

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：15501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04470

研究課題名(和文) - 族半導体を利用したスピン流 - 電流変換電極応用に関する研究

研究課題名(英文) Study on IV-VI semiconductor as electrode application for converting spin current to charge current

研究代表者

浅田 裕法 (Asada, Hironori)

山口大学・大学院創成科学研究科・教授

研究者番号：70201887

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：SnTeにおいてはBaF<sub>2</sub>(111)基板の上にエピタキシャル成長することに成功した。GGG(100)上に成長した強磁性絶縁体YIG上に基板面方向に高配向した膜を得ることができた。また、GGG(100)基板においても高配向膜が得られることがわかった。さらにTe供給量を変えることでキャリア変調に成功した。PbTeについてもBaF<sub>2</sub>(111)基板およびGGG(100)基板においてSnTeと同様の結果を得た。強磁性共鳴評価を行ったところSnTeにおいては磁性膜に付与することでダンピング定数の増加がみられた。PbTeにおいては出力信号の角度依存性から白金と同じ正スピンホール効果を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

SnTeおよびPbTeについてBaF<sub>2</sub>、GGG基板への分子線エピタキシャル法による成長条件の最適化を行った。特に、スピン流を利用するデバイスに有益な小さなダンピング定数を持つ強磁性絶縁体であるイットリウム磁性ガ-ネット膜で高配向膜を得られたことは特性向上において重要な良好な界面の実現の観点から意義がある。

研究成果の概要(英文)：We have successfully performed epitaxial growth of SnTe on a BaF<sub>2</sub>(111) substrate. Highly oriented SnTe thin films on both the GGG(100) substrate/YIG film and GGG(100) substrate are obtained. The carrier concentration can be modulated by changing the amount of Te flux. For PbTe, the same results as SnTe are obtained on the BaF<sub>2</sub>(111) substrate and the GGG(100) substrate. From ferromagnetic resonance measurements, the damping constant of the magnetic film with SnTe is larger than that of the pure magnetic film. It is confirmed that PbTe has the same positive spin Hall effect as Pt from the magnetic field direction dependence of spin-torque ferromagnetic resonance signal.

研究分野：磁気工学

キーワード：IV-VI族半導体 スピン流 スピンホール効果

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

スピンの流れである純スピン流は電荷の流れを伴わないため、低消費電力デバイスへの応用が期待されている。また、新たなエネルギーハーベスティング技術としてスピンゼーベック効果(SSE)を利用した熱電変換素子が注目されている。スピン流はスピン波によっても生じることから絶縁体も利用できる。SSE素子では温度差が得やすい強磁性絶縁体を用いられており、代表的な磁性層としてイットリウム磁性ガーネット(YIG)がある。スピン流デバイスはスピン流と電流の相互変換を行うことで機能しており、その変換効率の向上は最重要課題の一つである。このスピン流⇄電流の相互変換であるスピンホール効果を支配するのがスピン軌道相互作用(SOI)である。スピン流と電流の変換材料として、これまでに白金やタングステン等の常磁性金属、パーマロイ等の磁性金属など数多くの金属および合金について、精力的な研究が行われてきたが、その変換効率は低く、実用化にはさらなる向上が不可欠であり、新たな材料系の開発が望まれている。

### 2. 研究の目的

スピン軌道相互作用(SOI)は重い元素において大きな効果を持つことが知られている。また、SOIはp電子系で大きいことがバンド計算により示されている。このような観点から、本研究では重い元素からなり、かつ、p型ナローギャップ半導体であるSnTeとPbTeに着目した。これまで半導体材料を用いた研究はほとんどなくキャリア変調を行うことで、キャリア密度と出力の関係などを調べることができる。また、実用化の観点からは低ダンピング磁性層との組み合わせにおいて高い効率を有することが重要であることから、低ダンピング磁性層上へのエピタキシャル成長技術の確立は、良好な界面を得るためのデバイスデザインの観点からも大きな意義を持つ。そこで本研究ではIV-VI族半導体であるSnTeやPbTeのヘテロエピタキシャル成長を試みる。このときキャリア変調を行い、スピンホール効果について検討する。また、低ダンピング強磁性絶縁層であるYIGはSnTeやPbTeと結晶構造が同じで格子定数が比較的近いことから、YIG上への成長についても試みる。

