

学位論文題名

Fabrication of epitaxial heterostructures with Heusler alloy thin film and MgO tunnel barrier on Ge(001) substrates and their spin-dependent tunneling characteristics

(Ge(001)基板上へのホイスラー合金薄膜とMgOトンネルバリアを用いたエピタキシャルヘテロ構造の製作とスピン依存トンネル特性の研究)

学位論文内容の要旨

Spintronic devices that manipulate the spin degree of freedom of the conduction electrons are emerging as promising future electron devices featuring nonvolatility, reconfigurable logic functions, and ultralow power consumption. Heterostructures consisting of a ferromagnetic electrode and a semiconductor channel are currently of particular interest because the semiconductor channel is a fundamental component of the versatile semiconductor devices. Half-metallic ferromagnet features an energy gap for one spin direction at the Fermi level (E_F) and exhibits 100% spin polarization at E_F , thus it is one of the key materials for spintronic devices. Co-based Heusler alloys Co_2YZ (Y is usually a transition metal and Z is a main group element) are amongst the most extensively studied potentially half-metallic ferromagnetic materials. This is because half-metallicity is theoretically predicted for several of these alloys and because they have high Curie temperatures, which are well above room temperature. A semiconductor Ge channel is highly promising for future-generation MOS devices because of the high mobility of electrons and holes in Ge. Therefore, the combination of a Co-based Heusler alloys Co_2YZ with a semiconductor Ge channel is promising for semiconductor spintronic devices. The main purpose of this study was to fabricate fully epitaxial heterostructures with a Heusler alloy thin film and a MgO barrier on Ge(001) substrates and clarify their spin-dependent transport properties.

We fabricated two types of heterostructures on semiconductor Ge substrates. First, we prepared epitaxial Heusler alloy/MgO heterostructures on Ge(001) substrates, which are promising as a key device structure for future spin-MOSFET. Second, we fabricated magnetic tunneling junctions (MTJs) on semiconductor Ge via an MgO interlayer, which is encouraging for monolithic integration of MTJs and Ge FETs or spin injection from MTJs into Ge for constructing future-generation nonvolatile logic circuits. One Co-based Heusler alloys in particular, Co_2MnSi (CMS), attracted much interest because of (1) its theoretically predicted half-metallic nature and its high Curie temperature of 985 K, (2) high TMR ratios of 236% at room temperature (RT) and 1135% at 4.2 K demonstrated for CMS-MTJs, indicating the high spin polarization of CMS films. We prepared epitaxial Heusler alloy CMS films on Ge(001) substrates via an ultrathin MgO(001) interlayer. This approach is advantageous for thoroughly utilizing the high spin polarizations of potentially half-metallic Heusler alloy thin films in terms of (1) enhanced tunneling spin polarization due to coherent tunneling through a single-crystalline MgO(001) tunnel barrier, (2) the effectiveness of MgO tunnel barrier insertion to avoid the conductivity-mismatch problem between a Heusler alloy and a semiconductor channel, and (3) the MgO insertion between a Heusler alloy thin film and a semiconductor provides a barrier against possible interdiffusion between a Heusler alloy thin film and a semiconductor during annealing at about 500 °C.

We focused on the following points in this dissertation: (1) to fabricate fully epitaxial Heusler alloy CMS and CoFe thin films on Ge(001) substrates via an ultrathin MgO interlayer and investigate their structural properties, (2) to investigate the spin transport properties of CoFe/MgO/n-Ge tunnel

junctions using three-terminal geometry by measuring Hanle effect, (3) to fabricate MTJs on Ge(001) substrates via a MgO interlayer with a Heusler alloy CMS electrode and a CoFe electrode and investigate their spin-dependent TMR characteristics, (4) to experimentally clarify the structural, electronic and magnetic properties of nonstoichiometric CMS thin films.

This dissertation consists of seven chapters; the main content of each chapter is as follows:

Chapter 1 introduces the background, purpose, and approach of this study.

Chapter 2 demonstrates epitaxial growth of Heusler alloy CMS/MgO heterostructures on Ge(001) substrates with atomically flat interfaces. Sufficiently high μ_s values close to the Slater-Pauling μ_s value were obtained for CMS films grown on Ge(001) substrates via an ultrathin MgO(001) interlayer. These results confirm the promise of fully epitaxial Heusler alloy CMS/MgO/Ge(001) heterostructures for efficient spin injection into a semiconductor channel of Ge featuring high mobility.

