

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26286039

研究課題名(和文) キャリア輸送型スピン流を用いた論理演算素子創製に関する研究

研究課題名(英文) A study related to development of logic devices operated by carrier-driven spin currents

研究代表者

仕幸 英治 (SHIKOH, Eiji)

大阪市立大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90377440

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：スピントロニクスの新展開としてキャリア輸送型スピン流を用いた論理演算素子の創製に関する研究を行った。ペンタセン、p型シリコンおよび酸化バナジウムに対し、それぞれ光照射、電界印加および環境温度制御によってキャリア密度を制御することによるスピン流スイッチングを目指した。ペンタセン蒸着膜および縮退p型シリコンの室温スピン輸送を達成した。ペンタセン薄膜の室温スピン拡散長およびスピン流の緩和時間をそれぞれおよそ42 nmおよびおよそ150 nsと評価した。

研究成果の概要(英文)：As a new application using spintronics, a research related to development of logic devices operated by carrier-driven spin currents was implemented. Spin currents in pentacene thin films, in p-type silicon and in vanadium oxide were tried to control densities of carriers with light irradiation, applying electrical field and controlling temperature, respectively. Spin transport in a thermally evaporated pentacene film and in a degenerated p-type silicon were achieved at room temperature. Spin diffusion length and spin current relaxation time in thermally evaporated pentacene films at room temperature were estimated to be about 42 nm and about 150 ns, respectively.

研究分野：工学

キーワード：スピントロニクス スピンポンピング p型シリコン 遷移金属酸化物 ペンタセン

1. 研究開始当初の背景

現在の半導体産業において、いわゆる Beyond-CMOS 技術開発が急務となっている。そのための重要な技術の一つが、電子の電荷とスピンの自由度を制御するスピントロニクスである。スピントロニクスデバイスにおいては従来技術よりも理論的に大幅な省エネが可能である点が非常に注目されており、現在、その基礎から応用まで幅広い研究が成されている。例えば MRAM や GMR ヘッド、TMR ヘッド、論理集積回路などの研究開発が、国や企業による巨額予算投入のもと、進められている。本研究では、スピントロニクスの新展開のための、次の一手の確立を目指し、半導体材料におけるキャリア輸送型のスピン流を用いた論理演算素子創製を目指すことにした。

スピン流を用いた論理演算素子には、先にスピン波によるスピン流を用いたタイプが国内外で考案され、一部の技術は既の実証されている [1]。スピン波によるスピン輸送距離はマイクロメートル以上という長距離でも可能であり、その点は優れている。ただし、そのスピン波を用いた手法には良質な強磁性体が必要だが、良質な強磁性体を作ることが難しく、再現を取ることが困難、即ち、誰もが使えるわけではない。また論理演算素子においてはマイクロメートル単位の輸送は必要ではなく、もっと短距離でのスピン輸送(情報輸送)ができればよい。更に、スピン波スピン流は強磁性体内の現象であり、スピン流のスイッチングが難しい。

そこで本研究では、100 nm から数百 nm のスピン輸送が可能であり、かつ、スピン流のスイッチングが可能な、電子やホールといったキャリア輸送によるスピン流を用いた論理演算素子の創製のための研究を遂行することにした。

2. 研究の目的

スピントロニクスの新展開としてキャリア輸送型スピン流を用いた論理演算素子創製のための研究を三段階で行うことを目的とした。第一に伝送線を用いたスピンポンピングにより半導体材料にスピン流を生成し、スピン輸送を実証することを目指した。第二にそのスピン流のスイッチングを目指した。第三にスピン流を用いた論理演算素子の創製を目指し、情報処理演算の基本となる NAND 演算回路を作製し、演算の実演を目指した。

3. 研究の方法

図 1 に本研究で基礎評価に用いた試料構造の一例、即ち、伝送線によるスピンポンピングを用いたスピン輸送特性評価実験のための試料構造を示す。図 2 には情報処理の最も基本となる NAND 演算素子の回路の一例を示す。本研究ではスピン輸送およびそのスイッチングを実現する材料として、p 型シリコン (p-Si)、酸化バナジウム (VO_2) そして、ペンタ