### 3. 研究の方法

IV-VI族半導体の成長はKセルを用いた分子線エピタキシー(MBE)装置により行った。磁性層としてはYIGおよびNiFeを積層したが、これにはマグネトロンスパッタ装置を用いた。膜の評価として結晶性や表面状態をX線回折装置(XRD)、走査型電子顕微鏡(SEM)および原子間力顕微鏡(AFM)で評価した。磁気特性評価は振動型磁力計(VSM)で、電気的評価はVan der Pauw法により行った。スピンホール効果の評価は、IV-VI族半導体と磁性膜からなる積層膜を素子化し、強磁性共鳴測定により行った。

### 4. 研究成果

#### (1) SnTeの成長

SnTeの格子定数が6.312 Åであるのに対し、BaF<sub>2</sub>は6.200 Åと比較的近いことから、基板温度を100~400°Cと変え、MBE法によるBaF<sub>2</sub>(111)基板上へSnTe成長を試みた。図1に試料のXRDパターンを、表1にキャリア濃度および移動度を示す。膜厚は100 nmである。基板温度350°C以上の場合は再蒸発が生じており、電気的測定を行うことはできなかった。図1より、SnTeは基板面を反映して、(111)面に成長していることがわかる。XRDおよび電気的特性より、250~300°Cにおいて良好な膜が得られたといえる。図2は基板温度300°Cで400 nm成長させたSnTeのSEM像である。図からわかるように同じ結晶構造であるPbTeが(111)面にエピタキシャル成長したときに報告されている三角形のすべり転位がみられることからSnTeはBaF<sub>2</sub>基板上にエピタキシャル成長しているといえる。スピン流から電流への変換に用いられるスピン軌道相互作用の大きな常磁性金属においてはスピン拡散長が短いことから極薄膜が用いられる。そこで10 nmの極薄膜を作製し、AFMによる表面平坦性の評価を行った。平均面粗さは基板温度200°Cの試料が5.277 nmに対し、基板温度300°Cでは2.867 nmであったことから、100 nmの時と同様、300°Cの方がよかった。

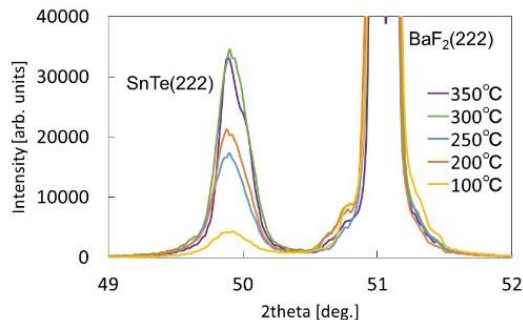


図1 BaF<sub>2</sub>/SnTeのXRDパターン

表1 BaF<sub>2</sub>/SnTeのキャリア濃度および移動度

基板温度 [°C]	キャリア濃度 [1/cm <sup>3</sup> ]	移動度 [cm <sup>2</sup> /V·s]
100	9.63E+20	27.3
200	2.47E+20	23
250	6.27E+19	185
300	6.85E+19	183



図2 SEM像(基板温度300°C)

キャリア濃度を変調させる目的から SnTe に加え、Te を同時に K セルで蒸発させることで試料作製を行った。表 2 に Te 供給量を変えて作製した SnTe のキャリア濃度と移動度を示す。基板温度 300°C、膜厚 100 nm である。基板として SiO<sub>2</sub> 基板を用いた。Te 供給量の増加に伴い、キャリア濃度が増加していることがわかる。このように Te 供給を行うことでキャリア濃度の変調に成功した。

表 2 キャリア濃度および移動度の Te 供給量依存性

Te供給量 [%]	キャリア濃度 [1/cm <sup>3</sup> ]	移動度 [cm <sup>2</sup> /V·s]
0	2.61E+20	144
5	3.53E+20	65.7
10	4.01E+20	51.7
15	6.19E+20	53.6

