

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：37111

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K18080

研究課題名(和文) 強磁性絶縁体を用いたゲルマニウム中への純スピン流生成技術の開発

研究課題名(英文) Development of method for generation of a pure spin current in germanium with ferromagnetic insulators

研究代表者

笠原 健司 (Kasahara, Kenji)

福岡大学・理学部・助教

研究者番号：00706864

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：研究代表者は、有機金属分解法で用いる前駆体膜に電子線照射を行うことで、ドライエッチングプロセスを用いることなく、高品質なイットリウム鉄ガーネットの微細パターンを形成することに成功した。また、強磁性金属のパーマロイ(Py)と励起アンテナ間の距離を変調させることで、Py中を伝播する静磁表面波の非相反性の強さを変調できることを明らかにした。更に、金誘起層交換成長法により作製した擬似単結晶Geを用いて、薄膜トランジスタを作製し、400Cのポストアニールがその特性を改善させることを明らかにした。これらの基礎的な技術を組み合わせることで、強磁性絶縁体からGeのスピン注入技術の実現が可能となる。

研究成果の概要(英文)：Using a metal organic decomposition method with electron beam irradiation, we have succeeded in fabricating high-quality yttrium-iron garnet micropatterns without a dry-etching process. We found that the magnitude of the nonreciprocity of magnetostatic surface waves in a permalloy medium is controlled by changing a distance between a permalloy medium and an excitation antenna. We succeeded in improving the properties of Ge thin-film transistors fabricated by a gold-induced crystallization method by post-annealing of 400C.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン波 ゲルマニウム スピン注入

1. 研究開始当初の背景

電子の『電荷』に加え、『スピン』という自由度も利用し、既存の電子デバイスを高性能化しようとする、スピントロニクスという分野の研究が盛んに行われている。他方、次世代の LSI 技術として、Si よりもキャリア移動度が高い Ge のチャンネル材料への積極的な導入が検討されている。^[1] もし、Ge 中にスピンの流れである『純スピン流』を室温以上で生成・検出することができれば、『スピン』の自由度に起因した『不揮発性』や『再構築性』といった新たな機能を持つ電子デバイスの創製が可能になる。^[2] 更に、Ge を用いていることから次世代の Ge チャンネル LSI 技術への高い親和性も期待できる。^[1]

Ge などの非磁性材料中に純スピン流を生成する手法として、現在、最も多く用いられている手法は、強磁性金属(FMM)電極からスピン偏極した電流を注入する方法である。しかしながらこの手法は、純スピン流の伝導チャンネルである Ge よりもスピン注入源である FMM 電極の方が、スピンの伝導度(スピン伝導度)が遥かに高いため、Ge 中に注入されたスピンはスピン伝導度の高い FMM 電極の方に容易に逆流してしまう。その結果、Ge 中を流れる正味の純スピン流の量は激減してしまう。^[5] すなわち、『いかに多くのスピンを Ge 中に注入するか?』にだけ注目するのではなく、『いかに注入されたスピンの逆流を抑制するか?』についても考慮ことが重要である。

近年、東北大学の梶原らは、強磁性絶縁体(FMI)材料をスピン注入源として非磁性金属材料中に純スピン流を電気的に生成する手法を開発した。^[6] 彼らは、FMI 内に励起したスピン波を利用し、スピンポンピング効果により非磁性金属材料の Pt 中にスピン注入することで純スピン流を生成している。スピンポンピング効果とは、強磁性体/非磁性体接合において強磁性体の磁化を歳差運動させると、その角運動量が非磁性体内の電子に受け渡され、純スピン流が生成される効果である。スピン伝導度は電気伝導度と相関があり、電気伝導度の低い物質ではスピン伝導度も低くなる。すなわち、FMI 材料を Ge 中へのスピン注入源として用いることができれば、スピン注入源である FMI 材料へのスピンの逆流を大幅に抑制することができるため、Ge 中により多くの純スピン流を生成できると予想される。そこで研究代表者は、FMI 内に励起したスピン波を利用し、スピンポンピング効果でスピン注入する手法を Ge チャンネルに応用することで、Ge 中へ効率良く純スピン流を生成できると着想した。特に FMI 材料として、ダンピング定数が小さいイットリウム鉄ガーネット(YIG)を用いれば、スピン波の減衰が極力抑えられ、多量のスピン注入が期待できる。

