

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 山口 健洋

本博士論文は「グラフェンへの電氣的スピンの注入技術の確立」と題し、強磁性体からグラフェンへの効率的な電氣的スピン注入方法の確立を目指して論文提出者が行った研究成果をまとめたものである。

本論文は9章より編成される。以下にそれぞれの章の要旨を列挙する。

### 第1章－第2章

本論文の背景として、グラフェンという新物質がスピントロニクス分野において既存の半導体および金属材料を凌駕する有望な材料であること、およびグラフェンのスピントロニクス応用に向けた現状の課題に関して体系的にまとめている。次に、高品質なグラフェンおよび層状化合物のヘテロ構造作製のために本研究で確立した、劈開法と転写法という技術に関して説明し、さらにグラフェンへの電氣的スピン注入・検出の実験技術である非局所磁気抵抗効果およびその解析方法に関してまとめている。

### 第3章

本論文の目標であるグラフェンへの効率的なスピン注入の達成のためには、**Conductivity mismatch** という問題を解決しなければならない。ここではスピン拡散方程式を元に **Conductivity mismatch** の概念について述べ、その解決方法として本論文で提案する、単結晶トンネルバリアを介したスピン注入、およびハーフメタル材料からのスピン注入、のそれぞれに関してまとめている。

### 第4章

本章では原子層制御可能なトンネルバリア作製法として、原子層堆積法 (ALD) という手法を用いた初めてのグラフェンへのスピン注入の実現に関してまとめている。PTCA 有機分子という表面修飾法を用いることで、グラフェン上への ALD を用いたトンネルバリアの作製に成功した。強磁性電極と組み合わせたグラフェンスピンバルブ素子においてグラフェンへのスピン注入に成功し、 $30\ \Omega$  の大きな非局所抵抗変化  $\Delta R_{NL}$  を観測した。これは過去に報告された最大値とほぼ同程度値である。ALD のサイクル数による接合抵抗の制御と磁気抵抗効果の相関を観測し、グラフェンにおいても効率的なスピン注入のためには接合抵抗の増大が効果的だということを実証した。

### 第5章

単結晶トンネルバリアを介したグラフェンへのスピン注入を目指して、劈開法と転写法を用いて **h-BN (単層) / グラフェン / h-BN (~20 nm)** の積層構造を作製し、NiFe 強磁性電極の取り付けにより単層 **h-BN** をトンネルバリアとするグラフェンスピンバルブ素子を作製した。非局所磁気抵抗効果により、単層 **h-BN** トンネルバリアを介した強磁性体からグラフェンへの電氣的スピン注入を初めて観測した。トンネルバリアの抵抗が **h-BN** の原子層数に対して指数関数的に増大することを確認しており、原子層数によって膜厚制御可能なトンネルバリアとして **h-BN** 原子層が非常に有望であることを示している。グラフェンへの高効率スピン注入技術を実現するうえ

で重要な技術である単結晶トンネルバリアを介したスピン注入を実現した初めての成果であり、トンネルバリアの厚さを原子層という最小単位で制御できることと併せ、スピントロニクス分野における原子層トンネルバリアという新技術の発展を促す研究である。

#### 第6章－第7章

遷移金属カルコゲナイド ( $\text{MoS}_2$ 、 $\text{WS}_2$ ) / グラフェン積層構造を作製し、面直方向の伝導制御およびスピン注入の実現を目指した結果についてまとめている。スピン注入の観測には至らなかったが  $\text{Ti/MoS}_2$ / グラフェン素子においては  $10^5$  を超える電流の巨大な変調と  $10^4 \text{ A/cm}^2$  を超える大きな ON 電流値を同時に実現した。これは現状のグラフェンを用いた縦型 FET においては最高の性能指数である。

#### 第8章

スピン偏極率が大きいハーフメタル電極を用いたグラフェンへの高効率スピン注入を目指して研究を行った。Si (111) 基板上に MBE 成長させた CFS 薄膜をナノ細線状に加工し、その上にグラフェンを転写することでスピンプルブ素子を作製した。過去に報告されたグラフェンスピンプルブ素子の中で最大値である  $300 \Omega$  の抵抗変化を観測した。スピン注入効率は低くても 50% 以上と見積もられ、過去の報告の最大値 30% を大きく上回る値を実現した。接合抵抗の大きさは  $10 \text{ k}\Omega$  程度であり、トンネルバリアを用いた過去の報告よりも数倍小さな接合抵抗で効率的なスピン注入を実現した。素子応用上接合抵抗は小さいことが望ましく、グラフェンへの効率的なスピン注入技術確立に向けてホイスラー強磁性電極が有する大きな可能性を示した。

#### 第9章

スピン緩和機構の解明に向けた実験として Hanle 効果によりスピン緩和時間の温度依存性を調べた。グラフェンは伝導電子の位相緩和長が長いことため低温にてコヒーレントな伝導が実現可能である。このような領域において顕著なスピン緩和時間の増大を観測した。グラフェンにおいてはキャリアのコヒーレントな伝導とスピン緩和に相関があることを示す結果を得た。グラフェンのスピン緩和のメカニズムに関する新たな知見が得られたことに対応する。

以上のように、本論文ではグラフェンスピントロニクス実現のための最重要技術であるスピン注入技術の確立を目指し、トンネルバリアやハーフメタル等の新規高効率スピン注入手法の実現に成功した。いずれも論文提出者独自の発想の元におこない、得られた成果はすべて世界に先駆けた初めての報告であった。これらの知見はスピントロニクス、グラフェン、原子層科学という最先端の分野の発展に大きく寄与する結果であると評価でき、特に複数の分野を融合した研究という意味で物理工学としての貢献が大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。