が提案されている¹⁾。しかし、素子の微細化や工程数の削減のためには、MTJ を一括加工することが望ましい。Fig. 1 にその構造の一例を示すが、MTJ が磁化固定層(HL1 および HL2)の一部を覆うことで、磁化自由層(FL)に磁化固定領域ができるため、電流による磁壁移動動作が可能となる。MTJ 長が短いほど FL の磁化固定領域が狭く、電流書き込み時の MR 比が大きくなる一方で、磁化固定領域が安定に存在せず、電流動作がしにくくなるという懸念がある。そこで MTJ 長を変えたときの、MR 比および電流動作の可否についての評価を行った。

実験方法

Fig. 1 に示す磁壁移動型 MRAM 素子は、FL に垂直磁化 CoFeB、トンネルバリア(TB)に MgO、参照層(RL)に CoFeB と Co/Pt 多層膜の積層膜を用いた。また 2 つの磁化固定層(HL1 および HL2)は、共に Co/Pt 多層膜から構成されるが、保磁力に差をつけ外部磁界によりそれらの磁化方向を反平行にした。MTJ はメタノールエッチングにより一括加工されるが、HL1 および HL2 の上にエッチングストップとして Ta CAP を設け、HL が加工されることを防いだ。また設計値として MTJ 長(L_{MTJ})を 400 nm から 700 nm の範囲とし、FL の磁化自由領域の長さ(L_{FR})を 260 nm 一定とした。このとき電流動作時に得られる MR 比を MR_L 、FL の磁化を全反転させて得られる MR 比を MR_H とすると、 MR_L / MR_H は設計上 L_{FR} / L_{MTJ} と等しく 0.65 から 0.37 の値が得られると期待されるが、実際は加工後に寸法が変わるため値は多少変化する。

結果

400 nm から 700 nm の全範囲の L_{MTJ} で電流書き込みが可能であり、また L_{MTJ} が短いほど MR_L / MR_H が高いことが確認された。Fig.2 に L_{MTJ} の設計値を 400 nm とした 1Kbit アレイにおける、電流書き込み時のトンネルバリアの抵抗分布を示す。 MR_L の平均値として 86% が得られ、 MR_L / MR_H の値も 0.88 となり、電流書き込み時の MR 比の低下が 12% 程度と小さいが、電流動作が可能であることが確認された。また MTJ を一括加工することで、ウェハ全面で高い抵抗歩留りが得られることもわかった。

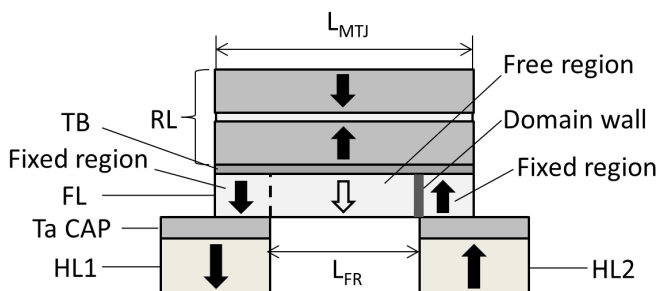


Fig.1 Schematic cross-section of the domain wall device

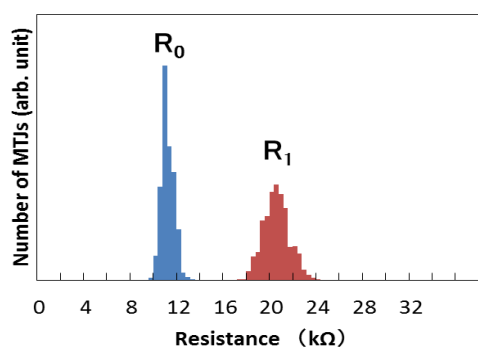


Fig.2 Low- and high-resistance distributions of MTJ cells in 1-Kbit array

参考文献

- 1) S. Fukami *et. al.*, Symp. VLSI Technology Dig. Tech. Pap., 2009, p. 230.