2. 研究の目的

上記のような研究背景のもと、以下の3項目について研究を行なった。

- (1) 純スピン流生成用の高品質イットリウム鉄ガーネット(YIG)パターンの実現。
- (2) パーマロイ(Py)導波路中を伝搬する静磁表面波(MSSW)における非相反性制御法の開発。
- (3) 低温形成したゲルマニウムチャンネルの高品質化。

これらの技術は、FMI を用いた Ge 中での高効率純スピン流生成技術を開発する上で欠かせない基礎的な技術である。

3. 研究の方法

(1) 電子線照射 MOD 法による YIG マイクロパターンの作製フローを図 1 に示す。高純度化学研究所から購入した YIG 用 MOD 溶液を、単結晶ガドリニウムガリウムガーネット(GGG)基板上にスピコートし、溶媒を蒸発させるためにホットプレートで加熱した。チャージアップを防止するために帯電防止剤を塗布し、電子線描画装置(EBL)を用いて電子線の照射量を変化させながら電子線の照射を行なった。帯電防止剤を剥離した後、トルエンを用いて、パターンの現像を行なった。前駆体残膜の厚さを、原子間力顕微鏡(AFM)を用いて計測し、電子線の照射量と前駆体残膜厚さの関係を調査することで最適な電子線照射量を決定した。作製した YIG マイクロパターンの結晶構造および磁気特性の評価は、それぞれ X 線回折(XRD)法および振動試料型磁束計(VSM)法を用いて行なった。

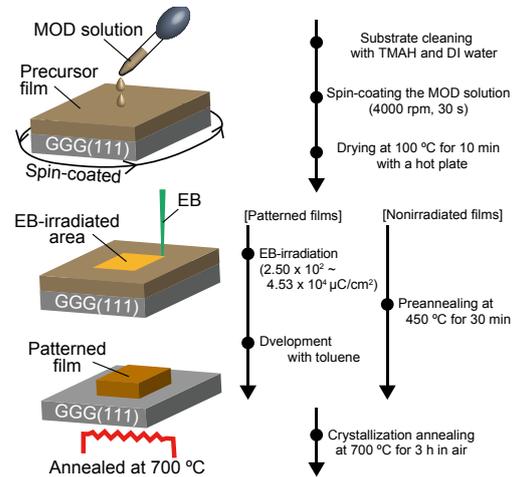


図 1. 電子線照射有機金属分解法による YIG マイクロパターンの作製フロー。

(2) Py 層-アンテナ間の距離を変化させるために、Py 層とアンテナの間に挿入した SiO₂ 層間絶縁層の厚さを変えたサンプルを作製した。幅が 100 μm、長さが 600 μm、そして厚さが 80 nm である Py パターンを EBL 法および電子線蒸着(EBD)法により形成し、スパッタ法により SiO₂ 層間絶縁層を形成した。

AFM 法により測定した SiO_2 層間絶縁層の厚さ(t_{SiO_2})は、115, 660, 1550 および 2350 nm であった。最後に、MSSW の励起・検出用アンテナとして、Au/Cr コプレーナウェブガイド (CPW) を EBL 法および抵抗加熱蒸着法により形成した。(図 2) ベクトルネットワークアナライザ(VNA)および磁場印加が可能な高周波プローブを用いて、透過信号(ΔS_{21})を測定した。ここで MSSW の伝播方向は Port 1 から Port 2 の方向に固定し、静磁場の印加方向の向きを変えて ($\mu_0 H > 0$ もしくは < 0) 測定した ΔS_{21} を比較することで MSSW の非相反性を評価した。

