

半導体スピントロニクス材料とデバイス機能

Semiconductor Spintronics Materials and Device Functionalities

田中 雅明^{1, 2, 3}

東京大学 工学系研究科 電気系工学専攻¹

スピントロニクス学術連携研究教育センター²

東京大学 ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構³

Masaaki Tanaka^{1, 2, 3}

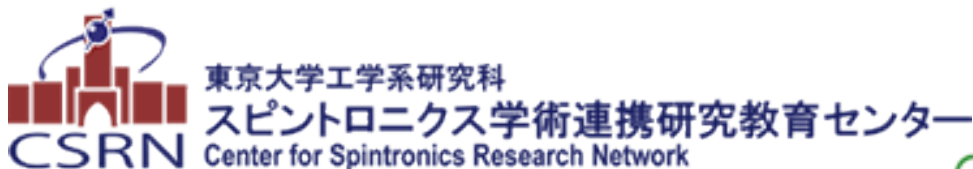
Dept of Electrical Engineering and Information Systems¹

Center for Spintronics Research Network (CSRN)²

Institute for Nano Quantum Information Electronics (Nano-Quine)³

The University of Tokyo

E-mail: masaaki@ee.t.u-tokyo.ac.jp



本研究について、日頃より議論していただいている共同研究者・協力者の方々に感謝申し上げます。

レ デウツク アイン¹⁾²⁾、ファミ ナム ハイ²⁾³⁾、大矢 忍¹⁾²⁾⁴⁾、小林 正起¹⁾²⁾、グエン タントウ¹⁾⁵⁾、ショビット ゴエル¹⁾、瀧口耕介¹⁾、石原奎太¹⁾、藤森 淳⁶⁾、吉田 博²⁾⁷⁾、福島 鉄也²⁾⁸⁾、新屋 ひかり¹⁾²⁾、千葉 貴裕¹⁰⁾

- 1) 東京大学 大学院工学系研究科 電気系工学専攻
- 2) 東京大学 工学系研究科 スピントロニクス学術連携研究教育センター
- 3) 東京工業大学 工学院 電気電子系
- 4) 東京大学 ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構
- 5) ベトナム ホーチミン市師範大学 物理学科
- 6) 早稲田大学理工学部
- 7) 大阪大学 基礎工学研究科 スピントロニクス学術連携研究教育センター
- 8) 東京大学 物性研究所
- 9) 東北大学 電気通信研究所
- 10) 東北大学 学際科学フロンティア研究所

自己紹介 田中 雅明

東京大学 大学院工学系研究科

スピントロニクス学術連携研究教育センター長

電気系工学専攻、電気電子工学科 教授

東京大学 ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構 教授



昭和36年(1961年)生まれ

学歴

昭和59年(1984年) 3月 東京大学工学部電子工学科卒業

平成元年(1989年) 3月 東京大学大学院工学系研究科電子工学専攻博士課程修了

学位 工学博士 (平成元年(1989年) 3月)

職歴

平成元年(1989年) 東京大学工学部電子工学科・助手、1990年電気工学科・講師

平成4年(1992年)～平成6年(1994年) 米国ベル通信研究所 (Bellcore) Research Scientist

平成6年(1994年) 東京大学工学部電子情報工学科・助教授

平成7年(1995年) 東京大学大学院工学系研究科 電子工学専攻・助教授

平成16年(2004年) 東京大学大学院工学系研究科 電子工学専攻・教授

平成20年(2008年) 東京大学大学院工学系研究科 電気系工学専攻・教授(改組による)

平成28年(2016年)～ 同 スピントロニクス学術連携研究教育センター・センター長

この間に 平成7年～平成10年 科学技術振興事業団さきがけ研究21「場と反応」領域研究者

平成13年～19年 科学技術振興機構さきがけ研究「光と制御」領域研究者

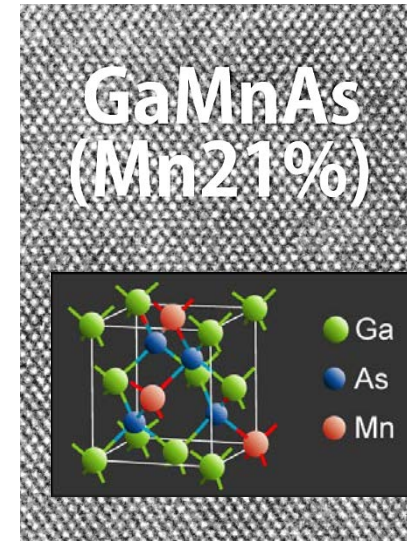
半導体量子ヘテロ構造から始まって、金属・半金属・磁性金属・磁性半導体を含む電子材料のエピタキシャル薄膜や多層膜・ヘテロ構造・ナノ構造の結晶成長、物性探索、デバイス応用の研究に従事。1990年代初めから約30年にわたってスピン機能材料と「スピントロニクス」および量子科学技術の研究を行っている。Science(知的好奇心)とEngineering(社会のニーズ)の両方の視点を持ちつつ研究を進めています。

半導体スピントロニクス材料とデバイス機能

最近の研究結果
共同研究を含む

III-V族系スピン機能ヘテロ構造・ナノ構造材料

- ・横型スピンバルブ素子
- ・縦型スピンMOSFET
の作製、動作実証、性能向上
- ・低電流でSOT磁化反転に成功

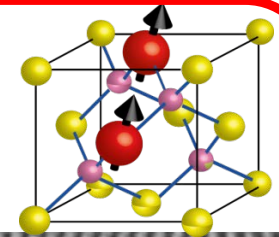


IV族系スピン機能ヘテロ構造・ナノ構造材料

- ・FeからSiへ高効率のスピン注入・検出
- ・Si-2DEG中のスピン散乱と輸送の解明
- ・横型Siベース・スピンMOSFETの作製、室温動作実証

Fe添加 狭ギャップ系スピン機能ヘテロ構造・ナノ構造材料

- ・室温以上の高い T_c をもつ n型/p型強磁性半導体(III,Fe)Vの作製
n-(In,Fe)As, p-(Ga,Fe)Sb, n-(In,Fe)Sb
- ・Fe添加III-V族強磁性半導体における新しいデザイン則
- ・近接効果による新しい巨大磁気抵抗効果とその電界制御
- ・超伝導/強磁性半導体接合など新しい量子技術への展開



