

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 3 日現在

機関番号：24402

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760010

研究課題名(和文)スピンプンピングを用いたシリコンおよびゲルマニウムの室温スピン輸送の研究

研究課題名(英文) Study of the spin-pumping-induced spin transport in silicon and germanium at room temperature

研究代表者

仕幸 英治 (Shikoh, Eiji)

大阪市立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：90377440

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円、(間接経費) 1,080,000円

研究成果の概要(和文)：半導体素子の更なる集積化においてBeyond-CMOS技術開発が必要であり、その関連研究をスピントロニクス視点で目指した。IV族元素材料のうち従来達成されていなかったp型Si、p型Geおよびn型Geにおける室温スピン輸送を、スピンプンピングによるスピン注入及び、SiやGeに接合された非磁性金属の逆スピホール効果によるスピン検出を用いて達成することを目指した。

本研究手法によりp型Si中の室温スピン輸送を実証した。また、p型Geへの室温スピン注入も達成した。これらの成果は、本研究手法がほぼ全ての固体材料のスピン輸送研究に適用できることを示唆し、Alやグラフェンの室温スピン輸送にも成功した。

研究成果の概要(英文)：For more integration of semiconductor devices, a study for development of the beyond-CMOS technology was carried out from the viewpoint of spintronics. In this study, the achievement of room-temperature-spin-transport in the p-type Si, p-type Ge and n-type Ge with spin injection by using the spin-pumping and with spin detection by using the inverse spin-Hall effect in the non-magnetic metal attached to the target materials was focused.

In this study, the spin-pumping-induced spin transport in the p-Si at room temperature was demonstrated. Also, spin injection into the p-Ge was achieved. These results were suggested that the evaluation method of the spin transport in this study was able to be applied to almost all solid-state materials, and the room temperature spin transport in aluminum or graphene was successfully demonstrated as good examples with this method.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：スピントロニクス スピンプンピング 逆スピホール効果

1. 研究開始当初の背景

シリコン(Si)を主体とする半導体産業において、半導体素子の高度集積化が進むにつれ、素子の微細加工技術の進展は物理的な限界に近づいている。そこでは発熱やリーク電流が問題になっており、これまでのムーアの法則に載った更なる集積化は現状の技術だけでは不可能である。そこで、それを打破する革新技術(いわゆる Beyond-CMOS 技術)の研究開発が必要であり、本研究ではそれをスピントロニクス視点で目指すことにした。従来の半導体産業の中心元素である Si のスピントロニクス応用が可能であれば、既存 Si テクノロジーのインフラがそのまま使えるメリットがある。本研究では Si に加え、同じ IV 族元素のゲルマニウム(Ge)のスピントロニクス応用にも着目した。IV 族元素は自然界にはほぼ無尽蔵に存在し、かつ、Si および Ge は毒性が低い。つまり、これらの元素材料をターゲットとする研究はグリーンイノベーションの観点からも重要である。

Si のスピン注入やスピン輸送に関する実験は、まず、n-Si に対し、低温で報告されていた。その後、非局所磁気抵抗効果(Non-local MR)測定実験により、室温でスピン輸送が実証された。一方、p-Si へのスピン蓄積の室温実証が、n 型、p 型併せて 2009 年に達成されていた。しかしながら、スピン蓄積の実験でのスピンコヒーレンス時間 τ は、スピン軌道相互作用の大きな p-Si のほうが n-Si よりも長いという、従来の物理では考えられない見積結果であった。そこで、p-Si についても、室温スピン輸送の実証が期待された。

