

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22413

研究課題名（和文）3C-SiCを用いた新たな化合物半導体スピントロニクスの開拓

研究課題名（英文）Investigation of 3C-SiC as a novel spintronic compound semiconductor

研究代表者

重松 英（Shigematsu, Ei）

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：00879265

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：この研究では、炭化ケイ素が現在半導体スピントロニクス分野で主要な研究対象であるシリコンやヒ化ガリウムの性質を合わせ持っていることに着目して、そのスピン流物性を解明することを目的とした。我々がすでに得ていたn型半導体SiCを用いた直流スピンポンピング法による常温スピン流輸送の成果に加えて、交流スピン流生成検出法を用いたスピン流電流変換物性の測定検証が行われた。さらに、実デバイス応用を見据えて、ナノスケール構造におけるスピン流の輸送生成特性を計算シミュレーションするための簡便な手法を開発して主著論文に著した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

この研究は半導体スピントロニクスの研究領域において主要な材料であるシリコンやヒ化ガリウムについての先行研究に立脚してあらたな材料分野を開拓することを企図したテーマである。具体的には以上の2つの材料について共通する性質を合わせ持つ炭化ケイ素に着目して、スピン流注入実験を行いスピントロニクス物性を解明することを目指した。このような実証実験を実現するためには半導体の微細構造におけるスピン流のふるまいを予め計算することが不可欠であり、その支配方程式であるスピン拡散方程式を実デバイス構造で演算する手法の構築に成功した。新規半導体材料を用いた実証実験を進めるための地歩を固めることができた。

研究成果の概要（英文）：In this study, we focused on silicon carbide as a spintronic material because it has properties of both silicon and gallium arsenide, which are currently major research targets in the field of semiconductor spintronics. Our goal is to clarify its spin transport properties. In addition to the results of room temperature spin transport using the DC spin pumping method with the n-type SiC, we had already obtained, we measured and verified the spin current conversion properties using the AC spin current generation and detection method. Furthermore, forwards practical device applications, we developed a simple method for calculating and simulating the spin transport and generation characteristics of nano-scale structures, which we described in the main authored paper.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 半導体

1. 研究開始当初の背景

半導体スピントロニクス領域では、既存のエレクトロニクスの基軸となっている Si を中心に、スピン流のチャネルとなる材料として新規物質が探求されてきた。その中でスピントロニクスにおける機能指標としては、スピン流を損失少なく伝搬させるスピンコヒーレンスの高い材料が望ましい。具体的にはスピン拡散長と呼ばれるスピン流が散逸される特性距離がその材料のスピントロニクス物性を特徴づける。

半導体におけるスピン散乱機構として Elliott-Yafet 機構と Dresselhaus 機構がある。前者は軽元素で構成される半導体においてはスピン拡散の源になるスピン軌道相互作用が抑制されるとし、後者は結晶の反転対称性がスピン軌道相互作用を低減させるとしている。これらは、軽元素でダイヤモンド構造である Si の高スピンコヒーレンスや、原子量が大きく閃亜鉛鉱型構造で構成される GaAs の大きなスピン軌道相互作用をよく説明している。ここで、この研究では、原子量の小さい C と Si で構成され閃亜鉛鉱型構造である 3C-SiC に着目して既存のモデルでは断定できないスピン流物性を実験の側面から解明することを目指した。

2. 研究の目的

研究の目的は、半導体スピントロニクスの材料として着目した 3C-SiC について、スピン流輸送物性、さらにはスピン流電流変換物性を実験的に検証することである。そのために、電気的スピン流輸送デバイスのプロセス開発を行った。また、そのプロセス開発の過程で、半導体/強磁性金属界面におけるナノスケールのスピン流注入物性を詳細に検討する必要が出てきたことから、半導体において顕著に現れるゼーベック効果やペルチェ効果、さらにスピン依存ゼーベック効果などを考慮した上で、3次元空間においてスピン拡散方程式を解く手法を開発した。

3. 研究の方法

3C-SiC のスピンコヒーレンスを実験的に実証するためには、「電気的スピン流輸送デバイス」の作製が必要となる。これは、図 1 に示すように、3C-SiC をチャネルとして金属強磁性体/半導体 3C-SiC 界面として電気的スピン流注入を行いつつ、チャネル間に拡散的に輸送されたスピン流をもう一方の金属強磁性体におけるスピン蓄積電圧として観測するというものである。「電気的スピン流輸送デバイス」を作製した。100nm のハイドープ n 型 3C-SiC エピタキシャル層つき基板を用意した。Si を使用した先行研究では、基板上的デバイス間の伝導層をミリング等によって削ることにより、チャネル形成を行っている。しかしながら、SiC はモース硬度が大きく化学的にも安定であるため、この手法をそのまま適用することではできない。そこで、3C-SiC 層上面全体にアモルファス SiO₂ 層をスパッタリングにより堆積して、反応性イオンエッチングにより、スピン流注入・検出電極にかかる部分のみ孔を空けるという手法を採った。このためには、反応性イオンエッチング装置において CF₄ ガスによる SiO₂ と SiC のエッチング選択比を同定する必要があった。このために、SiC 基板の上に SiO₂ を堆積させた試料に反応時間を変えながら反応性イオンエッチングを施し、原子間力顕微鏡によって SiO₂ が完全に削り取られる反応時間を決定した。その後、そのエッチング条件を用いて、SiO₂ を堆積した SiC 基板の上に強磁性体電極用孔を設置して、4端子型の電気的スピン流輸送デバイスを作製した。