n-(In,Fe)Sb
16% Fe

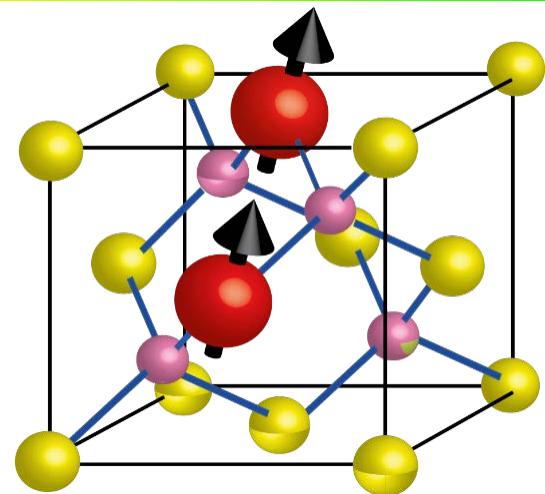
酸化物系スピン機能 ヘテロ構造・ナノ構造材料

- ・TMR、低電力で磁化反転に成功
- ・世界最高効率スピン流→電流変換
- ・Fe/GaO_x/Fe縦型スピンMOSFET
- ・横型スピンバルブ構造で高いMR

5 nm

強磁性半導体 Ferromagnetic Semiconductors (FMSs)

- 混晶: II-V, III-V, IV + 磁性元素 (Mn, Fe...)
- 多くの物質は”キャリア誘起強磁性”を示す
- 分子線エピタキシーで成長、ヘテロ構造、量子井戸、ナノ構造を作製可能
- 半導体技術と整合性が良い → 様々なデバイス応用が期待される...



Zinc-blende type crystal

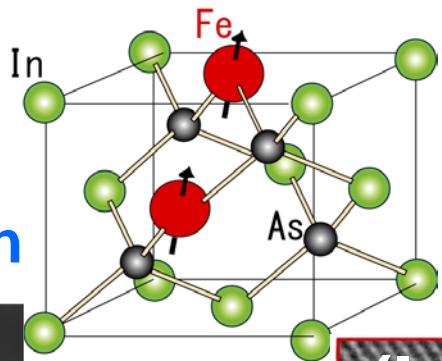
問題点 (Mn-doped III-V and IV)

- N型とP型の両方のキャリアタイプの強磁性半導体を作製することができるか？ (エレクトロニクスに整合性の良いIII-V族ではN型がなかった)
 - 強磁性半導体の物性、磁性を電気的手段で制御することができるか？ (低消費電力かつ高速で制御する必要がある)
 - 高いキュリー温度 T_C ($> 300\text{K}$) をもつ強磁性半導体を作製できるか？
- “125 big questions that face scientific inquiry over the next quarter-century”,
Commemorative Issue Celebrating the 125th Anniversary of the Science Magazine, Science **309**, 82 (2005).
- バンド構造、物性、強磁性の機構を理解し、制御することができるか？
→ 機能材料、ナノ構造、デバイスの設計と作製

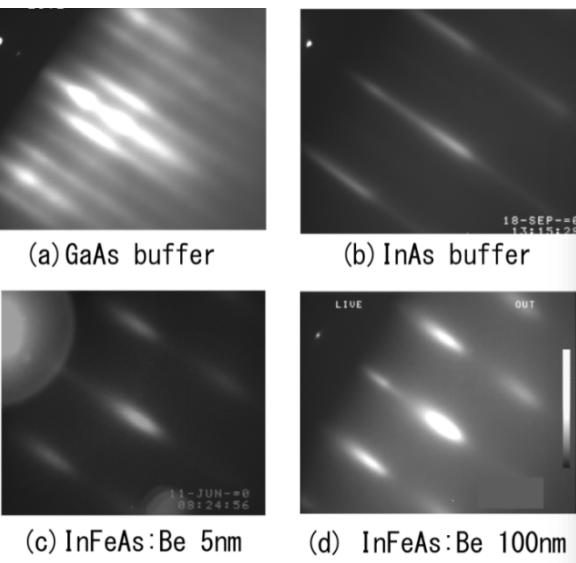
MBE growth and structural characterizations of (In,Fe)As

P. N. Hai, L. D. Anh et al.,
Appl. Phys. Lett. **101**, 182403 (2012).

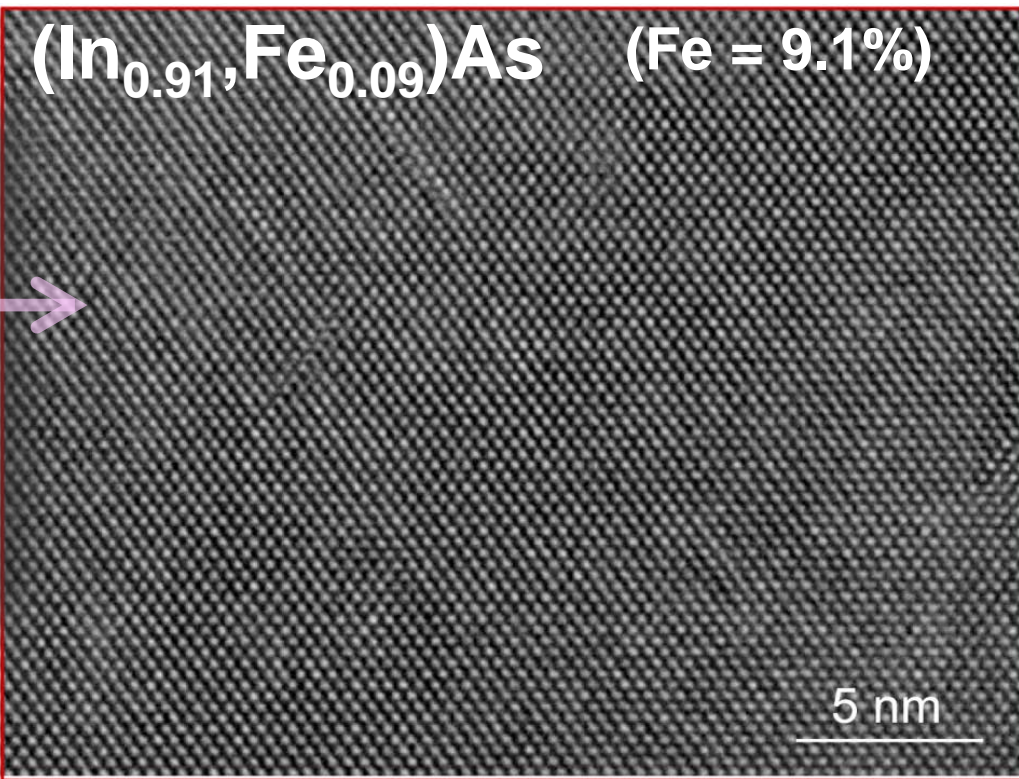
**RHEED pattern
([-110] direction)
during MBE growth**



**HRTEM lattice image
(GaAs[110] direction)**



InAs cap 5-20 nm $T_s = 236^\circ\text{C}$
$(\text{In}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{As:Be}$ 100 nm $T_s = 236^\circ\text{C}$
InAs buffer 10-20 nm $T_s = 500^\circ\text{C}$
GaAs buffer 50 nm $T_s = 580^\circ\text{C}$
S.l. GaAs(001) sub.