CoPt/Ru/CoPt 参照層を持つ垂直磁化 MTJ の磁気抵抗曲線

福島 章雄、薬師寺 啓、甲野藤 真、久保田 均、今村 裕志、湯浅 新治
(産業技術総合研究所・ナノスピントロニクス研究センター)

MR-loops of perpendicularly magnetized MTJ with CoPt/Ru/CoPt reference layer

A. Fukushima, K. Yakushiji, M. Konoto, H. Kubota, H. Imamura and S. Yuasa
(Spintronics Research Center, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

はじめに

近年、垂直磁化 MTJ は、高密度スピン RAM の候補として注目され、研究開発がすすめられている。我々は低電圧磁化反転を可能とする MTJ として、MgO でキャップされた FeB を磁化自由層、CoPt/Ru/CoPt を磁化参照層とする垂直磁化 MTJ^[1]を開発した。この膜構成による MTJ 素子の磁化曲線について報告する。

実験方法

膜構成は、MgO キャップ / [FeB 1.9 nm (磁化自由層)] / MgO バリア (RA 値 $6 \Omega \mu\text{m}^2$) / [FeB 1.0 nm / Ta 0.2 nm / CoPt 1.3 nm / Ru 0.9 nm / CoPt 2.4 nm (磁化参照層)] であり、微細加工により $120 \text{ nm} \Phi$ の MTJ 素子に加工した。面直方向に $\pm 6000 \text{ Oe}$ の磁界を印加し、磁化曲線を測定した。得られた MR 比は 120% 程度である。

実験結果

この素子において、CoPt/Ru/CoPt 参照層は、 $|H| < 2 \text{ kOe}$ において反強磁性的に結合することが解っている。初めに大きな磁界をかけ、その後小さくしていった場合、磁化自由層に隣接した CoPt 層が先に反転するため、初期状態の磁界方向に応じて、参照層の磁化の向きが up-down あるいは down-up という 2 つの異なる Minor ループを持つというユニークな特徴を持っている。Fig1 に測定した磁化曲線を示す。(a) が Major ループ、(b) は負の磁界方向から、(c) は正の方向から測定した Minor ループである。2 つの Minor ループは異なるシフト磁界を持つことが解る。また、どちらのループに属していても、ゼロ磁場においては、同一の抵抗値を示す。

しかしながら、2 つの Minor ループの反転磁界が異なることを利用し、プローブ磁界 (片方の Minor ループでは反転し、もう片方では反転しない程度の磁界) を与えた前後での抵抗値を読出すことで^[2]で、どちらかのループに属しているかを判断することが可能である。

参考文献

- 1) K. Yakushiji *et al.*, Appl. Phys. Express **6** (2013), 113006.
- 2) R. Zhang *et al.*, IEEE Trans. Mag. **35** (1999), 2829.

