ゲルマニウム中の電子スピン伝導とスピン緩和

藤田裕一¹,山田道洋¹,塚原誠人¹,山田晋也^{1,2},澤野憲太郎³,<u>浜屋宏平^{1,2}</u> (¹阪大基礎工,²阪大基礎エスピントロニクスセンター,³東京都市大総研)

Spin transport and relaxation in *n*-Ge

Y. Fujita¹, M. Yamada¹, M. Tsukahara¹, S. Yamada^{1,2}, K. Sawano³, K. Hamaya^{1,2}

(¹Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., ²Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., ³Advanced Research Laboratories, Tokyo City Univ.)

【はじめに】

シリコン(Si) CMOS 技術における微細化の限界が訪れようとする中,トランジスタのチャネル 材料をゲルマニウム(Ge)へ置き換えようとする潮流がある[1]. これまで我々は Ge-CMOS の到来に 整合するスピントロニクス技術の開発を行ってきた[2].本研究では,Geへのスピン注入技術とス ピン伝導の観測から,Ge中で生じる電子スピンの緩和現象までを議論する[3-5].

【実験手法】

MBE 法を用いて Si 基板上に作製した Ge 層(n~10¹⁸cm⁻³)上にリン(P)のデルタドーピング層を介 して Co₂FeAl_{0.5}Si_{0.5} (CFAS)薄膜を作製し, Fig.1(a)にあるような横型スピンバルブ素子へと微細加工 した. スピン伝導測定には非局所 4 端子測定[直流電流(-1 mA)]を用いた.

【実験結果】

Fig.1(b)には代表的な非局所 Hanle 効果の測定結果を示す. CFAS の磁化配置(平行・反平行)に対応した明瞭な信号が観測されている. この測定を様々な温度で行い,一次元拡散モデルで解析した結果得られたスピン寿命(τ)の温度依存性を Fig.1(c)に示す. 100 K 付近から温度依存性を示す特徴的な挙動を示したが,この挙動は最近提案された不純物誘起の谷間散乱[3,4,6]とフォノン誘起の谷間散乱[7]をベースとしたシンプルな理論で説明できることが明らかとなった[5]. 残念ながら Hanle効果は 250 K までしか観測されなかったが,今回の結果で Ge 中の電子スピンの緩和機構が解明されたため,今後,室温付近でスピン信号を得るための鍵となる技術開発への指針がたったと言える.

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・ 新学術領域研究ナノスピン変換(No. (26103003)の補助を受けた.

<u>参考文献</u>

- H. Wu et al., 2014 International Electron Devices Meeting (IEDM).
- K. Hamaya et al., Phys. Rev. Lett. 102, 137204 (2009); K. Kasahara et al., Appl. Phys. Express 7, 033002 (2014).
- 3) Y. Fujita et al., Phys. Rev. B 94, 245302 (2016).
- M. Yamada et al., Phys. Rev. B 95, 161304(R) (2017).
- 5) Y. Fujita et al., Phys. Rev. Applied (in press).
- Y. Song et al., Phys. Rev. Lett. 113, 167201 (2014).
- 7) P. Li et al., Phys. Rev. B 86, 085202 (2012).



Fig.1. (a) Optical micrograph of a fabricated lateral spin valve. (b) Nonlocal (NL) Hanle effect curves at 77 K. (c) Temperature dependence of the spin lifetime in Ge.

Ag/InZnO/Zn スペーサー層をもつ CPP-GMR スピンバルブの微細構造と磁気抵抗特性

中谷友也、佐々木泰祐、李松田、桜庭裕弥、古林孝夫、宝野和博 (物質・材料研究機構)

Microstructure and magneto-resistive properties of CPP-GMR spin-valves with Ag/InZnO/Zn spacer Tomoya Nakatani, Taisuke Sasaki, Songtian Li, Yuya Sakuraba, Takao Furubayashi, and Kazuhiro Hono (National Institute for Materials Science)

