

整理番号	H26-J-117	報告者氏名	安藤 裕一郎
------	-----------	-------	--------

研究課題名 シリコン中におけるスピン流操作に関する研究

<代表研究者> 機関名：京都大学大学院工学研究科 職名：助教 氏名：安藤裕一郎

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

本研究の最終目的はシリコン (Si) 中のスピン流輸送の効率的な変調方法を確立することである。Si は比較的軽元素であり、結晶の反転対称性が高いことから長いスピン寿命が期待されている半導体である。我々はこれまでに Si 中の室温・長距離スピン輸送を実証しており、ゲルマニウムやガリウムヒ素と比較して数桁も長いスピン寿命を実証している。このような長スピン寿命はスピン流を用いたデバイス化には有利であると考えられる。一方、輸送中のスピンに何らかの情報操作を行うことを考えた場合、Si の有する小さいスピン軌道相互作用はスピン操作の観点からは不利である。そこで本研究では Si 中に不純物をドーピングすることで不純物を用いたスピン操作を検討した。

実験では Si 中に不純物をドーピングし、不純物によるスピン依存散乱 (逆スピンホール効果) の多寡を調査した。窒素、リン、アンチモンをそれぞれ同濃度でドーピングした Si 基板を用意し、Ni₈₀Fe₂₀ 薄膜を Si 上に蒸着した試料を作製した。強磁性共鳴を用いたスピンポンピングにより起電力の多寡を調査した処、予想に反しリンをドーピングした試料が最も起電力が大きいことが判明した。その原因を検討した処、スピンに関係ない起電力が Ni₈₀Fe₂₀ 薄膜中で発生し、正確な評価を阻害している可能性が示唆された。より正確な評価には磁性絶縁膜を用いることが重要であると考え、磁性絶縁膜 YIG/Si 構造を用いた逆スピンホール効果測定における要素技術の確立を図った。まず、試料間で YIG のスピン注入効率を統一しておく必要があるが、その為には YIG 中に存在する不純物起因の局在磁気モーメントの濃度を統一しておくことが必要であることを解明した。また同程度の濃度になっているかを調査するには異なる 2 つの周波数のマイクロ波を用いて、強磁性共鳴線幅の温度依存性を調査すれば良いことを示した。またスピンポンピング測定では試料の設置個所のわずかなずれにより、マイクロ波の吸収強度がへんかしてしまう。本問題の解決にはマイクロ波吸収強度の二乗で規格化することが有効であることを示した。本研究成果により YIG/Si 接合における逆スピンホール効果の実験を遂行することが可能となった。Ni₈₀Fe₂₀/Si 構造と比較して精密な評価が可能となり、Si 中の逆スピンホール効果について詳細な検討が可能になったと期待できる。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

【論文発表】

Sergey Dushenko, Yukio Higuchi, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, and Masashi Shiraishi

“Ferromagnetic resonance and spin pumping efficiency for inverse spin-Hall effect normalization in yttrium-iron-garnet-based systems”

Applied Physics Express, **8**, 103002 (2015).

【口頭発表】

E. Shigematsu, Y. Ando, R. Ohshima, S. Dushenko, Y. Higuchi, H. J. von Bardeleben and M. Shiraishi, "Suppression of spin pumping efficiency at low temperature in Pt/YIG thin films", 第76 応用物理学会秋季学術講演会, 14p-2J-16, 名古屋, 9月 13-16 日, 2015.

【ポスター発表】

E. Shigematsu, Y. Ando, R. Ohshima, S. Dushenko, Y. Higuchi, T. Shinjo, H. J. von Bardeleben, and M. Shiraishi, "Decrease in spin pumping efficiency in Pt/YIG bilayer system due to increased damping at low temperature", 京都大学低温物質科学研究センター第14回講演会・研究交流会, P6, 京都, 2月 19 日, 2016.