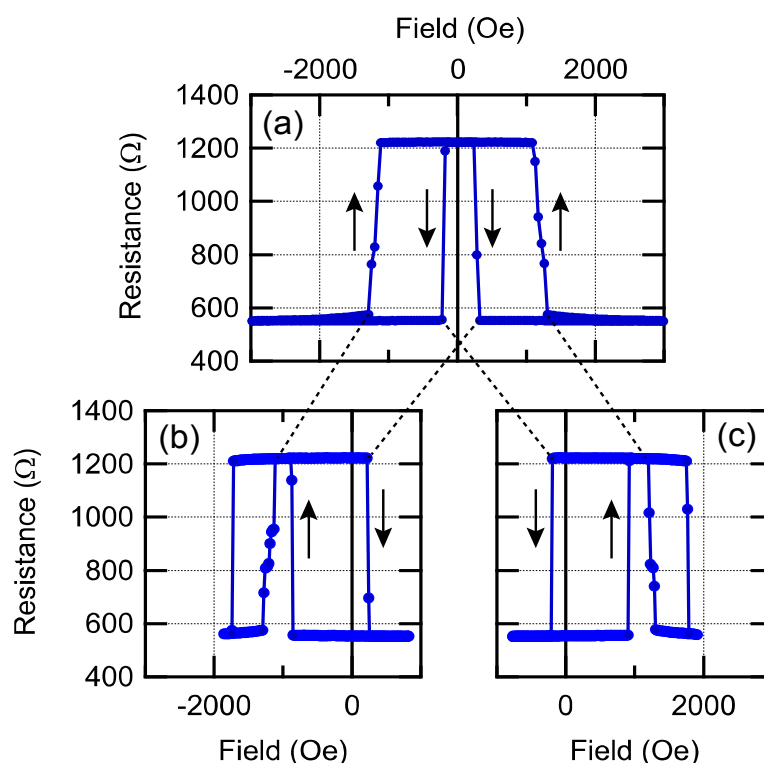


Fig. 1 (a) Major loop and (b, c) minor loops of pMTJ with CoPt/Ru/CoPt reference layer.

ドライアイス処理によるリフトオフを用いた磁気抵抗素子の加工

三宅耕作、角田匡清、佐橋政司

(東北大学大学院工学研究科電子工学専攻)

MR element fabrication with lift-off process by dry ice blaster

Kousaku Miyake, Masakiyo Tsunoda, Masashi Sahashi

(Department of Electronic Engineering, Tohoku University)

目的

スピントロニクスの研究分野において、微細な膜面垂直通電型素子が多く用いられている。記録密度の向上に伴い、ヘッドの微細化や MRAM 素子の微細化が要求され、100 nm 以下の微細なデバイスによる研究が要求されている。CPP 素子のピラーは通常、レジストパターンをマスクとするミリング、絶縁層によるコーティング、超音波洗浄による剥離という工程が用いられることが多く、特にリフトオフの工程に確実性が無いため歩留りを悪化させる。大学等の小規模な研究機関では大規模に加工条件を突き詰めることが困難であり、容易に研究を進めることができない状況である。

断熱膨張によりノズルから生成した微細なドライアイス粒子をピラー型レジストに当てると、柔らかく、微細なレジストピラーは破碎され選択的に剥離される。この工程でリフトオフは容易に達成されるが、素子に対してドライアイス粒子との摩擦による静電気や機械的なダメージなどが懸念される。これらの点について調べるため素子加工を行い、評価を行った。

実験方法

試料は MgO-MTJ からなるスピンバルブである。上下電極はフォトリソグラフィと Ar イオンミリングによって加工した。ネガレジストを用いた電子線リソグラフィとパターンに対するアッシングを用いたスリミング工程によって 100nm 程度のピラーパターンを形成した。ミリングによってピラー加工を行い、RF スパッタによって SiO₂(35nm) をコーティングしたのち、除電用の Cu 6nm を続けて成膜した。この試料に対して、試料表面とホルダ間の導通(50Ω程度)を確保したうえで、ドライアイス粒子(全協化成 ドライアイス処理装置)で処理を行った。処理中は X 線イオナイザーで除電し、雰囲気はイオン化効率の良いドライエアーを用いた。露点は-25°C以下で、処理後に結露などは見られなかった。試料は、処理後に残留レジストを剥離するためリムーバーで洗浄した。また、比較のために、リムーバーを用いて 1 h 程度超音波洗浄のみを行った試料も作成した。