<u>はじめに</u>

電流面直巨大磁気抵抗(CPP-GMR)はトンネル磁気抵抗に比べ、面積抵抗(RA)が1桁以上小 さく、ハードディスクドライブの再生ヘッドセンサーへの応用が期待される。CPP-GMR 出力の増 大のために、高スピン分極なホイスラー合金を強磁性層に用いるほか、スペーサー層に Ag/InZnO (IZO)/Zn の積層構造を用いることが有効であることが報告されている。[1]しかしながら、スペー サー層を構成する各層の役割はよくわかっていない。本研究では、Ag/IZO/Zn スペーサー層を用い た CPP-GMR 積層膜および素子について、微細構造と磁気抵抗特性の関係について調査した。

<u>実験方法</u>

スパッタリングにより、Cu 電極上に Ta/Ru(2)/IrMn(6)/CoFe(2.8)/Ru(0.8)/CoFe(0.6)/CoFeBTa(0.8) /CMFG(2.5)/CoFe(0.4)/Ag(0.2 or 0.4)/IZO(1.6)/Zn(0.8)/CoFe(0.4)/CMFG(4)/CoFe(1)/Ru(8)(膜厚は nm) の多結晶スピンバルブ構造を作製し、磁場中で 280 °C、3 時間のアニールを行った。CMFG は Co₂(Mn_{0.6}Fe_{0.4})Ge ホイスラー合金である。直径 100 nm および 200 nm の円形素子に微細加工し、室 温での磁気抵抗特性を4 端子法により測定した。スピンバルブ薄膜の微細構造を走査透過電子顕微 鏡(STEM)およびエネルギー分散型X線分光(EDS)によって解析した。

<u>結果</u>

図1に CPP-GMR 素子の面積抵抗 (*RA*) と磁気抵抗比 ($\Delta R/R$) を示す。比較として、Ag₉₀Sn₁₀(4 nm)スペーサー層の CPP-GMR 素子では *RA* ~ 65 mΩ µm², $\Delta R/R = 9\%$ であった。一方、Ag/IZO/Zn スペーサー層を用いることで、*RA* を 70–120 mΩ µm²、 $\Delta R/R$ を 15%以上に増大することができる。Ag 挿入層が厚いほど *RA* が小さくなる傾向がある。積層膜構造と成膜プロセスを改善することで、 $\Delta R/R$ を 30%まで増大させることができた (図1(b), (c))。これは、*RA* と $\Delta R/R$ の点では 2 Tbit/in²の磁気記録密度に対応する再生ヘッドセンサーの要求性能を満足している。[2]

図 2(a)-(c)に、EDS による In, Zn, Ag の分布を示 す。In と Zn は同一の位置に存在していることから IZO 上に別に成膜された Zn は IZO 中に拡散し、一体 の IZO を形成すると考えられる。一方、Ag は IZO ス ペーサー中に不均一に分布している(図 2(c))。今回 の STEM による解析では、Ag は fcc-Ag として IZO



図 1 (a) Ag/IZO/Zn スペーサー素子の RA と ΔR/R の分布。(b), (c) 膜構造と成膜プロセスの改善後の MR 曲線。スペーサー層は Ag₉₀Sn₁₀/IZO。



図 2 Ag(0.4)/IZO(1.6)/Zn(0.8)スペーサー層の CPP-GMR 素子(RA = 70m Ω µm², Δ R/R = 17%)における In, Zn, Ag の分布。

マトリックス中に析出しているのか、それとも IZO 中に固溶しているのかは結論できないものの、 面直電流は Ag 濃度の高い部分を選択的に流れることが予想される。すなわち、Current-confined-path 的な不均一な電流分布が、 $RA \ge \Delta R/R$ の増大の起源であると考えられる。

参考文献 [1] Nakatani et al. APEX 8, 093003 (2015). [2] Takagishi et al. IEEE Trans. Magn. 46, 2086 (2010).

