

令和元年6月7日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K14391

研究課題名(和文) ナノ微結晶ダイヤモンド膜へのスピン注入

研究課題名(英文) Spin injection to nanodiamond films

研究代表者

吉武 剛 (Yoshitake, Tsuyoshi)

九州大学・総合理工学研究院・准教授

研究者番号：40284541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ナノダイヤモンド内のスピン拡散長を明らかにすることを目的として研究を行った。Si(111)基板の上にスパッタリング法でFe₃Si層をエピタキシャル成長した後、超ナノ微結晶ダイヤモンド(UNCD)膜を同軸型アークプラズマ堆積法で堆積し、最上層にFe層をスパッタリング法で堆積してFe/UNCD/Fe₃Si構造とした。試作したNCD層厚60 nmの試料で、磁化曲線から強磁性層間の平行・反平行状態の実現、さらにはそれに対応したスピンバルブ信号を室温で観測した。また、電子線リソグラフィーを用いたリフトオフ法により横型スピンバルブ素子の作製も実現し、局所配置によりスピンバルブ信号の観測に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子番号が小さいほどスピン軌道相互作用は小さく、軽元素ほど長いスピン拡散長が期待され、カーボンから成るグラフェンやカーボンナノチューブが1 μm以上のスピン拡散長を期待されて活発に研究されているが、ダイヤモンド系材料に関する研究はまだ殆ど無かった。そこで、ナノダイヤモンド(NCD)半導体を中間層としたスピンバルブ素子を作製して、ナノダイヤモンド内のスピン拡散長を明らかにすることを目的として研究を行った。マスク法により縦型構造の、電子線リソグラフィーを用いて横型構造のスピンバルブ素子の作製を実現して、スピンバルブ信号の観測に成功した。ダイヤモンドのスピン트로ニクスへの展開の第一歩といえる。

研究成果の概要(英文)：The spin diffusion length in nano diamond was investigated in this work. After an Fe₃Si layer is epitaxially grown on a Si(111) substrate by sputtering, an ultrananocrystalline diamond (UNCD) film is deposited by coaxial arc plasma deposition, and an Fe layer is deposited by sputtering on the top layer. For the resultant Fe/60 nm UNCD/Fe₃Si structure, spin valve signals corresponding to parallel and antiparallel alignments between the ferromagnetic layers were observed at room temperature. We also realized the fabrication of a lateral-type spin valve device by lift-off method using electron beam lithography, and succeeded in observing spin valve signals in local arrangement.

研究分野：応用物理

キーワード：ナノダイヤモンド スピンバルブ スピン注入 局所配置 非局所配置 スパッタリング 同軸型アークプラズマ堆積法

1. 研究開始当初の背景

巨大磁気抵抗 (giant magnetoresistance : GMR) 効果の発見以降、電子の「電荷」と「スピン」の両性質を利用するスピントロニクスに関する研究は、既に実用化されているハードディスクの GMR ヘッドをはじめとし、飛躍的な進歩を遂げている。GMR 素子やトンネル磁気抵抗 (tunnel magnetoresistance : TMR) 素子が、それぞれ非磁性スペーサ層に非磁性金属、絶縁体を用いられるのに対し、半導体材料を用いることで既存のエレクトロニクスとの融合を指向した半導体スピントロニクスが近年関心を集めている。その半導体スピントロニクスの応用の一つとして、ソース/ドレイン電極に強磁性金属を用いたスピントランジスタがある。ソース/ドレイン間の平行/反平行磁化配列を活用することでドレイン電流の制御が可能となるため、従来のトランジスタに比べ処理情報量が増加し、現在直面する半導体集積の限界を打破できると期待されている。強磁性金属からの電気的スピン注入による半導体中のスピン伝搬が極めて重要な要素技術となる。Fe や Ni 及びその合金に代表される強磁性金属から、Si や Ge などの単結晶半導体基板中にスピン偏極電子を注入し、制御する研究が活発に進められている。一般的に、スピン伝搬材料において、軽元素で構成される材料ほどスピン軌道相互作用が弱く、長いスピン拡散長が期待される。カーボンから成るグラフェンやカーボンナノチューブが $1 \mu\text{m}$ 以上のスピン拡散長を期待されて活発に研究されているが、ダイヤモンド系材料に関する研究はまだ殆ど無い。