実験結果

図 1 にドライアイス処理工程 A を行って作成した試料と、従来の超音波洗浄のみによるリフトオフ工程 B で作成した試料の磁気抵抗効果の測定結果を示す。両試料を比較して、素子特性に大きな違いは見られず素子に対するダメージは見られなかった。また図 2 に工程 A の剥離後の試料の SEM 像を示す。工程 B では 1 h 程度の超音波洗浄で確率的にリフトオフが行えるが、加工中に熱などのダメージが加わるなどすると剥離が困難となり、実験の再現性が悪い。一方、工程 A では、処理のみで 250nm 以下の素子はほぼ全て剥離できた。しかし、400nm 以上の大きな素子ではほとんど剥離されなかったため、体積の大きなレジストは機械的強度が強くドライアイス粒子が微小な場合は剥離できないことが分かった。ドライアイス処理は、照射する粒子のサイズの制御が重要であると考えられる。しかしながら、微細な素子を作る目的には適しており、有効であることが分かった。

謝辞 本研究の一部は、経済産業省の産学連携イノベーション促進事業により助成されたものです。

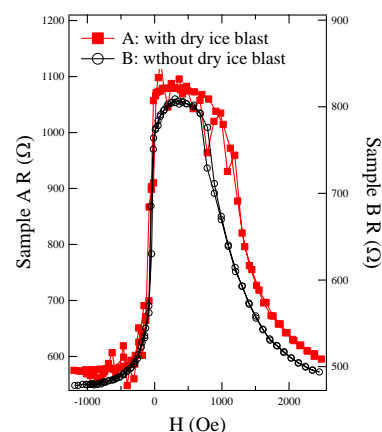


図 1. 作製した素子の MR 曲線 A:ドライアイス処理、B:超音波洗浄のみ。

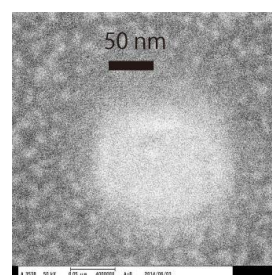


図 2 剥離後の試料の SEM 像

ホイスラー合金 Co_2FeAl とスピネル Mg-Al-O バリアを用いた格子整合強磁性トンネル接合

介川裕章¹、T. Scheike^{1,2}、古林孝夫¹、Z. C. Wen¹、猪俣浩一郎¹、三谷誠司^{1,2}
(¹ 物材機構、² 筑波大)

Lattice-matched magnetic tunnel junctions using Heusler alloy Co_2FeAl and spinel Mg-Al-O barrier
H. Sukegawa,¹ T. Scheike,^{1,2} T. Furubayashi,¹ Z. C. Wen,¹ K. Inomata,¹ S. Mitani^{1,2}
(¹NIMS, ²Univ. Tsukuba)

はじめに

Co 基ホイスラー合金 (Co_2XY 型、 X は遷移金属、 Y は主に典型元素) は高いスピン偏極率、高いキュリー温度を有するため、これを用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) では巨大なトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が期待されるため盛んに研究がなされてきた。コヒーレントトンネル効果による TMR 増大効果を示す MgO がホイスラー-MTJ のバリアとして用いられるようになり、近年巨大な TMR 比が報告されるようになった。特に $\text{Co}_2\text{MnSi/MgO/CoFe}$ 構造を有する MTJ において 2000% もの極めて大きな TMR 比が低温で報告されている¹⁾。その一方、ホイスラー-MTJ の室温における TMR 比は CoFeB/MgO/CoFeB 系 MTJ の最大値に比べまだ小さく、その向上が求められている。一般的に MgO と Co 基ホイスラー合金との格子不整合は数% と無視できない程度に大きく、 MgO 界面近傍に多数の欠陥が導入²⁾されることによりハーフメタル特性を引き出すことが容易ではない。また、ホイスラー合金の表面は活性であるため、酸化物バリア形成時に容易に酸化されやすく、バリア層との界面を理想的に保つことが必要となる。これらの問題の解決を目指して、本研究では格子定数が MgO よりも小さいスピネル系トンネルバリア (Mg-Al-O)³⁾を用いて高品質な格子整合ホイスラー-MTJ の作製を行った。ホイスラー合金には、 Co_2FeAl (CFA)⁴⁾を用い、 Mg-Al-O 層と CFA 層間に CoFe 層を挿入することでバリア界面の構造の調整も図った。