Co₂MnSi を用いた電流面直型スピンバルブ素子の磁気抵抗特性に 及ぼす Co₂MnSi 薄膜の Mn 組成の影響

犬伏和海¹, 井上将希², Hu Bing², Moges Kidist², 中田勝之¹, 山本眞史², 植村哲也² (¹TDK 株式会社, ²北海道大学)

Influence of Mn composition in Co₂MnSi films on magnetoresistance characteristics of Co₂MnSi-based current-perpendicular-to-plane spin valves

K. Inubushi¹, M. Inoue², Bing Hu², Kidist Moges², K. Nakada¹, M. Yamamoto², and T. Uemura² (¹TDK Corporation, ²Hokkaido University)

1. はじめに

スピントロニクスデバイスに必須のスピン源として、ハーフメタル系の Co 基ホイスラー合金薄膜が注目 されており、磁気トンネル接合 (MTJ)¹⁴⁾、電流面直型スピンバルブ (CPP-GMR) 素子^{5.6)}、スピン注入素子^{7.8)} などに応用され、広く研究されている.最近、著者の何人かは Co₂MnSi (CMS)、Co₂(Mn, Fe)Si (CMFS)及び Co₂MnGe ホイスラー合金薄膜において、ハーフメタル特性を低下させる Co_{Mn} アンチサイトが、Mn を化学量 論組成よりも過剰に添加することで抑制されることを実証した¹⁴⁾.本研究の目的は、CMS を用いた CPP-GMR 素子の磁気抵抗 (MR)特性に対する非化学量論組成の影響を明らかにすることである.

2. 実験方法

CMS 電極と Ag スペーサを用いた交換バイアス型の CPP-GMR 素子において, CMS 電極における Mn 組成 を系統的に変化させ、その MR 特性を調べた. CPP-GMR 層構造は、各層を超高真空チャンバー中で連続的 に成膜することにより作製した. 作製した層構造は MgO(001) 単結晶基板側から, MgO buffer (10 nm)/Co₅₀Fe₅₀ (CoFe) seed (10)/Ag buffer (100)/CoFe buffer (10)/CMS lower electrode (3)/CoFe (1.1)/Ag spacer (5)/CoFe (1.1)/CMS upper electrode (3)/CoFe (1.1)/IrMn (10)/Ru cap (5) である. なお、MR 比の向上を図るため、Ag spacer と上下 CMS 電極との間の両界面に厚さ 1.1 nm の極薄 CoFe 層を挿入した. CMS 電極は CMS ターゲット及び Mn ターゲットを用いた同時スパッタ法により堆積し、その薄膜組成を Co₂Mn_aSi_{0.82}と表記した時に α = 0.62 か ら α = 1.45 まで変化させた. また、CMS 薄膜の結晶性向上のため、上部 CMS 電極を室温にて堆積後、in-situ で 550°C のアニールを行った. 上記の層構造に対して、EB リソグラフィ、Ar イオンミリングにより微細加 工を行い、CPP-GMR 素子を作製した. 素子の MR 特性を室温において直流 4 端子法により測定した. MR 比 は($R_{AP}-R_P$)/(R_P-R_C) により定義した. ここに $R_{AP}(P)$ は磁化反平行(平行)時の抵抗, R_C は接合面積に依存しな い寄生抵抗成分である.

3. 結果および考察

図1に作製した CMS/CoFe/Ag/CoFe/CMS CPP-GMR 素子の室温での MR 比の Co₂Mn_aSi_{0.82} 電極における Mn 組成 α に対する依存性を示す. α の増加に伴い, MR 特性が Mn-deficient な α = 0.62 に対する 11.1%か ら Mn-rich の α = 1.45 に対する 20.4%まで系統的に増加する事がわかっ た. この結果は, CMS あるいは CMFS を用いた MTJ に対する結果¹⁴ と同様であり, Mn-deficient な組成から Mn-rich の組成に変化させると 共に,系統的に, Co_{Mn} アンチサイトが低減することによって説明でき る.以上,本研究の結果は,CMS の組成を Mn リッチにするアプロー チが, CPP-GMR 素子におけ CMS スピン源のハーフメタル性の向上に, MTJ の場合と同様に非常に有効であることを示している.