2. 研究の目的

我々はこれまでに鉄シリサイド系材料を用いたスピントロニクスに関する研究を行うと同時に、光電変換素子の創製へ向けた超ナノ微結晶ダイヤモンド (ultrananocrystalline diamond : UNCD) の半導体物性も調査してきた。他のダイヤモンド系材料は、プロセス面での制約が多いのに対して、UNCD に関しては、①ホウ素 (B) や窒素 (N) の添加による伝導型の制御、②異種基板に低温成長可能、などの特長を持ち合わせている。そこで、本研究では、これまでのスピントロニクスに関する研究で得た知見を基に、UNCD 膜を用いたスピンバルブ素子を作製および評価することにより UNCD 膜中の室温スピン伝搬に取り組んだ。

3. 研究の方法

マスク法にて、Fe/UNCD/Fe₃Si 縦型スピンバルブ素子を作製した。作製手順として、まず最初に Fz-p Si(111)基板を有機洗浄した後、対向ターゲット式直流スパッタリング (facing targets direct-current sputtering : FTDCS) にて Fe₃Si を成膜した。その試料上に同軸型アークプラズマ堆積 (coaxial arc plasma deposition : CAPD) 法により B 添加 UNCD を成膜した後、再び FTDCS を用いて Fe を成膜した。この UNCD 膜は、10 at.% 含有グラファイトターゲットを用いて成膜したため、p 型に伝導型を制御した UNCD 膜となる。成膜時の基板温度は Fe₃Si と B 添加 UNCD 層を 300 °C、Fe 層を室温とした。スピンバルブ素子の結晶構造及び微細構造を X 線回折 (X-ray diffraction : XRD)、透過型電子顕微鏡 (transmission electron microscopy : TEM) でそれぞれ評価した。磁化曲線は、試料振動型磁力計 (vibrating sample magnetometer : VSM) を用いて、磁場を素子面内かつ底部 Fe₃Si 層と平行に印加した。また、局所スピンバルブ信号の観測については、図 1 に示す回路を組み、室温にて VSM により磁場を印加しながら電気抵抗を測定する事で行った。注入電流は 10 mA で一定とした。

4. 研究成果

図 2 に、Fe(100 nm)/p-UNCD(10 nm)/Fe₃Si(100 nm)素子の XRD 測定結果を示す。2θ測定から、Fe₃Si-222 と Fe-200 に起因するピークが発現した。前者は、Fe₃Si 層が Si(111)基板上でエピタキシャル成長しているということ、後者は Fe 層が多結晶膜であることを示している。

そのスピンバルブ素子の断面微細構造を評価するために、断面 TEM 像を図 3 に示す。p-UNCD 中間層は最上層の Fe と最下層の Fe₃Si の間にレイヤー構造として形成されている。一般的には、活発な相互拡散により、Fe や C、Si 原子からなる積層構造の形成は困難と考えられている。しかしながら、我々は CAPD 法を含む低温プロセスにより、その形成に成功した。

室温中にて測定した磁化曲線を図 4 に示す。印加磁場の掃引に伴い、二つの段差を持った特異なヒステリシスループが観測された。これは、磁場印加に対して最上層の Fe と最下層の Fe₃Si 強磁性層間の保持力差に起因した磁化の平行/反平行配列の形成を示唆している。保持力には、材料固有の保持力だけでなく結晶性も寄与していることから、素子内の Fe₃Si 層と Fe 層の結晶性における差異は保持力差の拡大を促進させている。以上のことから、p-UNCD 膜は構造的かつ磁氣的

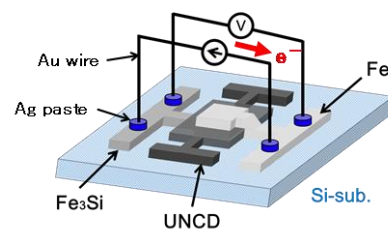


図 1. スピンバルブ効果の測定方法

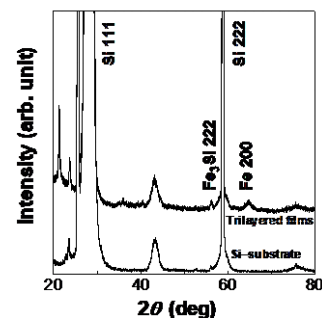


図 2. Fe(100 nm)/p-UNCD(10 nm)/Fe₃Si(100 nm)素子の XRD 測定結果

にも強磁性層間を分け隔て、非磁性スペーサ中間層として機能するということが判明した[4]. 同様のプロセスで Fe(100 nm)/p-UNCD (60 nm)/Fe₃Si(100 nm)素子を作製し、室温で磁場掃引を伴いながら電流注入を行った結果、図 5 に示すように、強磁性層間での反平行磁化配列の形成に応じて電気抵抗が増加する局所スピバルブ信号を観測した. スピントランジスタ実現には室温での議論が不可欠であるが、スピン電子のフォノン散乱を避けるために未だ低温域での研究報告が多い. 一方で、我々が得た結果は Fe からスピンが注入され、UNCD 膜中をスピンが室温で伝搬したことを実証している.

