

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2011

課題番号：22760250

研究課題名（和文）

ダイヤモンド半導体／強磁性体ハイブリッド構造による新規スピンドバイスの創製

研究課題名（英文）

Fabrication of novel spintronic devices using the ferromagnet/diamond semiconductor heterostructures

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

研究成果の概要（和文）：本研究では、ダイヤモンド半導体と強磁性体を融合する事により、新規スピンドバイスを作製する事を目的とした。その結果、以下の3つの重要な成果を得た。

(1)ダイヤモンド上で強磁性ホイスラーハーフメタル (Co_2MnSi) がエピタキシャル成長する事を初めて見出した。(2)ダイヤモンド半導体を用いた強磁性ショットキー接合を作製し、障壁高さが強磁性体の仕事関数の選択により制御可能である事を示した。(3)強磁性Ni／高濃度ホウ素ドープダイヤモンド半導体を用いた3端子測定から、スピン注入に由来の信号を得た ($\tau \sim 20\text{ps}$)。

研究成果の概要（英文）：In this research, we tried fabricating novel spintronic devices using ferromagnets/diamond semiconductors heterostructures and obtained mainly following three results. (1) It is found that ferromagnetic and half-metallic Heusler Co_2MnSi can be epitaxially grown on diamond for the first time. (2) Schottky barrier heights between ferromagnetic metal and diamond semiconductor can be controlled by selecting ferromagnetic metals with proper work function. (3) Signals related to spin injection were observed by 3-probe Hanle measurements using Ni/diamond ferromagnetic heterojunctions ($\tau \sim 20\text{ps}$).

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子デバイス・電気機器

キーワード：量子デバイス・スピンドバイス、ダイヤモンド

1. 研究開始当初の背景

ダイヤモンドは、広い禁制帯幅 (5.5eV)、高熱伝導度 (22W/cmK)、高絶縁破壊電圧 (>10MV/cm)、高移動度 ($\sim 4500\text{cm}^2/\text{Vs}$) 等の優れた特性を持ち、高周波高出力デバイスとして期待されている。ダイヤモンド高周波高出力デバイスが実現すれば、ミリ波帯の通信衛星等で使われている真

空管を半導体化し、電力効率、信頼性等を大幅に向上させる事ができる。

これまでに、申請者らは単結晶 CVD ダイヤモンド薄膜を用いた電界効果トランジスタ (FET) を作製し、1GHz で出力電力密度 2.1W/mm が得られる事を世界に先駆けて報告してきた。また、大面積化に優れた多結晶ダイヤモンドを用いて

FET を作製し、ミリ波帯での高周波動作（～120GHz）が可能である事を初めて示した。これらは無線通信システム基地局等で用いられている高周波増幅器での使用に十分耐えうる値であり、ダイヤモンド半導体の高いポテンシャルを実証する結果である。

この様に申請者は近年、ダイヤモンド高周波トランジスタ開発に従事してきたが、ダイヤモンド半導体の優れた特性を生かした新しい展開として、スピントランジスタへの適用について検討してきた。スピントランジスタは、強磁性体の持つ不揮発性メモリ機能とトランジスタの持つ演算機能が融合した素子であり、1つの素子で「メモリ+演算機能」を持つ。その実現により不揮発集積回路の開発が可能となれば、メモリ領域のみならず、未使用の演算回路部分の電源遮断ができる超低消費電力コンピュータ等の実現が可能となる。しかし、スピントランジスタの作製は極めて難しく、不揮発性機能を明確に実証した例は無い。

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おり、強磁性体から半導体への高効率スピン偏極電流注入（スピン注入）が実現の鍵となる。半導体へのスピン注入を妨げる要素として、①強磁性金属-半導体間の電気伝導率の大きな相違（伝導率不整合）、②強磁性体と半導体の反応や相互拡散による界面不純物層の生成がある。現在スピン注入に関する研究は、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効率的なスピン注入を可能とする材料特性と界面形成法が模索されている段階である（Kioseoglou et al., Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 122106 等）。しかし、Si や GaAs は他材料との反応性等が高く、界面制御性等に問題がある為、未だに室温で十分なスピン注入効率が得られていない。これに対し申請者は、ダイヤモンド半導体を利用すれば、強磁性-半導体界面で生ずるこれらの問題を解決し、高効率スピン注入を実現できる可能性があると考えている。上述したように、ダイヤモンドは半導体材料として高いポテンシャルを持つが、以下の特徴からスピン注入対象としても極めて有望であると思われる。

- ・化学的安定性に極めて優れている為、界面不純物層が非常に出来にくい
- ・ホウ素ドーピングにより金属並みの低抵抗化が可能（伝導率不整合の問題解決に有効）
- ・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磁氣的散乱効果が小さい（Gaebel et al, Nature phys. 21 (2006) 408）