E. Shigematsu, Y. Ando, R. Ohshima, S. Dushenko, Y. Higuchi, T. Shinjo, H. J. von Bardeleben, and M. Shiraishi, "Temperature evolution of spin pumping efficiency in platinum / yttrium iron garnet", “Nano Spin Conversion Science” Workshop in Kansai for Young Researchers, P-17, Osaka, April 15, 2016.

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

【 研究の目的 】 半導体デバイスの高性能化を目指し、電子の有する「電荷」情報以外に「スピン」情報をも制御・利用する「スピントロニクスデバイス」の実現が望まれている。特にシリコン (Si) を用いたデバイスは既存の大規模集積回路 (LSI) 技術との整合性が高いことから、熱心な研究が続いている。Si はスピンの輸送特性の面でも多くの利点を有している。例えば、軽元素であり、結晶の反転対称性が高く、核スピンを有する同位体が天然比で極めて少ない等の特徴は、スピン情報の長時間保持に貢献しており、他の半導体と比較して長いスピン寿命を実現している (室温において n-Si : 1.3 ns, n-Ge : 0.3 ns, n-GaAs : 0.02 ns)。Si ベースのスピントロニクスデバイスの実現には Si 中におけるスピン流 (スピン角運動量の流れ) の生成・制御・検出技術が必須となる。我々はこれまでに強磁性体電極から Si チャネルへのスピン注入・輸送、およびスピン信号のゲート変調に成功している。次の課題はスピン輸送過程におけるスピン情報の操作である。しかし、Si は電子スピンとの相互作用が非常に小さく、スピン操作という観点では制約の厳しい材料と言える。本研究ではこのような Si 中でも利用可能なスピン操作技術を確立することを目的とする。

Si 中で実現可能なスピン操作手法としてスピンを運動方向とスピン方向の外積方向に曲げる“スピンホール効果 (SHE)”を用いる。本効果はアップスピンとダウンスピンを反対方向に曲げるため、スピンの選り分け、スピン流の輸送方向の変調、強磁性体接合を用いない電流⇄スピン流変換、スピンの電氣的検出などに利用することができる。このスピンホール効果の定量的指標に「スピンホール角」がある。これはスピンをどの程度の大きさで曲げるかを示す指標であり、その値が大きいほど、スピンの高効率制御が可能となる。しかし Si 中ではこの効果は小さい。そこで本研究では Si 中に不純物をドーピングすることによりスピンホール効果を増幅させる手法を検討する。Si 中での不純物散乱の場合、特定の不純物ではスピンホール効果を増幅させることが予想される。不純物をドーピングするという工業的に成熟した技術を用いるだけで、スピンホール効果の増幅が実現出来れば、工学的インパクトは非常に大きいと期待される。

本研究ではスピンホール角の評価に SHE の逆効果である“逆スピンホール効果 ISHE”を用いる。SHE では非磁性体中にスピン偏極していない電流を印加することにより、そのホール方向にスピン流を生成する。一方 ISHE では先に非磁性体中にスピン流を生成する。SHE と同様にスピン依存の異方的散乱により、スピン流がホール方向の電流に変換される。その電流の多寡によりスピンホール角を評価することができる。スピン流の生成にはスピンポンピングを用いた。スピンポンピングとは磁化の運動による強磁性体内部の角運動量の変化を起源としたスピン流の注入方法である。スピン角運動量の濃度勾配を用いるため、スピン流生成に伴う電流は発生しない。スピンポンピングと逆スピンホール効果を組み合わせた手法は試料構造が簡単であるにも関わらず、スピンホール角の精密評価が可能であるという利点を有する。

【 研究結果 】 窒素 N, リン P, アンチモン Sb を表面 100nm にドーピング ($1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) した Si 基板を用意し、その上に $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜 (25nm) を堆積した。 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜は電子線蒸着装置を用いて、室温で堆積した (蒸着中真空度 : $1 \times 10^{-6} \text{ Pa}$)。このような素子の両端に起電力測定用の銅線を Ag ペーストで固定した (図 1)。電子スピン共鳴装置 (ESR) を用いて、DC 磁界及び X バンドマイクロ波 (9.12 GHz, TE_{011} キャビティ) を試料に照射し、強磁性共鳴条件近傍での DC 起電力の測定を行った。代表例として、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Sb}$ ドープ Si 基板のマイクロ波吸収スペクトルを図 2 に示す。縦軸はマイクロ波の吸収強度を微分形で表している。870 Oe 近傍に明瞭な強磁性共鳴信号が得られていることが分かる。共鳴磁界はこれまで報告されている $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 膜での値と一致する。

