

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13335

研究課題名（和文）完全スピン偏極ゼロギャップ半導体の創製とスピndeデバイス応用

研究課題名（英文）Fabrication and spintronic application of spin gapless 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） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、完全スピン偏極かつ高移動度のキャリアを有するスピギャップレス半導体（SGS）の創製とスピントロニクス応用を目的とした。成果として、ホイスラー合金Mn₂CoAlがSGSとして非常に有望であり、イオンビームアシストスパッタ法で高品質MCA薄膜が得られる事及び、MCAが電界印加によりスピン偏極したホール又は電子を切り替えて供給可能な新規スピン注入源になる事を初めて明らかにした。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have tried fabricating spin gapless semiconductors (SGS), which have fully spin polarized and high mobility carriers, and finding the way for use SGS as novel spintronic devices. We found that Mn₂CoAl (MCA) is the most promising candidate of SGS, and high quality films of MCA can be obtained by ion-beam assisted sputtering. We also showed that MCA is promising as a novel spin source of both spin-polarized electrons and holes.

研究分野：半導体材料・デバイス

キーワード：スピギャップレス半導体 ホイスラー Mn₂CoAl

1. 研究開始当初の背景

完全スピン偏極ゼロギャップ半導体 (スピンギャップレス半導体: SGS) はその特異なバンド構造の為、キャリアの高スピン偏極率 (磁気特性) と高移動度 (半導体特性) が 1 材料中で両立する事から、半導体デバイスにスピン機能が融合したスピントロニクスデバイス作製の中心材料として非常に有望である。SGS 材料の理論予測は近年盛んに行われているが、現状では Mn_2CoAl を始めとするホイスラー化合物系 (Appl. Phys. Lett., 102, 022402 他) と $PbPdO_2$ 等の酸化物系 (Phys. Rev. Lett. 100, 156404 他) が有望とされている。しかし SGS の明確な実証例は未だに無い。

現在までの研究で、我々を含む多数の研究が、強磁性体と半導体 (Si, GaAs 等) を組合わせて新規スピントロニクスデバイス (スピントランジスタ等) を作製する試みを行ってきたが、両者の電気伝導度の大きな違い (伝導率不整合) の為、強磁性体から半導体への高効率スピン注入が難しく、実現に至っていない。そこで我々は、新たな展開として優れた磁気・電気特性を併せ持つ SGS に着目した。

2. 研究の目的

SGS は、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、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。しかし、SGS となる材料の理論予測は多数なされているが明確な実証例は未だに無い。本研究では材料設計自由度の高いホイスラー化合物を対象として SGS を新規に創製する事及び、その優れた物理特性を生かした新規スピントロニクスデバイスの作製を目的とした。

3. 研究の方法

完全スピン偏極ゼロギャップ半導体 (SGS) の創製と新規スピンデバイス応用に関し研究を、ホイスラー型完全スピン偏極ゼロギャップ半導体の探索、完全スピン偏極ゼロギャップ半導体を用いた新規デバイス作製の 2 段階で進めた。

第一原理計算による理論予測を足掛りに材料探索を行う過程と、現在予備実験により既にエピタキシャル薄膜が得られている Mn_2CoAl の電気・磁気特性を調査し、SGS 化する過程の 2 つに分けて研究を行った。これらの材料で、SGS に特有のバンド構造及び電気特性 (高移動度、高スピン偏極等) が現れるか検証し、SGS の創製を試みる。その後、SGS の優れた物理特性を生かした新規スピントロニクスデバイスの作製を試みた。

4. 研究成果

始めに、ホイスラー合金型 SGS の最有力候補である Mn_2CoAl (MCA) 高品質薄膜の作製を行った。イオンビームアシストスパッタ法を用いる事により、格子ミスマッチの比較的良好な MgO 及び $MgAl_2O_4$ 基板上 (~2%) に、成長温度 300-600 で MCA がエピタキシャル成長する事を見出した。また低温 (300-400) で成長した MCA 薄膜は、高温成長で作製したもの (500-600) と比較して結晶性等は悪いが、磁気及び電気特性が優れている事が分かった。この理由 MCA は基板と反応性が高く、高温で基板との界面拡散・反応が生ずることに由来すると思われる。新規に立ち上げた高磁場下電気特性評価装置により 300 で作製した MCA 薄膜のホール測定を行った所、低温 (4K) でのキャリア濃度及び移動度が、 $\sim 7.4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 及び $\sim 16 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ となる事が分かった。移動度は他グループの MCA 薄膜の値 ($< \sim 0.7 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) より ~2 桁大きかったが、我々の薄膜が他グループよりも品質が高い為だと思われる。

また、MCA 以外で SGS 的特性を示す材料として、理論計算で SGS となると予測されている Ti_2CoSi についても薄膜化を試みたが、ホイスラー相とするのが難しく安定相で無い可能性が出てくると共に反強磁性金属となり、SGS 的な電気・磁気特性も得られなかった。

翌年度に初年度に得られた結果を参考に、MCA のバンド構造に関する直接的情報を得る試みを行った。まず、角度分解光電子分光測定を用い MCA のバンド構造を得る試みを行ったが、光電子分光で対象となる最表面の試料品質が十分でなく、バンド構造の直接観測ができなかった。原因として、スパッタ法による MCA 薄膜の作製の際のプラズマダメージを考えられるが、この表面劣化は製膜手法そのものに由来するものである為改善は容易ではないと判断し、電気特性から MCA のバンド構造に関する情報を得ることとした。