次に磁性層とのエピタキシャル成長の観点から、YIG 上への SnTe の MBE 成長を試みた。YIG の格子定数は 12.38 Å であり、先ほど基板として用いた BaF<sub>2</sub> 基板のほぼ 2 倍となっている。

YIG はこれまでの研究から、GGG (Gadolinium Gallium Garnet) 基板 (12.383 Å) を用いることでエピタキシャル成長できることが知られている。そこで基板として GGG (100) 面と GGG (111) 面を用いた。まず、マグネトロンスパッタ法により膜厚 40 nm の YIG を各 GGG 基板上に成膜後、750 °C でアニールすることで結晶化させた。このように YIG の結晶化に必要な温度を SnTe に加えた場合は、Te の融点が高いことから再蒸発が生じてしまうため、今回は GGG/YIG/ SnTe の順で成長させている。アニール後、MBE 装置に試料を装着し、サーマルクリーニングを行った後、基板温度 200 °C で SnTe (膜厚: 100 nm) の成長を行った。XRD 測定を行ったところ、YIG 膜は (100), (111) 基板共に基板面方向へのピークのみがみられているのに対し、SnTe は GGG (100) 基板においては (100) 方向へのピークのみが観察された。一方、(111) 基板においては (100) 基板に比べて強度がかなり弱い SnTe (100) 方向のピークが観察された。このことから、SnTe は (100) 方向へ優先配向することがわかった。そこで、GGG (100) 基板上に成膜・アニールした YIG を作製し、基板温度および膜厚を変えて SnTe を成長した。図 3 に膜厚 100 nm の試料の XRD パターンを、表 3 にキャリア濃度および移動度を示す。成長温度 200°C と 250°C の試料において良好な結果が得られた。しかしながら、BaF<sub>2</sub> 上の SnTe と比較すると XRD のピーク強度は弱い。次に、膜厚 10 nm の極薄膜を作製した。図 4 に示すように SEM による観察からは基板温度 200°C のときに連続的な膜が得られた。

強磁性共鳴測定のためには SnTe と磁性層の積層膜を細線化し、その後、励起および電気信号検出のための Cu 電極を作製する必要がある。BaF<sub>2</sub> は劈開基板であるため劈開時に表面に大きな段差ができることや水やアルカリ現像液にわずかに溶出することなどからデバイス化が難しい。そこでこれまでの結果を基に、GGG (100) 基板上への直接成長 (基板温度 300°C、膜厚 100 nm) を行った。XRD 測定においてはピーク強度は弱いものの (100) 面方向へ高配向した SnTe 薄膜の成長がみられた。

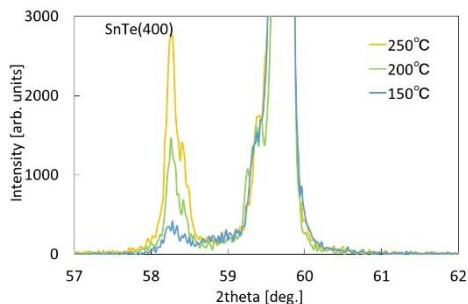


図 3 GGG(100)/YIG/SnTe XRD パターン

表 3 GGG (100)/YIG/SnTe のキャリア濃度および移動度

成長温度 [°C]	キャリア濃度 [1/cm <sup>3</sup> ]	移動度 [cm <sup>2</sup> /V·s]
250	2.85E+20	145
200	1.56E+20	206
150	1.46E+20	148



図 4 SEM 像 (基板温度 200°C)

## (2) PbTe の成長

SnTe と同様に BaF<sub>2</sub> (111) 基板を用いて MBE 法による PbTe の成長を試みた。PbTe の格子定数は 6.462 Å と SnTe に比べ大きいことから、基板との不整合は大きくなる。図 5 に基板温度を 200 ~ 400°C と変えて成長させた PbTe の XRD パターンを示す。また、各試料におけるキャリア濃度と移動度を表 4 に示す。基板温度 400°C の試料は再蒸発のため膜が薄くなっており、SnTe 同様、電気的特性を得ることはできなかった。すべての試料において基板面に沿った PbTe (111) 方向のピークがみられた。移動度については 300°C の方が高いことから、基板温度 200°C から 300°C の間