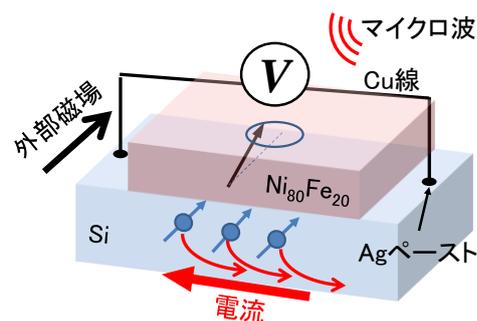


図1 本実験で用いた $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Si}$ 構造。

このような試料を用いて DC 起電力の測定を行った。結果を図 3 に示す (測定温度 300K, マイクロ波のパワー 100mW)。各試料とも共鳴磁界近傍において、起電力の変化が確認できた。ローレンツ型の信号に加え、非対称な信号が重畳していることが分かる。そこで次式を用いてフィッティングを行った。

$$V_{EMF} = V_{Sym} \frac{\Gamma^2}{(H-H_{FMR})^2 + \Gamma^2} + V_{Asym} \frac{-2\Gamma(H-H_{FMR})}{(H-H_{FMR})^2 + \Gamma^2}$$

ここで V_{EMF} は DC 起電力, V_{Sym} は強磁性共鳴に対象な成分 (ローレンツ型の信号) の大きさ, V_{Asym} は非対称成分の大きさ, Γ はダンピング定数を表す。 V_{Sym} がスピンポンピングにより Si 中に注入されたスピン流によって生じる ISHE 信号に対応する。一方, V_{Asym} は強磁性体中の異常ホール効果に起因する。異常ホール効果成分の起電力の大きさは磁化とマイクロ波による誘導電流の位相差に強く依存する。したがって 3 つの試料で非対称成分の大きさおよびその極性が異なる。それぞれの試料における V_{Sym} の大きさを解析した処,

N ドープ Si : 10.7 μ V(負磁界), -5.1 μ V(正磁界)

P ドープ Si : 15.6 μ V(負磁界), -15.3 μ V(正磁界)

Sb ドープ Si : 13.9 μ V(負磁界), -11.3 μ V(正磁界)

となった。負磁界において正の電圧が生じるのは $Ni_{80}Fe_{20}/Pt$ 系における極性と一致し, Si のスピンホール角が正であることを意味する。僅かに発熱による起電力 (磁界の極性はない) が重畳する為, 正磁界と負磁界の起電力は一致しない。正味の起電力は各磁界方向の起電力を平均することで求められる。 $Ni_{80}Fe_{20}$ の幅にバラツキがあるため 1mm あたりの起電力を計算すると, 3 つの試料でそれぞれ, N ドープ Si : 2.26 μ V, P ドープ Si : 4.98 μ V, Sb ドープ Si : 4.66 μ V であった。当初の予想では起電力は Sb ドープ Si > P ドープ Si > N ドープ Si と予想されたが, 実際は Sb ドープ Si と P ドープ Si では僅かに後者が大きい結果が得られた。これには 2 つの可能性が考えられる。