実験方法

MTJ 多層膜は、マグネトロンスパッタ装置を用いて $\text{MgO}(001)$ 単結晶基板上に $\text{Cr/Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 層をバッファーとして、 $\text{CFA}(5\text{ nm})/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ 挿入層 (d_{CoFe}) / $\text{Mg-Al-O/Co}_{50}\text{Fe}_{50}(5\text{ nm})/\text{IrMn}$ 構造を作製した。CFA 層は Co-Fe-Al の合金ターゲットから成膜を行った。また、 Mg-Al-O バリア層は Mg/Mg-Al 合金の 2 層膜をプラズマ酸化することにより得た³⁾。作製した MTJ 多層膜は適宜磁場中熱処理を行い、TMR 比及び面積抵抗 RA の評価には面内電流トンネル (CIPT) 法および、素子微細加工後に直流 4 端子法を用いて行った。

実験結果

バリア層作製条件、ポストアニール条件を最適化することにより、(001) 方位にエピタキシャル成長した $\text{CFA}(\text{CoFe})/\text{Mg-Al-O/CoFe}$ 構造の MTJ 素子の作製に成功した。CFA は X 線回折から $B2$ 構造を有していることがわかった。 CFA/MgO/CoFe ($d_{\text{CoFe}} = 0\text{ nm}$) 構造において、室温で約 230% の比較的大きな TMR 比が得られた。これは CFA の持つ高いスピン分極率に加え、 Mg-Al-O バリアのコヒーレントトンネル効果が有効に働いているためであると考えられる。 CoFe 層を挿入することで TMR 比の向上がみられ、 $d_{\text{CoFe}} = 1\text{ nm}$ において最大の室温 TMR 比 : 281% が得られた。その一方で RA は d_{CoFe} の増大とともに減少し、バリア層作製時の酸化による CFA 表面へのダメージが CoFe 層挿入により低減されている可能性が示唆される。MTJ 構造最適化により今後さらなる TMR 特性の向上が期待できる。

参考文献

- 1) H. Liu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 132418 (2012).
- 2) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 184418 (2009).
- 3) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012); Appl. Phys. Lett. **103**, 142409 (2013).
- 4) W. H. Wang *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95**, 182502 (2009); Phys. Rev. B **82**, 092402 (2010).

(Fe,Co)₄N 薄膜を用いた強磁性トンネル接合の作製

鹿原 和樹, 角田 匡清
(東北大学)

Fabrication of magnetic tunnel junctions with (Fe,Co)₄N films

Kazuki Kabara and Masakiyo Tsunoda

(Tohoku Univ.)

はじめに

γ -Fe₄N/MgO/CoFeB の積層構造を有する強磁性トンネル接合(MTJ)において、Fe₄N の負のスピンの分極[1]を反映したインバーストンネル磁気抵抗効果が報告されている[2]。また、Takahashi らの理論計算[3]によれば、Fe₄N の面心位置の Fe を Co に置換した FeCo₃N はフェルミ面で多数スピンの状態密度(DOS)が無く、ハーフメタリックであると報告している。さらに、我々は異方性磁気抵抗効果の測定から(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜がハーフメタルである可能性を既に報告している[4]。そこで本研究では同薄膜を強磁性層に用いた MTJ の形成を試みた。

実験方法

Bare Si 基板上に Cu(5nm)/Fe-N(10)/Cu(50)/下部強磁性層/MgO(1.5)/Co_{0.75}Fe_{0.25}(4)/MnIr(5)/Ru(7)の MTJ を作製した。下部強磁性層は(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N および Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N とし、Ar+30%N₂ の混合ガスを用いた反応性 DC マグネトロンスパッタ法で作製し、堆積直後に赤外線(IR)加熱処理を施した。作製した薄膜の結晶構造解析には X 線回折法(XRD)を、また TMR 特性評価には CIPT を用いた。