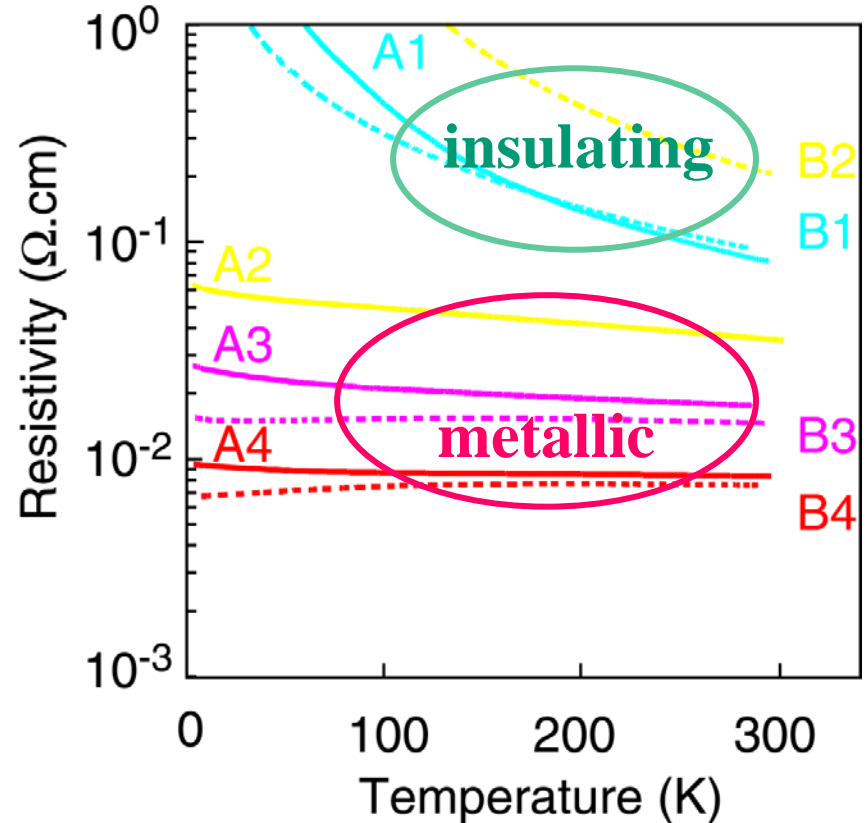
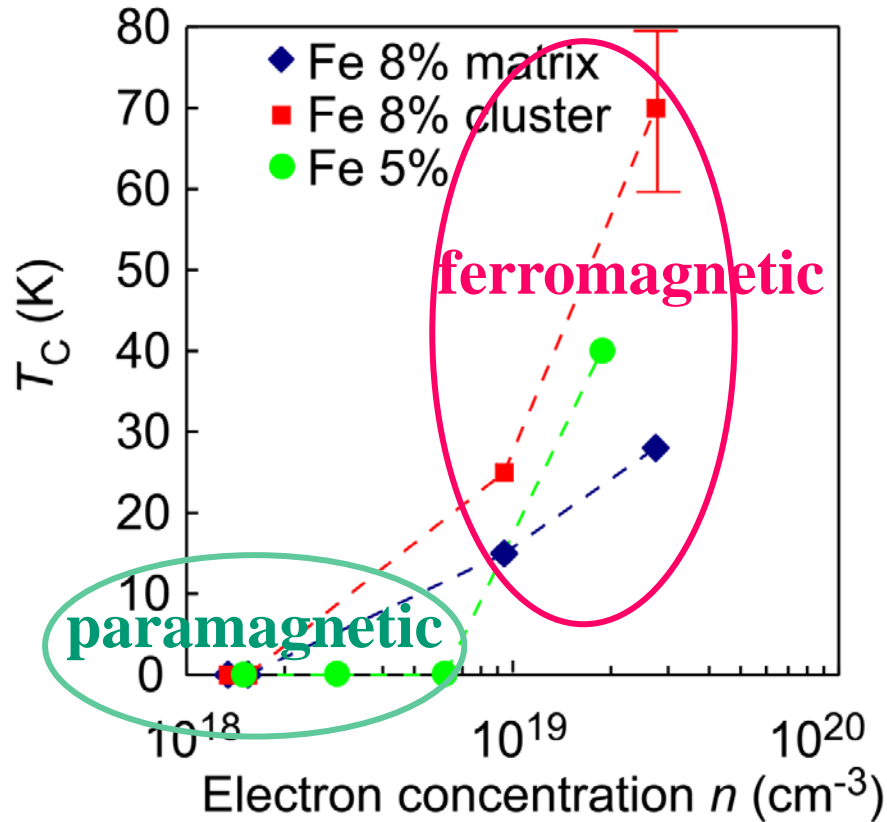


Be is a double donor in
LT-MBE grown InAs.

**Good zinc-blende crystal structure
No metallic Fe or FeAs second-phases metallic compounds**

Curie temperature T_C vs. electron concentration n

T_C was estimated by Arrott plots of $M - H$, $MCD - H$, and AHE characteristics on various (In,Fe)As samples



$n > \sim 6 \times 10^{18}$ cm^{-3} is needed for electron-induced ferromagnetism