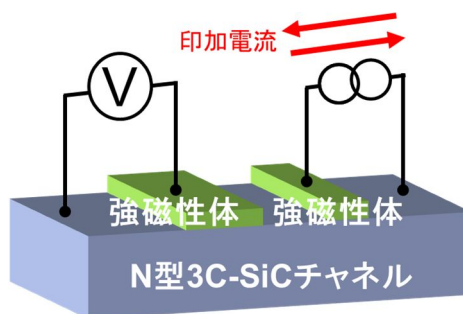
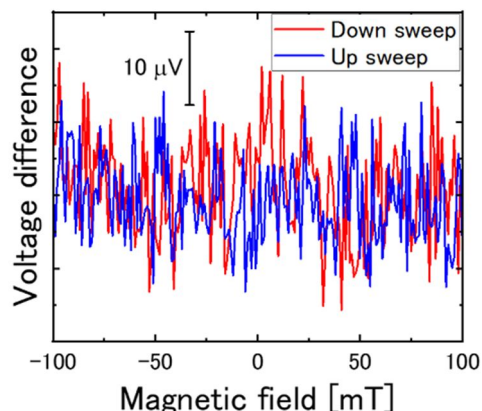


図 1: 作製した電気的スピン流輸送デバイスの模式図。

4. 研究成果

測定においては、先行研究である n 型 Si を用いた電気的スピン流輸送デバイスにおいて、低温であるほどフォノンによるキャリア散乱に伴うスピン散逸が低減して信号強度が大きくなるという知見が得られているので、低温下で行った。冷却装置によって、4.2 K まで試料の温度を低下させて、電流外部静磁場を掃引しながら、スピン流注入側電極に正と負の電流を印加して測定を行った。正と負の電流印加方向によってチャネルに注入されるスピン流の偏極方向の符号は入れ替わる。検出側強磁性体電極で観測される電圧信号はそれにより反転するので、電流印加方

向の正負による信号の差を取り出すことでノイズ耐性の強い実験観測が可能となる。これにより得られた信号を図2に示す。Siにおける先行研究での観測信号と同レベルである $10\mu\text{V}$ レベルにノイズを低減することができたものの、明瞭な磁気抵抗信号を観測するには至らなかった。スピン輸送が想定通り観測できた場合は、注入側、検出側の磁気異方性の違いによる相対的な磁化の平行・反平行に応じた矩形の観測信号が期待されていた。本研究では、電気的スピン流輸送デバイスを SiO_2 マスクによる手法で作製して測定にいたったが、所望のスピン輸送を示唆する結果は得られなかった。



以上を踏まえて、デバイスジオメトリを含めた素子構造の抜本的改善が必要になることがわかった。以降の研究においては、その検討に資するスピン流分布の計算シミュレーション技法の開発に取り組んだ。

先行研究においては、固体物質中スピン流分布についての理論計算は、1次元モデルに基づいた解析的手法が主流であって、 SiO_2 マスクを用いた上記のデバイスのように空間的な広がりを持つ系では、有限要素解析による数値シミュレーションが不可欠となる。また、スピン軌道相互作用が十分に小さい系ではスピン拡散方程式を解けばよいが、本研究で対象としているスピン軌道相互作用が未知数である物質では、これに伴うスピン流電流変換を考慮する必要がある。この場合、スピン拡散方程式の求解は一筋縄ではいかず、スピン角運動量保存則を表すスピン拡散方程式と電荷保存則を表すラプラス方程式が混合した2つの方程式を同時に数値的に解かねばならない。さらに特筆すべきは、半導体のようなキャリア密度が希薄でゼーベック係数が大きい物質においては、磁性体などのとの界面付近において、スピン依存ゼーベック効果やその逆効果であるスピンペルチェ効果を考慮することが必要である。以上の要件を考えた上で、2つの混合した偏微分方程式を解くプラットフォームとしてMATLABのPartial Differential Equation Toolboxを採用して、初めは直方体などの基本的な構造で数値計算の実証を行った。まず、非磁性体/磁性体/非磁性体構造のモデルにおいて、界面において、電流保存則、スピン流注入保存則を課して、電気的スピン流注入を再現することを確認した。この現象は3C-SiCを用いたデバイスで期待していた現象であり、そのナノスケールにおける振る舞いをシミュレートすることができた。さらに、半導体のように高いゼーベック係数を持つ物質については、磁性体との界面における電気的スピン流注入に加えてスピン依存ゼーベック効果による寄与を考慮すべきです。この効果を加えるために、2キャリアモデルに温度勾配成分を付加して、それらを一体として解くことにより、スピン依存ゼーベック効果によるスピン流注入ならびにその輸送を経た逆スピンホール効果による検出を計算上で再現するに至った。