セン (pentacene) 分子膜を用いた。p-Si, VO_2 および pentacene それぞれにおけるスピン輸送を担うキャリアの密度は、それぞれ、電界、熱および光で制御できるため、スピン流のスイッチング制御にはそれぞれ、いわゆるゲート電圧、環境温度および、光照射にて制御することを目指した。

p-Si および VO_2 を対象とする実験試料については、図 1 に示す構造の試料を電子線リソグラフィ、フォトリソグラフィ、真空蒸着法、PLD 法およびスパッタリング法を用いて作製した(図 1 は p-Si の構造例。 VO_2 の場合には、Doped-Si となっている部分に VO_2 を、その際の基板に TiO_2 を用いた)。ペンタセンについては、図 3 に示す構造の試料を、真空蒸着法を用いて作製した。

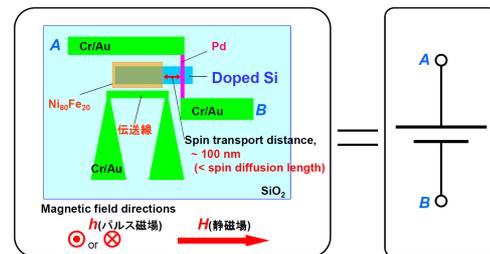


図 1. 伝送線によるスピンポンピングを用いたスピン輸送特性評価のための試料構造の概要(例としてスピン輸送材料が Si の場合、基板上部からの俯瞰図)。スピンポンピングにより AB 間に起電力を発生させる。強磁性金属 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ はスピン流生成源として使用し、常磁性金属パラジウムはスピン流検出器として使用。

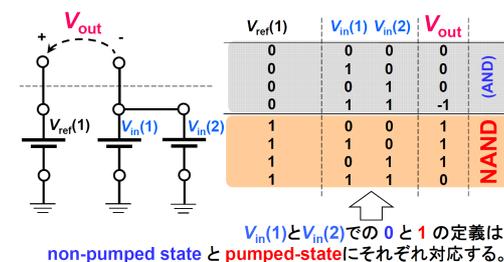


図 2. NAND 演算回路の例と真理値表。 $V_{in}(1)$ や $V_{in}(2)$ の部分は図 1 の 1 ユニット分 (図 1 そのものに対応)。 V_{ref} は電気的に行う。

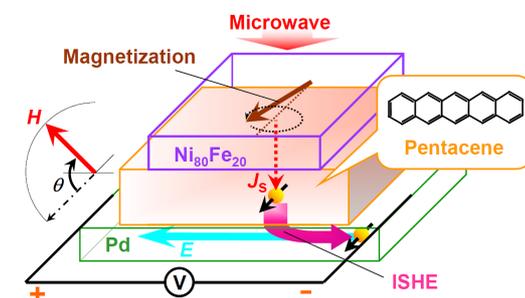


図 3. ペンタセン蒸着膜のスピン輸送評価実験の試料構造および特性評価方法の概要。

特性評価は次のように行った。スピンポンピングのためには強磁性共鳴 (FMR) の励起が必要である。FMR の励起には、一般に電子スピン共鳴装置 (ESR 装置) を用いるのが簡便であるが、本研究ではより実用的な方法として伝送線法を主な手段として用いた。伝送線法は、伝送線に高周波電流を印加し、それが作る高周波磁場と、別途電磁石を用いて静磁場を印加することにより FMR を励起する (高周波電流のためのベクトルネットワークアナライザは本経費で購入した)。尚、伝送線法実験のためのオリジナル装置構築段階と検証のために、ESR 装置も用いた。スピン輸送特性は次のように評価した。例として、図 3 の pentacene 分子膜の実験で示す (p-Si および VO_2 でも概ね同じである)。 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ の FMR を励起することによるスピンポンピングにより、ペンタセン薄膜中にスピン流 J_s が生成される。この J_s はペンタセン膜中を流れ、Pd に吸収される。この Pd 中ではスピン流を電流へと変換する逆スピンホール効果 (ISHE) により、Pd の両端に起電力が生じることが期待される。この起電力を観測することができれば、ペンタセン薄膜中のスピン輸送の証拠となる。したがって、起電力測定のため、リード線の一方の端を銀ペーストにて試料に取り付け、他端をナノボルトメータに接続した。これにより、FMR と同期する起電力特性を評価した。