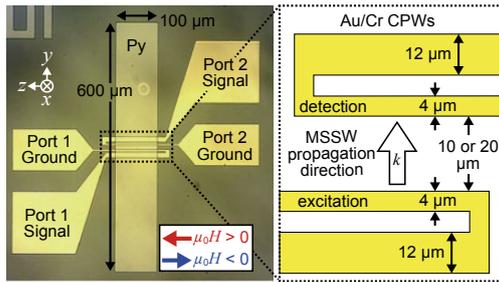


図 2. 作製した MSSW 測定用デバイスの光学顕微鏡写真と励起・検出アンテナの模式図。

(3) *p* 型 Ge 薄膜トランジスタ(TFT)の作製プロセスを、図 3 に示す。まず、EBD 法および原子層堆積(ALD)法を用いて [アモルファス (a-)Ge(2.5 nm)/Au(0.2 nm)]₂₀/ Al₂O₃(0.6 nm)/Au(50 nm)/glass 基板構造を N₂ 雰囲気中で 250°C, 100 h だけ熱処理して、粒径が ~600 μm の擬似単結晶(PSC-)Ge を glass 基板上に形成した。PSC-Ge 層の表面を平坦化させるための化学機械研磨(CMP)を行った後、H₂O₂ 水溶液によって PSC-Ge 層をアイランド化させた。ソース・ドレイン電極として、TiN/HfGe 電極をスパッタ法により形成した。電子サイクロトロン共鳴(ECR)プラズマ酸化を行い、PSC-Ge の表面を酸化した後、SiO₂ 層でキャップした。ALD 法により Al₂O₃ 層を堆積したのち、スパッタ法により TiN 堆積し、ゲート電極を形成した。このようにして作製した Ge-TFT を使い、ポストアニール(PA; N₂ 雰囲気中, 400°C, 0.5 h) 前後の特性を比較することで、PA が与える影響を調査した。

4. 研究成果

(1) 図 4 は、電子線照射量と YIG 前駆体の残膜厚さの関係である。この段階では結晶化アニールは行っていない。前駆体残膜の厚さは、電子線の照射量が 1000 μC/cm² を超えた辺りから急激に増加し始め、11300 μC/cm² ほどで飽和していることがわかる。この結果から、YIG 用の MOD 溶液は、電子線に対して良好なネガ型照射特性を有しており、その最適な電子線照射量は 11300 μC/cm² であることが判明した。

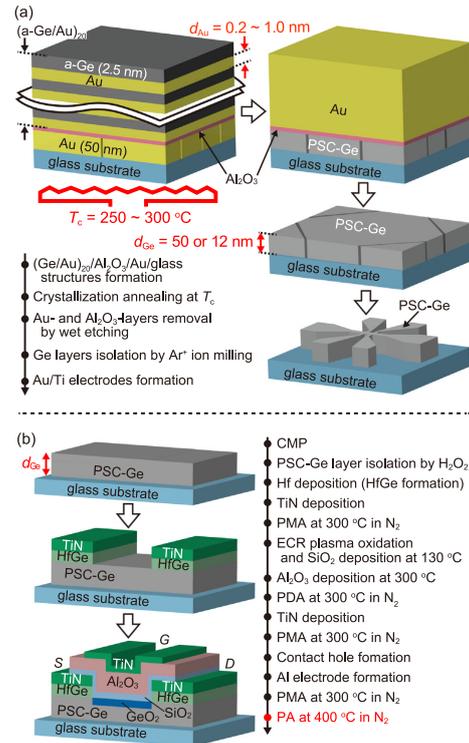


図 3. *p* 型 Ge-TFT の作製フロー。

図 5 は YIG パターンの XRD スペクトルである。比較のために電子線を照射していない YIG 薄膜と GGG 基板の XRD スペクトルも一緒に載せている。YIG パターンの XRD スペクトルでは、電子線を照射していない YIG 薄膜の XRD スペクトルと同様に、YIG(422) に起因するブロードなピークが観測されており、電子線をシャド照射しても良好な YIG が得られていることが判明した。