図2：電気的スピン流輸送デバイスの温度4.2 Kにおける測定結果。

以上では、スピン偏極方向を量子化軸方向に固定した一般的な2キャリアモデルに基づいてきたが、異常ホール効果などスピン流電流変換にかかわる諸現象の角度依存などを数値計算により検証するためには、スピン偏極方向を一方向でなく、任意の方向に偏極させた状態でのシミュレーションが不可欠である。これについては、xyz方向についてスピン拡散方程式を解き、かつシミュレーションにおいては、モデル構造を軸回転させることでスピン流輸送やスピン流電流偏に関わる効果の角度依存を再現することができた。

以上のシミュレーションにおける成果は[E. Shigematsu et al., J. Appl. Phys. (2022)]に掲載された。このように、3C-SiC基板を用いた電気的スピン流輸送デバイスを実際に作成して、信号の測定には到達したが、明瞭なスピン流輸送を観測するには至らなかった。しかし、その結果得られた知見により、ナノサイズにおけるスピン流輸送物性の詳細かつ正確なシミュレーション計算が必要ながわかった。この方針の下、研究は半導体に顕著に起こることがわかっているスピン依存ゼーベック効果やスピンペルチェ効果を考慮した計算手法を確立するに至った。今後の課題としては、この手法を3C-SiCを用いたスピン流輸送デバイスの設計に活用して、定量的の高い電気的スピン流注入デバイスの完全動作を達成することである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Shigematsu Ei, Tamura Eiiti, Ohshima Ryo, Ando Yuichiro, Shiraishi Masashi	4. 巻 131
2. 論文標題 Full calculation of inter-conversion between charge, spin, and heat current using a common partial differential equation platform	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 243903 ~ 243903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0088343	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Aoki Motomi, Shigematsu Ei, Ohshima Ryo, Shinjo Teruya, Shiraishi Masashi, Ando Yuichiro	4. 巻 104
2. 論文標題 Coexistence of low-frequency spin-torque ferromagnetic resonance and unidirectional spin Hall magnetoresistance	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 94401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.094401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mae Sotaro, Ohshima Ryo, Shigematsu Ei, Ando Yuichiro, Shinjo Teruya, Shiraishi Masashi	4. 巻 105
2. 論文標題 Influence of adjacent metal films on magnon propagation in Y3Fe5O12	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104415
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.104415	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Aoki Motomi, Shigematsu Ei, Ohshima Ryo, Shinjo Teruya, Shiraishi Masashi, Ando Yuichiro	4. 巻 105
2. 論文標題 Current-induced out-of-plane torques in a single permalloy layer with lateral structural asymmetry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.144407	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Motomi Aoki, Ei Shigematsu, Masayuki Matsushima, Ryo Ohshima, Syuta Honda, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, and Yuichiro Ando	4. 巻 102
2. 論文標題 In-plane spin-orbit torque magnetization switching and its detection using the spin rectification effect at subgigahertz frequencies	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174442
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.174442	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 L. Leiva, S. Granville, Y. Zhang, S. Dushenko, E. Shigematsu, T. Shinjo, R. Ohshima, Y. Ando, and M. Shiraishi	4. 巻 103
2. 論文標題 Giant spin Hall angle in the Heusler alloy Weyl ferromagnet Co ₂ MnGa	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B (Letter)	6. 最初と最後の頁 L041114
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.L041114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Motomi Aoki, Ei Shigematsu, Masayuki Matsushima, Ryo Ohshima, Syuta Honda, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, and Yuichiro Ando	4. 巻 11
2. 論文標題 Enhancement of low-frequency spin-orbit-torque ferromagnetic resonance signals by frequency tuning observed in Pt/Py, Pt/Co, and Pt/Fe bilayers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 25206
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/9.0000066	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ei Shigematsu, Lukas Liensberger, Mathias Weiler, Ryo Ohshima, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Hans Huebl, and Masashi Shiraishi	4. 巻 103
2. 論文標題 Spin to charge conversion in Si/Cu/ferromagnet systems investigated by ac inductive measurements	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 94430
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.094430	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

[学会発表] 計4件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)

1. 発表者名 Motomi Aoki, Yuichiro Ando, Ei Shigematsu, Ryo Ohshima, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi
2. 発表標題 Spin rectification signal induced by the unidirectional spin Hall magnetoresistance
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Sotaro Mae, Ei Shigematsu, Ryo Ohshima, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi
2. 発表標題 Investigation of magnon absorption from Y3Fe5O12 into metals
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 青木 基、安藤 裕一郎、重松 英、大島 諒、新庄 輝也、白石 誠司
2. 発表標題 Current-induced out-of-plane torque in a single permalloy layer controlled by geometry
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 E. Shigematsu, L. Liensberger, M. Weiler, R. Ohshima, Y. Ando, T. Shinjo, H. Huebl, and M. Shiraishi
2. 発表標題 Spin to Charge Conversion of ac Spin Current in Si Detected by Inductive Measurements
3. 学会等名 65th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
ドイツ	Walther-Meissner-Institut	Technische Universitat Muenchen	MCQST