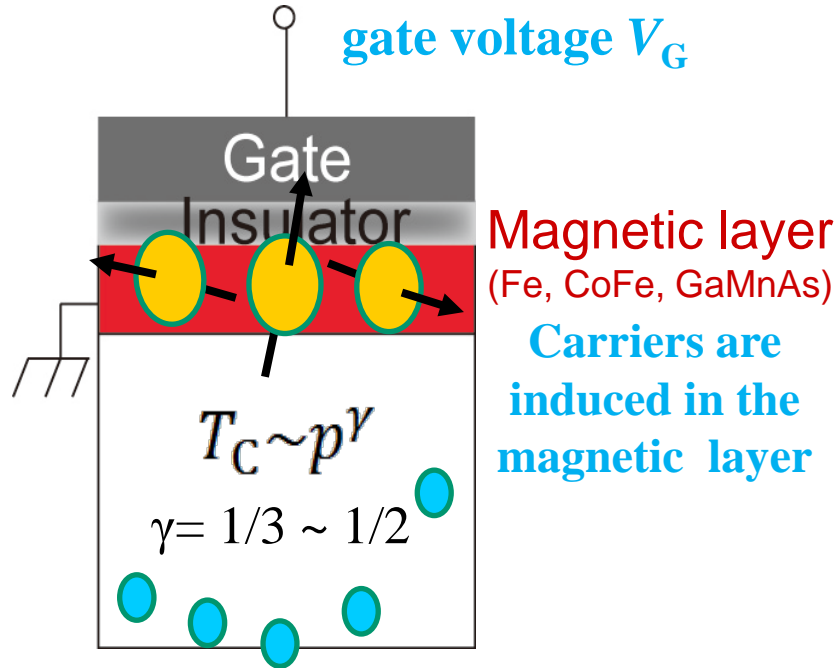
Ferromagnetism appears near the insulator-metal transition

Features similar to (Ga,Mn)As, but need only $n < 10^{19}$ cm^{-3} in (In,Fe)As
 \rightarrow s - d exchange in (In,Fe)As is large.

Electrical control of ferromagnetism

By controlling carrier density n_{sheet}
(conventional)

Magnetic thin films with low carrier
coherency (no quantum size effect)

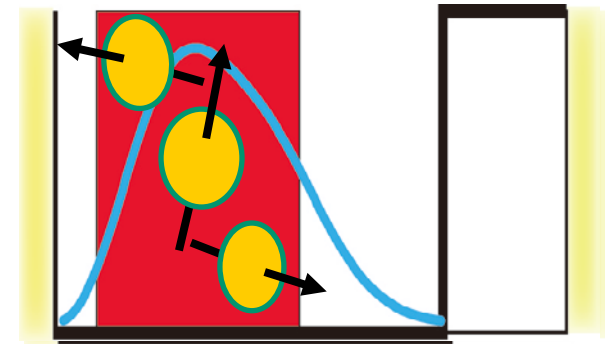


- Large Δn_{sheet} required ($10^{13} \sim 10^{14} \text{ cm}^{-2}$)
→ High power consumption
- Low speed (limited by the carriers' transit time)

By controlling carrier
wavefunction (this work)

Quantum well (QW) containing
a thin magnetic layer

gate voltage $V_G \rightarrow$ Wavefunction is shifted



$$T_C \propto \sum_{\text{occupied } i} \int_{\text{FMS}} |\varphi_i(z)|^4 dz$$

- No need of Δn_{sheet}
→ Low power consumption
- → High speed (*sub-ps*)
- $T_C - V_G$ relation can be customized
by the QW structure

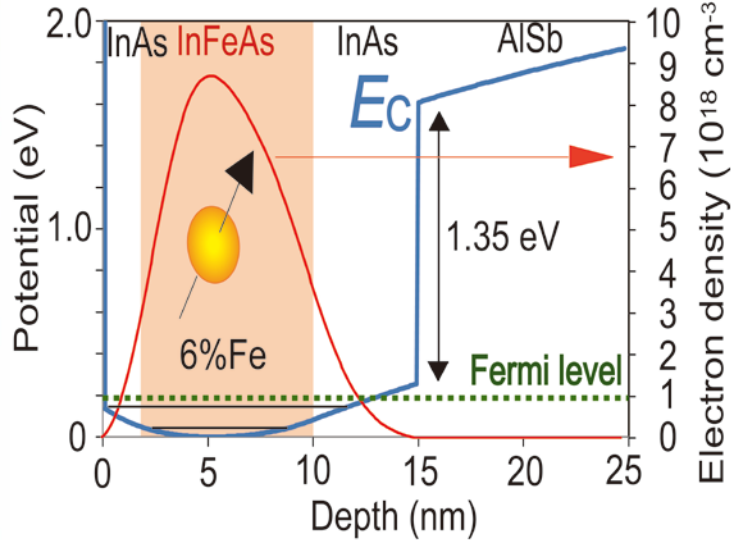
L. D. Anh et al., Phys. Rev. B **92**, 161201(R) (2015).

InAs/(In,Fe)As/InAs trilayer quantum well

Sample A

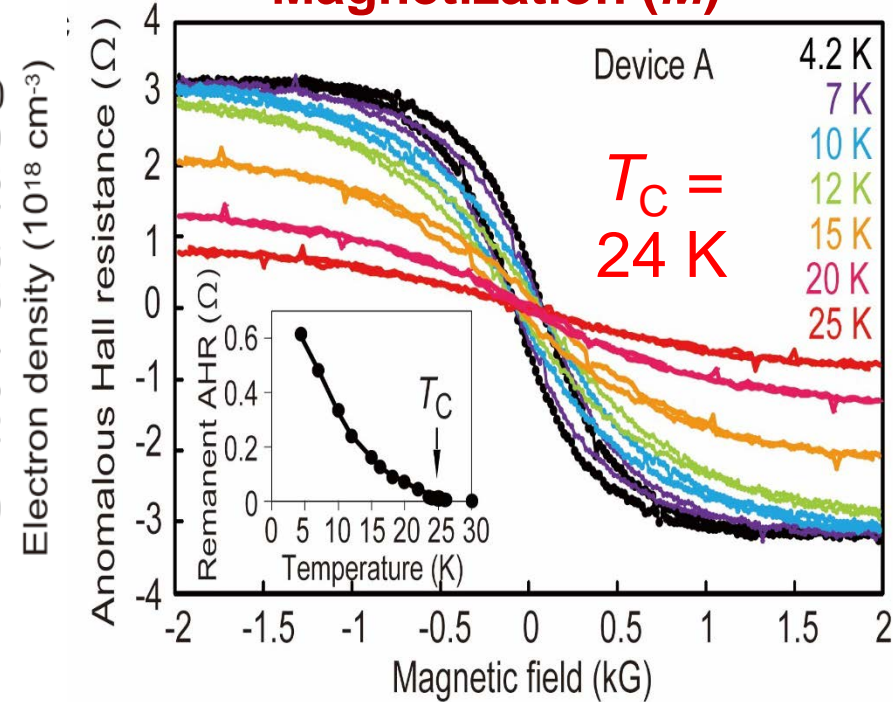
InAs 2 nm
(In,Fe)As 6% Fe 8 nm
InAs 5 nm
AlSb 50 nm
AlAs 10 nm
GaAs 100 nm
GaAs S.I sub. (001)