- 1) H.-x. Liu et al., Appl. Phys. Lett. **101**, 132418 (2012).
- 2) H.-x. Liu et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 48, 164001 (2015).
- 3) G-f. Li et al., Phys. Rev. B **81**, 134432 (2014).
- 4) K. Moges et al., Phys. Rev. B 93, 134403 (2016).
- 5) J. W. Jung et al., Appl. Phys. Lett. **108**, 102408 (2016).
- 6) S. Li et al., Appl. Phys. Lett. **108**, 122404 (2016).
- 7) Y. Ebina et al., Appl. Phys. Lett. **104**, 172405 (2014).
- 8) T. Uemura et al., Phys. Rev. B **91**, 140410 (R) (2015).



Fig. 1. MR ratios at 290 K for

CMS/CoFe/Ag/CoFe/CMS CPP-GMR devices as a function of Mn composition α in Co₂Mn_{α}Si_{0.82} electrodes.

Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si/L1₂型 Ag₃Mg/Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si 素子における

膜面垂直通電型巨大磁気抵抗効果の強磁性層膜厚依存性

窪田 崇秀^{1,2}、伊奈 幸佑¹、温 振超^{1,2}、高梨 弘毅^{1,2}

(¹東北大 金研,²東北大 スピントロニクス学術連携研究教育センター)

Ferromagnetic layer thickness dependence of current perpendicular-to-plane giant magnetoresistance effect in $Co_2Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si/L1_2$ -type $Ag_3Mg/Co_2F_{0.4}Mn_{0.6}Si$ devices

Takahide Kubota^{1,2}, Yusuke Ina¹, Zhenchao Wen^{1,2}, Koki Takanashi^{1,2}

(¹ IMR, Tohoku Univ., ² CSRN, Tohoku Univ.)

はじめに

膜面垂直通電型の巨大磁気抵抗素子(CPP-GMR素子)は、面積抵抗積(RA値)0.01-0.1 Ωμm²程度の低 抵抗領域において比較的大きな磁気抵抗変化率(MR比)が得られることから、次世代のハードディスクド ライブ用の読み取りヘッドへの応用が期待されている¹⁾。我々のグループは、これまでに高スピン分極材料 である Co₂Fe_{0.4}Mn_{0.6}Si(CFMS)ホイスラー合金を磁性層とし、非磁性中間層にL1₂型のAg₃Mg合金を用いる ことで高出力化が可能であることを示してきた^{2,3)}。Ag₃Mg中間層を用いた素子は、それまで典型的に用いら れていた Ag 中間層と比較して特に面積抵抗変化(ΔRA)が大きいことが確認されているが³⁾、その起源につ いての議論はこれまで十分には行われていない。そこで本研究では CFMS/Ag₃Mg/CFMS CPP-GMR素子にお ける ΔRA の CFMS 層膜厚依存性に Valet-Fert のモデル⁴⁾を適用することで、バルク並びに界面のスピン非対 称係数(β , γ)を算出することを目的とした。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用い、MgO (100)単結晶基板/Cr (20 nm)/Ag (40 nm)/CFMS (*t*_{CFMS} nm)/Ag 又は Ag₃Mg (5 nm)/CFMS (*t*_{CFMS} nm)/Ag (2 nm)/Au (5 nm)の積層膜を作製した。CFMS 層膜厚 (*t*_{CFMS}) は 3, 4, 5, 7, 9, 12 nm とした。各層は室温で成膜し、Cr と上部の CFMS 層成膜後に超高真空中で、それぞれ 650℃、500℃ で熱処理を行った。試料は電子線リソグラフィー法等を用いてサブミクロンオーダーの素子に 加工した。GMR 効果の測定は室温において直流 4 端子法で行った。