実験結果

MTJ の作製に先立ち(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜の加熱耐性について検討した。Fig.1 に MgO 基板上、Cu 下地層上、Fe₄N 強磁性層上それぞれに作製し、300°C で IR 加熱処理を施した 10nm 厚の(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜の in-plane XRD プロファイルを示す。MgO 基板上の試料では、bcc CoFe の回折線が確認できることから(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 相が熱分解してしまっていることがわかる。別途行った実験から MgO 基板上の(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 薄膜の IR 加熱耐性温度は 120°C であることが判った。一方で Cu 下地層上および Fe₄N 強磁性層上の試料では、Cu と(Fe,Co)₄N の回折線のみが確認できることから、(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 相が保たれていることが確認される。このことは、下地との格子ミスフィットを小さくすることにより(Fe,Co)₄N 薄膜の加熱耐性温度が向上することを意味している。

Fig.2 は(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N および Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 下部強磁性層を用いた MTJ の後加熱処理温度に対する TMR 比をプロットしたものである。両 MTJ で Fe₄N 基 MTJ と同様にインバース TMR 効果が得られた。(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ と比較して、Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ では高い TMR 比が得られている。また、(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ では 320°C 以上で TMR 比が急激に低下しているが、Fe₄N/(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 基 MTJ では 370°C でも -30% 以上の TMR 比を維持できている。このことは格子ミスフィットが Cu 下地層よりさらに小さい Fe₄N 下地層を用いることで(Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N 層の加熱耐性温度が向上したことによるものと考えられる。

参考文献

- 1) S.Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73** (2006) 172410
- 2) Y.Komasaki, *et al.*, J. Appl. Phys. **105** (2009) 07C928
- 3) Y.Takahashi, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **323** (2011) 2941
- 4) 角田 匡清 他, 第 37 回日本磁気学会講演概要集, 5aC-10 (2013)

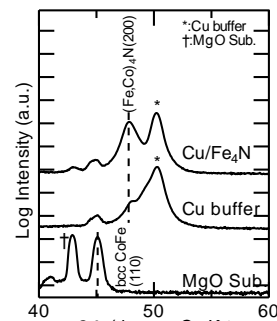


Fig.1 In-plane XRD profile for (Fe_{0.25}Co_{0.75})₄N layer.

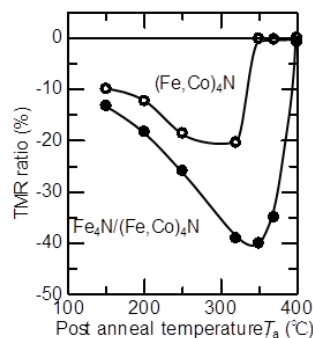


Fig.2 Dependence of TMR ratio against post anneal temperature.

極薄 Fe 酸化物層挿入による MgO 上 Fe 層成長の濡れ性改善効果

野崎隆行^{1,4}, 大久保忠勝², 塩田陽一^{3,4}, 久保田均^{1,4}, 福島章雄^{1,4}, 宝野和博², 鈴木義茂^{3,4}, 湯浅新治^{1,4}

1. 産総研 ナノスピントロニクス研究センター 2. 物材機構, 3. 阪大基礎工, 4. CREST-JST

Improvement in the wettability of an Fe layer grown on MgO by insertion of an ultrathin Fe oxide layer

T. Nozaki^{1,4}, T. Okubo², Y. Shiota^{3,4}, H. Kubota^{1,4}, A. Fukushima^{1,4}, K. Hono², Y. Suzuki^{3,4} and S. Yuasa^{1,4}

