

平成 29 年 5 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13949

研究課題名(和文) スピン流計の実現

研究課題名(英文) Exploration of giant spin Hall effect in oxides for spin current detectors

研究代表者

藤原 宏平 (Fujiwara, Kohei)

東北大学・金属材料研究所・講師

研究者番号：50525855

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：電荷の流れを伴わないスピン流が次世代デバイスの基幹原理として注目されている。本研究では、スピン流の電氣的検出を可能にする逆スピンホール効果に着目し、その起源であるスピン軌道相互作用の強い導電性酸化物の高品質薄膜作製に取り組んだ。さらに、静電キャリアドーピングにより、絶縁性酸化物表面に2次元電子系を誘起するための技術として、電界効果トランジスタ用ゲート絶縁膜の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：Devices based on dissipation-less spin currents have been attracting much attention as key components in next-generation electronics. To incorporate these devices into existing electronics, electrical generation and detection of spin currents are essential. In this work, we focused on inverse spin Hall effect, which converts spin current into electric current (voltage) via spin-orbit coupling induced scattering. We prepared epitaxial thin films of a heavy element based conductive oxide and characterized their transport properties. Also, we fabricated a high-k oxide/polymer hybrid gate dielectric for field-effect control of surface conduction in insulating oxides and demonstrated its superior carrier doping properties for oxide materials.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：スピン軌道相互作用 電界効果トランジスタ

### 1. 研究開始当初の背景

電子のスピン自由度を積極的に利用するデバイス技術はスピントロニクスと呼ばれる。特に近年、電流レスのスピン流の応用を目指して、スピン流の電気的生成・検出が盛んに研究されている。それを可能にする現象としてスピンホール効果が知られる。原子番号が大きい金属 (Pt など) では、電子のスピンと軌道運動を結びつけるスピン軌道相互作用が働き、伝導電子に対して有効磁場として作用することで、印加電界 (// 電流) に対して垂直方向にスピン流を生み出す [A. Hoffmann, *IEEE Trans. Mag.* **49**, 5172 (2013)]。逆過程である逆スピンホール効果を用いればスピン流から電圧を取り出すこともできる [E. Saitoh *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 182509 (2006)]。これらスピン流・電流・電圧間の相互変換において、高い変換効率を実現することが重要課題となっている。Pt などの貴金属 (あるいは重元素金属) は、 $\mu\Omega$  cm オーダーの低い電気抵抗率を示し、電流・電圧からスピン流を効率的に生成することができる (スピンホール効果)。一方で、逆スピンホール効果による起電力は、電気抵抗率に比例するため、高い電気抵抗率が好ましい。申請者は、導電性酸化物である二酸化イリジウム  $\text{IrO}_2$  が強いスピン軌道相互作用と高い電気抵抗率を同時に満たす 5d 伝導バンドを持つことに着眼し、「スピン流計」としての性能指数であるスピンホール抵抗率 (= 電気抵抗率  $\times$  スピンホール角; 後述) が金属の数十倍に達することを見出した [K. Fujiwara *et al.*, *Nature Commun.* **4**, 2893 (2013)]。

### 2. 研究の目的

上記発見に基づき、巨大スピンホール抵抗率を示す候補物質として、本研究では酸化物系を探索する。プロジェクト構想当初は、イリジウムと同じく 5d 遷移金属であるタングステンなどの酸化物のみをターゲットとしていたが、代表者の異動に伴う研究実施体制の変化に対応する形で、他の遷移金属酸化物および重い典型元素酸化物を加えた。これら酸化物も、強いスピン軌道相互作用と金属に比べて高い電気抵抗率を示すため、巨大スピンホール抵抗率が期待できる。

電気を通さない絶縁性酸化物についても、キャリアドーピングにより電気伝導性を持たせることができれば、スピンホール効果・逆スピンホール効果測定の対象になりうる。そこで、絶縁性酸化物表面に 2 次元電子系を形成する手法として、電界効果トランジスタ構造を用いた静電キャリアドーピングに着目した。本研究では、様々な酸化物に適用可能なゲート絶縁体を開発する。

