

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

強磁性金属/半導体界面制御によるスピントランジスタの創製

### 2. 氏名

齋藤秀和

### 3. 研究のねらい

固体中の電子の電荷と спинの相互作用を利用するスピントロニクス技術が世界的に注目されている。現在、将来の情報通信技術の核となる高速・大容量不揮発性メモリをターゲットとし、この新技術を利用した「スピントランジスタ」と呼ばれる不揮発性トランジスタの実現を目指した基礎研究が世界規模で行われている、しかしながら、これまでに明確に不揮発機能を実証した例は皆無である。スピントランジスタの実現には、金属強磁性体と半導体間のより高度な界面制御技術と革新的なデバイス構造が必要である。本研究は、独自に提案する金属強磁性/半導体ハイブリッド構造を有するバイポーラ型スピントランジスタ(図1)の情報記憶機能を担うエミッタ/ベース部に相当する、金属/絶縁体/半導体(MIS)構造を有するトンネル磁気抵抗(TMR)素子の開発を中心として行った。

### 4. 研究成果

#### a) 強磁性半導体(Ga,Mn)Asのスピニ依存電子構造の解明

スピントランジスタのベース層に用いる強磁性半導体はIII-V族半導体GaAsにMnをドープした(Ga,Mn)Asを用いることとした。その理由は、この材料が強磁性半導体の標準物質であり、既にTMR素子の電極として実績があるためである。しかしながらスピントランジスタへ応用するためには、(Ga,Mn)Asのスピニに依存した電子構造を明らかにする必要がある。その観測のためにはトンネル分光が強力な測定手法であるが、GaAsやAlAs等の従来のトンネル障壁層材料は結晶品位が悪いため、本質的な情報は得られなかった。

我々は、さきがけ研究への参加の直前にII-VI族半導体であるZnSeが良好なトンネル障壁層と成り得るという手ごたえを得ていた(H. Saito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **89**, 2325002 (2006))。そこで、Fe/ZnSe/(Ga,Mn)Asから構成されるTMR素子を作製し、スピニ依存トンネル分光測定を行った。その結果、図2に示すように(Ga,Mn)Asの本質的な状態密度の観測に成功し、そのスピニ分極状態はフェルミ面上約350meVまで存在することを初めて明らかにした(H. Saito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 192512 (2008))。なお、この値は従来の理論予想を大幅に上回るものであり、同物質の強磁性発現のメカニズムに関して一石を投じた。

#### b) 世界最高性能のMIS型TMR素子の開発

スピニに依存したトランジスタ動作はエミッタ/ベース間でのTMR効果を利用する。従って、可能な限り高い磁気抵抗変化率(MR)の実現が望まれる。ここで、MR比は2つの強磁性層の磁化の相対角が平行および反平行に揃えられたときの素子抵抗変化率である。そこで、強磁性電極をFeと(Ga,Mn)Asとし、様々な障壁層材料を試したところ、図3に示すように酸化ガリウム(GaO<sub>x</sub>)という新材料を用いたときに最も高いMR比が観測された(表1)。MR比はZnSe障壁層を用いた素子での値(40%)を上回り、MIS型TMR素子としては最も高い58%を得ることが出来た(H. Saito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **93**, 172515 (2008))。GaO<sub>x</sub>はGaAsに対して高品位の接合界面が形成できることは知られていたが、薄膜ではアモルファスとなることからスピニ依存伝導のための障壁層材料としては全く注目されていなかった材料である。

#### c) 狹ギャップ強磁性半導体(In,Mn)As系トンネル素子における世界初のTMR効果の観測

上記の成果に基づき強磁性半導体(Ga,Mn)Asを用いて図1のバイポーラ型スピントランジス

タを作製したが、残念ながら多大なリーク電流が発生することから増幅機能が得られないことが判明した。この理由を調べたところ、増幅動作の際には Fe エミッターと(Ga,Mn)As ベース間には相当高い電圧が必要であることが主な原因であることがわかった。すなわち、エミッター/ベース間には(Ga,Mn)As のバンドギャップ(約 1.5 eV)に相当する電圧程度が必要であり、このため Fe から(Ga,Mn)As に電子が流れる前に逆に(Ga,Mn)As から Fe に大きなホール電流が流れてしまう。

そこで、バンドギャップが約 0.4 eV である狭ギャップ強磁性半導体(In,Mn)As を用いた TMR 素子の開発に取り組んだ。従来、この物質を用いたトンネル素子の研究報告例はあるものの、適切なトンネル障壁層材料がないことから TMR 効果の観測に成功した例は無い。我々は、高品位の障壁層材料を導入が課題解決の突破口になると確信し、(Ga,Mn)As 系 TMR 素子の研究で培った II-VI 族半導体障壁を用いた Fe/II-VI/(In,Mn)As を作製した。その結果、世界で初めて TMR 効果の観測に成功した(図4)。この成果はバイポーラ型スピントランジスタを実現するまでの大きなブレイクスルーであり、現在3端子化に向けて取り組んでいる。