スピン流スイッチング実験は次のように実施した。p-Si に対しては、Si 基板の裏面からゲート電圧を、Si 基板表面の熱酸化膜を介して印加し、キャリア密度制御を行った。 VO_2 に対しては、金属絶縁体転移温度が室温よりもやや高温のため、ヒーターを用いて環境温度を制御し、キャリア密度を制御した。ペンタセンに対しては、キセノンランプを光源とし、ペンタセン薄膜のエネルギーバンドギャップよりも大きなエネルギーに相当する光 (波長 $550 \pm 25 \text{ nm}$) を、熱線吸収フィルターを透過させてから試料に照射した。これらを用いて、FMR と同期する起電力特性を評価した。

4. 研究成果

(1) p-Si を用いた研究成果

キャリア濃度 N が $1 \times 10^{17} \sim 1 \times 10^{20} / \text{cm}^3$ の p-Si に対し、スピン輸送特性を室温で評価した。 N が $1 \times 10^{17} \sim 1 \times 10^{19} / \text{cm}^3$ の p-Si については、全ての試料において Pd の ISHE の観測に成功、即ち、p-Si のスピン輸送を達成した。これらは先行研究[2]とほぼ同様な結果となり、 N が大きくなるほど、スピン拡散長が長いという成果を得た。これは半導体である p-Si とスピン注入源の $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ との接合界面における電氣的バリアの幅と障壁高さが、たとえ、その影響を受けにくいスピンポンピングによるスピン注入でも、キャリアがスピン輸送を担うからには影響する点と、そもそもキャリア密度が大きいと、スピン散

乱確率は上がるものの、スピンを輸送するキャリアが多い点等によると考察した。 N が 1×10^{20} の p-Si では ISHE と考えられる特性を観測したが、 N が $1 \times 10^{17} \sim 1 \times 10^{19} / \text{cm}^3$ の p-Si にて観測された ISHE 信号と比較すると、起電力の符号の正負が反転する結果となった。ここで N が 1×10^{20} の p-Si は縮退領域の半導体であることに注意する。即ち金属的な振る舞いを示す状態であり、界面での電氣的障壁の影響を受けにくいので、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜自身の FMR 下での ISHE による起電力[3]が重畳している可能性が考えられた。また、この起電力信号の正負逆転の関係に対し、輸送長依存性のようなものは観測されていないことから、n 型 Si のスピン輸送で観測されるような、スピン輸送中のスピン回転によるスピン流の極性反転[4]ではないと考察した。

(2) VO_2 を用いた研究成果

当初は平面型構造試料 (図 1) にて研究を開始したが、リソグラフィ技術に難が生じたため、積層型構造試料 (図 3) にて評価した。その際、十分な条件出しをしたが、良質な VO_2 を Pd 上に作製することにも難があった。そこでスピン注入効果だけでも検証することにした。TiO₂ 基板上に形成した VO_2 膜上に $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ を蒸着した試料を作製し、 VO_2 膜へのスピンポンピングによるスピン注入効果を、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜の FMR 吸収特性のスペクトル線幅の温度依存性による評価法[5]と、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜自身の起電力特性の温度依存性から評価した。図 4 に $\text{VO}_2/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 二層構造試料の、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜の FMR 下での起電力の温度依存性を示す。ここで用いた試料の VO_2 の電気抵抗の温度依存性を、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 成膜の前に評価したところ、330 K 付近で金属絶縁体転移を示すことがわかっていて、図 4 の起電力特性は VO_2 薄膜自体の電気抵抗変化のみでは説明できず、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ から VO_2 へのスピン注入効果を含む可能性が示唆された。

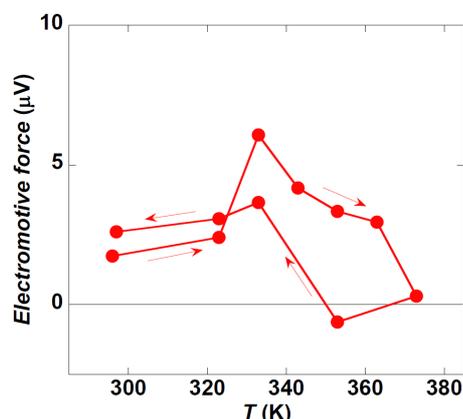


図 4 . $\text{VO}_2/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 二層構造試料の、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜の FMR 下での起電力の温度依存性。

