

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 24 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：2021～2023

課題番号：21K20502

研究課題名（和文）SiCにおける電氣的スピン注入に基いた局在スピン制御の開拓

研究課題名（英文）Exploration of localized spin control in SiC based on electrical spin injection

研究代表者

森岡 直也（Morioka, Naoya）

京都大学・化学研究所・准教授

研究者番号：90905952

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、炭化ケイ素（SiC）中の点欠陥の電子スピンあるいは核スピンなどの結晶内に局在するスピンを、自由電子の伝導スピンによって制御することを目指し、その実現に向けた基盤研究として、難加工なSiCにおいて電氣的スピン注入デバイスを実現するための半導体ナノ加工プロセスの構築、およびSiC中の局所的な局在スピンを電氣的に検出する技術の研究を行った。その結果として、デバイス加工の要素技術を確立したとともに、SiC中の局所領域のシリコン空孔欠陥の電子スピンおよびこれらと結合した核スピンの高分解能かつ室温下での電氣的検出に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SiC中のシリコン空孔の電子スピンおよび核スピンを電氣的に検出できたことで、伝導電子スピンとの相互作用を検出するための実験基盤を構築することができた。また、SiC中のシリコン空孔スピンは高感度に磁場・温度等を計測する量子センサとして注目されており、これらの高分解能検出を電氣的に達成できたことは、将来的に量子技術を半導体素子として集積するための極めて重要な技術である。核スピンも量子センサの感度増強や量子メモリとして機能する重要なリソースである。今回達成した核スピンの電氣的検出技術は、電子-核スピンの量子もつれを利用した集積量子デバイスの実現につながる重要な成果である。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aim to control localized spins in silicon carbide (SiC), such as electron spins of point defects or nuclear spins of the matrix material, by means of conduction spins of free electrons. As a fundamental study to realize this goal, we have developed a semiconductor nanofabrication process to realize electrical spin injection devices in SiC and a technique to electrically detect the localized spins in SiC. As a result, we established the elemental technology for device fabrication and succeeded in high-resolution electrical detection of electron spins of silicon vacancy defects and nuclear spins coupled with these defects in SiC at room temperature.

研究分野：半導体スピン光物性

キーワード：スピントロニクス スピン注入 炭化ケイ素 シリコン空孔 核スピン 磁気共鳴

1. 研究開始当初の背景

炭化ケイ素 (SiC) は近年パワーデバイスに向けた次世代半導体材料として研究開発が進み、大面積のウェハや優れた電子デバイス機能と特性が実現している。一方、SiC 中のシリコン空孔などの点欠陥が室温でも優れたスピンコヒーレンスを示し、単一光子発光も可能なことから、量子センシングや量子情報処理などの SiC の量子技術応用も近年注目が集まっている。また、SiC は核スピンを有し、これも量子技術における有用なリソースである。SiC は軽元素で構成されておりスピン軌道相互作用が小さいと予想され、また高い電子移動度を示すことから、電子スピンの輸送特性も優れていると予想される。これらの背景から、SiC が内包する欠陥の電子スピンや核スピンの機能と、伝導電子スピンの機能を融合し、これらの相互作用を開拓することで、新たな機能を発現する可能性を秘めている。局在スピンと伝導電子スピンの相互作用を研究するためには、SiC への電氣的スピン注入を実現する必要があるが、SiC に対する電氣的スピン注入は十分に実証されていない。

2. 研究の目的

本研究は、優れたスピン伝導特性が予想される SiC に対して電氣的スピン注入による伝導電子スピン偏極を実現し、SiC 中のスピン伝導特性を明らかにすること、および偏極電子と SiC 中の局在スピン、特に核スピンとの相互作用の可能性を探索することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) SiC における 4 端子非局所スピンバルブ素子の作製技術開発

