

氏名	Kresna Bondan Fathoni		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博甲第 10235 号		
学位授与年月日	令和 4 年 3 月 25 日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	数理物質科学研究科		
学位論文題目	Spin-dependent Transport in Current-in-plane Giant Magnetoresistive Devices: Materials Selection, Structure and Properties (面内電流巨大磁気抵抗素子におけるスピン依存伝導:材料選択、構造および特性)		
主査	筑波大学教授(連係大学院)	Ph.D.	宝野 和博
副査	筑波大学教授(連係大学院)	博士(工学)	三谷 誠司
副査	筑波大学教授	理学博士	黒田 眞司
副査	筑波大学教授	博士(工学)	柳原 英人
副査	物質・材料研究機構主任研究員	博士(工学)	中谷 友也

## 論文の要旨

本論文は、強磁性/非磁性/強磁性の3層構造を基本とした面内電流型巨大磁気抵抗(CIP-GMR)素子の磁気抵抗(MR)比を改善することを目的として、スピン分極率の高いホイスラー強磁性合金  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  (CFAS)を強磁性層とするCIP-GMR素子の研究から展開されたCIP-GMR改善に関する材料学的検討結果が報告されている。CFASのハーフメタル性により高いCFAS/Ag/CFASを基本構造とするCIP-GMR素子で高いMRが発現するという仮説に基づき素子が試作されたが、予想に反してそのMR比は通常の強磁性材料を用いたCoFe/Ag/CoFe CIP-GMRに劣るという実験結果が得られた。その原因はCFASの電気抵抗がAg非磁性層にくらべ一桁高いことから、電流が主にAgスペーサに流れることによりスピン依存伝導が全体として減少するためであることを見出した。それに基づきCoFeと格子整合ならびにバンドマッチングの良いbcc-Cuを非磁性層とするCIP-GMR素子で最も高いMR値を得ることに成功した。ただし、これらの素子はいずれも(001)MgO単結晶基板に成長された実用性のない素子であることから、エピタキシャルCIP-GMR素子をSiウェハー上に成膜する技術も検討した結果も報告している。

第1章は本研究で目的としたCIP-GMR素子のさらなるMR比の改善が必要な社会的・技術的背景が述べられている。第2章では本研究で用いられた成膜手法、解析手法の概要が述べられている。

第3章では高スピン分極CFASホイスラー合金を、Ag非磁性(NM)層と組み合わせたCIP-GMR素子の実験結果とその考察が報告されている。B2規則化したCFASのエピタキシャル成長により、バルクCFASの高スピン分極とCFAS/Ag界面の電子コンダクタンスの高スピン非対称化が達成された。しかし、室温での磁気抵抗率はわずか1.2%にとどまり、おなじ材料の組み合わせで報告されている面直電流型磁気抵抗(CPP-GMR)比にくらべても一桁低い値しか得られない。一方、一般的に使用されているCoFeを強磁性層として用いたデバイスと比較した結果、CFASの高い抵抗率のために大部分の電流がAg層を流れ、スピン依存伝導を示す電子の比率が下がり、その結果MR比が下がると結論された。

第4章では、ホイスラー合金以外の強磁性層で CIP-GMR素子のMR比を改善する方法を検討した。Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>/Cu/Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>/IrMn (x = 0.10, 0.25, 0.50, 0.67, 1) スピンバルブを作製し、非磁性層Cuとの組み合わせでCoFe合金の組成がCIP-GMR値に及ぼす影響を調査した。その結果、Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/Cu/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/IrMnで最大26.5%という大きなMR比が得られた。そのメカニズムを解明するために素子微細構造を電子顕微鏡観察を行った結果、最高のMR比が得られた素子においては、bcc-Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>の間に挿入されたCuは安定なfcc構造をとらず、準安定なbcc構造をもっていることが判明した。この準安定bcc-Cuの格子定数はbcc-CoFeとほぼ同じであり、その結果bcc-CuはCoFe/Cu界面でミスフィット転位などの界面欠陥なしに完全整合に成長したことが判明した。さらに、スピン依存性透過率の計算により、bcc-Cuとbcc-CoFeは高度にバンドマッチしており、これらがCo<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/bcc-Cu/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/IrMnスピンバルブの大きなMR比をもたらしていることが明らかになった。

第5章ではCo<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/bcc-Cu/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>構造での高いMR比を活用してCIP-GMR素子としての磁界感度を高めるために、Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>磁性層を軟磁性化するための材料組成最適化の結果が報告されている。Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>強磁性層は比較的高い磁歪を持つために、磁化反転に際して大きなヒステリシスを伴う。Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>強磁性層を軟磁性化するためにNiを合金化した(CoFe:Ni=80:20)。ピン層とフリー層の両方でNiを合金化したことにより、フリー層の保磁力は65 Oeから30 Oeと半減したが、MR比もCoFe/Cu/CoFeの20.8%からCoFeNi/Cu/CoFeNiの11.2%に低下した。STEM観察結果によると、この低下は、Cu層周辺の結晶性の劣化と電子バンドマッチングの低下に起因していると結論づけられた。第6章では、上記のエピタキシャル成長による素子が全て(001)MgO単結晶基板という、実用転用不可能な基盤を用いた概念実証に止まっていることから、その実用性を検討するためにSiウェーハーに上記素子の作製を試みた結果を報告している。先行研究に基づき、フッ酸エッチングを行ったSi基板にNiAlシード層をエピタキシャル成長させ、その上にbcc-CoFe/bcc-Cu CIP-GMR素子を成長させた。シード層成長について種々の実験検討を行い、下地層にNiAl/CoFe/MgOを用いた素子で室温最大15.6%のMR比を得た。なお、MgO基板を用いたオリジナルのスピンバルブ素子は20.8%であった。このMR比の違いは、デバイス内部にbcc-CuではないCuの余分な相が存在していることに起因していることが、微細構造の解析から示唆された。今後Cuの膜圧などを制御することにより、完全なbcc-Cuスペーサ層を成長できれば、MgO基板にエピタキシャル成長させて作製された素子と同等のMR比が達成できると期待される。

第7章では本研究で得られた結果をまとめ、将来展望が論じられている。

## 審 査 の 要 旨

### [批評]

本論文では高感度磁界センサーとして磁界感度の向上が望まれているCIP-GMR素子のMR比に注目し、定量的な理論が欠落しているCIP-GMR素子の強磁性・非磁性材料の組み合わせを格子・バンド整合という観点で材料科学的に検討した結果が報告されており、これまで殆ど材料的な知見のなかったCIP-GMRのMR特性の向上のための材料工学的に新規な知見が加えられており、工学的な価値型界と判断される。

### [最終試験結果]

令和4年2月18日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

### [結論]

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。