また、近年、有機分子へのスピン注入が試みられているが（Dediu et al, Nature Mater. 8 (2009) 707）、これは、炭素原子を主とする有機分子ではスピン-軌道相互作用が小さい為、高いスピン輸送能が期待される為である。しかし、有機分子は Si 等と比較して移動度が2桁以上小さい為（ $< 1 \text{cm}^2/\text{Vs}$ ）、期待される程の大きなスピン輸送能が得られていない。ダイヤモンドは有機分子と同様に、スピン-軌道相互作用の小さな炭素で形成されているが、移動度が有機分子より数桁、Si 等より1桁程度大きい為、他材料より大きなスピン輸送能が期待できる。

なお、申請者は上述のダイヤモンドトランジスタに加え、磁性薄膜作製に関しても十分な実績を持ち、当該研究課題を達成する為の十分な能力を有している。申請者の持つダイヤモンドトランジスタ作製技術を基に、ソース、ドレイン電極を強磁性体に置換すれば、ダイヤモンドスピントランジスタの実現が可能となる。

2. 研究の目的

スピントランジスタは、強磁性体の持つ不揮発性メモリ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素子である。その開発により不揮発性集積回路が実現すれば、未使用演算回路の電源遮断ができる超低消費電力コンピュータ等の実現が可能となる。本研究では、申請者の持つ世界有数のダイヤモンドトランジスタ作製技術をベースに、高い化学的安定性や大きなスピン拡散長等の優れた特徴を持つ「ダイヤモンド半導体」と「強磁性体」を融合する事により、「ダイヤモンドスピントランジスタ」を創出する事を目的とした。

3. 研究の方法

ダイヤモンドスピントランジスタの開発を、(1)ダイヤモンド半導体と適合性の高い強磁性ハーフメタル材料（スピン分極率～100%の強磁性材料）の探索、(2)強磁性体/ダイヤモンド半導体ダイオード構造の作製と高効率スピン注入指針の確立、(3)ダイヤモンドスピントランジスタの試作と動作検証の3段階で進める事とした。この3段階を「強磁性/半導体積層構造の作製」と「デバイス構造作製」の2パートに分け、それぞれに1年を割り当て、以下の様に研究を進めた。

平成 22 年度前半 (ダイヤモンド半導体/強磁性ハーフメタル積層構造の作製)

初年度は、マイクロ波プラズマ CVD 法によるダイヤモンド半導体の作製条件と強磁性ハーフメタル薄膜の結晶成長条件を確立した後、ダイヤモンド半導体/強磁性ハーフメタル積層構造の作製を行った。

・マイクロ波プラズマ CVD 法によるホウ素ドープ p 型ダイヤモンド半導体の作製

市販の窒素ドープダイヤモンド基板上へホウ素ドープ p 型ダイヤモンドの作製を行った。作製条件をホール測定、SIMS 測定 (依頼分析) 等を用いて決定した。結果として、室温移動度が $1000\text{cm}^2/\text{Vs}$ 以上の高品質 p 型ダイヤモンド半導体を得られる作製条件を確立した。

・スパッタリング法による強磁性ハーフメタルの結晶成長 CVD 法による p 型ダイヤモンド作製と併行して、イオンビームスパッタ法による強磁性ハーフメタル材料の結晶成長条件の最適化を行った。なお、強磁性ハーフメタル材料の結晶成長に関しては、ホイスラー化合物系 (Fe_2CrSi 等)、酸化物系 ($\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 等) 共に、所属研究室内で十分な技術蓄積があり、ここで最適化された条件をそのまま使用した。

・強磁性ハーフメタル/ダイヤモンド半導体積層構造の作製

ダイヤモンド及び強磁性ハーフメタル薄膜それぞれの作製条件の最適化後、ダイヤモンド基板上に様々の強磁性ハーフメタル材料を結晶成長させ、ダイヤモンドと適合性の高い強磁性ハーフメタル材料の選定を行った。格子整合性の観点からは、酸化物系材料が有望だと思われたが、(ダイヤモンド: $\sim 3.6\text{\AA}$ 、ペロブスカイト型酸化物: $\sim 3.9\text{\AA}$ 、ホイスラー合金: $\sim 6.0\text{\AA}$) 実際は、酸化物はダイヤモンド上にエピタキシャル成長させるのが難しく、ホイスラー合金 (Co_2MnSi) エピタキシャル成長する事が分かった。

平成 22 年度後半 (ダイヤモンド半導体/強磁性ハーフメタル積層構造の作製)

