

令和元年6月13日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04348

研究課題名（和文）ダイヤモンド半導体への高効率スピン注入と低損失スピン輸送

研究課題名（英文）High efficiency spin injection and low loss spin transport in diamond semiconductors

研究代表者

植田 研二（Ueda, Kenji）

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：10393737

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,200,000円

研究成果の概要（和文）：ダイヤモンド半導体への高効率スピン注入と低損失スピン輸送を目指し研究を行った。スピン注入源となる磁性トンネル接合内のトンネルバリアの高品質化とダイヤモンド表面終端条件の最適化によりスピン注入効率の1桁程度の増加に成功した。また新しいスピン注入源として期待されるスピングャップレス半導体（SGS）Mn₂CoAl薄膜の低温結晶成長に成功し、SGSの主要な特性である両極性伝導を初めて観測した。更にスピン注入高効率化の為にダイヤモンド上へのグラフェン層の直接成長に成功すると共に、ダイヤモンド/グラフェン接合が特異な光伝導度変調（光メモリスタ的挙動）を示す事を初めて見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン注入源となる磁性トンネル接合とダイヤモンド界面を、ダイヤモンドの表面終端を含めて精密に制御する事がダイヤモンドへの高効率スピン注入に必須となる事を見出した。また、ダイヤモンドとグラフェン積層・複合化し、炭素sp²/sp³界面を創製する事で新たな機能が発現する事が分かった。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have tried highly efficient spin injection and low loss spin transport in diamond semiconductors. Spin injection efficiency into diamond became one order larger than that before by tuning surface-termination state of diamond and improving crystal quality of tunnel barriers in magnetic tunnel junctions on diamond. We have succeeded in fabricating epitaxial Mn₂CoAl films, which are spin gapless semiconductors (SGS), at lower growth temperature and observed ambipolar characteristics, which is one of main characteristics of SGS. We have succeeded in fabricating graphene layers on diamond, that is important for efficient spin injection, and also found graphene/diamond junctions showed peculiar conductivity change by photo irradiation.

研究分野：薄膜機能材料

キーワード：ダイヤモンド 半導体 スピン注入

1. 研究開始当初の背景

スピントランジスタは、強磁性体の持つ不揮発性記憶機能とトランジスタの持つ演算機能が融合した不揮発性記憶演算デバイスであり、1つの素子で「メモリ + 演算機能」を併せ持つ。その実現により不揮発集積回路が作製できれば、未使用のメモリや演算回路の電源遮断ができ、計算速度低下の主要因である演算器 - メモリ間の配線の無い、超低消費電力高速コンピュータの実現が可能となる。しかしスピントランジスタ作製は極めて難しく、不揮発性機能の明確な実証例は無い。

スピントランジスタは強磁性体 / 半導体積層構造を主要構造としているが、強磁性体から半導体への高効率スピン注入(スピン偏極した電流の注入)と、半導体中での低損失スピン輸送(スピン方向を保持したままの電気伝導)が実現の鍵となる。現在スピントランジスタに関する研究は、実用半導体である Si や GaAs を主体に進められており、強磁性体から半導体への高効率スピン注入と低損失スピン伝導を可能とする材料特性や界面形成法等が模索されている段階である。しかし、Si や GaAs は強磁性材料との反応性等が高く界面制御性に問題がある為、未だに室温で十分なスピン注入効率は実現できていない。

これに対し申請者は、ダイヤモンド半導体が、軽元素半導体である為スピン - 軌道相互作用が小さく、長いスピン拡散長が期待できる、原子核スピン等の周囲のスピンとの磁氣的相互作用によるスピン擾乱効果が極めて小さい、化学安定性が極めて高く界面不純物層が出来にくい、等の特徴を有する為、スピン輸送材料として極めて有望であると考えて、研究を進めている。しかし、この様な利点にも関わらずダイヤモンドへのスピン注入成功の報告は無く申請者らのスピン注入の試みの報告のみである。

2. 研究の目的

スピントランジスタは、1つの素子で記憶・演算機能を併せ持つ事から、次世代超高速・大容量情報処理装置のキーデバイスとして期待されている。本研究では、スピントランジスタ創製の為の最重要課題である半導体への高効率スピン注入と低損失スピン輸送について、長スピン緩和時間や低スピン擾乱性など、スピン伝導材料として極めて優れた特性を有する「ダイヤモンド半導体」と高スピン分極率を有する「強磁性体」とを組合せ、両者の接合界面及びダイヤモンド中の不純物量を精密制御する事により実現する事を目的とする。