上記の縦型素子に加えて、スピントランジスタの実現の第一歩として、UNCD 膜上の電極間に微細なギャップ幅を有した横型スピバルブ素子の創製にも取り組んだ. 図 6 に示すように、約 100 nm のギャップ幅は、電子線リソグラフィーにより作製したレジスト細線パターンをリフトオフすることで形成した. 既に 200 nm ~ 1 μm 幅の形成にも展開出来ることを実証し、今後の研究展開の基盤を築いた.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

Hiroki Ishimoto, Kazuki Kudo, Tetsuo Tabei, Kazushi Okada, Shinji Yamada, Tadashi Sato, Ken-ichiro Sakai, and Tsuyoshi Yoshitake

Fabrication of lateral-type spin-valve comprising FeSi₂ spin-transfer layers by electron beam lithography

to be published in J. Phys. Conf. Series

Kazuki Kudo, S. Takeichi, K. Nakashima, K. Sakai, M. Nishijima and T. Yoshitake

Structural Evaluations of Fe/Boron-Doped Carbon/Fe₃Si Spin-Valve Junctions

Proceedings of 11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (ALC17) (2017) pp. 64-66.

Kazuki Kudo, Satoshi Takeichi, Kazutoshi Nakashima, Ken-ichiro Sakai, and Tsuyoshi Yoshitake

Magnetoresistance effects in Fe/nanodiamond/Fe₃Si trilayered junctions at room temperature

Proceedings of the Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology (2017) pp. 202-203.

Kazuki Kudo, Kazutoshi Nakashima, Satoshi Takeichi, Rezwan Ahmed, Seigi Mizuno, Ken-ichiro Sakai, Masahiko Nishijima, and Tsuyoshi Yoshitake

Film Structures of Fe/B-doped Carbon/Fe₃Si Spin Valve Junctions

JJAP Conf. Proc., Vol. 5, 011502 (2017)

doi:10.7567/JJAPCP.5.011502

Rezwan Ahmed, Kazuki Kudo, Satoshi Takeichi, Ken-ichiro Sakai, Masahiko Nishijima, Tsuyoshi Yoshitake, and Seigi Mizuno

Fabrication of spin valve junctions comprising Fe₃Si/B-doped carbon/Fe trilayers

Proceedings of the 18th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science & Technology (2016) pp. 27-28.

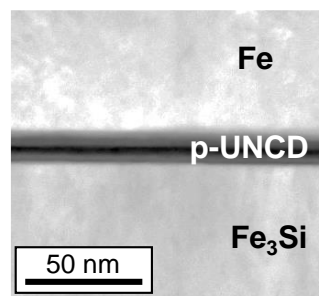


図 3. Fe(100 nm)/p-UNCD(10 nm)/Fe₃Si(100 nm)素子の(a)TEM 断面、(b)O マッピング像

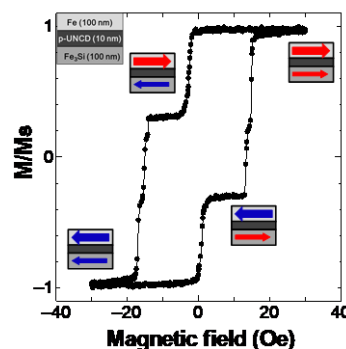


図 4. Fe(100 nm)/p-UNCD(10 nm)/Fe₃Si(100 nm)素子の磁化曲線

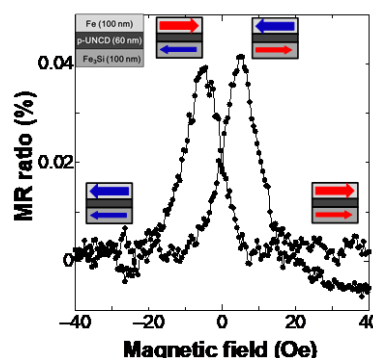


図 5. Fe(100 nm)/p-UNCD(60 nm)/Fe₃Si(100 nm)素子の磁気抵抗曲線

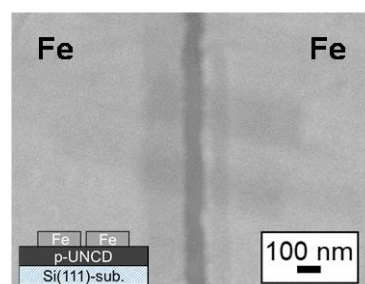


図 6. 横型スピバルブ素子内の Fe 電極間微細ギャップの SEM 像

[学会発表] (計 21 件)

