



Title	Effect of off-stoichiometry on the half-metallic character of quaternary Heusler alloy $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Si}$ [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Ayele, Kidist Moges
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第12401号
Issue Date	2016-09-26
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/63327
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Ayele_Kidist_Moges_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士 (工学) 氏名 Ayele Kidist Moges

審査担当者 主 査 教 授 植村 哲也
 副 査 教 授 富田 章久
 副 査 教 授 村山 明宏
 副 査 山本 眞史 (北海道大学名誉教授)

学位論文題名

Effect of off-stoichiometry on the half-metallic character of quaternary Heusler alloy $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Si}$
(4 元ホイスラー合金 $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Si}$ のハーフメタル性に対する非化学量論的組成の影響)

本論文は, 4 元ホイスラー合金 $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Si}$ のハーフメタル性に対する非化学量論的組成の影響に関する研究成果をまとめたものである.

近年, 電子の持つ電荷に加えて, 電子の持つスピンの自由度を活用することにより, 不揮発性, 再構成可能な論理機能, 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スピントロニクスが注目されている. スピントロニクスデバイスにおいては, 大きくスピン偏極した電流を創出する事が本質的に重要である. 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 (E_F) においてエネルギーギャップを有し, このため, E_F でのスピン偏極率が 100% となる. このため, ハーフメタル強磁性体はスピントロニクスデバイスのスピン源の材料として最も適する材料系の一つである. Co 基ホイスラー合金 (Co_2YZ , ここで Y は通常, 遷移金属, Z は主族元素) はハーフメタル強磁性体の中で, 強磁性トンネル接合 (MTJ) デバイスあるいは巨大磁気抵抗 (GMR) デバイス等を含むスピントロニクスデバイスに最も広く応用されると共に, 半導体へのスピン注入源としても広く用いられている材料である. Co_2YZ の特長の一つは, 3 元系にとどまらず 4 元系を含む材料系の多様性にあり, このため, スピントロニクスデバイスへの応用に柔軟性を与えることができる. これらの背景のもとで, 4 元ホイスラー合金の $\text{Co}_2(\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Si}$ は組成 x を変えることによってハーフメタルギャップ中の E_F の位置を適切に設定するという観点から注目されている. 一方, スパッタ堆積法や分子線エピタキシー法によって作製される 3 元あるいは 4 元 Co_2YZ 薄膜については, 化学量論的組成からのずれが程度の差こそあれ不可避免的に生ずる. この化学量論的組成からのずれに伴う構造欠陥がハーフメタルギャップ中の E_F 近傍に状態を生成すると, ハーフメタル性に大きな影響を与える事になる. このため, Co_2YZ の持つハーフメタル性を最大限活用するためには, 非化学量論的組成のハーフメタル性に対する影響を明らかにすることが重要である.

本研究グループの H. Liu 等は最近, $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Si}$ (CMFS) 電極を用いたエピタキシャル構造の CMFS/MgO/CMFS MTJ (CMFS MTJ) のトンネル磁気抵抗 (TMR) 比の薄膜組成依存性を実験的に調べた. この結果, Mn 過剰で, かつ, Fe を少量ドーピングした CMFS 電極を用いた CMFS MTJ に対して, 4.2 K で 2610%, 290 K で 429% の従来にない大きな TMR 比を実証した.

本研究の主な目的は, 4 元ホイスラー合金 $\text{Co}_2(\text{Mn,Fe})\text{Si}$ のハーフメタル性に対する化学量論的組成からのずれの影響を明らかにする事である. このために, CMFS における Mn 組成 α' および Fe

組成 β' を系統的に変えた $\text{Co}_2(\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{\beta'})\text{Si}_{0.84}$ 薄膜の formula unit 当たりの飽和磁化 μ_s の薄膜組成依存性, および, $\text{Co}_2(\text{Mn}_{\alpha'}\text{Fe}_{\beta'})\text{Si}_{0.84}$ 電極を用いた CMFS MTJ の TMR 比の Mn 組成 α' および Fe 組成 β' に対する依存性を実験的に調べると共に, 併せて, 第一原理計算による検討を行った. さらに, Mn 過剰でかつ少量 Fe をドーピングした CMFS 電極を用いた MTJ に対して得られた大きな TMR 比の起源を明らかにするために, Fe を少量ドーピングした Mn 過剰の CMFS 電極に対して, Mn 組成のみを系統的に変えて, CMFS MTJ の TMR 比を調べた.

本論文は全 6 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, 本研究のアプローチを述べている.

第 2 章では実験方法および第一原理計算における非化学量論的組成の CMFS のモデルについて述べている. 前者については, 薄膜および MTJ の製作技術, 薄膜と MTJ の構造評価技術, 薄膜の磁気的特性の評価技術, MTJ のスピン依存トンネル特性の評価技術について述べている. さらに, 後者については, 非化学量論的組成に対して, アンチサイトの生成によって対応する, 格子サイトまで含めた formula unit 組成モデルを提案している.

第 3 章では (1) 薄膜の μ_s および (2) MTJ の TMR 比の CMFS 薄膜組成依存性を通して実験的に調べた, CMFS のハーフメタル性に対する非化学量論的組成の影響について述べている. これらの実験結果と, 上記の formula unit 組成モデルに基づいた第一原理計算の結果を併せて, 4 元 CMFS において, Mn/Fe サイトに入った Co 原子 ($\text{Co}_{\text{Mn/Fe}}$ アンチサイト) が, 3 元 Co_2MnSi における Co_{Mn} アンチサイトと同様に, CMFS のハーフメタル性に有害であることを明らかにしている. さらに, (Mn + Fe) 過剰の組成が, $\text{Co}_{\text{Mn/Fe}}$ アンチサイトの抑制に非常に有効であることを実証している. また, (Mn + Fe) 過剰の組成において, Fe 組成の少ない領域がより高いハーフメタル性を示す事を明らかにしている.

第 4 章では, Mn 過剰でかつ少量 Fe をドーピングした CMFS 電極を用いた MTJ における, 非常に大きな TMR 比の起源を, 実験的に明らかにした結果について述べている. Mn 組成過剰の範囲で, かつ少量の Fe ドーピング量を固定した CMFS に対して, Mn 組成のみを系統的に変化させ, TMR 比を実験的に調べている. この結果より, (Mn+Fe) 組成の利用できる範囲が, Fe を含まない Co_2MnSi の場合よりも大きい領域まで広がり, $\text{Co}_{\text{Mn/Fe}}$ アンチサイトの低減がより増大する事がその起源であることを明らかにしている.

第 5 章では, 大きな TMR 比を実証した CMFS MTJ の磁化反平行における dI/dV のバイアス電圧依存性が, 低バイアス電圧領域 ($V < 70 \text{ mV}$) において, 電圧に対して強い線形の依存性を示す事を明らかにしている. また, 磁化反平行における特徴的な電圧 ($\sim 70 \text{ mV}$) での dI/dV の相対的な増加分が, 4.2 K における TMR 比と相関を持つ事を明らかにしている. さらに, これらの特徴的振る舞いの起源が, ホットエレクトロンによって誘起されたマグノンを介したスピントリプトンネリングによって説明できる事を明らかにしている.

第 6 章は本学位論文の要約と結論を述べている.

以上を要約すると, 本論文は非化学量論的組成を適切に制御する事により, CMFS の本来有するハーフメタル性を十分に活用することができ, このため, 4 元ホイスラー合金 CMFS がスピン源材料として非常に有望であることを実証したものであり, 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のある者と認める.