一方、Ge については、低温でのスピン蓄積の実証が報告されているのみであり、Ge についても室温スピン輸送の実証が期待された。

2. 研究の目的

IV 族元素材料のスピントロニクスにおいて、研究開始時点で達成されていなかった p 型 Si、p 型 Ge および n 型 Ge における室温スピン輸送を、スピンプンピングによるスピン注入および、Si や Ge に接合された非磁性金属の逆スピンホール効果を用いて達成することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、まず p-Si の室温スピン輸送を達成することにした。スピンプンピングによるスピン注入では、界面でのコンダクタンスミスマッチによるスピン散乱の影響を受けにくいいため、従来の電氣的スピン注入よりもスピン注入効率が良い。つまり本研究手法は、全固体材料のスピントロニクス研究へと展開できる。そこで、このスピンプンピングによる純スピン流を用い、p-Si と併せ、n-Si の室温スピン輸送も目指すことにした。これまで n-Si で行なわれてきた Non-local MR 実験では、界面でのコンダクタンスミスマッチによるスピン散乱を受けやすかったが、本手法

のほうがスピン注入の効率が良いため、より明確な特性評価が期待された。更に Ge についても、p 型、n 型それぞれの室温スピン輸送を、スピンプンピングによるスピン注入を用いて達成することにした。

図 1 に本研究で用いた手法の概念図を示す。ここではターゲット材料が p-Si の場合で解説する(他の材料の場合には、図 1 の p-Si の部分がターゲット材料に代わるだけである)。試料を電子スピン共鳴(ESR)装置のマイクロ波キャビティにセットする。強磁性共鳴を用い、強磁性体 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (以下、Py)薄膜からスピンプンピングにより p-Si に純スピン流 J_S を生成させる。p-Si に生成された純スピン流 J_S は非磁性金属 Pd 細線に吸収される。Pd 線に吸収された純スピン流 J_S は、Pd のスピン軌道相互作用による逆スピンホール効果により、電荷の流れ、即ち、電流 J_C に変換される。その電流 J_C は、Pd 細線の両端に、Pd 細線自身の抵抗を介して電圧となって現れる。この電圧を観測することができれば、p-Si 等のスピン輸送が実証された、と結論できる。

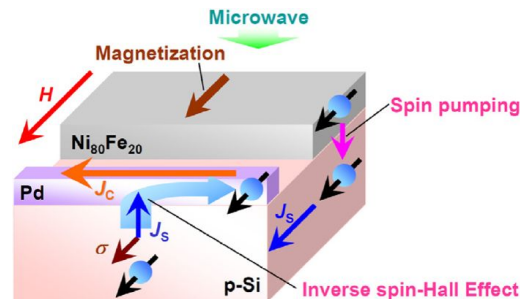


図 1(「5. 主な発表論文等」、雑誌論文より)。本研究で用いた手法の概念図(p-Si 試料)。

図 2 に試料構造を示す。キャリア濃度の異なる Si 基板を準備した(キャリア濃度はイオン注入による)。試料作製の始めに Si 基板をフッ酸に浸し、表面の自然酸化膜を除去した。続いて、電子線リソグラフィおよび電子ビーム蒸着を用いて、Py 薄膜および Pd 細線を作製した。Py は、スピンプンピングの研究でよく用いられ、特性がよく知られている材料であり、Pd は、スピン軌道相互作用が大きく、かつ、同様にスピン軌道相互作用の大きな非磁性金属 Pt と比べて、Si との界面で化合物を作りにくい。Py と Pd の間隔 L は、電子線リソグラフィの加工限界と、従来のスピン蓄積の実験での p-Si のスピン拡散長 310 nm から考え、100 nm ~ 2,000 nm 程度に設計した。一方、対照実験用に、Pd を、スピン軌道相互作用の小さい Cu にした試料も作製した。

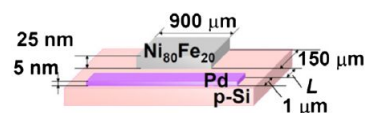


図 2(同、雑誌論文より)。本研究で用いた試料構造の概要図(ターゲットが p-Si の例)。

図3に測定系を示す。試料をESR装置のマイクロ波キャビティにセットし、Pyの強磁性共鳴磁場付近における電圧変化を観測した。

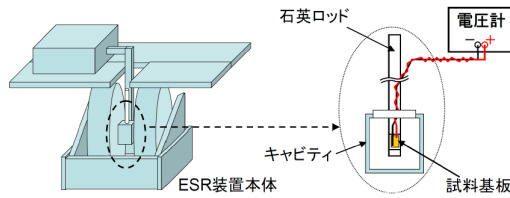


図3(同、雑誌論文より). 本研究で用いた測定系の概要図.