本研究で対象とするのは、半導体として最もよく使用され、かつ点欠陥スピンの研究が盛んな 4H 構造の SiC (4H-SiC) である。4H-SiC における電氣的なスピン注入の例として、強磁性金属 CoFeB を用い、3 端子 Hanle 測定によって SiC 中にスピン蓄積を観測したとする報告が存在する。[L. Huang et al., Appl. Phys. Lett. 113, 222402 (2018)] しかし、3 端子 Hanle 測定は半導体側のスピン蓄積以外の信号を含む可能性が指摘されており、より信頼性が高いと考えられている 4 端子スピンバルブ素子を用いた非局所スピン輸送の実証が重要である。このためには SiC と強磁性電極を整合したナノ加工が必要であるが、SiC は従来のスピントロニクス材料と比較して難加工であるため、ナノ加工技術の基盤を構築する必要がある。そのため、電子線リソグラフィ、イオンミリング、反応性イオンエッチングなどを組み合わせ、作製プロセスの検討を実施した。また、スピン注入の実現には、SiC と強磁性電極の間のトンネル電子輸送が重要となる。このため、SiC にイオン注入を行うことでドーピングを制御し、トンネル界面の実現を試みた。これらの検討の上で 4 端子非局所スピンバルブ素子を作製し、またプロセスの改良について検討を行った。

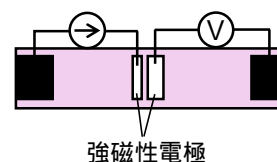


図 1. 4 端子非局所スピンバルブ素子の構造

(2) SiC 中局所領域の核スピンの室温下での電氣的検出

本研究課題で目指す伝導電子スピンと核スピンの相互作用を検出する上で、伝導電子スピンの拡散長が数 μm と想定されることから、相互作用が生じる範囲も同程度のスケールとなる。したがって、相互作用の研究には局所的な領域での SiC 中の核スピンを検出することが必要となる。そこで、SiC 中のシリコン空孔欠陥と結合した ^{29}Si 核スピンの局所的な電氣的検出技術の研究を実施した。具体的には、シリコン空孔を光励起する際に発生する光電流がスピン状態によって変化する光電流磁気共鳴 (PDMR) と、電子-核スピン二重共鳴法を応用することで、局所領域の核スピンの電氣的検出を試みた。

4. 研究成果

(1) SiC における 4 端子非局所スピンバルブ素子の作製技術開発

高濃度に n 型ドーピングした薄膜 4H-SiC エピ層上の表面にリンイオン注入を行って表面ドーピング密度を制御し、強磁性電極を成膜して、4 端子スピンバルブ素子の作製を試みた。イオン注入を行わない場合は熱電界電流放出モデルで説明可能な電流電圧特性であったが、イオン注入によって電界放出モデルで説明し得る特性に変化し、電子のトンネル輸送の実現が示唆された。このため、スピンバルブ測定を実施したが、明瞭なスピン信号は得られなかった。この原因の一つとして、作製したデバイス寸法が比較的大きく、注入電流密度が不足していたため十分な信号が

得られていない可能性があった。
 作製した素子では、図 1 に示すように、スピン伝導領域を規定するために n 型 4H-SiC 層をエッチングしてメサ構造とし、その上に強磁性電極を数百 nm のギャップで配置している。強磁性電極はその微細構造のため、電子線リソグラフィによるパターニングを必要とする。一方、SiC は難加工であるため、SiC のメサ加工には厚膜フォトリソグラフィレジストをマスクとした反応性イオンエッチングを用いたが、フォトリソグラフィの位置合わせ精度の問題のため、SiC のメサ構造と微細電極の整合にマイクロメートルスケールの誤差を生じる。この課題のため、最初に作製したデバイスでは、デバイス領域を大きくとっていた (図 2(a))。本課題の解決のため、高濃度 n 型 SiC 層の膜厚、電子線リソグラフィの条件、反応性イオンエッチングの条件を再検討し、SiC のメサパターン・強磁性電極パターンをともに電子線リソグラフィで作製することに成功し、高精度なメサ-電極整合プロセスが開発できた。これによって、微小素子の作製が可能になった (図 2(b))。今後、本プロセスを適用したスピンバルブ素子を試作し、電気的スピン注入の実現を目指す。

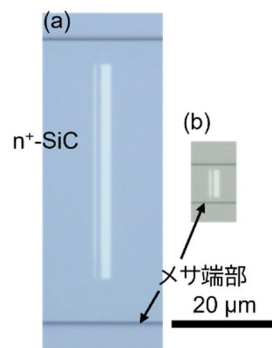


図 2. SiC 上に作製したスピンバルブ強磁性電極パターン (a) フォトリソグラフィで SiC をパターンニング (b) 電子線リソグラフィで SiC をパターンニング