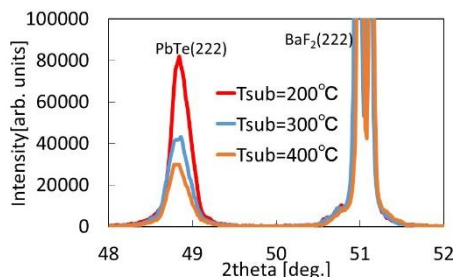


図 5 BaF<sub>2</sub>/PbTe の XRD パターン

表 4 BaF<sub>2</sub>/PbTe のキャリア濃度および移動度

基板温度 [°C]	キャリア濃度 [1/cm <sup>3</sup> ]	移動度 [cm <sup>2</sup> /V·s]
200	1.89E+18	130
300	2.81E+18	236

で結晶性の良い膜が得られるといえる。SnTe と比べるとキャリア濃度が 2 桁ほど低いため、高抵抗の膜となった。次に、100 nm の場合の結果を踏まえ、基板温度 200~300°C で膜厚 10 nm の PbTe 成長を行ったところ、XRD の結果から 250°C で最も結晶性のよい膜が得られた。

デバイス化に適した基板として GGG(100) 基板上への成長を試みた。図 6 と表 5 にそれぞれ XRD パターンと各試料におけるキャリア濃度と移動度を示す。図からわかるように、基板面と同じ (100) 方向に高配向した PbTe 膜が得られた。XRD パターンのピーク強度については成長温度 200°C と 300°C の場合で同程度であるが、300°C の試料の方がキャリア濃度が高いにもかかわらず同程度の移動度を示している。しかしながら、BaF<sub>2</sub>(111) の場合と比べ、XRD パターンのピーク強度が弱く、キャリア濃度が低いにも関わらず移動度は一桁低い値であった。また、325°C の試料には再蒸発により膜厚にむらがあった。次に平坦性向上の目的から、GGG 上に PbTe を室温で成膜した後、アニールすることを試みた。アニール後の XRD パターンを図 7 に示す。300°C アニールにおいて XRD パターンのピーク強度が強くなり、基板温度を上げて成長した膜と同程度のピーク強度が得られた。このときの平均面粗さ Ra は 0.969 nm (図 8) であり、基板温度を上げた場合 (基板温度 200°C における Ra=9.815 nm) に比べ、平坦性は大きく向上した。しかしながら、抵抗が高く電気的特性は得られなかった。そこで、Te 供給量を変えた膜を作製し、300°C のアニールを行った。その結果、Te 供給量を増やすことで Te 組成が増えることを確認するとともに、Te 供給なしの場合に比べ、適量の Te 供給を行うことで 300°C アニール後の XRD パターンのピーク強度が大きく改善できた。しかしながら、すべての膜において高抵抗であり電気的特性は得られなかった。

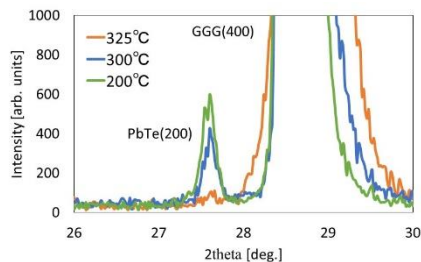


図 6 GGG/PbTe の XRD パターン

表 5 BaF<sub>2</sub>/PbTe のキャリア濃度および移動度

基板温度 [°C]	キャリア濃度 [1/cm <sup>3</sup> ]	移動度 [cm <sup>2</sup> /V·s]
200	2.96E+17	18.5
300	5.58E+17	17.4