Chapter 3 describes transport properties of spin-polarized carriers in CoFe/MgO/Ge(001) tunnel junctions by a three-terminal geometry. The spin resistance-area products obtained from the Hanle signals and inverted Hanle signals through a three-terminal geometry at 293 K showed strong dependence on the tunnel junction resistance along with exponential dependence on the MgO barrier thickness. This result is quite different from the behavior predicted by a model for spin transport in a ferromagnet/insulator/semiconductor single junction in the diffusive transport regime and suggests that the observed three-terminal Hanle signals are not caused by the spin accumulation in a semiconductor channel.

Chapter 4 presents the structural properties and the TMR characteristics of fully epitaxial MTJs with CoFe electrodes and a MgO barrier on Ge(001) substrates via a MgO interlayer. Microfabricated epitaxial CoFe-MTJs with a 10-nm-thick MgO interlayer demonstrated a high TMR ratio of 218% at 293 K (330% at 4.2 K), which is encouraging for monolithic integration of MTJs and Ge FETs for constructing future-generation nonvolatile logic circuits featuring ultralow-power consumption. Even when the MgO interlayer thickness was decreased to 1.0 nm, the MTJs retained a relatively high TMR ratio of 110% at 293 K (170% at 4.2 K), suggesting the promise of heterostructures consisting of CoFe MTJ/MgO interlayer/Ge(001) as a key device structure for efficient spin injection into a Ge channel from an MTJ.

Chapter 5 describes the structural properties and the TMR characteristics of fully epitaxial MTJs with a half-metallic CMS electrode in combination with a CoFe electrode and a MgO barrier on Ge(001) substrates via a MgO interlayer. Fabricated MTJs showed clear exchange-biased tunnel magnetoresistance (TMR) characteristics with a relatively high TMR ratio of 383% at 293 K. This ratio is much higher than the 218% at 293 K obtained for CoFe MTJs identically prepared on Ge(001) substrates via 10-nm-thick MgO interlayer. The enhanced TMR ratio at 293 K indicates that the CMS layer featuring a higher spin polarization than that of CoFe works as a spin source in a heterostructure. This result suggests the promise of the monolithic integration of CMS/MgO-based MTJs and Ge MOSFETs for future-generation nonvolatile logic circuits.

Chapter 6 discusses the possible defects induced in nonstoichiometric Co_2MnZ ($Z = \text{Si, Ge}$) films. Our findings suggest that we can control the defects, in particular, detrimental Co_{Mn} antisites in nonstoichiometric Co_2MnZ by preparing Co_2MnZ films with a Mn-rich composition.

Chapter 7 summarizes this study.

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	山 本 眞 史
副 査	教 授	高 橋 庸 夫
副 査	教 授	富 田 章 久
副 査	准教授	植 村 哲 也

学 位 論 文 題 名

Fabrication of epitaxial heterostructures with Heusler alloy thin film and MgO tunnel barrier on Ge(001) substrates and their spin-dependent tunneling characteristics

(Ge(001)基板上へのホイスラー合金薄膜とMgOトンネルバリアを用いたエピタキシャルヘテロ構造の製作とスピン依存トンネル特性の研究)

本論文は、ホイスラー合金 Co_2MnSi 薄膜と MgO トンネルバリアを用いたエピタキシャルヘテロ構造の Ge(001) 単結晶基板上への製作と、それらの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、電子の持つスピンの自由度を活用することにより、スピントロニクスデバイスと呼ばれる、不揮発性、再構成論理機能、超低消費電力性の特徴を併せ持つ、新しい概念の電子デバイスを創出しようとする研究が注目されている。特に、強磁性電極から電氣的に半導体チャネルにスピンを注入し、制御、検出しようとする研究が活発に行われている。ハーフメタル強磁性体は一方のスピンバンドに対してフェルミレベルにおいてエネルギーギャップを有し、このため、フェルミレベルでのスピン偏極率が 100% となる。スピントロニクスはスピン偏極した電子を用いることを基本としており、ハーフメタル強磁性体はスピントロニクスデバイスの強磁性電極材料として最も有望な材料の一つである。Co 基ホイスラー合金は、その多くがハーフメタル特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有することから、近年、最も活発に研究がなされているハーフメタル材料である。Co 基ホイスラー合金の一つである Co_2MnSi (CMS) は理論的にハーフメタル特性が指摘されており、また、キュリー温度も 985 K と室温よりも十分に高い材料である。

一方、半導体 Ge チャネルは、電子とホール移動度が高いため、次世代の MOS デバイスのチャネル材料として非常に有望である。このため、Co 基ホイスラー合金と Ge チャネルの組み合わせは半導体スピントロニクスデバイスにとって有望である。