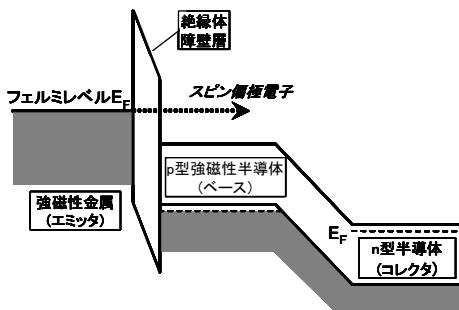


図1 バイポーラ型スピントランジスタのエネルギー バンドダイアグラム

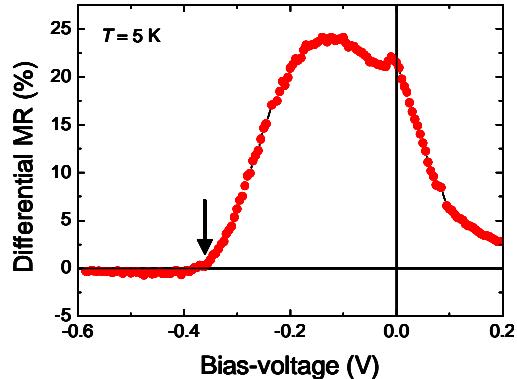


図2 Fe/ZnSe/(Ga,Mn)Asの微分MR比のバイアス依存性。  
(Ga,Mn)Asの状態密度におけるスピントラニジスタのフェルミ面上350meVまで存在することを示している。

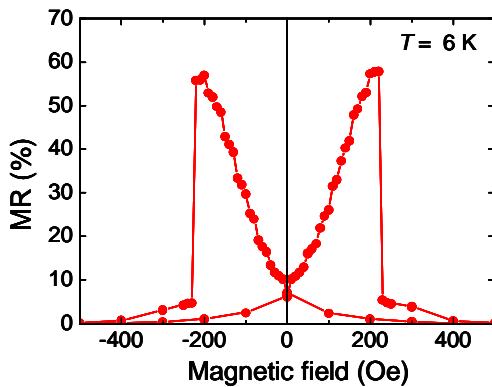


図3 Fe/GaO<sub>x</sub>/(Ga,Mn)Asの磁気抵抗効果。

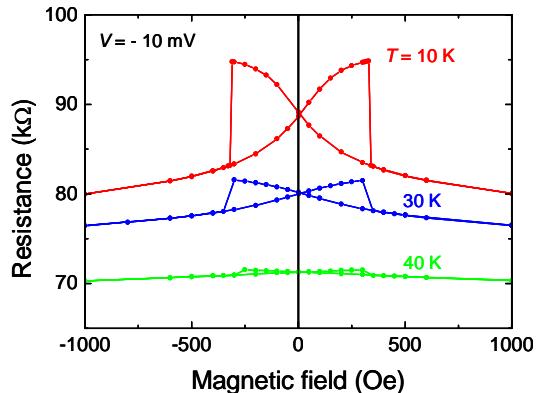


図4 Fe/ZnSe/(In,Mn)Asの磁気抵抗曲線

#### d) 電界効果型スピントランジスタのためのGaAsへの高効率スピントラニジスタ

本プロジェクトの目的と必ずしも合致しないものの、これまでの研究で開発した新材料が思われる機能を示すことが明らかになった。GaO<sub>x</sub>トンネル障壁層を金属/n-GaAs接合界面に挿入することにより、ショットキーバリアを抑制して低抵抗接合が得られることが判明した。一般に、金属/GaAs接合における金属電極のフェルミレベル $E_F$ はGaAsのミッドギャップに非常に

強くピニングされ、そのショットキー・バリアの抑制は困難であるとされる。これまで、酸化物系材料を金属/GaAs界面に挿入してショットキー・バリアを制御した例は皆無である。

この発見はスピントロニクス素子にも非常に有用である。金属/GaO<sub>x</sub>/GaAsの低い接合抵抗を利用して発光素子を作製したところ、図5に示すようにGaO<sub>x</sub>の挿入により発光強度は著しく増強しオーム性接合のそれに匹敵する(H. Saito *et al.*, Appl. Phys. Express 2, 083003(2009))。また、従来の代表的材料であるMgO挿入層を用いた場合よりも発光強度は著しく高い。さらに、この発光を詳細に調べたところ図6に示すように円偏極していることがわかった(H. Saito *et al.*, Appl. Phys. Lett. 96, 012501 (2010))。これは、Fe電極から注入された電子がスピン分極している証拠である。発光の偏極率(20%)から見積もった電子のスピン分極率は約40%であり、期待通り報告されているFeのE<sub>F</sub>でのスピン分極率と一致する。

以上の結果が示す強磁性体から半導体GaAs中への電気的な”スピン偏極電子注入”は、バイポーラ型と比較して省電力化に有利な電界効果(FET)型スピントランジスタの基盤技術である。過去に従来材料であるMgO等を用いてスピン注入そのものを検証した報告はあるが、上述のピニング現象により接合抵抗は極めて高く、トランジスタのソース・ドレイン電極には適さない。したがって、GaO<sub>x</sub>はFET型スピントランジスタ実現に極めて重要な材料あると結論される。なお、発光素子を用いたGaAs中へのスピン注入研究は科研費補助金特定領域「スピン流の創出と制御」の支援を受けている。