図 6 は、YIG パターンの磁化曲線を示している。強磁性を示唆する明瞭なヒステリシスを描いており、その飽和磁化は ~100 emu/cm³ とバルクの YIG に匹敵する値を有していることが判明した。この YIG パターンを用いれば、高効率な純スピンの生成が期待できる。

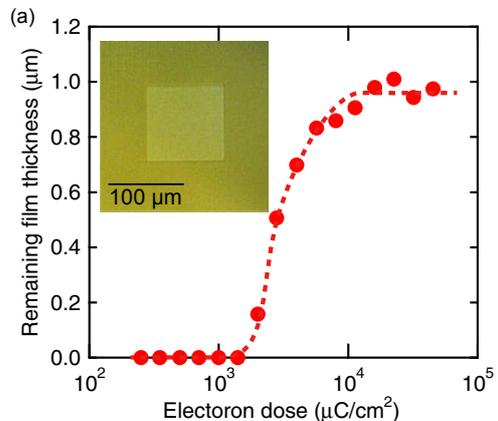


図 4. YIG 用 MOD 溶液の電子線感度曲線。挿入図は YIG 前駆体パターンの光学顕微鏡写真。

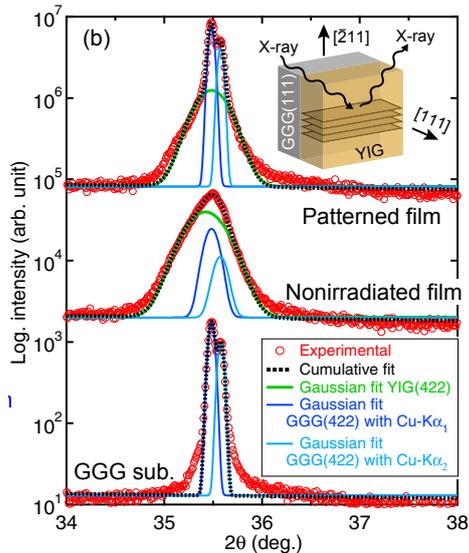


図5. 電子線照射 MOD 法により作製した YIG パターンの面内 XRD スペクトル。比較のため MOD 法で作製した YIG 膜と GGG(111) 基板の面内 XRD スペクトルも載せている。

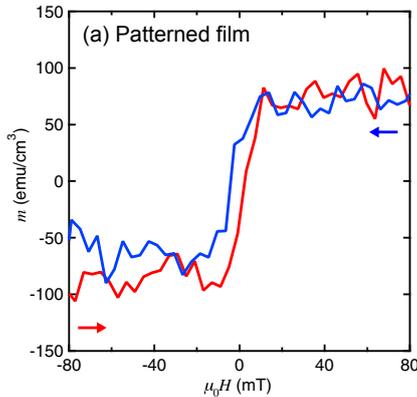


図6. YIG パターンの磁化曲線。強磁性を示唆するヒステリシス曲線を描いている。

(2) 図7は、Py 中を伝播する MSSW における非相反性パラメータ(NR)の t_{SiO_2} 依存性である。ここで NR とは、 $\mu_0 H > 0$ および < 0 における ΔS_{21} の最大値をそれぞれ m_+ および m_- としたとき、 $NR = m_- / m_+ \times 100$ (%) で表されるパラメータであり、この値が小さいほど非相反性の強さが強くなることを意味している。NR の値は、 t_{SiO_2} が大きくなるとともに単調に減少することが判明した。これは、Py 層-アンテナ間の距離が大きくなると Py 中を伝播する MSSW の非相反性が強くなることを示唆している。この現象は、 t_{SiO_2} の増大とともに、励起アンテナから発生される高周波磁場の面内成分の影響が面直成分の影響に比べてより小さくなるためだと考えられる。(図8) 即ち、磁性層とアンテナの距離を変化させるだけという非常に簡便な方法で MSSW の非相反性の強さが制御可能ということを明らかにした画期的な成果である。