前年度で得られた知見を元に、強磁性体/ダイヤモンドからなるダイオード構造を作製した。伝導率不整合の問題を回避する為、イオン注入により作製した高濃度 B ドープ層を強磁性/ダイヤモンド半導体界面に挿入し、スピン注入を試みた。

平成 23 年度 (ダイヤモンド半導体/強磁性体積層構造を用いた新規スピンドバイスの作製)

・ダイヤモンド半導体を用いた強磁性ショットキー接合の作製と電気特性評価

フォトリソグラフィとリアクティブイオンエッチング (RIE) を用い、作製した強磁性体/半導体積層構造の微細化を行い、強磁性ダイオードを作製した。

強磁性体を様々に変化させたショットキー接合における電流-電圧変化から後述の様に、ショットキー障壁高さが強磁性体の仕事関数の選択により制御可能である事が分かった。

・スピンドダイオード構造の作製と電気特性評価

スピン注入効率決定の為に磁場で電流-電圧測定を行ったが、測定の為に、磁場中半導体電気特性評価装置 (申請設備) が必要となる。現有の低温磁気プローブと組合せ、磁場中で電流-電圧測定が行える装置を立ち上げた。その後、強磁性 Ni/高濃度ホウ素ドープダイヤモンド半導体接合を用いた 3 端子測定により、スピン注入由来の信号を得る事に成功した (スピン緩和時間: $\tau \sim 20\text{ps}$)。なお、スピン緩和時間は半導体中のキャリアがどのぐらいの時間スピン情報を保持できるかを表わしている。この値は高濃度不純物ドープ Si 等の結果

(270pS , Dash et al., Nature 462 (2009) 491) と比較すると 1 桁程度小さいが、これは界面制御が十分行われていない事、不純物量が Si の場合より 2 桁多い事等に起因すると考えている。現在も引き続き研究を進めているが、ダイヤモンド半導体の界面高品質化、低欠陥化等により改善を行う予定であり、より長いスピン緩和時間が得られると思われる。

4. 研究成果

本研究により、主として以下の 3 つの成果を得た。

(1) ダイヤモンドと適合性の高い強磁性ハーフメタル材料の検討を行い、ダイヤモンド上での強磁性ホイスラーハーフメタル (Co_2MnSi) のエピタキシャル成長する事を初めて見出した (図 1)。

なお、強磁性ハーフメタルはスピン分極率 (P) が ~ 1 の材料で、スピン注入源として最適の材料と考えられている。基板温度 $\sim 650^\circ\text{C}$ で、高品質強磁性ホイスラー薄膜 (Co_2MnSi) が得られており、(国際学会投稿中、論文投稿準備中) この時、面内配向も確認された (Co_2MnSi (001)[100]/diamond (001)[110])。その結果、ダイヤモンド上に強磁性ホイスラーハーフメタル薄膜がエピタキシャル成長する事が分かった。

(2) 水素終端ダイヤモンド半導体/強磁性体 (CoFe , Co , Ni 等) 積層構造を用いた高品質強磁性ショットキー接合 (整流比: ~ 4

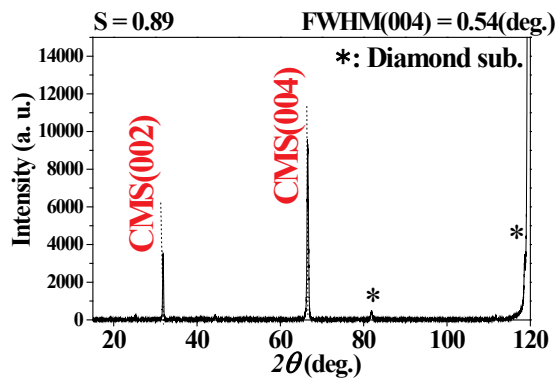


図1：ダイヤモンド半導体上に作製した強磁性ホイスラー-Co₂MnSi (CMS)薄膜のX線回折パターン (成長温度：650℃)

桁)の作製に成功し、ショットキー障壁高さの制御が強磁性体の仕事関数の選択により可能である事を明らかにした(業績番号①)。ショットキー障壁高さの制御は高効率スピン注入の為に必須の技術であり、障壁高さが低いほど高効率にスピン注入できる事が理論的に予測されている(Jansen et al., Phys. Rev. Lett. 99 (2007) 246604.)。