3. 研究の方法

ダイヤモンド半導体への高効率スピン注入と低損失スピン輸送に関し、研究を、ダイヤモンド半導体へのスピン注入の高効率化、ダイヤモンドのスピン輸送特性解明、ダイヤモンドスピントランジスタ作製の3段階で進める。のスピン注入について、既にある程度の技術蓄積が行われている p 型ダイヤモンド半導体を対象に、スピン注入源となる強磁性 / 半導体積層構造を最適化し高効率化を行う。の長距離スピン輸送実現に向けて、新ドーピング手法や新規スピン注入材料や手段(スピンギャップレス半導体、ハーフメタル、グラフェン層の利用等)の適用によるスピン拡散長の増大を試みる。その後、得られた知見を元に高効率スピン注入と長距離スピン輸送を可能とする磁性体 / 半導体積層構造を用い、のダイヤモンドスピントランジスタの作製に繋げていく。

4. 研究成果

本研究では、ダイヤモンド半導体への高効率スピン注入と低損失スピン輸送を目指し、研究を行った。結果として以下の4つの主要な成果を得た。

低損失スピン輸送のキー技術となる高品質ダイヤモンド半導体作製用 CVD 装置を立ち上げた。不純物量が少なく品質の優れたダイヤモンド半導体薄膜が定常的に得られる様になった。

スピンギャップレス半導体(SGS)は、一方のスピンから成る価電子帯と伝導帯のみがフェルミレベルの1点で接触する特異なバンド構造を有する磁性半導体である。キャリアの完全スピン偏極と高移動度に加えて微小な外的刺激(電磁場等)でキャリア量や極性(p、n型)の制御が可能である事から、SGSは既存の半導体デバイスとは全く異なる新原理で動作するスピントロニクスデバイス実現に繋がる大きな可能性を秘めた材料である。我々はSGSとして期待されるMn₂CoAl(MCA)薄膜の低温結晶成長に成功し、SGSの主要な特性である両極性伝導を初めて観測した。この結果はMCAがSGSとなる有力な証拠であると共に、電界によりスピン偏極電子とホールを切替えて供給可能な新型スピン源等に成り得る事を示唆している。この為、MCAを用いる事で半導体へのスピン注入が格段に高効率化する事が期待できる。

グラフェンは、K点のみで伝導帯と価電子帯が接する特異なバンド構造を有する事から、片側スピンバンドの電子のみを選択的に透過するスピントロニクスデバイスとして機能する事が理論計算により指摘されている。Ni(111)/グラフェン積層構造等で、Niの下向きバンドスピンのみがグラフェンのK点を介して選択的に通過する為、半導体界面でスピン分極率が1となり、高効率スピン注入が期待できる。我々はグラフェンを利用した高効率スピン注入の為に、ダイヤモンド上に高品質グラフェンを作製する試みを行った。CVD法及びCuを触媒金属として用いた高温アニール法により、垂直配向グラフェン(カーボンナノウォール: CNW)をダイヤモンド半導体上に作製する事に成功すると共にCNW/ダイヤモンド

接合が特異な光伝導度変調（光メモリスタ的挙動）を示す事を初めて見出した。これらグラフェン（CNW）/ダイヤモンド接合は光検出+記憶+演算機能を併せ持つ為、CNW/ダイヤモンド接合による新規光機能デバイスの実現が期待できる。また、上述の様にグラフェン/ダイヤモンド接合を利用する事によりダイヤモンド半導体への高品質スピン注入が期待できる。

磁性トンネル接合を用いたダイヤモンド半導体への高効率スピン注入を試みたが、トンネルバリアの高品質化と表面終端（水素終端）条件の最適化によりスピン注入効率が以前より～1桁増加する結果を得た。しかし未だに注入効率は1%強程度と小さく改善の余地があるので、強磁性電極（スピン注入源）-半導体界面の更なる高品質化や、強磁性電極をスピン偏極率の高いSGSへ切り換え、強磁性体-半導体界面へのグラフェン層の導入等により更なるスピン注入効率向上を図っていく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

1. Photomemristors using carbon nanowall/diamond heterojunctions

K. Ueda, H. Itou and H. Asano

J. Mater. Res., 34 (2019) 626-633.

2. Strain effect on magnetic property of antiferromagnetic insulator SmFeO₃

M. Kuroda, N. Tanahashi, T. Hajiri, K. Ueda, and H. Asano

AIP Advances 8 (2018) 055814-1-4.