4. 研究成果

(1) p-Siのスピントランスポルト特性評価.
 まず、キャリア濃度が $1 \times 10^{19} / \text{cm}^3$ の p-Si を用いた。図4(a)に試料と、外部磁場 H および Py の磁化 M の方向との関係を示す。図4(b) および(c)はそれぞれ、 $L = 500 \text{ nm}$ の試料における Py の強磁性共鳴スペクトルおよび、Pd 線における起電力特性を示す。測定温度は室温である。外部磁場と基板の成す角 θ_H がいずれの場合でも、Py 特有の強磁性共鳴特性が観測された。一方、電圧スペクトルについては、 θ_H が0度および180度の場合には出力が観測され、90度の際には、明確な出力は観測されなかった。そして、 θ_H が0度と180度の場合とで、互いに出力の向き、即ち、符号が反転した。これは逆スピンホール効果における電流とスピンの関係、 $J_C \propto J_S \times$ を見事に反映している。つまり、図4(c)の電圧スペクトルは、Pdにおける逆スピンホール効果を反映していると考えられ、p-Siのスピントランスポルトの実証に初めて、しかも室温で成功した。

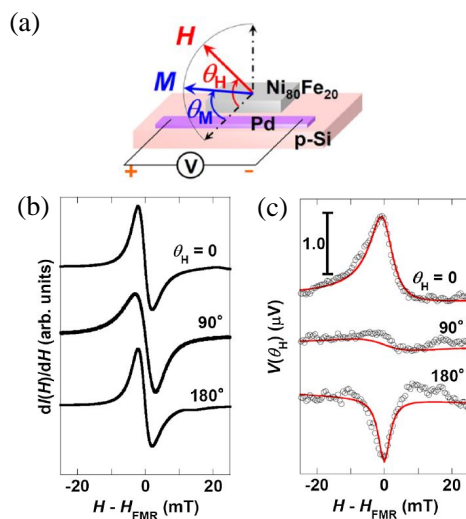


図4(同、雑誌論文より). (a) 試料と外部磁場 H および、Pyの磁化 M の方向との関係図. (b) $L = 500 \text{ nm}$ 試料の強磁性共鳴スペクトルの磁場印加角度依存性. (c) (b)の各試料に対する電圧スペクトルの磁場印加角度依存性.

以下、いくつかの対照実験を示す。図5(a)はPyの両側に細線がある試料であり、その一方はPd線、もう一方はCu線である。図5(b)には、Pyの強磁性共鳴磁場付近におけるそれぞれの細線での電圧特性を示す。Pd線からは起電力が観測されたが、Cu線からの起電力は観測されなかった。このことは、図4で観測された電圧が、Pd線の逆スピンホール効果であることを強く支持する結果であった。

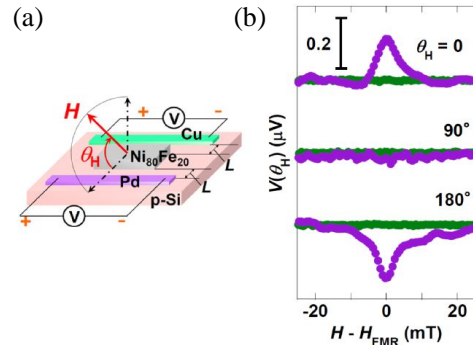


図5(同、雑誌論文より). (a) Pd線に加え、Cu線を配置した試料と外部磁場 H の方向との関係図. (b) $L = 700 \text{ nm}$ 試料の電圧スペクトルの磁場印加角度依存性 (紫色および緑色のスペクトルはそれぞれ、Pd線およびCu線における起電力特性).