ナノダイヤモンド半導体層から成るスピバルブ素子の作製と評価

坂井拓也, 石本浩起, 竹市悟志, 工藤和樹, 堺研一郎, 吉武剛

平成30年度応用物理学学会九州支部学術講演会, 平成30年12月8~9日, 福岡大学七隈キャンパス

[8Ba-12] oral

Fabrication of lateral type spin-valves comprising epitaxially-grown beta-FeSi₂ interlayers by electron beam lithography

Hiroki Ishimoto, Kazuki Kudo, Tetsuo Tabei, Ken-ichiro Sakai, Tsuyoshi Yoshitake

The 3rd Asian Applied Physics Conference, Dec 8-9, 2019, NaNakuma Campus of Fukuoka University.

[8Po-15] poster

電子線リソグラフィーを利用した Fe-Si 系横型スピバルブ素子の作製

吉武剛

第3回 広島大学・山口大学・香川大学・FAIS 合同シンポジウム, 平成30年12月4日, 小倉 AIM ビル

oral

Spin Injection into Epitaxially-Grown β -FeSi₂ in Lateral Structural Spin-Valves

Hiroki Ishimoto, Tetsuo Tabei, Ken-ichiro Sakai and Tsuyoshi Yoshitake

2018 MRS Fall Meeting & Exhibit, Nov 25 - 30, 2018, Boston, Massachusetts

[EP06.11.05] oral

石本 浩起, 田部 井哲夫, 岡田 和志, 堺 研一郎, 吉武 剛

電子線リソグラフィーによる横型スピバルブ素子の作製とエピタキシャル β -FeSi₂ 膜中の室温におけるスピ輸送長に関する調査

第10回半導体材料・デバイスフォーラム, 平成30年10月20日, 熊本市, [O-5] oral

堺 研一郎, 石本 浩起, 田部井 哲夫, 吉武 剛

電子線リソグラフィー法による横型スピバルブ素子の創製とエピタキシャル beta-FeSi₂ 層への電氣的スピ注入

2018年第79回応用物理学学会秋季学術講演会, 2018年9月18-21日, 名古屋国際会議場

[20a-PA4-10] poster

Fabrication of lateral spinvalves comprising FeSi₂ spin-transfer layers by electron beam lithography

H. Ishimoto, K. Kudo, K. Sakai, and T. Yoshitake

The 2nd Asian Applied Physics Conference (Asian-APC), December 1-2, 2017, Miyazaki Kanko Hotel, Miyazaki, Japan.

poster, 2EPo-10

局所2端子型スピバルブ効果による半導体 FeSi₂ の室温スピ輸送長に関する研究

石本 浩起, 工藤 和樹, 堺 研一郎, 西嶋 雅彦, 吉武 剛

平成29年度応用物理学学会九州支部学術講演会, 平成29年12月2~3日, 宮崎観光ホテル, 宮崎

oral, 2Ca-4

室温下における鉄シリサイド半導体 FeSi₂ 中への純スピ流の生成

堺研一郎, 浅井勇輝, 石橋和也, 西嶋雅彦, 吉武剛

平成29年度応用物理学学会九州支部学術講演会, 平成29年12月2~3日, 宮崎観光ホテル, 宮崎

oral, 2Ca-3

Magnetoresistance effects in spin-valves comprising N-doped carbon interlayers

Kazuki Kudo, Satoshi Takeichi, Kazutoshi Nakashima, Ken-ichiro Sakai, Tsuyoshi Yoshitake

11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (ALC17), December 3-8, 2017, Aqua Kauai Beach Resort, Kauai, Hawaii, USA.

poster, 4p-P-11

Structural evaluations of Fe/boron-doped carbon/Fe₃Si spin-valve junctions

Kazuki Kudo, Satoshi Takeichi, Kazutoshi Nakashima, Ken-ichiro Sakai, Masahiko, Nishijima, Tsuyoshi Yoshitake

