

学位論文題名

Spin-dependent tunneling characteristics of fully epitaxial magnetic tunnel junctions with half-metallic Heusler alloy Co_2MnSi electrodes

(ハーフメタル系ホイスラー合金 Co_2MnSi 電極を用いたエピタキシャル強磁性トンネル接合におけるスピン依存トンネル特性)

学位論文内容の要旨

近年、電子の電荷とスピンの両方を活用することにより、半導体をベースとする従来のエレクトロニクス概念を超えた、新しい機能を有する革新的なデバイスを創出しようとするスピントロニクス研究が活発に行われている。スピントロニクス分野で高性能デバイスを実現するためには、高スピン偏極した電流の生成が不可欠である。そのための有望なアプローチの一つは、ハーフメタル強磁性体を強磁性電極として用いることである。ハーフメタル強磁性体は、フェルミレベルにおいて、アップ・ダウンのうち、一方のスピン方向のみ状態密度を有する電子構造を特徴とする完全スピン偏極材料である。従って、ハーフメタル強磁性体をスピン源に用いることで、理想的には完全にスピン偏極した電流が得られる。Co系ホイスラー合金は、その多くがハーフメタル性を示すことが理論的に指摘されており、かつ、室温よりも十分に高い強磁性転移温度を併せ持つことから、室温においても高スピン偏極が実現できるハーフメタル材料として、現在、活発に研究がなされている。

本研究の大きな目的は、Co系ホイスラー合金のハーフメタル性に由来する本質的に大きなスピン偏極率を活用する強磁性トンネル接合(MTJ)の製作技術を確立すると共に、その優れたスピン輸送特性を実証することである。このようなCo系ホイスラー合金を用いたMTJの研究は、最初、東北大学の猪俣等により行われ、 $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ (CCFA)とAl酸化膜トンネルバリアを用いたMTJにおいて、室温で比較的高いトンネル磁気抵抗(TMR)比(16%)が報告された。一方、北海道大学の丸亀等は、CCFAと酸化マグネシウム(MgO)の比較的小さな格子ミスマッチに着目し、全層エピタキシャル成長のCCFA/MgO/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ MTJを製作するとともに室温で最大109%までの良好なTMR特性を報告した。この結果は、ホイスラー合金系の本質的に大きなスピン偏極率を活用する上で、MgOバリアを用いたエピタキシャルMTJ積層構造が有効であることを示唆している。しかしながら、この研究で用いられたCCFAは、完全なハーフメタルではないことが理論的に指摘されており、理想的な場合でも、スピン偏極率の値は、100%を下回る。そこで、本研究では、完全なハーフメタルになることが理論的に予測されている Co_2MnSi (CMS)に着目し、CMS電極とMgOバリアを用いた全層エピタキシャル成長のMTJの実現とそのMTJにおける、優れたTMR特性の実証を試みた。

本論文は、全7章から構成されている。各章の要旨は以下の通りである。

第1章では、本研究の背景や目的を述べると共に、本研究で用いた CMS と MgO の間のエピタキシャル格子関係について説明している。

第2章では、CMS 薄膜と MgO トンネルバリアを組み合わせた MTJ の試作結果について述べている。ここでは、最初の試作として、CMS 薄膜を MTJ の下部電極のみに用い、上部電極には代表的な強磁性体材料である $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ を用いた。本章では、この MTJ の作製方法や結晶構造特性評価・TMR 特性評価などについて述べている。CMS/MgO/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ の MTJ 積層構造がすべて単結晶エピタキシャル成長していることを確認すると共に、TMR 比として、室温で 90% (4.2 K で 192%) の比較的高い値を実証した。

第3章では、ホイスラー合金を下部電極だけでなく、上部電極にも用いた MTJ に必須となる、ホイスラー合金薄膜に対する交換バイアス効果について検討している。ホイスラー合金薄膜を組み込んだ反強磁性結合 3 層構造に対し、反強磁性体 IrMn により交換バイアス効果を付与する方法を用いることにより、ホイスラー合金/反強磁性体からなる単純な 2 層構造と比較し、大きな交換バイアス効果が得られることを明らかにした。

第4章では、第3章で構築したホイスラー合金薄膜に対する交換バイアス効果技術を用い、上下両電極に CMS 薄膜を用いたエピタキシャル CMS/MgO/CMS MTJ の作製とその TMR 特性評価について述べている。作製した MTJ に対し、室温で最大 182% (4.2 K で 705%) の高い TMR 比が得られた。この値は、第2章で述べた CMS/MgO/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ MTJ よりも高い値であり、MTJ の電極材料としての CMS の有用性を示した。