図6にESR装置のマイクロ波の出力 P_{MW} に対する起電力特性を示す。図6(a)の各スペクトルに対し、起電力特性を表す次式

$$V(H) = I_{\text{ISHE}} \frac{\Gamma^2}{(H - H_{\text{FMR}})^2 + \Gamma^2} + I_{\text{Asym}} \frac{-2\Gamma(H - H_{\text{FMR}})}{(H - H_{\text{FMR}})^2 + \Gamma^2}, \quad (1)$$

による解析結果を図6(b)に示す。(1)式において、 I_{ISHE} および I_{Asym} はそれぞれ、逆スピンホール効果による起電力およびそれ以外の効果による起電力である。 I_{ISHE} はマイクロ波の出力 P_{MW} に比例した。これはまさにスピントランスポルトの特性を反映する結果であった。

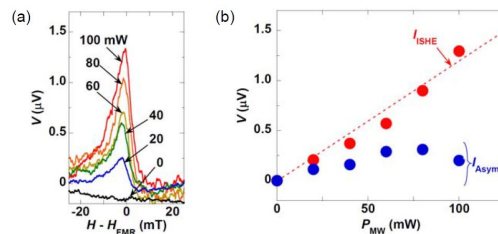


図6(同、雑誌論文より). (a) 電圧スペクトルのマイクロ波パワー P_{MW} 依存性. (b) I_{ISHE} および I_{Asym} の P_{MW} 依存性.

図7にPyとPd線の間隔 L に対する起電力特性を示す。試料間のスピン注入効率の分散を考慮し、各 L における起電力を、それぞれのPdに注入されるスピン流密度 j_s を用いて規格化してある。 L が大きくなるにつれ、起電力は、破線のように、exponential的に減少した。このexponential的な出力の減衰は、p-Siを輸送中のスピン流の偏極率の減衰と推定される。しかしながら、データのばらつきが大きい結果となった。このばらつきの主因は、Pyとp-Si間あるいは、Pdとp-Si間の界面特性の差が影響すると考えられるため、この単純な振る舞いからスピン拡散長を見積もるには誤差の影響が懸念された。

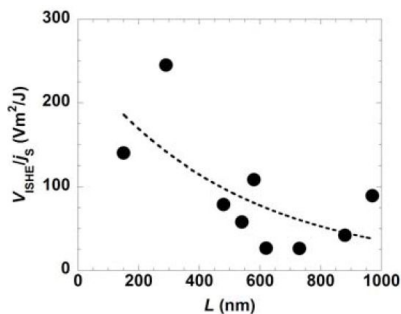


図7(同、雑誌論文より)。起電力特性のPy-Pd間距離依存性。

そこで、そのexponential的な出力減衰という特性のみを利用し、以下の方法により、p-Siのスピン拡散長を見積もった。まず、p-Siが無いと仮定、つまり、PyからPdへとスピン流が直接注入されたと考え、このとき、Pdにおける逆スピンホール効果による起電力は、これまで得られた実験パラメータから、 3.84×10^{-5} Vと見積もった。一方、実験では(実際には)p-Siが存在する($L = 490$ nm)ので、実験においてPdから得られた起電力 1.4×10^{-6} Vは、p-Siでのスピン流の減衰を含んでいる。即ちそれがexponential的に減衰したと考えた結果、p-Siの室温スピン拡散長を150 nm程度と見積もった。

次にキャリア濃度の異なるp-Siを用いた結果を図8に示す。キャリア濃度が低くなると、Pdでの起電力が減少した。このことは、キャリア濃度が低くなることにより、スピン流の散乱確率の減少よりも、p-Siと各材料との界面、特に、Pyとの界面での電気的なバリアの影響等が強く効く、即ち、影響しないと考えられたコンダクタンスミスマッチによるスピン注入効率の低下があることを示唆した。