これらの実験を通して、巨大スピンホール抵抗率の実現に向けた基盤技術を構築し、新たな候補物質系としての酸化物のポテンシャルを実証することを目指す。

### 3. 研究の方法

逆スピンホール効果測定の対象となる酸化物単結晶薄膜および電界効果トランジスタを作製する。

#### (1) パルスレーザー堆積法による酸化物単結晶薄膜の作製と評価

スピンホール抵抗率は、スピン軌道相互作用による電子散乱の強さを示すスピンホール角と電気抵抗率の積で与えられる。結晶方位が揃っていない多結晶や欠陥を多く含む結晶では、外因的な電子散乱成分が大きく寄与するため、基礎的な物性評価には単結晶膜が適している。そこで、パルスレーザー堆積法を用いて単結晶基板上に、高品質な酸化物単結晶薄膜の作製を行う。作製した薄膜に対し、X 線回折による結晶性評価および電気輸送測定を行う。

#### (2) ゲート絶縁膜の作製と電界効果トランジスタの特性評価

電界効果トランジスタは、ゲート絶縁体の電荷蓄積を原理とするデバイスであり、様々な応用に加えて、電気的物性制御の手法として近年注目を集めている。酸化物に適したゲート絶縁膜の探索は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  スパッタ膜の報告 [K. Ueno *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1755 (2004)]以降、活発に進められており、high- $k$  酸化物単結晶膜が良好な特性を示すことが知られている [K. Shibuya *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 425 (2004)]。より大きな電気容量 (大きな電荷蓄積効果が得られる) を持つデバイスとして、電解質やイオン液体の電気二重層を利用した電気二重層トランジスタも、その有用性が実証されている [K. Ueno *et al.*, *Nature Nanotech.* **6**, 408 (2011)]。一方で、前者の固体ゲート絶縁膜では、成膜プロセスに伴うチャネル表面での欠陥生成 (酸素欠損など) やエピタキシャル成長のための格子定数マッチングの必要性、後者では、電気化学反応の発生が問題となっている [J. Jeong *et al.*, *Science* **339**, 1402 (2013)]。本研究では、多様な酸化物上に形成可能な有機ポリマー絶縁体パリレンに着目し、最近報告された high- $k$  酸化物絶縁体 / パリレンの二層絶縁膜構造の作製と電界効果トランジスタへの応用を進める [A. B. Eyvazov *et al.*, *Sci. Rep.* **3**, 1721 (2013)]。

### 4. 研究成果

(1) ペロブスカイト型 Pb 酸化物半金属である  $\text{BaPbO}_3$  を対象に、高品質薄膜の作製を試みた。 $\text{BaPbO}_3$  は  $\text{SrTiO}_3(001)$  基板上にエピタキシャル成長することが報告されている [宮川 他, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 13p-2H-10 (2015)]、 $\text{SrTiO}_3$  の格子定数  $3.905 \text{ \AA}$  に対して、 $\text{BaPbO}_3$  は格子定数が  $4.28 \text{ \AA}$  と大きく、格子定数マッチングの点で改善の余地があった。そこで、申請者が別プロジェクトで開発を進めていた、

BaSnO<sub>3</sub>/Sr<sub>0.5</sub>Ba<sub>0.5</sub>SnO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>(001) への成膜を行った[K. Fujiwara *et al.*, *AIP Adv.* **6**, 085014 (2016)]. ペロブスカイト型 BaSnO<sub>3</sub> は、BaPbO<sub>3</sub> に比較的近い格子定数 4.116 Å をもつ。上記構造では、BaSnO<sub>3</sub> はバルク値に近い面内格子定数をもつ。また、高い絶縁性を示すことから、電気特性評価用の下部構造として適している。これを“基板”に用いて蒸着した BaPbO<sub>3</sub> 薄膜は、SrTiO<sub>3</sub> 基板上に直接成長した試料と比較して、結晶性が向上することを X 線回折測定から明らかにした(図 1)。作製した薄膜は、300 K において 0.1–1 mΩcm の電気抵抗率を示した。この値は、多結晶および非晶質 IrO<sub>2</sub> と同程度であり、単結晶膜であることを考慮すると高い値といえる。さらに、低温で磁場印加測定を行ったところ、スピン軌道相互作用が強い系に特徴的な磁気抵抗効果を観測した。

また、微細素子構造への展開に向けて、アルゴンイオンミリングを用いた加工条件を調査した。当初目標であったナノ細線構造における逆スピンホール効果測定には至らなかったが、典型元素系も巨大スピンホール抵抗率を探索する上で有望な物質系であることを示唆する結果を得ることができた。