実験結果

 $t_{CFMS} = 12 nm$ における MR 比(寄生抵抗の寄与を差し引く前の値)は Ag 中間層の素子で 24%、Ag₃Mg 中間 層の素子で 23%であった。いずれの中間層の場合においても t_{CFMS} の減少に伴い MR 比は増大し、MR 比は Ag、Ag₃Mg それぞれの場合で 43%、49%まで増大した。 ΔRA の t_{CFMS} 依存性から β 、 γ を算出した結果、 β は Ag 中間層素子で 0.63 程度、Ag₃Mg 中間層の素子で 0.78 程度の値が得られた。 γ の値については、CFMS 層 と中間層との界面における、界面抵抗値の不確定性のために値の確定には至っていないものの、いずれの素 子においても 0.7 以上となると考えられる。Ag 中間層の素子と比較して Ag₃Mg 中間層の素子で高い β が得ら れた要因は、中間層/CFMS 層界面が改善されたことによって CFMS 層の規則性が向上したためと考えられる。

謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金(基盤研究 S、25220910)、情報ストレージ研究推進機構 (ASRC)の支援を受けた。

参考文献

- 1) M. Takagishi et al., IEEE Trans. Magn. 38, 2277 (2010).
- 2) H. Narisawa et al., Appl. Phys. Express 8, 063008 (2015).
- 3) T. Kubota et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 50, 014004 (2017).
- 4) T. Valet and A. Fert, Phys. Rev. B 48, 7099 (1993).

エピタキシャル CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構造の低温成長とその磁気特性

<u>酒井宗一朗</u>¹, 河野慎¹, 井川昌彦¹, 沖宗一郎^{1,2}, 佐藤浩³, 山田晋也^{1,2}, 浜屋宏平^{1,2} (¹阪大基礎工,²阪大基礎工スピントロニクスセンター,³東京エレクトロン(株))

Low-temperature growth and magnetic properties of all-epitaxial CoFe/Ge/Fe₃Si vertical structures

S. Sakai¹, M. Kawano¹, M. Ikawa¹, S. Oki^{1,2}, H. Sato³, S. Yamada^{1,2}, and K. Hamaya^{1,2}

(¹Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., ²Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., ³Tokyo Electron Ltd.)

【はじめに】

我々は、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて、エピタキシャル Fe₃Si/Ge/Fe₃Si 縦型構造を形成 することに成功している[1].しかし、Ge 層成長時の基板温度制御の難しさから[2]、Ge 層から上部 Fe₃Si 層への Ge 原子の拡散を防げず、Fe₃Si 層の磁気特性が劣化してしまうことがわかっている. 本研究では、Ge 層成長初期に固相エピタキシー(SPE)層を挿入することで、Ge 中間層の平坦性の向 上と成長温度の低減を実現し、良好な磁気特性を有する縦型構造の低温エピタキシャル成長を検討 する[3,4].

【実験方法】

MBE 法を用いて Si(111)基板上に Fe₃Si 層(25 nm)を成長した 後,最表面を Si 面終端し[2],その直上に非晶質 Ge 層(3 nm)を 室温堆積して,1時間のアニール処理($T_a = 150, 175, 200 \,^{\circ}$ C)を施 した(SPE-Ge).その後,温度 T_a のままで SPE-Ge 層上に Ge 層(17 nm)を MBE 成長した(MBE-Ge).最後に,温度 T_a を室温まで下 げた後,CoFe 層(10 nm)を MBE 成長し,CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構 造とした[3,4].

【実験結果】

Fig.1 に T_a =175 °C で作製した縦型構造の断面 TEM 像を示 す.中間 Ge 層中には積層欠陥が存在しているが、Fe₃Si 層上で 一様に成長しており、SPE-Ge/MBE-Ge 層の作製に成功している. つまり、200 °C 以下という低温でエピタキシャル強磁性/Ge/強 磁性縦型構造を作製することに成功した.

Fig. 2 に 300 K で測定した磁化曲線(赤実線)を示す. 二段の ヒステリシス曲線が観測され, CoFe, Fe₃Si が Ge を介して磁気 的に分断していることが示唆される. また, 二つの反転磁場は それぞれ基板上に作製した CoFe, Fe₃Si 薄膜の保磁力とよく一 致していることから,磁気的にも良好な三層構造であることが 示唆された. 講演では, Ge 中間層の膜厚や成長条件が磁性に与 える影響についても述べる.