Conduction band potential profile



L. D. Anh *et al.*, APL (2014).
L. D. Anh *et al.*, PRB (2015).

Anomalous Hall resistance (AHR) \propto Magnetization (M)

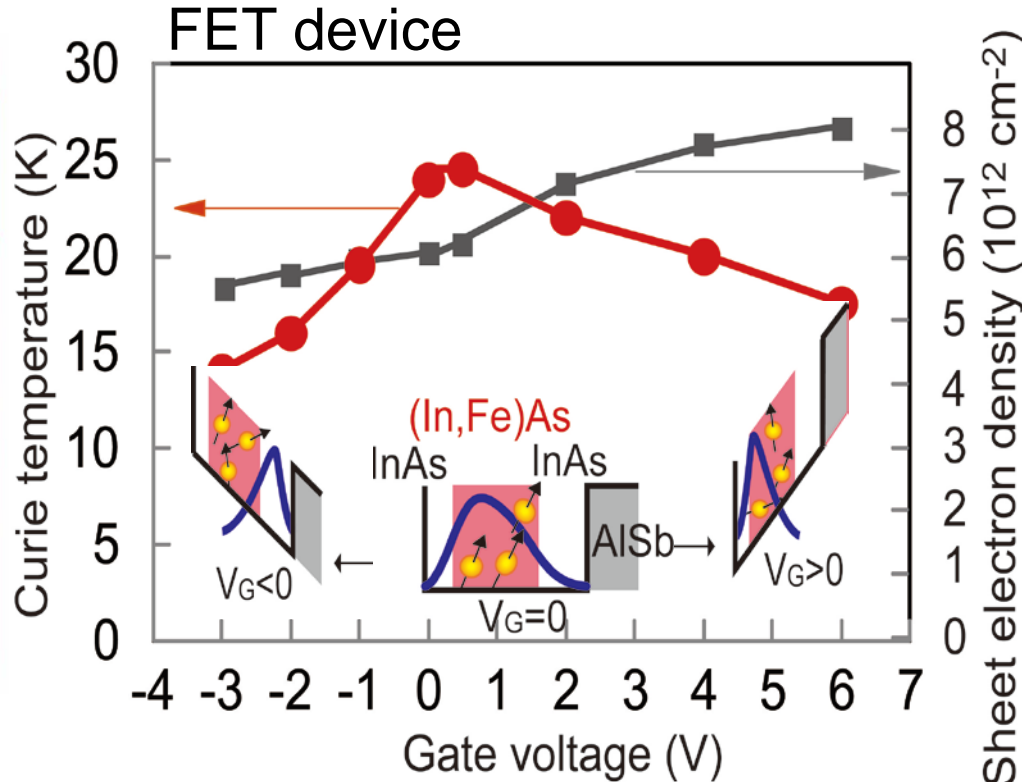


- Tri-layer quantum well formed by potential barriers: AlSb/InAs band offset (1.35 eV) + surface barrier
- Samples are characterized by the Hall resistances
 - Ordinary Hall resistance (dominant) \rightarrow Electron conc. n_{sheet}
 - Anomalous Hall resistance ($\sim 3\%$ of the total) \rightarrow Magnetization

Electrical gating of ferromagnetism

Self-consistent calculation

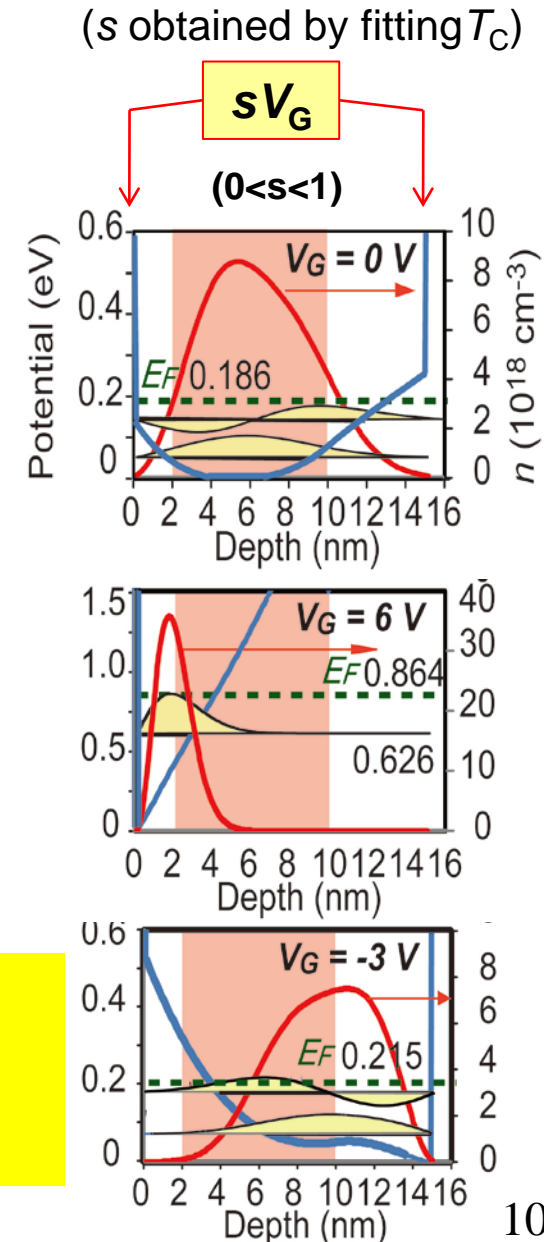
InAs 2 nm
(In,Fe)As 6% Fe 8 nm
InAs 5 nm
AlSb 50 nm
AlAs 10 nm
GaAs 100 nm
GaAs S.I sub. (001)



- Large change in Curie temp. ΔT_C (-42%) with very small Δn_{sheet} ($\sim 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$)
- T_C varies non-monotonically with V_G and n_{sheet}