3. Ambipolar transport in Mn₂CoAl films by ionic liquid gating

K. Ueda, S. Hirose, and H. Asano

Appl. Phys. Lett., 110 (2017) 202405-1-4.

4. Photo-controllable memristive behavior of graphene/diamond heterojunctions

K. Ueda, S. Aichi, and H. Asano

Appl. Phys. Lett., 108 (2016) 222102-1-5.

5. Magnetization reversal of the domain structure in the anti-perovskite nitride Co₃FeN investigated by high-resolution X-ray microscopy

T. Hajiri, S. Finizio, M. Vafaei, Y. Kuroki, H. Ando, H. Sakakibara, A. Kleibert, L. Howald, F. Kronast, K. Ueda, H. Asano, and M. Klaui

J. Appl. Phys. 119 (2016) 183901-1-6.

〔学会発表〕(計 27 件)

1. プラズマCVDアニール法による還元型酸化グラフェンの高品質化

今井 祐太、伊藤 秀治、水野 雄貴、植田 研二、浅野 秀文

第66回応用物理学会春季学術講演会、2019年3月9日～12日（東京工業大学）3/10

2. ワイル磁性体Mn₃Snのエピタキシャル薄膜作製と評価

安藤 優介、羽尻 哲也、植田 研二、浅野 秀文

第66回応用物理学会春季学術講演会、2019年3月9日～12日（東京工業大学）3/9

3. トポロジカル半金属LaBi薄膜の作製と電気伝導特性

鈴木 健太、森 雅斗、羽立 康浩、植田 研二、浅野 秀文

第6回応用物理学会名古屋大学学生チューデントチャプター東海地区学術講演会、2018年11月25日（名古屋大学）

4. カーボンナノウォール/ダイヤモンド光メモリスタの電気伝導特性

今井 祐太、伊藤 秀治、水野 雄貴、植田 研二、浅野 秀文

第6回応用物理学会名古屋大学学生チューデントチャプター東海地区学術講演会、2018年11月25日（名古屋大学）、第6回東海支部学術講演会発表奨励賞受賞

5. Graphene/diamond heterojunctions as novel photo-switching memory devices.

K. Ueda

CCMST (Collaborative Conference on Materials Science and Technology) 2018, Beijing, China, 24-28 Sep. 2018 (26 Sep.), 招待講演.