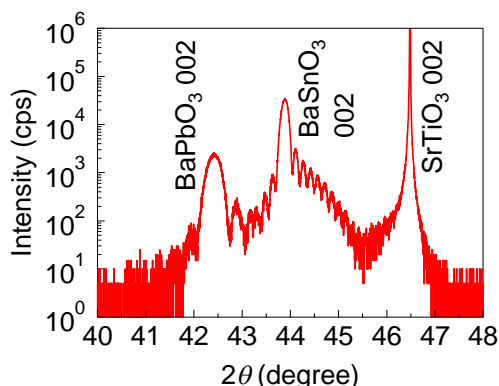


図 1. BaSnO<sub>3</sub>/Sr<sub>0.5</sub>Ba<sub>0.5</sub>SnO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>(001) 上 BaPbO<sub>3</sub> の X 線回折パターン。

(2) パリレンは、化学気相輸送法により、試料自体を加熱することなく、室温下でコーティングすることができる。しかしながら、比誘電率が約 3 と小さいため、誘起電荷密度が限られていた。High-*k* 酸化物絶縁体/パリレンの二層ゲート絶縁膜を SrTiO<sub>3</sub> 単結晶チャンネルに応用した前出の報告は、この問題に対するアプローチの一つとして魅力的である。本研究では、電界効果トランジスタ構造において、スピン軌道相互作用誘起の伝導現象が観測されている KTaO<sub>3</sub>[H. Nakamura and T. Kimura, *Phys. Rev. B* **80**, 121308(R) (2009)]への二層ゲート絶縁膜応用を進めた。High-*k* 酸化物層には、比誘電率~21 をもつ Y ドープ Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>[H. Fujikawa and Y. Taga, *J. Appl. Phys.* **119**, 034502 (2016)]を採用し、室温スパッタ成膜を行った。Y ドープ Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> およびパリレン両層の膜厚を変化させた二

層絶縁膜の電気容量を測定し、その値が両層の直列合成容量で説明できることを確認した。両層の合計膜厚一定の条件下では、二層ゲート絶縁膜はパリレン単体よりも大きい電気容量を示す。次に、この二層ゲート絶縁膜を KTaO<sub>3</sub> 単結晶表面に形成した電界効果トランジスタを評価し、増加した電気容量を反映して、小さいゲート電圧でトランジスタ動作が可能であることを実証した(発表文献)。

上記ゲート絶縁膜では、誘起可能なキャリア密度は mid-10<sup>12</sup> cm<sup>-2</sup>であったが、パリレン層の膜厚低減および high-*k* 酸化物層の比誘電率増加によって、この値は向上することができる。パリレン層の膜厚が nm オーダーの領域においては、精密な膜厚制御が不可欠となる。そこで、化学気相輸送装置内のパリレン膜厚分布を評価し、膜厚の再現性を高める改良を施した。また、Y-Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> よりも高い比誘電率を示す high-*k* 酸化物の検討を行った。パリレン上に室温堆積可能な候補物質に対して、スパッタ成膜を試みた。リーク電流の存在により、詳細な電気特性は評価できなかったが、成膜条件の最適化により、二層ゲート絶縁膜としての応用が可能になると考えている。

物質系とデバイス構造の拡張を目指した実験を実施した。以上の成果により、酸化物系における巨大スピンホール抵抗率の実現に向けた研究が前進するものと期待している。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(雑誌論文)(計 2 件)

T. Wei, T. Kanki, K. Fujiwara, M. Chikanari, and H. Tanaka, Electric field-induced transport modulation in VO<sub>2</sub> FETs with high-*k* oxide/organic parylene-C hybrid gate dielectric, *Applied Physics Letters* **108**, 053503-1-4 (2016). [査読有]  
DOI: 10.1063/1.4941233

T. Wei, K. Fujiwara, T. Kanki, and H. Tanaka, Impact of parylene-C thickness on performance of KTaO<sub>3</sub> field-effect transistors with high-*k* oxide/parylene-C hybrid gate dielectric, *Journal of Applied Physics* **119**, 034502-1-4 (2016). [査読有]  
DOI: 10.1063/1.4940387

(学会発表)(計 2 件)

藤原 宏平, 金属酸化物ナノ構造を用い

た新機能素子の開発, 電気学会 フレキシブルコーティング技術調査専門委員会 (東京大学、東京 2016 年 7 月)

藤原 宏平, 金属酸化物ナノ構造を用いた新機能素子の開発, 第 130 回東北大学金属材料研究所講演会 (東北大学、仙台市 2015 年 11 月)

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

藤原 宏平 (FUJIWARA, Kohei)  
東北大学・金属材料研究所・講師  
研究者番号 : 50525855