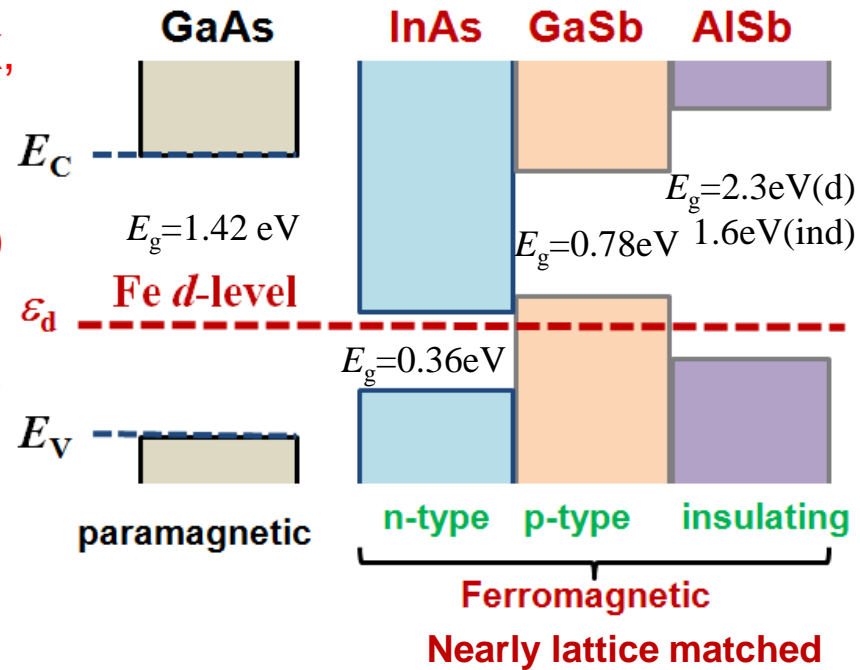
ΔT_C is *not* caused by Δn_{sheet}
 but by the movement of electron wavefunctions
 (2D wavefunction engineering in magnetic QW)

L. D. Anh et al., Phys. Rev. B **92**, 161201(R) (2015).



New Fe-doped III-V Ferromagnetic semiconductors (FMS)

- **(In,Fe)As: n-type ferromagnetic**
 P. N. Hai *et al.*, APL (2012); JJAP (2021). ($T_C \sim 100\text{K}$,
 M. Tanaka *et al.*, Appl. Phys. Rev. (2014). 305K)
- **(Ga,Fe)Sb: p-type ferromagnetic**
 N. T. Tu *et al.*, PRB (2015); APL (2016). ($T_C \sim 340\text{K}$)
- **(In,Fe)Sb: n-type ferromagnetic**
 N. T. Tu *et al.*, APEX (2018). ($T_C \sim 335\text{K}$)
- **(Al,Fe)Sb: insulating ferromagnetic**
 L. D. Anh *et al.*, APL (2015). ($T_C \sim 10\text{K}$)
- **(Ga,Fe)As: insulating paramagnetic**
 S. Haneda *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. (2000).



Resonant $s,p-d$ exchange interaction model

$$N_0\alpha \text{ or } N_0\beta = -2|V_{s,p-d}|^2 \left(\frac{1}{E_{C,V} - \epsilon_d} + \frac{1}{U - E_{C,V} + \epsilon_d} \right)$$

$V_{s,p-d}$: $s-d$ ($p-d$) mixing parameter
 $E_{C,V}$: Energy of CB-bottom (VB top)
 ϵ_d : Energy of d states

P. W. Anderson *et al.*, Phys. Rev. **124**, 41 (1964).
 J. R. Schrieffer *et al.*, Phys. Rev. **149**, 491 (1966).

In narrow gap semiconductors,

Fe d -level is near the band edge $\rightarrow N_0\alpha$ or $N_0\beta$ is large \rightarrow high T_C

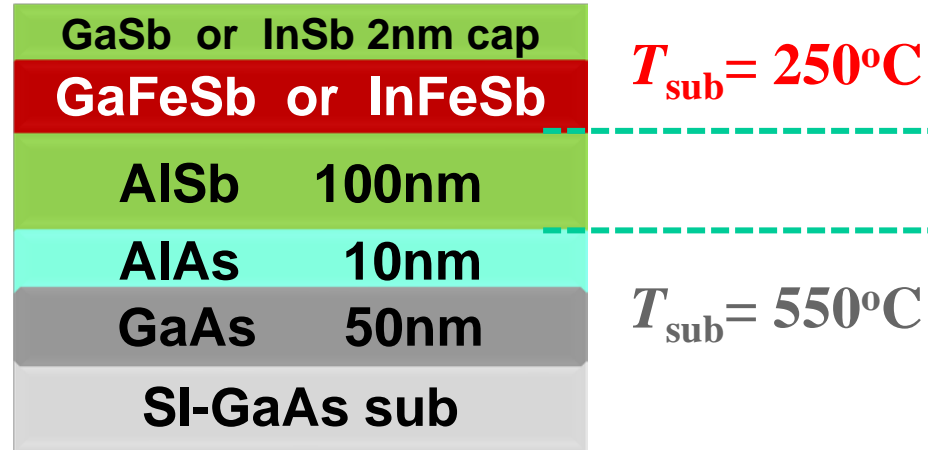
MBE growth p-type (Ga,Fe)Sb and n-type (In,Fe)Sb

Growth condition

- ◆ AlSb/AIAs buffer layers to relax the lattice mismatch
- ◆ Grow GaFeSb (InFeSb) at $T_{\text{sub}} = 250^{\circ}\text{C}$

Sample GaFeSb list

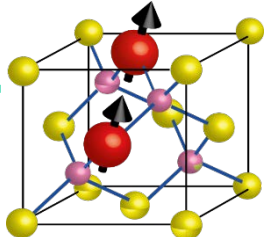
Sample	%Fe	d(nm)
A1	3.9	100
A2	6.7	100
A3	9.0	100
A4	11.4	100
A5	13.7	100
A6	17	40
A7	20	30
A8	23	10
A9	25	10



Sample InFeSb list

Sample	%Fe	d(nm)
B1	5	20
B2	8	20
B3	11	20
B4	12	20
B5	16	15

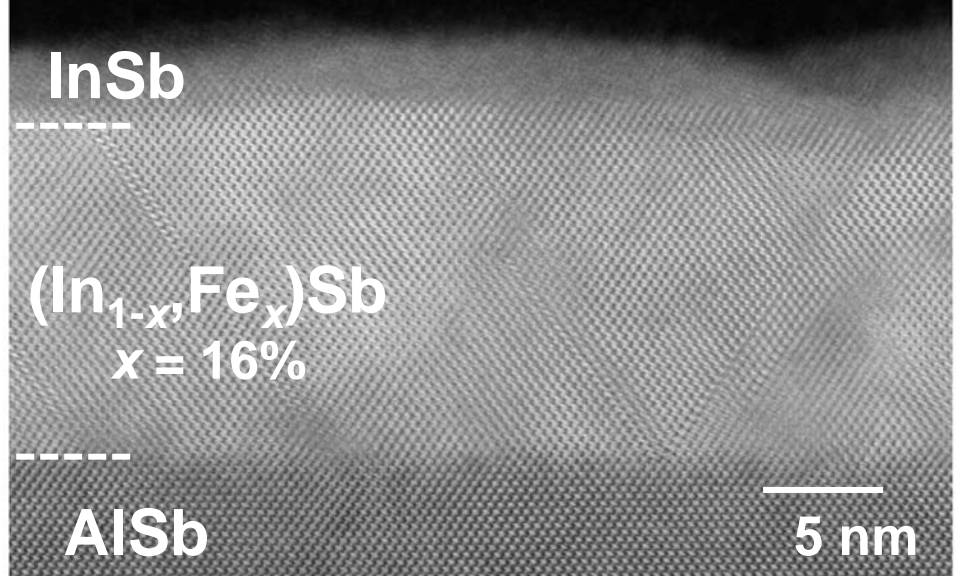
Crystal structure characterizations by STEM and TED