6. トポロジカル半金属LaBi薄膜の作製と特性評価

- 森 雅斗、植田 研二、鈴木 健太、浅野 秀文
第79回日本応用物理学会秋季学術講演会、2018年9月18日～21日（名古屋国際会議場）9/20
7. カーボンナノウォール/ダイヤモンド光メモリスタの動作機構
伊藤 秀治、植田 研二、浅野 秀文
第79回日本応用物理学会秋季学術講演会、2018年9月18日～21日（名古屋国際会議場）9/18
8. グラフェン/ダイヤモンド（炭素 sp^2/sp^3 ）接合を用いた光メモリスタの作製とデバイス応用
植田 研二
第3回「表面界面の機能創成とデバイス応用」セミナー、2018年8月7日、岡山大学、招待講演
9. カーボンナノウォール/ダイヤモンド接合における光誘起巨大伝導度変調
伊藤 秀治、植田 研二、浅野 秀文
第65回応用物理学会春季学術講演会、2018年3月17日～20日（早稲田大学）3/18
10. Fabrication of carbon nanowalls/ diamond heterojunctions and their electronic properties
MRS2017 fall meetings, Boston, USA, 26 Nov. - 1 Dec. 2017 (30 Nov.)
K. Ueda, H. Itou, H. Asano
11. Ambipolar transport in Mn_2CoAl spin gapless semiconductors by ionic liquid gating
MRS2017 fall meetings, Boston, USA, 26 Nov. - 1 Dec. 2017 (28 Nov.)
K. Ueda, S. Hirose, M. Mori, H. Asano
12. Multiferroic properties of heterostructures using antiferromagnetic insulator $SmFeO_3$
62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Pittsburgh, USA, 6-10 Nov. 2017 (7 Nov.)
M. Kuroda, T Hajiri, N. Tanahashi, K. Ueda, and H. Asano
13. ホイスラースピングャップレス半導体 Mn_2CoAl 薄膜の作製とデバイス応用
植田 研二
第五回ホイスラー化合物熱電素子材料による廃熱発電研究会、2017年9月27日（名古屋工業大学）
依頼講演
14. Ambipolar transport and modulation of electronic properties of Mn_2CoAl films by ionic liquid gating
SSDM2017, Sendai international center, Japan, 19-22 Sep. 2017 (22 Sep.)
K. Ueda, S. Hirose, M. Mori, H. Asano
15. ノンコリニア型反強磁性絶縁体 $SmFeO_3$ のエピタキシャル薄膜における磁化のエンハンスメント
棚橋 直也、黒田 基規、羽尻 哲也、植田 研二、浅野 秀文
第78回日本応用物理学会秋季学術講演会、2017年9月5日～8日（福岡国際会議場）9/8
16. ホイスラースピングャップレス半導体 Mn_2CoAl における電界誘起両極性伝導
植田 研二、広瀬 慎吾、森 雅斗、浅野 秀文
日本金属学会2017年秋季講演大会、2017年9月6日～8日（北海道大学、札幌）、9/8
17. カーボンナノウォール/ダイヤモンドヘテロ接合の作製と電気特性
伊藤 秀治、植田 研二、浅野 秀文
第78回日本応用物理学会秋季学術講演会、2017年9月5日～8日（福岡国際会議場）9/5
18. Photoconductive characteristics of graphene/diamond heterojunctions
K. Ueda
CCMR(Collaborative Conference on Materials Research)2017, Jeju, Korea, 26-30 June 2017 (27 June),
招待講演.
19. 反強磁性絶縁体 $SmFeO_3$ を用いたマルチフェロイック積層膜の作成と評価
黒田 基規、棚橋 直也、羽尻 哲也、植田 研二、浅野 秀文
第64回 応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜（神奈川）、2017年3月14-17日（3/14）
20. Unusual magnetoresistance in heusler compounds antiferromagnet/ferromagnet bilayers.
M. Matsushita, T. Hajiri, K. Ueda and H. Asano
MMM 2016, New Orleans, USA, Oct. 31-Nov. 4 (Nov. 4), 2016.

21. Strain effect and multiferroic properties of $\text{Sr}_2\text{CrReO}_6/\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ Heterostructures
J. So, M. Kuroda, T. Hajiri, K. Ueda, and H. Asano
WOE23 (International workshop on oxide electronics), Nanjing, China, Oct. 12-14 (Oct. 13), 2016.
22. Fabrication of graphene/diamond heterojunctions and their electronic properties
K. Ueda, S.Tanaka, and H. Asano
SSDM 2016, Tsukuba, Japan, Sep. 26-29 (Sep. 28), 2016 .
23. 作間啓太, 伊藤雅崇, 植田研二, 三浦 正志, 浅野秀文
“歪による無限層 $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{CuO}_2$ スパッタ薄膜の超伝導特性制御”
第77回 応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ（新潟） 2016年9月13-16日（9/15）
24. 植田研二, 浅野秀文
“グラフェン/ダイヤモンド接合における光・熱誘起伝導度変化”
第 77 回 応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ（新潟） 2016 年 9 月 13-16 日（9/14）
25. 黒木庸次, 安藤弘紀, 羽尻哲也, 植田研二, 浅野秀文
“逆ペロブスカイト窒化物 $\text{Co}_3\text{FeN}/\text{Mn}_3\text{GaN}$ ヘテロ接合の作製と交換結合特性”
第 77 回 応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ（新潟） 2016 年 9 月 13-16 日（9/13）
26. ソジョンミン, 羽尻哲也, 植田研二, 浅野秀文
“窒素組成制御した Mn_3GaN 薄膜の作製と評価”
第 77 回 応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ（新潟） 2016 年 9 月 13-16 日（9/13）
27. Photo and/or heat induced large conductivity change in graphene/diamond heterojunctions
K. Ueda, S.Aichi, and H. Asano
ICDCM (International conference on diamond and carbon materials) 2016, Montpellier, France, Sep. 4-8 (Sep. 8), 2016.

〔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://www.numse.nagoya-u.ac.jp/F5/k-ueda/index.htm>

6 . 研究組織

研究代表者と学生 3 名で研究を進めた。

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。