11th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '17 (ALC17), December 3-8, 2017, Aqua Kauai Beach Resort, Kauai, Hawaii, USA.
poster, 4p-P-3

Magnetoresistance effects in Fe/nanodiamond/Fe₃Si trilayered junctions at room temperature
Kazuki Kudo, Satoshi Takeichi, Kazutoshi Nakashima, Ken-ichiro Sakai, and Tsuyoshi Yoshitake
Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science and Technology, November 29-December 1, 2017, Chikushi Campus, Kyushu University, Japan.
poster

鉄シリサイド系スピバルブ素子によるスピン流の生成と検出
堺 研一郎、浅井 勇輝、石橋 和也、西嶋 雅彦、吉武 剛
第78回応用物理学会秋季学術講演会, 2017年9月5-8日, 福岡国際会議場・福岡国際センター・福岡サンパレスホテル, 福岡
oral, 7a-C13-4

Magnetoresistance effects in Fe/B-doped carbon/Fe₃Si trilayered spin valve junctions
Kazuki Kudo, Kazutoshi Nakashima, Satoshi Takeichi, Ken-ichiro Sakai, Masahiko Nishijima, and Tsuyoshi Yoshitake
9th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spin TECH IX), Jun. 4-8, 2017, Fukuoka International Congress Center, Fukuoka, Japan
poster, A-177

Spin valve effects in trilayered films comprising nitrogen-doped carbon interlayers
Satoshi Takeichi, Kazutoshi Nakashima, Kazuki Kudo, Ken-ichiro Sakai, and Tsuyoshi Yoshitake
9th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spin TECH IX), 4-8th June, 2017, Fukuoka International Congress Center, Fukuoka, Japan.
poster, A-178

工藤 和樹, 中嶋 一敬, 竹市 悟志, 堺 研一郎, 吉武 剛
ナノダイヤモンド中間層からなるスピバルブ素子の創製とその評価
平成28年度応用物理学会九州支部学術講演会, 平成28年12月3~4日, 対馬市交流センター, 長崎
3Fp-12 oral

Kazutoshi Nakashima, Kazuki Kudo, Satoshi Takeichi, Ken-ichiro Sakai, and Tsuyoshi Yoshitake
Spin valves comprising nitrogen-doped carbon interlayers
The 18th Cross Straits Symposium on Energy and Environmental Science & Technology, Dec 4-6, 2016, Shanghai Jiao Tong University, China
C10, oral

中嶋 一敬, 工藤 和樹, 竹市 悟志, 堺 研一郎, 吉武 剛
Fe/UNCD/Fe₃Si スピバルブ素子における電気・磁気特性
第8回半導体材料・デバイスフォーラム, 平成28年11月5日, 熊本市
P-4 poster

Kazuki Kudo*, Satoshi Takeichi, Hirokazu Kishimoto, Ken-ichiro Sakai, Hiroyuki Deguchi, and Tsuyoshi Yoshitake
Fe/boron-doped Ultrananocrystalline Diamond/Fe Trilayered Spin Valve Junctions
Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials Science and Technology Towards Sustainable Electronics (APAC Silicide 2016), July 16--18, 2016, Nishijin Plaza, Kyushu University, Fukuoka, Japan.
(poster: 17-P36)

Kazuki Kudo*, Kazuya Ishibashi, Kazutoshi Nakashima, Yuki Asai, Ken-ichiro Sakai, Hiroyuki Deguchi, and Tsuyoshi Yoshitake
Temperature-Dependent Magnetoresistance Effects in Fe₃Si/FeSi₂/Fe₃Si Trilayered Spin Valve Junctions
Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials Science and Technology Towards Sustainable Electronics (APAC Silicide 2016), July 16--18, 2016, Nishijin Plaza, Kyushu University, Fukuoka, Japan.
(oral: 18-AM-VI-7)

Tsuyoshi Yoshitake*, Kazutoshi Nakashima, Kazuki Kudo, Kazuya Ishibashi, Yuki Asai, Ken-ichiro Sakai, and Hiroyuki Deguchi
Spin Valve Junctions Comprising Fe-Si Materials
Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials Science and Technology
Towards Sustainable Electronics (APAC Silicide 2016), July 16--18, 2016, Nishijin Plaza, Kyushu
University, Fukuoka, Japan.
(oral: 17-AM-III-2)

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

http://yoshitake.private.coocan.jp/univ_lab/index-j.htm

6. 研究組織