本研究の目的は、ホイスラー合金 CMS 薄膜と MgO バリアからなるエピタキシャルヘテロ構造を Ge(001) 基板上に製作すると共に、そのスピン依存トンネル特性を明らかにすることである。本研究では Ge(001) 基板上への CMS 薄膜のエピタキシャル成長について、極薄 MgO 中間層を介して成長するアプローチを用いた。この方法は、(1) 単結晶 MgO(001) 中のコヒーレントトンネリングにより実効的なトンネルスピン偏極率の増大が得られること、(2) ホイスラー合金と半導体 Ge チャネルの間の大きな電気伝導度の差によるスピン注入効率の低下を解決できること、以上の理由により、ホイスラー合金のハーフメタル性に由来する高いスピン偏極率を十分に活用する上で、非常に有用な方法である。

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と目的、さらに、本研究におけるアプローチを述べると共に、各章の概要を述べている。

第 2 章では Ge(001) 基板上への原子レベルで平坦な界面を有するホイスラー合金 CMS/MgO

ヘテロ構造のエピタキシャル成長の実証について述べている。極薄 MgO(001) 中間層を介して、Ge(001) 基板上に成長した CMS 薄膜に対して、Slater-Pauling 則に近い、十分に大きな単位セルあたりの飽和磁化の値を実証した。この結果は、作製された CMS 薄膜が優れた磁気特性を有していることを示している。これらの結果は、エピタキシャル成長の CMS/MgO/Ge(001) ヘテロ構造が半導体 Ge チャネルへの効率的なスピン注入構造として有望であることを示している。

第 3 章は三端子法によって測定評価した CoFe/MgO/Ge(001) トンネル接合におけるスピン偏極したキャリアの輸送特性について述べている。三端子法によって 293 K において測定された Hanle 信号および逆 Hanle 信号から求められたスピン抵抗と接合面積の積は、トンネル接合の抵抗に強い依存性を示し、特に、MgO バリア厚に対して指数関数的な依存性を示すことを明らかにした。この結果は既存の拡散伝導領域における強磁性体/トンネルバリア/半導体からなる単一接合に対するスピン輸送に関する標準モデルでは説明できない結果であり、強磁性体/トンネルバリア/半導体接合におけるスピン輸送特性に対する新しいモデルの必要性を示している。

第 4 章は Ge(001) 基板上に MgO 中間層を介して製作した、CoFe 電極と MgO バリアを用いたエピタキシャル MTJ (CoFe MTJ) の構造とトンネル磁気抵抗 (TMR) 特性について述べている。10 nm の膜厚の MgO 中間層を介して製作した MTJ に対して、293 K において 218% の高い TMR 比を実証した。この結果は、次世代の超低消費電力不揮発論理回路のための MTJ と Ge MOSFET のモノリシック集積の基盤技術として、有望である。さらに、MgO 中間層の厚みをスピン注入が可能な領域となる 1.0 nm まで低減した場合についても、MTJ の TMR 比として比較的高い値である 293 K で 110% を実証した。この結果は、CoFe MTJ/MgO 中間層/Ge(001) のヘテロ構造が、磁化方向可変機能を有する MTJ から Ge チャネルへのスピン注入の基本デバイス構造として有望であることを示している。

第 5 章は第 4 章の内容を発展させ、第 4 章の MTJ における CoFe 電極を、潜在的にハーフメタル特性を有するホイスラー合金 CMS 電極に置き換えた MTJ の構造と TMR 特性について述べている。Ge(001) 基板上に MgO 中間層を介して製作した (上部側から) CMS/極薄 CoFe 挿入層/MgO バリア/CoFe MTJ に対して、293 K において 383% の高い TMR 比を実証した。この値は上記の Ge(001) 基板上に製作した CoFe/MgO/CoFe MTJ の TMR 比 (293 K で 218%) に比較して顕著に高い値である。この結果は、CMS のハーフメタル特性に由来する高いスピン偏極率が、Ge(001) 基板上に製作したエピタキシャル MTJ においても十分に保たれていることを実証している。

第 6 章は非化学量論的な Co_2MnZ ($Z = \text{Si}, \text{Ge}$) 薄膜のサイト特定組成モデルの提案と、このモデルの妥当性の、単位セルあたりの飽和磁化の実験結果および上記モデルに基づいた第一原理計算による実証について述べている。

以上を要約すると、本論文は半導体 Ge 基板上への MgO バリアを介したハーフメタルホイスラー合金 Co_2MnSi 薄膜のエピタキシャル成長と、これを基にした Co_2MnSi 電極を用いた Ge 基板上の強磁性トンネル接合の優れたスピン依存トンネル特性を実証したものである。以上、本論文はハーフメタルホイスラー合金を半導体スピントロニクスへ応用する上での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。