1. AIST, Spintronics Research Center, 2. NIMS, 3. Osaka Univ. 4. CREST-JST

はじめに

トンネル磁気抵抗素子における磁気記録(フリー)層の薄膜化は低駆動電力化における1つの指針である。スピン注入磁化反転の臨界電流低減だけでなく、最近では電圧による磁気異方性制御技術などへの展開においても重要性が高まっている。しかしながら、Feに代表される3d遷移金属強磁性体は、通常酸化マグネシウム(MgO)と比較して大きな表面エネルギーを有するため、Fe上のMgO層は平坦な成長が可能であるが、MgO上のFeは島状成長が促進され、1nm前後の超薄膜領域での高品質薄膜形成が困難となる。この問題は上部フリー層型のトンネル磁気抵抗素子を作製する際の弊害となる。

本発表では、MgO/Fe積層の界面に極薄のFe酸化物層を挿入することで見出された、MgO上極薄Fe層成長の濡れ性、および磁気特性改善効果について報告する。

実験方法および結果

分子線エピタキシー装置を用いてMgO(001)基板の上にCr(or Fe)/MgO(2 nm)/Fe-oxide(*t*)/Fe(0.8 nm)/MgO(2 nm)構造を作製した。Fe-oxideは原子状酸素雰囲気下での金属Fe成長による反応性蒸着法を用い[1]、それ以外の各層は電子線蒸着により作製した。図1に(a) Fe-oxide層無し、および(b) *t*=0.3 nmの場合の中間Fe層のRHEED像(挿図)、および暗視野-STEM(Scanning Transmission Electron Microscope)による断面像を示す。黒い領域がMgO層、その間に挟まれた白い領域が超薄膜Fe層である。MgO上に直接Fe層を成長させた場合、島状成長を示唆するスポット状のRHEED像が観察され、STEM像においてもその様子が確認された。一方で極薄のFe-oxide層を挿入した場合、1nm以下の超薄膜にも関わらずストリーク状のRHEEDパターンが観察され、STEM像においても非常に平坦なFe層が形成されていることが分かった。

さらに、Fe膜厚を0.4~1.5nmの領域で変化させて磁気特性を系統的に調べた結果、MgO上への成長の場合は1nmにおいて超常磁性を示唆する磁化曲線となったのに対し、極薄Fe-oxide層を挿入した場合は0.6nmまで薄膜化した場合でも角型のヒステリシスが観察され、磁気特性の改善にも有効であることが分かった[2]。

参考文献

[1] T. Nozaki *et al.* Appl. Phys. Exp. **6**, 053005 (2013)

[2] T. Nozaki *et al.* Appl. Phys. Exp. **6**, 113004 (2013)

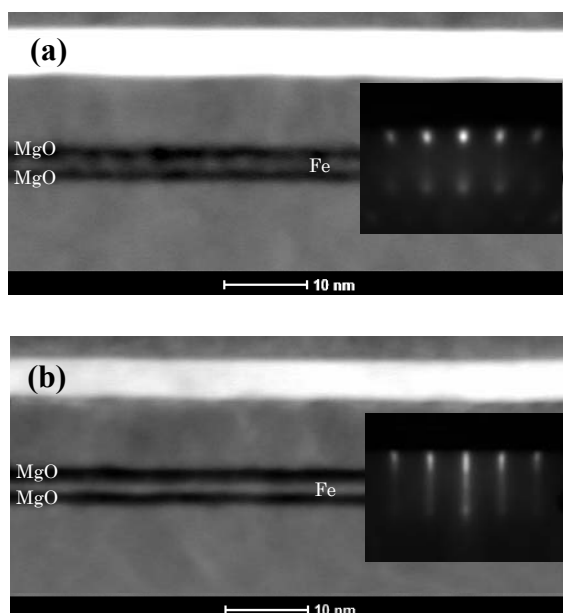


図1 (a) Fe-oxide層挿入無し、および(b) Fe-oxide層厚 *t* = 0.3 nmの場合の暗視野STEM像。MgO層(黒領域)に挟まれた超薄膜Fe層の設計膜厚は0.8 nmである。挿図は各構造における中間Fe層のRHEED像を示す。