また、スピン輸送の機構評価のため、環境温度依存性も評価した。図9に環境温度依存性を示す。低温になるにつれ、起電力は増大した。この結果から、p-Siのスピン拡散長の温度依存性を評価したところ、123 Kまでの低温まででは室温に比べて、スピン拡散長はわずかに長くなったが、あまり顕著な差はなかった。これは、熱励起されるキャリアが低

温で減少するため、スピン散乱確率の減少分以上に、輸送されるスピン数が減少したと考えられる。つまりp-Siにおけるスピン輸送は、キャリアによると考察した。

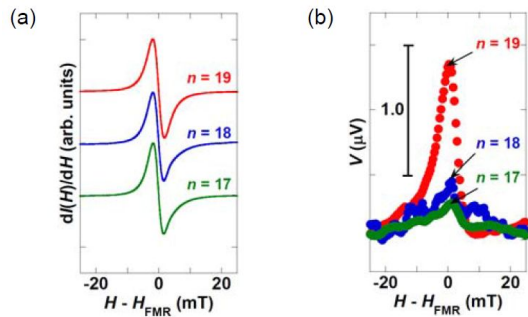


図8(同、雑誌論文より)。p-Siのキャリア濃度依存性。(a)強磁性共鳴スペクトルの磁場印加角度依存性。(c)各試料に対する電圧スペクトルの磁場印加角度依存性。

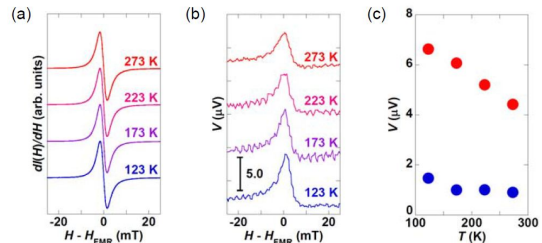


図9(同、雑誌論文より)。環境温度依存性。(a)強磁性共鳴スペクトルの磁場印加角度依存性。(c)各試料に対する電圧スペクトルの磁場印加角度依存性。(c) (b)の各スペクトルの(1)式による解析結果。赤丸および青丸はそれぞれ、 I_{ISHE} および I_{asym} の環境温度依存性。

以上の成果は、「5. 主な発表論文」の雑誌論文等にて公表した。また、その雑誌論文1に対し、2014年3月に、第5回応用物理学会シリコンテクノロジー分科会論文賞が授与された。

(2)その他の材料評価。

Geについては、試料作製時に容易に酸化するといった難があり、スピン輸送の観測までは到達できなかったが、p-Geに対し、スピンポンピングによるスピン注入には室温で成功した(雑誌論文)。

前述のように、本手法はほぼ全ての固体材料のスピン輸送特性評価に利用可能であり、グラフェンやアルミニウムでも室温スピン輸送に成功した(雑誌論文、他)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

Yuta Kitamura, Eiji Shikoh, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, "Vertical spin transport in Al with Pd/Al/Ni₈₀Fe₂₀ trilayer films at room temperature by spin pumping.", Scientific Reports, 査読有, Vol.3, pp.1739-(1-6), 2013.
DOI: 10.1038/srep01739

Zhenyao Tang, Yuta Kitamura, Eiji Shikoh, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, "Temperature dependence of Spin Hall Angle of Palladium.", Applied Physics Express, 査読有, Vol.6, pp.083001-(1-3), 2013.
DOI: 10.7567/APEX.6.083001

Eiji Shikoh, Kazuya Ando, Kazuki Kubo, Eiji Saitoh, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, "Spin-Pump-Induced Spin Transport in p-Type Si at Room Temperature.", Physical Review Letters, 査読有, Vol.110, pp.127201-(1-5), 2013.
DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.127201