(3) Pentacene を用いた研究成果

当初は分子材料の利用計画は無かった。し

かしながらスピンの制御の方法として光を利用すれば様々な応用展開があることに気づき、光導電性分子に着目した。その分子のスピンの輸送特性を光で、しかも可視光で制御することができれば、それまでの無機材料の代替でしかなかった分子スピントロニクス分野に対し、正に光が指すと考えた。そこで分子材料の中でも、蒸着膜でも高い結晶性を有し、高い電気伝導性を持つペンタセン蒸着膜に着目した。ペンタセンは可視光により光導電性を示すため、仮に光無しの場合のスピンの輸送能力に難があっても、照射下ではスピンの輸送できる可能性があり、その光の有無がそのままスイッチング技術として、様々な方面で活用できると期待した。

図5に、図3に示す構造を用いたペンタセン蒸着膜の室温スピンの輸送実験の結果を示す。図5(a)がNi₈₀Fe₂₀膜のFMR特性であり、明確なFMR信号が観測された。図5(b)がPd膜における起電力特性である。Ni₈₀Fe₂₀膜のFMR下において出力電圧信号が観測され、その符号はNi₈₀Fe₂₀の磁化反転に伴い、逆転した。この符号反転がPdのISHEに起因することを調べるため、Pdを、スピン軌道相互作用の小さな銅(Cu)に変更した試料を作製し、同様に評価した。その結果、Pdの代わりにCuを用いた試料からは明確な出力電圧が観測されなかった。以上により、図5(b)の起電力信号は主にPdのISHEによると結論付けた。即ち、ペンタセン蒸着薄膜の室温スピンの輸送を達成した[6]。

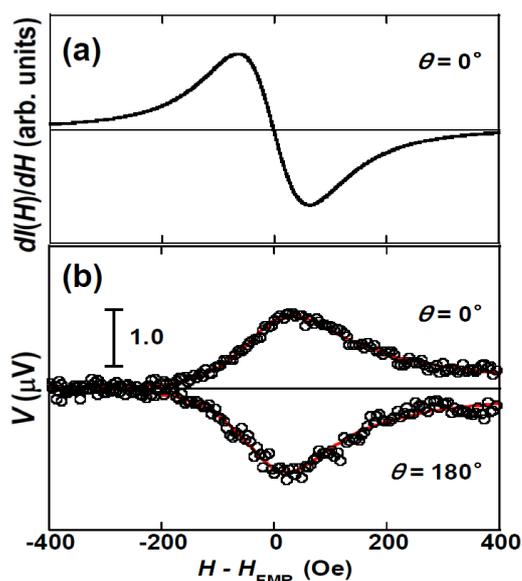


図5 . Ni₈₀Fe₂₀/pentacene/Pd 積層構造試料に対する、(a) Ni₈₀Fe₂₀膜のFMR特性、(b)起電力特性 . Ni₈₀Fe₂₀の磁化反転に伴い、起電力信号も逆転 . いくつかの対照実験の結果、この起電力信号の逆転は主にPdのISHEによると結論付けた。即ち、ペンタセン蒸着膜の室温スピンの輸送を達成した。

次に起電力のペンタセン膜厚依存性を調べ、ペンタセン蒸着膜の室温スピンの拡散長を42±10 nmと評価した[6]。この値は、実用化における微細加工技術との兼ね合いで、当初は100 nm以上ほしいと考えていたが、先述のとおり照射によって、スピンの拡散長が変化することが期待できるため、現時点では問題視していない。また、XRDによりペンタセン膜の膜質を評価したところ、結晶性には改善の余地があることがわかった。つまり、42±10 nmというスピンの拡散長の値は、最小値である可能性が高く、結晶性の向上とともに、延びる可能性が示された。これは今後の課題である。この得られたスピンの拡散長の値と、ペンタセン薄膜中のキャリアであるホルルの拡散係数を用いて、ペンタセン膜中のスピンの流の緩和時間を150±120 nsと評価した[7]。この数値は、例えば照射でスピンの流を制御する際には、十分に長い値である。そこで、スピンの輸送の照射による応答実験を行った。これまでに微弱な応答が観測されたものの、明確な再現性が得られていない。膜の結晶性の改善と合せて、詳細な実験が今後必要である。

<引用文献>

- [1] 例えば、N. Sato, et al., Appl. Phys. Exp., 6, 063001 (2013). など.
- [2] E. Shikoh, et al., Phys. Rev. Lett., 110, 127201 (2013).
- [3] A. Tsukahara, E. Shikoh, et al., Phys. Rev. B, 89, 235317 (2014).
- [4] B. Huang, et al., Phys. Rev. Lett., 99, 177209, (2007).
- [5] S. Mizukami, et al., Phys. Rev. B, 66, 104413 (2002).
- [6] Y. Tani, Y. Teki, E. Shikoh, Appl. Phys. Lett., 107, 242406 (2015).
- [7] Y. Tani, T. Kondo, Y. Teki, E. Shikoh, Appl. Phys. Lett., 110, 032403 (2017).