本研究は,科研費基盤研究(A)(16H02333)・新学術領域研究ナ ノスピン変換科学(26103003)の補助を受けた.

<u>参考文献</u>

1) K. Hamaya et al., Mater. Trans., 57, 760, (2016)

- 2) S. Yamada et al., Cryst. Growth Des., 12, 4703 (2012).
- 3) M. Ikawa et al., J. Cryst. Growth, 468, 676-679 (2017).
- 4) S. Sakai et al., Semicond. Sci. Technol. (accepted).



Fig.1 TEM image of all-epitaxial CoFe/Ge/Fe₃Si on Si(111).



Fig. 2 *M*-*H* curves at 300 K for a CoFe/Ge/Fe₃Si trilayer (red line), a CoFe layer on Ge(111) (blue line), and an Fe₃Si layer on Si(111) (green line).

エピタキシャル CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構造におけるスピン伝導の観測

<u>井川昌彦</u>¹, 河野慎¹, 酒井宗一朗¹, 沖宗一郎^{1,2}, 佐藤浩³, 山田晋也^{1,2}, 浜屋宏平^{1,2} (¹阪大基礎工,²阪大基礎工スピントロニクスセンター,³東京エレクトロン(株))

Spin transport in all-epitaxial CoFe/Ge/Fe₃Si vertical structures

M. Ikawa¹, M. Kawano,¹ S. Sakai¹, S. Oki^{1,2}, H. Sato³, S. Yamada^{1,2}, and K. Hamaya^{1,2}

(¹Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., ²Center for Spintronics Research Network,

Osaka Univ., ³Tokyo Electron Ltd.)

【はじめに】

半導体スピン素子は不揮発メモリ機能を有する次世代半導体デバイスとして期待されている. 我々はこれまで,縦型 Ge チャネルスピン MOSFET の可能性を追求し,強磁性体/Ge/強磁性体縦型 構造の結晶成長技術を開発してきた¹⁻³⁾.本研究では,最近開発した Ge の低温結晶成長技術³⁾を用 いて作製したエピタキシャル CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構造において,明瞭なスピン伝導の観測に成功し たので報告する.

【実験方法】

MBE 装置を用いて、高抵抗 Si(111) 基板上に CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構造をエピタキシャル成長した³⁾. 電 子線リソグラフィーや Ar イオンミリング等を用いて Fig. 1 に示すようなピラー型の縦型スピンバルブ素子と した⁴⁾.

【実験結果】

縦型伝導素子の電気抵抗を測定したところ,低温側で 増加する傾向を示し,中間層に非縮退系半導体品質の Ge 層が形成されていることが確認された. 20 K におけ る電流電圧特性は、トンネル伝導を示唆する非線形曲線 を示した. Fig. 2 に 10 K で測定した電圧変化(ΔV_s)の磁 場依存性を示す.上下の強磁性電極の磁化配置(平行・反 平行)に対応した明瞭な矩形のヒステリシス信号が観測 されている.マイナーループ測定(紫線)も観測され, 反平行配置が安定に形成されていることが確認されて いる.この結果は、CoFe/Ge/Fe₃Si 縦型構造におけるスピ ン伝導の観測に成功したことを意味している.講演で は、 ΔV_s の温度依存性、バイアス依存性などについても 議論する.

本研究は,科研費基盤研究(A)(16H02333)・新学術領域 研究ナノスピン変換科学(26103003)の補助を受けた.

参考文献

- 1) M. Kawano et al., J. Appl. Phys. 119, 045302 (2016).
- 2) K. Hamaya et al., Mater. Trans. 57, 760 (2016).
- 3) S. Sakai et al., Semicond. Sci. Technol. (accepted).
- 4) M. Kawano et al., (submitted).



Fig. 1 Scanning electron micrograph of CoFe/Ge/Fe₃Si spin valves.



Fig. 2 Spin accumulation output voltage $(\Delta V_{\rm S})$ as a function of external magnetic field (*H*) at 20 K with an $I_{\rm DC}$ of 0.5 mA.