Mariko Koike, Eiji Shikoh, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Shinya Yamada, Kohei Hamaya, Masashi Shiraishi, "Dynamical Spin Injection into p-Type Germanium at Room Temperature.", Applied Physics Express, 査読有, Vol.6, pp.023001-(1-3), 2013.
DOI: 10.7567/APEX.6.023001

〔学会発表〕(計11件)

仕幸 英治、安藤 和也、久保 和樹、齊藤 英治、新庄 輝也、白石 誠司、「『第5回応用物理学会シリコンテクノロジー分科会論文賞受賞記念講演』スピンプンピングを用いたp型シリコン中の室温スピンプンピング」、第61回応用物理学会春季学術講演会(招待講演)、2014年3月17-20日、神奈川県相模原市。

仕幸 英治、久保 和樹、ドゥシェンコセルゲイ、安藤 裕一郎、新庄 輝也、白石 誠司、「p型シリコンにおけるスピンプンピングの温度依存性」、日本磁気学会第37回学術講演会、2013年9月3-6日、北海道札幌市。

仕幸 英治、「スピンプンピングを用いた固体材料中の室温スピンプンピング」、北陸先端科学技術大学院大学マテリアルサイエンス研究科セミナー(招待講演)、2013年5月10日、石川県能美市。

小池 真利子、仕幸 英治、安藤 裕一郎、新庄 輝也、山田 晋也、浜屋 宏平、白石 誠司、「p型Geへの室温スピンプンピングと逆スピンプン効果の観測」、第60回応用物理学会春季学術講演会、2013年3月

27-30日、神奈川県厚木市。

小池 真利子、仕幸 英治、安藤 裕一郎、新庄 輝也、山田 晋也、浜屋 宏平、白石 誠司、「磁化ダイナミクスを用いた非縮退p-Geへのスピンプンピングとスピンプン流=電圧変換の実現」、第68回日本物理学会年次大会、2013年3月26-29日、広島県東広島市。

仕幸 英治、「『スピンプンピングを用いたp型Siの室温スピンプン輸送』」、第4回大阪大学産業科学研究所ナノテクセンター若手セミナー(招待講演)、2013年2月27-28日、大阪府大阪市。

Mariko Koike, Eiji Shikoh, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Shinya Yamada, Kohei Hamaya, Masashi Shiraishi, "SPIN PUMPING INTO p-TYPE GERMANIUM AT ROOM TEMPERATURE.", German-Japanese Workshop on Nano-Electronics 2012, 2012年12月11-13日、Dresden in Germany.

Eiji Shikoh, "SPIN-PUMPING-INDUCED SPIN TRANSPORT IN p-TYPE SILICON AT ROOM TEMPERATURE.", German-Japanese Workshop on Nano-Electronics 2012(招待講演)、2012年12月11-13日、Dresden in Germany.

Eiji Shikoh, Kazuya Ando, Kazuki Kubo, Eiji Saitoh, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, "Spin-pumping-induced spin transport in p-type silicon at room temperature.", International Conference on the Physics of Semiconductors 2012, 2012年7月29日-8月3日、Zurich in Swiss.

Mariko Koike, Eiji Shikoh, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, "Spin-pumping and revelation of inverse spin-Hall effect in n-type Si at room temperature.", International Conference on Magnetism 2012, 2012年7月8-13日、Busan in Korea.
Kazuki Kubo, Eiji Shikoh, Kazuya Ando, Eiji Saitoh, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, "Dynamical spin injection into p-type Si using the spin pumping and spin transport at room temperature.", International Conference on Magnetism 2012, 2012年7月8-13日、Busan in Korea.

〔その他〕

仕幸 英治、安藤 和也、久保 和樹、齊藤 英治、新庄 輝也、白石 誠司
「第5回応用物理学会シリコンテクノロジー分科会論文賞」2014年3月
(受賞対象論文は雑誌論文)

6. 研究組織

(1)研究代表者

仕幸 英治 (SHIKOH, Eiji)
大阪市立大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 90377440