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

R. Ohshima, Y. Ando, K. Matsuzaki, T. Suzaki, M. Weiler, S. Klingler, H. Huebl, E. Shikoh, T. Shinjo, S.T.B. Goennenwein, M. Shiraishi, "Strong evidence for d-electron spin transport at room temperature at a LaAlO₃/StTiO₃ interface.," Nature Materials, 印刷中, 7 pages, (2017). 査読有り
DOI: 10.1038/nmat4857

Y. Tani, T. Kondo, Y. Teki, E. Shikoh, "Spin current relaxation time in thermally evaporated pentacene films.," Applied Physics Letters, Vol.110, pp. 032403-1~4 (2017). 査読有り
DOI: 10.1063/1.4974294

K. Kanagawa, Y. Teki, E. Shikoh, "Electromotive forces generated in 3d-transition ferromagnetic metal films themselves under their ferromagnetic resonance.," cond-mat:arxiv, 1610.06695., 17 pages (2016). 査読無し

<https://arxiv.org/abs/1610.06695>

H. Emoto, Y. Ando, G. Eguchi, R. Ohshima, E. Shikoh, Y. Fuseya, T. Shinjo, M. Shiraishi, "Transport and spin conversion of multi carriers in semimetal bismuth.," Physical Review B, Vol. 93, pp. 174428-1~5 (2016). 査読有り

DOI: 10.1103/PhysRevB.93.174428

Y. Tani, Y. Teki, E. Shikoh, "Spin-pump-induced spin transport in a thermally evaporated pentacene film.," Applied Physics Letters, Vol.107, pp. 242406-1~4 (2015). 査読有り

DOI: 10.1063/1.4938132

H. Shimogiku, N. Hanayama, Y. Teki, H. Tsujimoto, E. Shikoh, "Spin pumping using an Ni₈₀Fe₂₀ thin film annealed in a magnetic field.," cond-mat:arxiv, 1407.7028., 18 pages, (2014). 査読無し

<https://arxiv.org/abs/1407.7028>

H. Emoto, Y. Ando, E. Shikoh, Y. Fuseya, T. Shinjo, M. Shiraishi, "Conversion of pure spin current to charge current in amorphous bismuth.," Journal of Applied Physics., Vol.115, 17C507-1~3, (2014). 査読有り

DOI: 10.1063/1.4863377

[学会発表](計19件)

Y. Tani, T. Kondo, Y. Tanaka, Y. Teki, H. Tsujimoto, E. Shikoh, "Spin transport properties in thermally-evaporated pentacene films by using the spi-pump.," IEEE International Magnetism Conference, INTERMAG Europe 2017, 2017年4月26日, Dublin (Ireland).

谷泰雄、近藤卓哉、手木芳男、仕幸英治、"ペンタセン蒸着膜中の室温スピントロニクス輸送とスピントロニクス緩和,"日本物理学会第72回年次大会、2017年3月20日、大阪大学(大阪府・豊中市)。

谷泰雄、近藤卓哉、手木芳男、仕幸英治、"ペンタセン蒸着膜のスピントロニクス輸送とその緩和特性,"第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年3月14日、パシフィコ横浜(神奈川県・横浜市)。

K. Kanagawa, Y. Teki, E. Shikoh, "Electromotive forces generated in 3d-transition ferromagnetic metal films themselves under their ferromagnetic resonance.," 21st Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors (PASPS-21), 2016年12月12日、北海道大学(北海道・札幌市)。

K. Kanagawa, Y. Teki, E. Shikoh, "Electromotive forces generated in 3d-transition ferromagnetic metal films themselves under their ferromagnetic resonance.," International Symposium on Metal and Insulator Spintronics, 2016年11月26日、慶應義塾大学(神奈川県・横浜市)。

E. Shikoh, "Spin-pump-induced in thermally-evaporated pentacene films.," the Energy, Materials, and Nanotechnology (EMN) meeting on Spintronics (招待講演), 2016年10月13日, Las Vegas (USA)。