第5章では、第4章で作製したエピタキシャル CMS/MgO/CMS MTJ に対するスピン依存微分コンダクタンス特性の評価・解析に関して述べている。CMS 電極のハーフメタル電子構造が dI/dV - V 特性における特徴的な構造として現れることを示すと共に、ハーフメタルギャップの値を明らかにした。さらに、CMS/MgO 界面における界面局在電子状態が、CMS/MgO/CMS MTJ のようなハーフメタル強磁性体を電極材料に用いた MTJ のスピン依存トンネル特性に大きな影響を及ぼしている可能性を実験的に指摘した。

第6章では、CMS/MgO/CMS MTJ における TMR 特性の薄膜組成依存性について述べている。TMR 特性が CMS 薄膜の Mn 組成に強く依存することを明らかにし、Mn の組成が過剰な CMS 薄膜を用いることで、化学量論的組成の CMS を用いた MTJ よりも、さらに高い TMR 比が得られることが示された。これは、ハーフメタルギャップ中に電子状態を生成し、ハーフメタル性を劣化させることが理論的に指摘されている Co_{Mn} アンチサイト欠陥が、Mn 組成の過剰な CMS 薄膜を用いることにより、抑制されるためと解釈できる。従って、薄膜組成の適切な制御により、構造欠陥を制御することが可能であり、結果として、ハーフメタル性を改善可能であることを見出した。

第7章では、本論文の結論が述べられている。

以上を要するに、本論文では、ハーフメタル材料である CMS を電極とした高品質エピタキシャル MTJ 製作技術を確立すると共に、スピン依存トンネル特性を決めている要因を明らかにし、高い TMR 比を実証している。これらの結果は、スピントロニクスデバイスの強磁性電極材料としての CMS 薄膜、および、CMS と MgO の組み合わせの有用性を示している。さらに、第5章や第6章で示された、スピン依存トンネル特性に対する界面局在電子状態の果たす役割の明確化や薄膜組成制御によるハーフメタル性の改善の可能性は、CMS のみならず、ハーフメタル強磁性全般に共通する重要な知見であり、今後のこの分野の研究発展を促すものであると考えられる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 山 本 眞 史
副 査 教 授 雨 宮 好 仁
副 査 教 授 高 橋 庸 夫
副 査 准教授 植 村 哲 也

学 位 論 文 題 名

Spin-dependent tunneling characteristics of fully epitaxial magnetic tunnel junctions with half-metallic Heusler alloy Co_2MnSi electrodes

(ハーフメタル系ホイスラー合金 Co_2MnSi 電極を用いたエピタキシャル強磁性トンネル接合におけるスピン依存トンネル特性)

本論文は、ハーフメタル系ホイスラー合金 Co_2MnSi 電極を用いたエピタキシャル強磁性トンネル接合におけるスピン依存トンネル特性に関する研究成果をまとめたものである。

近年、電子の電荷とスピンの両方を活用することにより、半導体をベースとする従来のエレクトロニクス概念を超えた、新しい機能を有する革新的なデバイスを創出しようとするスピントロニクスの研究が活発に行われている。スピントロニクスの分野で高性能デバイスを実現するためには、高スピン偏極した電流の生成が不可欠である。そのための有望なアプローチの一つは、ハーフメタル強磁性体を強磁性電極として用いることである。ハーフメタル強磁性体は、フェルミレベルにおいて、アップ・ダウンのうち、一方のスピン方向のみ状態密度を有する電子構造を特徴とする完全スピン偏極材料である。従って、ハーフメタル強磁性体をスピン源に用いることで、理想的には完全にスピン偏極した電流が得られる。 Co 系ホイスラー合金は、その多くがハーフメタル性を示すことが理論的に指摘されており、かつ、室温よりも十分に高い強磁性転移温度を併せ持つことから、室温においても高スピン偏極が実現できるハーフメタル材料として、現在、活発に研究がなされている。

本研究の大きな目的は、 Co 系ホイスラー合金のハーフメタル性に由来する本質的に大きなスピン偏極率を活用する強磁性トンネル接合 (MTJ) の製作技術を確立すると共に、その優れたスピン輸送特性を実証することである。このような Co 系ホイスラー合金を用いた MTJ の研究は、最初、東北大学の猪俣等により行われ、 $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ (CCFA) と Al 酸化膜トンネルバリアを用いた MTJ において、室温で比較的高いトンネル磁気抵抗 (TMR) 比 (16%) が報告された。一方、北海道大学の丸亀等は、CCFA と酸化マグネシウム (MgO) の比較的小さな格子ミスマッチに着目し、全層エピタキシャル成長の CCFA/ $\text{MgO}/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ MTJ を製作するとともに室温で最大 109% までの良好な TMR 特性を報告した。この結果は、ホイスラー合金系の本質的に大きなスピン偏極率を活用する上で、 MgO バリアを用いたエピタキシャル MTJ 積層構造が有効であることを示唆している。しかしながら、この研究で用いられた CCFA は、完全なハーフメタルではないことが理論的に指摘