(1) Sb や P 等の不純物による逆スピンホール効果よりも影響の大きい, 起源が存在する。

(2) $Ni_{80}Fe_{20}$ で発生する DC 起電力が重畳してしまっている。

(2)について詳細に説明する。先ほど異常ホール効果の信号が重畳することを述べた。異常ホール効果は強磁性体の磁化が面直成分を有し, 面内の電流成分が存在する時に発生する。この電流成分は 9.12GHz で振動する交流電流成分であるため通常の DC 起電力測定では検出されない。しかし, 強磁性共鳴条件下では磁化も 9.12GHz で振動するためホモダイン検波の原理で DC 電圧が発生する。近年, 異常ホール効果だけでなく, プレーナーホール効果も同様の原理で DC 電圧を発生させることが明らかとなった。プレーナーホール効果の場合には面内磁化, 及び磁化と平行な面内電流によって電流のホール方向に DC 起電力を発生させる。また, 注意すべき点はプレーナーホール効果の信号はローレンツ型をしており, その外部磁界角度依存性も ISHE の信号と酷似している点である。本結果でも異常ホール効果が検出されていることから, 強磁性体内部に電流が発生していることは明らかである。従ってプレーナーホール効果の信号が重畳し, 真の ISHE 信号の評価が困難になっている可能性が示唆される。

上記の問題が発生したため, 強磁性体を金属から絶縁体に代えることによる精密測定の実現を検討した。強磁性体が絶縁体の場合にはマイクロ波起因の電流が発生しないため, プレーナーホール効果

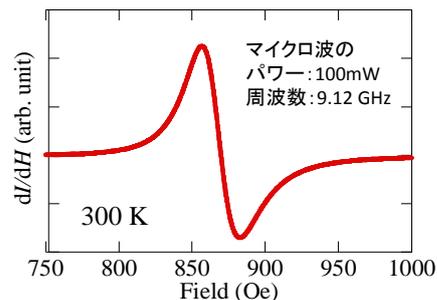


図2 $Ni_{80}Fe_{20}/Sb$ ドープSi構造のマイクロ波吸収曲線。

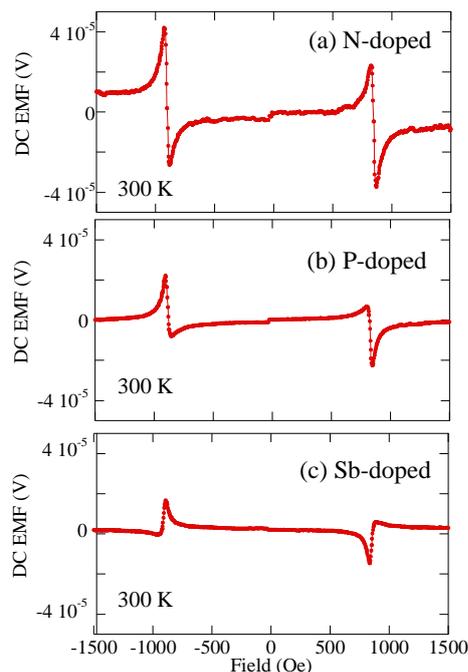


図3 $Ni_{80}Fe_{20}/Si$ 構造における起電力測定結果。

の影響を抑制することができる。代表的な絶縁体強磁性膜にイットリウム鉄ガーネット (YIG) がある。YIG はフェリ磁性体であるが、室温で磁化があり、スピンプンピング効率が非常に高いことで知られている。本研究のスピンプンピング源として非常に適している。しかし、YIG 膜は通常パルスレーザー堆積法や液相エピタキシー法によりガドリニウムガリウムガーネット (GGG) 基板上に単結晶成長させるのが一般的である。つまり Si 基板上に YIG を成長した報告例はない。結晶構造を比較したところ Si 上に YIG をエピタキシャル成長させることは極めて困難であることが判明した。そこで本研究では多結晶 YIG 膜を作製することにした。GGG 基板上に作製した多結晶 YIG から Pt へのスピンプンピングの報告例はあり、比較的高効率なスピンプンピングに成功している。本研究では MOD (metal organic decomposition) 法を用いて、Si 上の YIG 膜の作製を試みた。まず始めに MOD による YIG 膜の作製条件の探索を行う為、GGG 基板上の YIG 膜の作製を試みた、アセトン洗浄を行った GGG 基板に MOD 液をスピンプンコートで塗布し、乾燥アニール 150°C3 分、プレアニール 450°C5 分、アニール 850°C60 分で行った。すべての処理は大気中で行った。X 線回折および透過型電子顕微鏡より GGG 上の YIG は単結晶成長していることが明らかとなった。また、明瞭な FMR 信号および室温フェリ磁性 (図 4 参照) を実現していることを確認している。次に Si 基板上にも同様の成長を試みた。Si 基板の場合にも明瞭な FMR 信号、磁化曲線が確認でき、少なくとも多結晶 YIG の形成が期待できる。今後は多結晶 YIG/Si 構造の最適化を行い、Si 中の ISHE の精密測定を行っていく予定である。