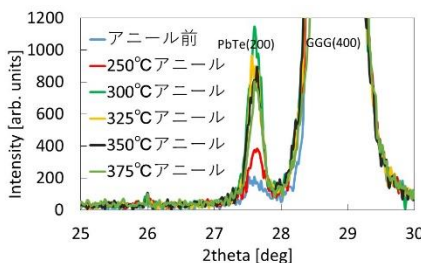


図 7 GGG/PbTe のアニール後の XRD パターン

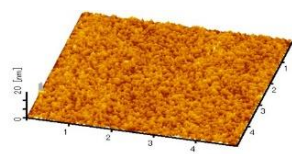


図 8 AFM 像

### (3) 強磁性共鳴評価

YIG と YIG/SnTe におけるダンピング定数  $\alpha$  を評価したところ、Pt と同等の大きさの  $\alpha$  の増加が得られた。また、SnTe/NiFe でも NiFe 単体に比べ  $\alpha$  の増加がみられることから、スピン流の注入が生じていると思われる。スピントルク強磁性共鳴 (ST-FMR) 実験において外部磁場の角度を変えた測定を SnTe (10)/NiFe (3 nm) の試料において行ったところ、スピンホール効果に起因すると思われる対称・非対称成分がみられたが、検出信号が小さいため、確認には至らなかった。

PbTe についても NiFe との積層膜 (PbTe (10)/NiFe (3 nm)) を素子化し、外部磁場の角度を変えた ST-FMR 実験を行った。得られたシグナルから抽出した対称成分と非対称成分の角度依存性を図 9 に示す。それぞれ PbTe の成長温度が (a) 室温と (b) 200°C の場合である。検出信号が小さいためばらつきが大きいものの、両図において対称成分、非対称成分共に  $\sin 2\Phi \cos \Phi$  でフィッティングできることからスピンホール効果を検出することができた。尚、成長温度 200°C の試料の非対称成分については  $\sin 2\Phi \cos \Phi$  に加え、 $\sin \Phi$  の項の寄与がみられており、これについてはさらなる検討が必要である。以上、ST-FMR の結果より、PbTe は白金と同じく正のスピンホール角を持つことがわかった。また、信号が小さくばらつきが大きいため概算ではあるが、測定結果より求めたスピンホール角は室温成長膜で 0.032、200°C 成長で 0.065 であった。

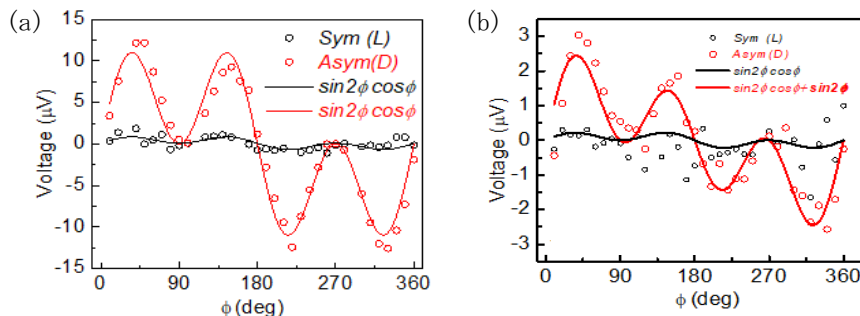


図 9 PbTe/NiFe 積層膜におけるスピントルク強磁性共鳴測定電圧の外部磁場角度依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 火浦千裕, 松原武志, Utkarsh Shashank, 福間康裕, 浅田裕法, 岸本堅剛, 小柳剛
2. 発表標題 MBE法によるPbTeの成長と強磁性共鳴測定
3. 学会等名 2021年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松原武志, Utkarsh Shashank, 福間康裕, 浅田裕法, 岸本堅剛, 小柳剛
2. 発表標題 MBE法によるBaF2基板上へのSnTe薄膜の成長
3. 学会等名 2020年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 前田泰孝, 岸本堅剛, 小柳剛, 浅田裕法, Angshuman Deka, Surbhi Gupta, 福間康裕
2. 発表標題 MBE法による磁性ガーネット膜上へのSnTe薄膜の成長
3. 学会等名 2019年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	福間 康裕  (Fukuma Yasuhiro)  (90513466)	九州工業大学・大学院情報工学研究院・教授    (17104)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	仙波 伸也  (Senba Shinya)  (40342555)	宇部工業高等専門学校・電気工学科・教授    (55501)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関