されており、理想的な場合でも、スピン偏極率の値は、100%を下回る。そこで、本研究では、完全なハーフメタルになることが理論的に予測されている Co_2MnSi (CMS) に着目し、CMS 電極と MgO バリアを用いた全層エピタキシャル成長の MTJ の実現とその MTJ における、優れた TMR 特性の実証を試みた。

本論文は、全 7 章から構成されている。各章の要旨は以下の通りである。

第 1 章では、本研究の背景や目的を述べると共に、本研究で用いた CMS と MgO の間のエピタキシャル格子関係について述べている。

第 2 章では、CMS 薄膜と MgO トンネルバリアを組み合わせた MTJ の試作結果について述べている。ここでは、最初の試作として、CMS 薄膜を MTJ の下部電極のみに用い、上部電極には代表的な強磁性体材料である $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ を用いた。本章では、この MTJ の作製方法や結晶構造特性評価・TMR 特性評価などについて述べている。CMS/MgO/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ の MTJ 積層構造がすべて単結晶エピタキシャル成長していることを確認すると共に、TMR 比として、室温で 90% (4.2 K で 192%) の比較的高い値を実証した。

第 3 章では、ホイスラー合金を下部電極だけでなく、上部電極にも用いた MTJ に必須となる、ホイスラー合金薄膜に対する交換バイアス効果について検討している。ホイスラー合金薄膜を組み込んだ反強磁性結合 3 層構造に対し、反強磁性体 IrMn により交換バイアス効果を付与する方法を用いることにより、ホイスラー合金/反強磁性体からなる単純な 2 層構造と比較し、大きな交換バイアス効果が得られることを明らかにした。

第 4 章では、第 3 章で構築したホイスラー合金薄膜に対する交換バイアス効果技術を用い、上下両電極に CMS 薄膜を用いたエピタキシャル CMS/MgO/CMS MTJ の作製とその TMR 特性評価について述べている。作製した MTJ に対し、室温で最大 182% (4.2 K で 705%) の高い TMR 比が得られた。この値は、第 2 章で述べた CMS/MgO/ $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ MTJ よりも高い値であり、MTJ の電極材料としての CMS の有用性を示した。

第 5 章では、第 4 章で作製したエピタキシャル CMS/MgO/CMS MTJ に対するスピン依存微分コンダクタンス特性の評価・解析に関して述べている。CMS 電極のハーフメタル電子構造が $dI/dV-V$ 特性における特徴的な構造として現れることを示すと共に、ハーフメタルギャップの値を明らかにした。さらに、CMS/MgO 界面における界面局在電子状態が、CMS/MgO/CMS MTJ のようなハーフメタル強磁性体を電極材料に用いた MTJ のスピン依存トンネル特性に大きな影響を及ぼしている可能性を実験的に指摘した。

第 6 章では、CMS/MgO/CMS MTJ における TMR 特性の薄膜組成依存性について述べている。TMR 特性が CMS 薄膜の Mn 組成に強く依存することを明らかにし、Mn の組成が過剰な CMS 薄膜を用いることで、化学量論的組成の CMS を用いた MTJ よりも、さらに高い TMR 比が得られることが示された。これは、ハーフメタルギャップ中に電子状態を生成し、ハーフメタル性を劣化させることが理論的に指摘されている Co_{Mn} アンチサイト欠陥が、Mn 組成の過剰な CMS 薄膜を用いることにより、抑制されるためと解釈できる。従って、薄膜組成の適切な制御により、構造欠陥を制御することが可能であり、結果として、ハーフメタル性を改善可能であることを見出した。

第 7 章では、本論文を総括し、結論が述べられている。

以上を要約すると、本論文は、スピントロニクスデバイスの強磁性電極材料としての Co_2MnSi 薄膜、および、 Co_2MnSi と MgO の組み合わせの有用性を示すと共に、スピン依存トンネル特性に対する界面局在電子状態の果たす役割の明確化や薄膜組成制御によるハーフメタル特性の改善の可能性といった、ハーフメタル強磁性体のスピントロニクスデバイスへの応用に関して有益な知見を実験的に明らかにしたものであり、これは電子デバイス工学の進展に寄与するところ大である。

よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。