(2) SiC 中局所領域の核スピンの室温下での電気的検出

SiC 中の局所的な核スピンの電気的制御を目指し、シリコン空孔 (V2 欠陥) 電子スピンと核スピンの結合を利用して核スピンを検出する、電子・核二重共鳴 (ENDOR) 光電流磁気共鳴装置の構築を行った。本装置では、SiC 上に設けられた電極の間にレーザー光を照射し SiC 中のシリコン空孔から放出される電流を計測する。シリコン空孔のスピンの状態に応じた光電流の変化を、電流アンプとロックインアンプで計測した。実験セットアップを図 3 に示す。実験は全て室温で実施した。従来報告されていた SiC の光電流磁気共鳴では、核スピンを検出するのに十分な分解能が得られていなかった。またスピン操作の高周波磁場 (MW, RF) からのノイズが大きく、周波数掃引による測定ができていなかった。本研究では、スピン検出用デバイスの電極を、従来使用されていた SiC における典型的なコンタクト材料の Ni から、非磁性材料に変更することで、検出領域の磁場環境不均一性に起因する分解能低下を排除した。また MW/RF アンテナをデバイス近傍に配置することでスピン操作に必要な MW/RF 電力を低減し、ノイズを低減した。これらの改善によって、第二近接の ^{29}Si 核スピンと超微細相互作用によって結合したシリコン空孔の磁気共鳴の高分解能な電気的検出を、MW 周波数の掃引によって測定可能とした (図 4(a))。また、第二近接の ^{29}Si 核スピンと結合したシリコン空孔だけを選択的にコヒーレント操作した結果も電気的に検出可能であった (図 4(b))。

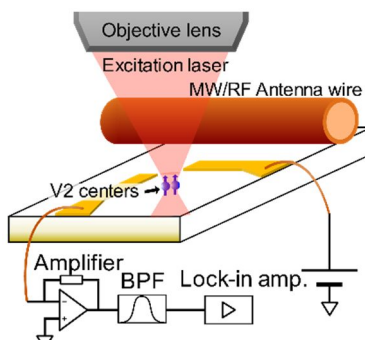


図 3. 光電流磁気共鳴の実験セットアップ

これらの改善によって、Davies 型の電子・核二重共鳴シーケンス (図 4(c)) [E. R. Davies, Phys. Lett. A 47, 1 (1974)] の適用が可能となり、Si 空孔と結合した ^{29}Si 核スピンの電気的検出による ENDOR の信号を得ることができた。得られた信号は 3 つのピークからなる (図 4(d))。これは Si 空孔の第二近接位置の Si が 3 つの等価な原子配置を持つことに起因していると考えられる。このように、室温下にて局所領域の核スピンを高分解能かつ電気的に検出する技術を開発し、本成果は [T. Nishikawa, N. Morioka, et al., Appl. Phys. Lett. 121, 184005 (2022)] に掲載された。

これらの成果は伝導電子スピンと局在スピンの相互作用を研究するための基盤となり、伝導スピンと孤立スピンの相互作用を用いた新規スピントロニクスデバイスの研究に発展することが期待される。