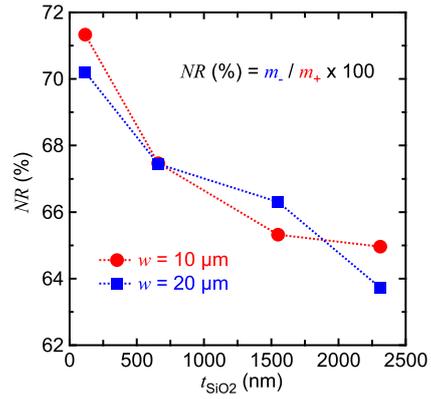


図7. Py 中を伝播する MSSW の非相反性の強さにおける層間絶縁膜の厚さ依存性。

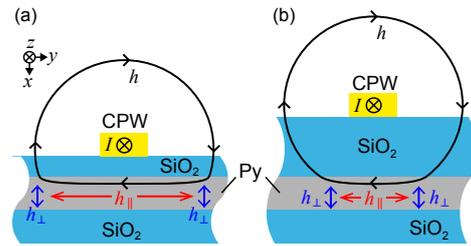


図8. 層間絶縁層が(a)薄い場合と(b)厚い場合の、高周波磁場の面内成分 $h_{||}$ と面直成分 h_{\perp} が Py の磁化に与える影響の模式図。

(3) PA 前後における Ge-TFT のドレイン電流 (I_d)-ゲート電圧 (V_G) 特性および電界効果移動度 (μ_{FE})- V_G 特性を図9に示す。ON/OFF 比は、PA 前後で1桁程度大きくなっていることがわかる。更に、 μ_{FE} の大きさも3倍程度大きくなっており、PA により Ge-TFT の特性が大幅に改善されていることがわかる。この PA による改善は、元々 PSC-Ge 層中に存在した空孔のような欠陥が、PA を行なったことで、残留していた O_2 により終端されたためと考えられる。(図10) このように PA により改善された PSC-Ge 層を用いれば、スピンの散乱が抑制できるため、純スピン流の生成・検出効率が大きく上昇できるものと期待できる。

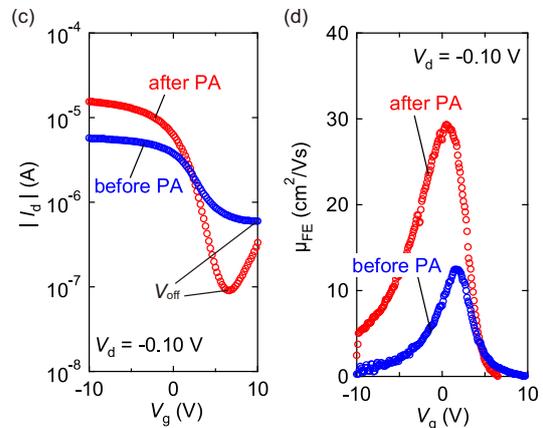


図9. Ge-TFT の PA 前後における I_d - V_G および μ_{FE} - V_G 特性。

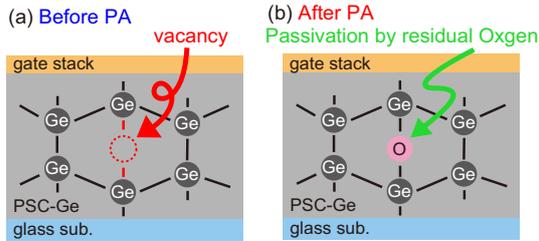


図 10. PA が PSC-Ge 層に与える効果の模式図。PA を行うことで PSC-Ge 内の空孔欠陥が残留ガスにより終端されると考えられる。

[参考文献]