ギャップレス半導体として既に確立した材料であるグラフェンを参考に、FET 構造を用いた電界効果測定により MCA のバンド構造について考察する事とした。我々はグラフェンに関する研究も行っており (雑誌論文 2, 3) 既にこれらの電界効果測定技術を有している。MCA を用いたサイドゲート型 FET 構造を作製し電界効果測定を行ったが、大きなキャリアを誘起できるイオン液体 (DEME-TFSI) をゲート絶縁層とした。ゲート電圧 (V_G) の印加により MCA の電気伝導性、キャリア量や移動度は系統的に変化し、 $V_G = 0.6V$ 付近で p から n へのキャリア型の変化 (両極性) と電気伝導度が最小となる事を確認した。これらはギャップレス半導体特有の現象であり、MCA がギャップレス半導体となっている事を意味している (雑誌論文 1)。磁化測定等からこの MCA 薄膜がフェリ磁性体 (= 有限のスピン偏極を有する) である為、

MCA 薄膜はスピン偏極したギャップレス半導体であると考えられる。また、これらの結果は、MCA がゲートバイアス印加によりスピン偏極したホール又は電子の供給が可能な新規スピン注入源として有望である事を示唆している。

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 3件)

1. Ambipolar transport in Mn_2CoAl films by ionic liquid gating

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

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

DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4983787>、査読有

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

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

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

DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4953200>、査読有

3. Direct formation of graphene layers on diamond by high-temperature annealing with a Cu catalyst

K. Ueda, S. Aichi and H. Asano

Diamond Relat. Mater., 63 (2016) 148-152.

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1016/j.diamond.2015.10.021>、査読有

[学会発表](計 15件)

1. Fabrication of epitaxial Mn_2CoAl films for spintronic applications using spin-gapless semiconductors

K. Ueda, S. Hirose, M. Nishiwaki, T. Hajiri, and H. Asano

ICM (International conference on magnetism) 2015, Barcelona, Spain, July. 7, 2015.

2. Magnetic and electronic properties of epitaxial Mn_2CoAl films

K. Ueda, S. Hirose, S. Aichi, T. Hajiri, and H. Asano,

SSDM 2015, Hokkaido, Japan, Sep. 29 2015.

3. Direct formation of graphene on diamond by high-temperature annealing method using Cu catalyst

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

NDNC (New diamond and nano carbons) 2015, Shizuoka, Japan, May 26, 2015.

4. Anisotropic magnetoresistance of Heusler-type half-metal ferromagnet and antiferromagnet

bilayer thin films

T. Hajiri, M. Matsushita, M. Nishiwaki, H. Tanaka, K. Ueda, and H. Asano

ICM (International conference on magnetism) 2015, Barcelona, Spain, July. 6, 2015.

5. Spin injection from half-metallic Heusler Co_2MnSi into diamond semiconductors

K. Ueda, M. Nishiwaki, and H. Asano

MMM | Intermag 2016 Joint conference, San Diego, USA, Jan. 13, 2016.

6. 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, Montpelier, France, Sep. 8, 2016.

7. Fabrication of graphene/diamond heterojunctions and their electronic properties

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

SSDM 2016, Tsukuba, Japan, Sep. 28, 2016.

8. Unusual magnetoresistance in Heusler compounds antiferromagnet/ferromagnet bilayers.

M. Matsushita, T. Hajiri, K. Ueda and H. Asano

MMM 2016, New Orleans, USA, Nov. 4, 2016.

9. 羽尻哲也, 松下将輝, 植田研二, 浅野秀文
“異方性磁気抵抗効果を用いたホイスラー合金 ハーフメタル強磁性/反強磁性 Fe_2CrSi/Ru_2MnGe 積層膜の研究”

第 39 回 日本磁気学会学術講演会、名古屋大学、2015 年 9 月 10 日

10. 広瀬慎吾, 植田研二, 愛知慎也, 羽尻哲也, 浅野秀文

“スピンギャップレス半導体のデバイス応用に向けた Mn_2CoAl 薄膜の作製”

第 39 回 日本磁気学会学術講演会、名古屋大学、2015 年 9 月 11 日

11. 広瀬慎吾, 植田研二, 愛知慎也, 羽尻哲也, 浅野秀文

“ Mn_2CoAl スピンギャップレス半導体薄膜の作製と特性評価”

第 76 回 応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場、2015 年 9 月 13 日

12. 愛知慎也, 植田研二, 広瀬慎吾, 浅野秀文

“銅触媒を用いたアニール法によるダイヤモンド表面のグラフェン形成”

第 76 回 応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場、2015 年 9 月 15 日

13. 広瀬慎吾, 植田研二, 愛知慎也, 羽尻哲也, 浅野秀文

“ Mn_2CoAl エピタキシャル薄膜の作製と電

気・磁気特性”
日本金属学会 2015 年秋期講演大会、九州大
学、2015 年 9 月 18 日

14. 松下将輝，羽尻哲也，植田研二，浅野秀
文
“異方性磁気抵抗効果を用いたホイスラー合
金積層膜 Fe₂CrSi/Ru₂MnGe の研究”
日本金属学会 2015 年秋期講演大会、九州大
学、2015 年 9 月 18 日

15. 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 14 日

〔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：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
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

(1) 研究代表者

植田 研二 (UEDA, Kenji)
名古屋大学大学院工学研究科・准教授
研究者番号：10393737

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()