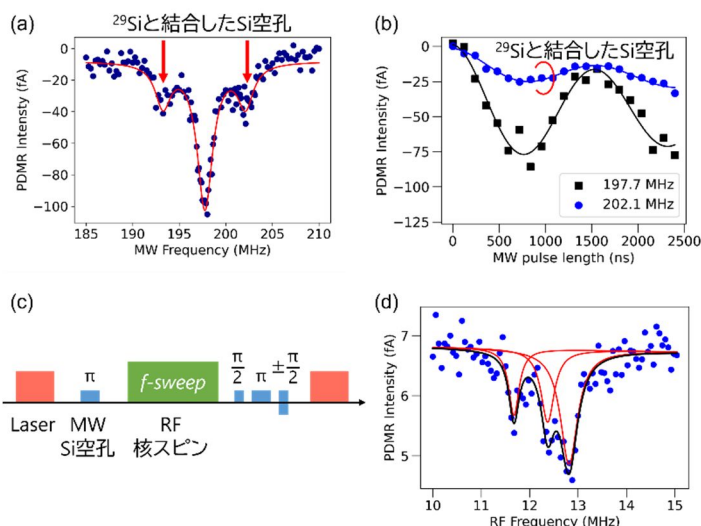


図 4. PDMR 測定結果 (a) 周波数掃引の高分解能磁気共鳴。サイドピークが核スピンと結合した Si 空孔の信号 (b) 中心ピークとサイドピークそれぞれのラビ振動 (c) ENDOR 測定シーケンス (d) ^{29}Si の ENDOR 測定結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nishikawa Tetsuri, Morioka Naoya, Abe Hiroshi, Morishita Hiroki, Ohshima Takeshi, Mizuochi Norikazu	4. 巻 121
2. 論文標題 Electrical detection of nuclear spins via silicon vacancies in silicon carbide at room temperature	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 184005 ~ 184005
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0115928	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 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Naoya Morioka, Di Liu, Tetsuri Nishikawa, Oney O. Soykal, Hiroki Morishita, Izel Gediz, Charles Babin, Rainer Stoehr, Hiroshi Abe, Takeshi Ohshima, Nguyen Tien Son, Jawad Ul-Hassan, Florian Kaiser, Joerg Wrachtrup, and Norikazu Mizuochi
2. 発表標題 Spin-optical dynamics study and approach to quantum electronics for quantum applications of silicon vacancy in SiC
3. 学会等名 The 20th International Symposium on the Physics of Semiconductors and Applications（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西川哲理、森岡直也、阿部浩之、森下弘樹、大島武、水落憲和
2. 発表標題 4H-SiC中シリコン空孔を用いた室温下での電氣的核スピン検出
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Naoya Morioka, Tetsuri Nishikawa, Hiroshi Abe, Hiroki Morishita, Takeshi Ohshima, and Norikazu Mizuochi
2. 発表標題 Room-temperature electrical detection of nuclear spins in silicon carbide
3. 学会等名 5th International Forum on Quantum Metrology and Sensing（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 森岡直也
2. 発表標題 炭化ケイ素中のシリコン空孔量子光源
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森岡直也、西川哲理、阿部浩之、森下弘樹、大島武、水落憲和
2. 発表標題 炭化ケイ素中の欠陥電子スピンおよび核スピンの室温での電氣的検出
3. 学会等名 スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク（Spin-RNJ）シンポジウム 2022年度報告会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Naoya Morioka, Tetsuri Nishikawa, Hiroshi Abe, Hiroki Morishita, Takeshi Ohshima, and Norikazu Mizuochi
2. 発表標題 Electrical detection of nuclear spins in silicon carbide using silicon vacancy quantum spins in ambient conditions
3. 学会等名 International Conference on Silicon Carbide and Related Materials 2023（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Naoya Morioka, Hiroki Morishita, Tetsuri Nishikawa, and Norikazu Mizuochi
2. 発表標題 Electrical Spin Detection in Diamond and Silicon Carbide for Quantum Technologies
3. 学会等名 Quantum Technology with Defects in Semiconductors (Satellite session of The 13th International Conference on Advanced Materials and Devices)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森岡直也, 西川哲理, 阿部浩之, 村田晃一, 岡島和希, 大島武, 土田秀一, 水落憲和
2. 発表標題 半導体SiC中点欠陥スピンの高感度な電氣的検出
3. 学会等名 スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク (Spin-RNJ) シンポジウム 2023年度報告会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 岡島和希, 森岡直也, 西川哲理, 阿部浩之, 大島武, 水落憲和
2. 発表標題 SiC中Si空孔スピンの光電流検出におけるイオン化経路の研究
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Naoya Morioka, Tetsuri Nishikawa, Hiroshi Abe, Koichi Murata, Kazuki Okajima, Takeshi Ohshima, Hidekazu Tsuchida, and Norikazu Mizuochi
2. 発表標題 Efficient coherent photoelectrical readout of spin in silicon carbide at room temperature
3. 学会等名 The 5th Japan-Korea Spintronics Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Naoya Morioka
2. 発表標題 Photoelectrical readout of electronic and nuclear spins in silicon carbide at ambient conditions
3. 学会等名 Silicon Carbide: Classical and Quantum Technologies (816. WE-Heraeus-Seminar) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024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
---------	---------