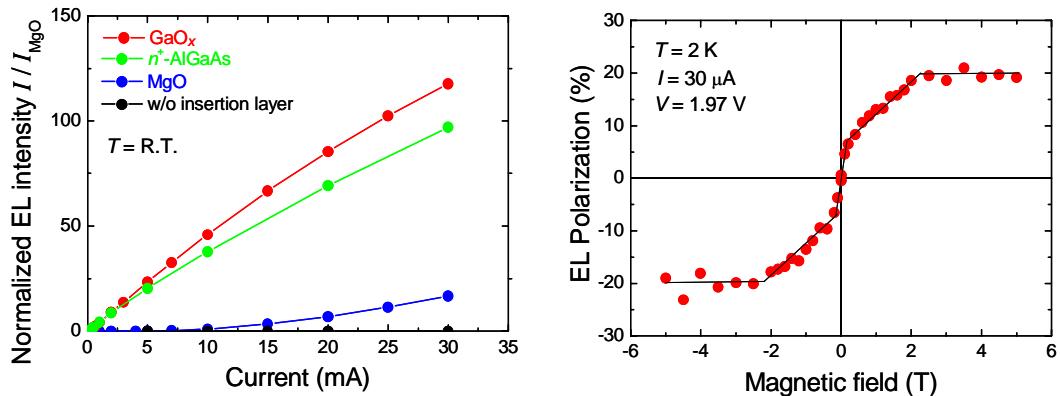


図5 GaAs系LED素子における発光強度の挿入層材料依存性

図6 Fe/GaO<sub>x</sub>/LEDからの発光の偏極率の磁場依存性

## 5. 自己評価

自己採点は100点満点中60点である。この理由は以下の通りである。研究前半の新型TMR素子開発研究は予定通りの結果が得られた。しかしながら、3端子素子に発展させる上で素子加工技術に関する予想外の問題に突き当たった。結果として、残念ながら研究期間内では当初の目的を達成できなかった。この点のみを考慮するならば及第点には及ばないだろう。一方で、当初想定していなかった成果が得られたことはうれしい誤算であった。すなわち、上で述べたように新材料GaO<sub>x</sub>は今後の金属・半導体スピントロニクス素子に大きなブレイクスルーをもたらす可能性を秘めていることが明らかになった。今後、新たなプロジェクトをスタートさせて今回の成果を発展させていく予定である。以上より、自己採点はぎりぎり及第点である60点とした。

## 6. 研究総括の見解

Fe/ZnSe/(Ga,Mn)As から構成される TMR 素子のスピン依存トンネル分光測定から、(Ga,Mn)As の本質的な状態密度の観測に成功し、スピン分極状態が従来の理論予想を大幅に上回る値であることを明らかにするなど、同物質の強磁性発現のメカニズムに新たな知見を与えることに成功するなど、当初計画を順調に実行して行った。素子加工上の問題により3端子素子の実現までには至らなかったのは残念ではあったが、研究は予想通りに進まない

ところから新しい工夫や発見につながるのが常であり、今後の展開に期待したい。一方、障壁材料として当初予想もしていなかった酸化ガリウムを発見できたことは、これからの研究にとって大きな成果であった。

## 7. 主な論文等

### A. さきがけ個人研究者主導で得られた成果で主なもの

#### ①論文

1. "Tunneling spectroscopy in Fe/ZnSe/Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As magnetic tunnel diodes" H. Saito, A. Yamamoto, S. Yuasa, and K. Ando, J. Appl. Phys. **103**, 07D127 (2008).
2. "Spin-dependent density of states in Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As probed by tunneling spectroscopy" H. Saito, A. Yamamoto, S. Yuasa, and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **92**, 192512 (2008).
3. "High tunneling magnetoresistance in Fe/GaO<sub>x</sub>/Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As with metal/insulator/semiconductor structure" H. Saito, A. Yamamoto, S. Yuasa and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **93**, 172515 (2008).
4. "Low effective barrier height of GaO<sub>x</sub> tunnel barrier in metal/semiconductor hybrid junctions" J. C. Le Breton, H. Saito, S. Yuasa and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **94**, 152101 (2009).
5. "Spin-polarized tunneling in fully epitaxial magnetic tunnel diodes with a narrow-gap In<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As electrode" H. Saito, S. Yuasa and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **95**, 192508 (2010).

#### ②特許

研究期間累積件数: 2 件

1. 発明者: 斎藤秀和、安藤功兒

発明の名称: トンネル素子及びその製造法

出願人: JST、産総研

出願番号(出願日): 特願 2008-213517 (2008 年 8 月 22 日)

公開番号(公開日): 特開 2010-50297 (2010 年 3 月 4 日)

2. 出願中

### B. 本研究課題に関連した成果で主なもの

#### ①招待講演

“金属/半導体複合素子におけるスピン依存伝導”

斎藤秀和、湯浅新治、安藤功兒、応用物理学会秋季学術講演会 2008 年 9 月