- [1] International Technology Roadmap for Semiconductors 2013 など.
- [2] S. Sugahara and M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. 84, 2307 (2004).
- [3] K. Hamaya et al., Phys. Rev. B 85, 100404(R), (2012) など.
- [4] K. Kasahara et al., Appl. Phys. Express 7, 033002 (2014) など.
- [5] G. Schmidt et al., Phys. Rev. B 62, R4790 (2000).
- [6] Y. Kajiwara et al., Nature 464, 262 (2010).

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 笠原健司, 眞砂卓史, “Preparation of epitaxial yttrium-iron garnet micropatterns using metal-organic decomposition with electron-beam irradiation”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 56, pp. 110303-1 – 110303-4, 2017, 査読あり.
DOI: 10.7567/JJAP.56.110303
- ② 笠原健司, 他 4 名, “Effect of distance between a magnet layer and an excitation antenna on the nonreciprocity of magnetostatic surface waves”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 56, pp. 010309-1 – 010309-4, 2017, 査読あり.
DOI: 10.7567/JJAP.56.010309
- ③ 笠原健司, 他 6 名, “Effect of post annealing on hole mobility of pseudo-single-crystalline germanium films on glass substrates”, Material Science in Semiconductor Processing, Vol. 70, pp. 68 – 72, 2017, 査読あり.
DOI: 10.1016/j.mssp.2016.07.004

[学会発表] (計 9 件)

- ① 笠原健司, 眞砂卓史, “電子線照射有機金属分解法による Bi 置換 YIG 微細パターンの作製”, 第 65 回応用物理学会春季学

術講演会, 2018 年 3 月 17 日 ~ 20 日, 東京.

- ② 眞砂卓史, 笠原健司, 西村和浩, 柴崎一郎, ” ホール素子による微小磁場計測の検討”, 第 34 回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム, 2017 年 10 月 31 日 ~ 11 月 1 日, 広島.
- ③ 笠原健司, 香野淳, 眞砂卓史, “電子線照射有機金属分解法による YIG 微細パターンの作製”, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 9 月 5 日 ~ 8 日, 福岡.
- ④ 柴田 晃治, 笠原健司, 中山 和之, 眞砂卓史, “マイクロマグネティックシミュレーションによる静磁表面スピン波の非相反性の検討”, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 9 月 5 日 ~ 8 日, 福岡.
- ⑤ 眞砂卓史, 笠原健司, 柴田 晃治, “Antenna configuration dependence of the nonreciprocity of magnetostatic surface wave”, Spintech 9, 2017 年 6 月 4 日 ~ 8 日, 福岡.
- ⑥ 柴田 晃治, 笠原健司, 眞砂卓史, “静磁表面波の非相反性におけるアンテナ形状依存性”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017 年 3 月 14 日 ~ 17 日, 横浜.
- ⑦ 眞砂卓史, 笠原健司, 柴崎一郎, “InSb 薄膜ホール素子による微小磁場計測”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017 年 3 月 14 日 ~ 17 日, 横浜.
- ⑧ 笠原健司, 牙曉瑞, 松山公英, 眞砂卓史, “Control of the nonreciprocity of magnetostatic surface wave in a ferromagnetic metal”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016 年 9 月 13 日 ~ 16 日, 新潟.
- ⑨ 笠原健司, 他 6 名, “Effect of post annealing on hole mobility of pseudo-single-crystalline germanium thin-film-transistors on glass substrates”, International SiGe Technology and Device Meeting 2016, 2016 年 6 月 7 日 ~ 11 日, 名古屋.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等 なし

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
笠原 健司 (KASAHARA, Kenji)
福岡大学理学部物理科学科・助教
研究者番号: 00706864
- (2) 研究分担者 なし
- (3) 連携研究者 なし
- (4) 研究協力者 なし