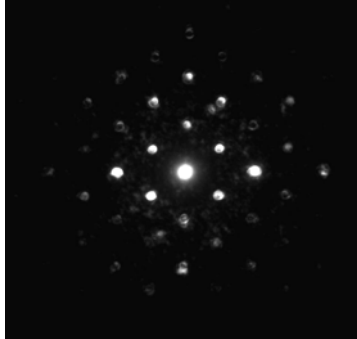
p-type GaFeSb



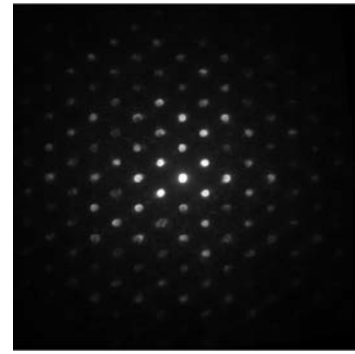
n-type InFeSb



GaSb	2nm
GaFeSb	10-100nm
AlSb	100nm
AlAs	10nm
GaAs	50nm
SI-GaAs sub	



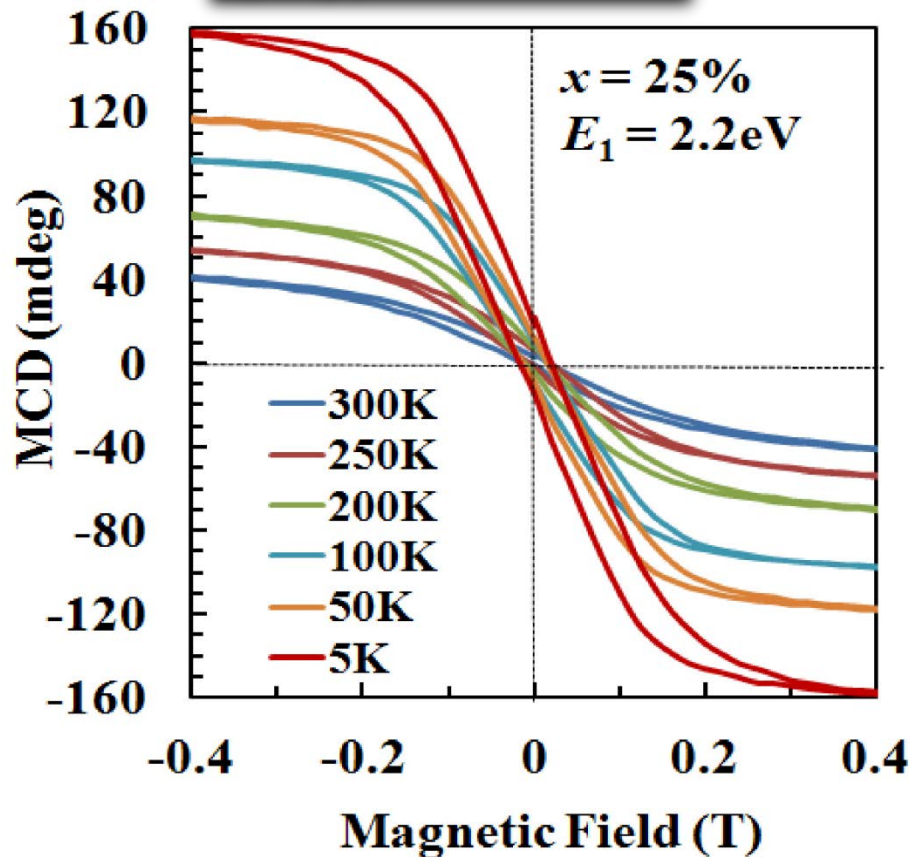
InSb	2nm
InFeSb	15-20nm
AlSb	100nm
AlAs	10nm
GaAs	50nm
SI-GaAs sub	



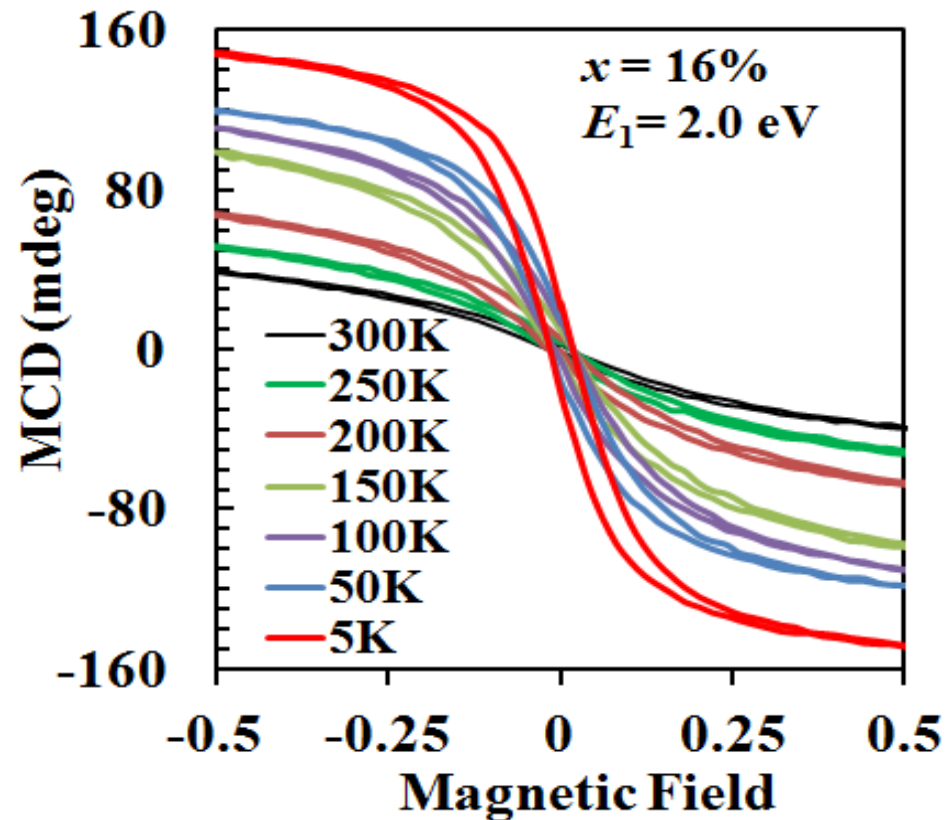
STEM image and TED pattern confirm that the crystal structure of (Ga,Fe)Sb and (In,Fe)Sb is zinc-blende-type without second phase