(3) Niと高濃度ホウ素ドーパダイヤモンド半導体を用いた3端子素子を作製し(図2挿入図)、スピン注入を試みた。3端子ハ

ンル測定からスピン注入信号が得られ、注

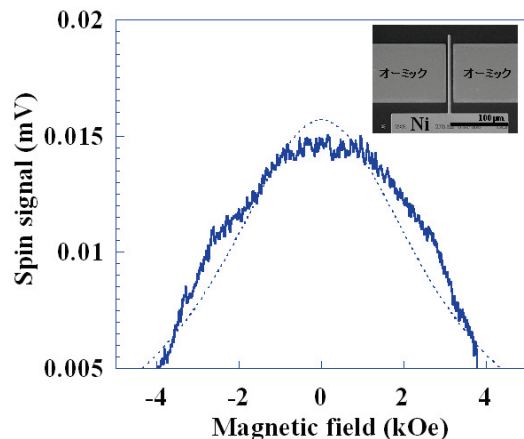


図2：強磁性三端子素子(右上挿入図)を用いたハル測定により得られたスピン注入信号、点線はローレンツ関数によるフィッティング結果($\tau \sim 20\text{ps}$)

20pS程度と見積もられた(図2)。この値は高濃度不純物ドーパSiでの結果(270pS, Dash et al., Nature 462 (2009) 491)と比較すると1桁程度小さいが、これは界面制御が十分行われていない事及び不純物量がSiの場合より2桁多い事等に起因すると考えている。今後、ダイヤモンド半導体の界面高品質化、低欠陥化等により改善を行う予

定であり、より長いスピン緩和時間が得られると思われる。

これらの結果はダイヤモンド/強磁性体接合を用いたデバイス作製及び界面特性に関して報告した初めての結果であり、スピントロニクス分野でインパクトのある結果である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計5件)

- ① Ferromagnetic Schottky junctions using diamond semiconductors
K. Ueda, T. Soumiya and H. Asano
Diamond Relat. Mater. 25 (2012) 159-162
査読有
DOI: 10.1016/j.diamond.2012.02.015.
- ② Fabrication of MgAl₂O₄ thin films on ferromagnetic heusler alloy Fe₂CrSi by reactive magnetron sputtering
N. Fukatani, K. Inagaki, K. Mari, H. Fujita, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano
Jpn. J. Appl. Phys. 51 (2012) 02BM04-1-4
査読有
DOI: 10.1143/JJAP.51.02BM04.
- ③ Magnetic and electric properties of double perovskite Sr_{2-x}La_xVMoO₆
H. Matsushima, H. Gotoh, Y. Takeda, K. Ueda, and H. Asano
Jpn. J. Appl. Phys. 50 (2011) 103004-1-5
査読有
DOI: 10.1143/JJAP.50.103004.
- ④ Epitaxial strain and antiferromagnetism in Heusler Fe₂VSi thin films
N. Fukatani, K. Ueda, H. Asano
J. Appl. Phys. 109 (2011) 073911-1-4,
査読有
DOI: 10.1063/1.3555089.
- ⑤ ダイヤモンド半導体を用いた強磁性ショットキー接合の作製
宗宮嵩・植田研二・深谷直人・宮脇哲也・浅野秀文
日本磁気学会誌、印刷中、査読有

[学会発表] (計6件)

- ① 中間層に酸化物半導体を用いた接合における磁気抵抗効果と電気伝導メカニズム
戸澤克倫, 植田研二, 作間啓太, 小林耕平, 鈴木亮佑, 宮脇哲也, 浅野秀文
2012 春季第59回応用物理学会、2012年3月15日、早稲田大学
- ② Fabrication of Schottky junctions using diamond/ferromagnet heterostructures

T. Soumiya, K. Ueda, and H. Asano
International Symposium on EcoTopia
Science(ISETS), 2011年12月10日 Nagoya,
Japan

- ③ ダイヤモンド半導体を用いた強磁性シ
ョットキー接合の作製
宗宮 嵩, 深谷 直人, 宮脇 哲也, 植
田 研二, 浅野 秀文
第 35 回日本磁気学会学術講演会、2011
年 9 月 30 日、朱鷺メッセ、新潟
- ④ Magnetoresistance effects in
 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3/\text{Nb-SrTiO}_3/\text{Co}$ junctions
K. Tozawa, K. Kobayashi, T. Miyawaki, K.
Ueda, and H. Asano
2011 International Conference on Solid
State Devices and Materials(SSDM2011),
2011年9月29日, Nagoya, Japan
- ⑤ Ferromagnetic Schottky junctions using
diamond semiconductors
K. Ueda, T. Soumiya, T. Tozawa H. Asano
Diamond 2011, 2011年9月8日, Garmish-
Partenkirchen,
Bavaria, Germany
- ⑥ Transport and local magnetic properties in
strained Fe_2VSi thin film
N. Fukatani, K. Ueda, H. Asano and K. Mibu
INTERMAG 2011, 2011年4月25日,
TAIPEI, Taiwan

[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

(1) 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

(2) 研究分担者なし

(3) 連携研究者なし