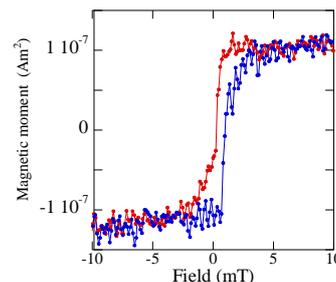


図4 YIG/GGG基板の磁化曲線。

上記の実験に先立ち、YIG を用いた場合の ISHE 信号の正確な評価手法について検討を行った。まず、GGG 基板上に作製した単結晶 YIG 薄膜に Pt 薄膜を形成した試料を用い、スピンプンピング実験を行った。本実験の目的は YIG のスピンプンピング効率の支配因子を解明することである。YIG/Si 構造を用いた ISHE の研究では複数の素子間での比較が必要である。従って YIG のスピンプンピング効率が素子間で異なることは避けなければならない。まず、Pt/YIG における温度依存性を測定した処、温度の低下と共に ISHE 信号が減少することが明らかとなった。このような挙動は Ni₈₀Fe₂₀ では確認されておらず、YIG 固有の特性であると言える。そこで強磁性共鳴線幅の温度依存性を 2 種類のマイクロ波 (9.1 および 34GHz) を用いて評価した。通常強磁性体における強磁性共鳴線幅は Q バンド > X バンドとなる。しかし、本研究では低温において X バンド > Q バンドと逆転することが明らかとなった。このような逆転現象を YIG 中に不純物起因の局在磁気モーメントが存在し、YIG の磁化と相互作用をするモデルで上手く説明できることを示した。即ち、スピンプンピング効率は不純物などの局在磁気モーメントの制御が重要であり、局在磁気モーメントを持つ可能性のある不純物濃度は抑制し、少なくとも試料間での不純物濃度を一定にしておく必要があることが判明した。また局在モーメントの影響の多寡は X バンドおよび Q バンドを用いた強磁性共鳴線幅の温度依存性から評価可能であり、類似の温度依存性を有する YIG/Si 間での ISHE 信号の比較は必須であることが判明した。

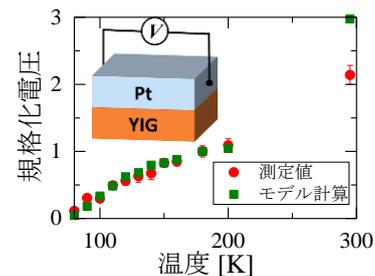


図5 Pt/YIG構造におけるISHEに起因する起電力の温度依存性。

YIG を用いた試料において試料間の精密比較のために、更に詳しい検討を行った。これまでの実験で試料の設置個所の僅かなズレにより、マイクロ波の吸収強度が大きく異なることが判明した。マイクロ波の吸収が少ない場合にはスピンプンピング効率は低下していることが懸念される。試料間や測定間での規格化の方法を確立する必要がある。本研究では複数の Pt/YIG 基板を用いて、規格化の手法について検討した。その結果、マイクロ波の吸収強度 (図 2 に示した微分信号を積分したローレンツ型信号の高さに相当) の 2 乗を用いて規格化することが正しいことを示した。本規格は検出信号がダイオード検出であることを鑑みると非常に理にかなった規格化方法である。これまで規格化されていなかったり、吸収強度の絶対値で規格化したりと不適切な処理が多く見られていたが、本研究により正しい規格化の手法を確立することができた。