金川知誠、手木芳男、仕幸英治、"強磁性共鳴下で強磁性単層薄膜に発生する起電力に関する研究,"第77回応用物理学会秋季学術講演会、2016年9月13日、朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)。

仕幸英治、谷泰雄、手木芳男、"動力的スピントロニクスを用いたペンタセン蒸着膜のスピントロニクス輸送,"日本磁気学会第40回学術講演会、2016年9月8日、金沢大学(石川県・金沢市)。

仕幸英治、"基礎から学ぶスピントロニクス材料,"高分子学会2016年印刷・情報記録・表示光反応・電子用材料研究会基礎講座「基礎から学ぶエレクトロニクス/スピントロニクス材料&成膜技術」(招待講演), 2016年7月27日、産業技術総合研究所臨海副都心センター(東京都・江東区)。

K. Kanagawa, Y. Teki, E. Shikoh, "Electromotive Forces Generated In Various Ferromagnetic Metal Films Under Their Ferromagnetic Resonance.," International Union of Materials Research Societies - International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM) 2016, 2016年7月7日, Singapore (Singapore).

Y. Tani, Y. Teki, E. Shikoh, "Spin transport Characteristics of Thermally Evaporated Pentacene Films by Using Spin Pumping.," International Union of Materials Research Societies - International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM) 2016, 2016年7月6日, Singapore (Singapore).

H. Kuriyama, K. Kubo, Y. Teki, H. Tsujimoto, M. Shiraishi, E. Shikoh, "Carrier Concentration Dependence of Spin Transport in p-Si Induced by Spin Pumping.," International Union of Materials Research Societies - International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM) 2016, 2016年7月6日, Singapore (Singapore).

谷泰雄、手木芳男、仕幸英治、"スピントロニクスを用いたペンタセン蒸着膜の室温スピントロニクス輸送,"日本物理学会2015年秋季大会、2015年9月16日、関西大学(大阪府・吹田市)。

下菊秀記、手木芳男、辻本浩章、仕幸英治、“強磁性共鳴下でNi₈₀Fe₂₀/Pd二層膜に発生する起電力の磁場中熱処理温度依存性,” 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 2015年9月13日, 名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市).

谷泰雄、手木芳男、仕幸英治、“スピンプンピングによるペンタセン蒸着膜のスピントランスポート特性,” 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 2015年9月13日, 名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市).

H. Shimogiku, N. Hanayama, Y. Teki, H. Tsujimoto, E. Shikoh, “Spin-pumping using the Ni₈₀Fe₂₀ thin film annealed in a magnetic field.,” 20th International Conference on Magnetism (ICM) 2015, 2015年7月9日, Barcelona (Spain).

E. Shikoh, “Spin-Pump-Induced Spin Transport in p-Type Si.,” the Energy, Materials, and Nanotechnology (EMN) Phuket meeting (招待講演), 2015年5月5日, Phuket (Thailand).

仕幸英治、“スピントロニクスを用いた省エネデバイス開発,” 大阪市立大学大学院工学研究科第60回オープンラボラトリー「スマートエネルギー技術開発」, 2014年10月27日, 大阪産業創造館(大阪府・大阪市).

下菊秀記、花山直之、手木芳男、辻本浩章、仕幸英治、“磁場中熱処理したNi₈₀Fe₂₀薄膜を用いたスピンプンピング,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 2014年9月17日, 北海道大学(北海道・札幌市).

[その他]

大阪市立大学仕幸英治研究室ホームページ:
http://bio.mc.elec.eng.osaka-cu.ac.jp/s/hikoh_index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

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

(2) 研究分担者

神吉 輝夫 (KANKI, Teruo)
大阪大学・産業科学研究所・准教授
研究者番号: 40448014

(3) 連携研究者

無し

(4) 研究協力者

下菊 秀記 (SHIMOGIKU, Hideki)
白井 俊 (SHIRAI, Shun)
栗山 裕貴 (KURIYAMA, Hiroki)
谷 泰雄 (TANI, Yasuo)
岡田 卓久 (OKADA, Takahisa)

金川 知誠 (KANAGAWA, Kazunari)
近藤 卓哉 (KONDO, Takuya)
手木 芳男 (TEKI, Yoshio)
辻本 浩章 (TSUJIMOTO, Hiroaki)