Ferromagnetism of $(\text{Ga}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Sb}$ and $(\text{In}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Sb}$

p-type GaFeSb



n-type InFeSb

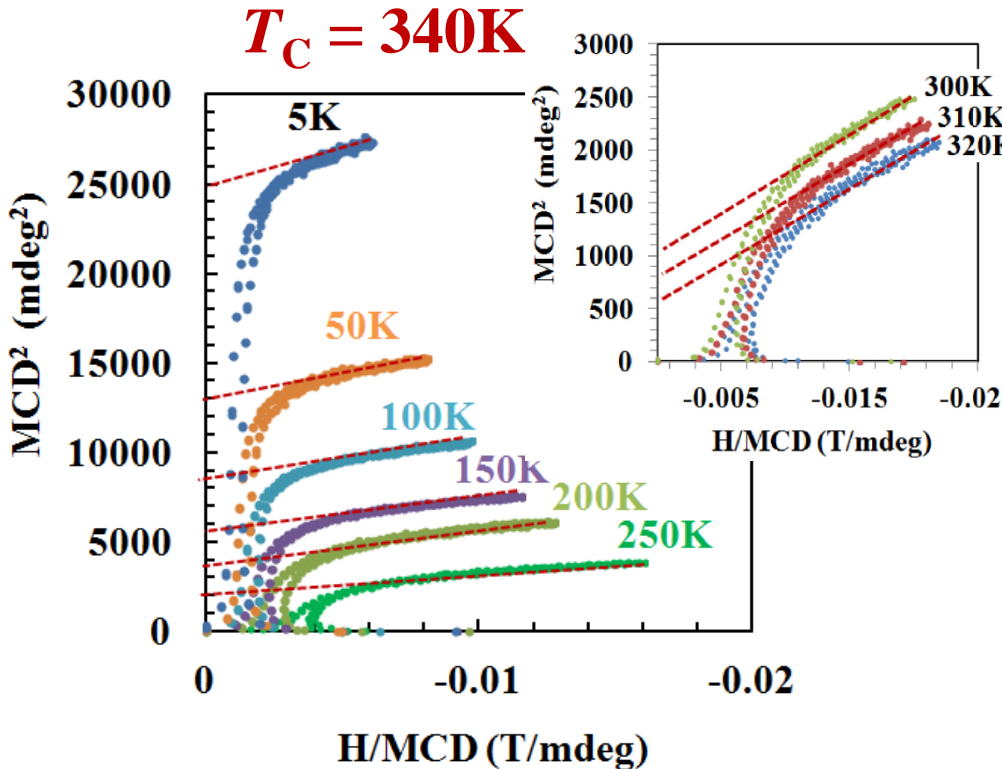


- ◆ MCD vs. magnetic-field (MCD – H) curves (shown here), and SQUID and AHE characteristics show clear ferromagnetic hysteresis, indicating ferromagnetic order.
- ◆ Hysteresis is observed even at 300 K, indicating that T_C is higher than room temperature.

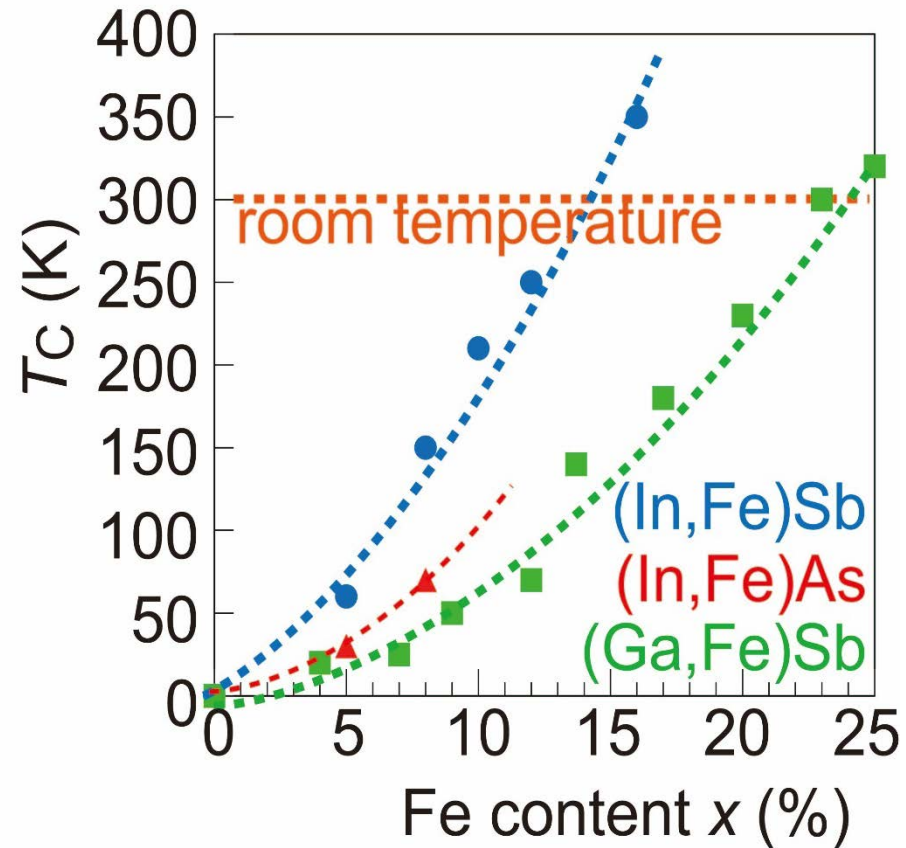
Fe content dependence of ferromagnetism

Curie temperature T_C
estimated by Arrott plot

Ex: $\text{Ga}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Sb}$ ($x = 25\%$)



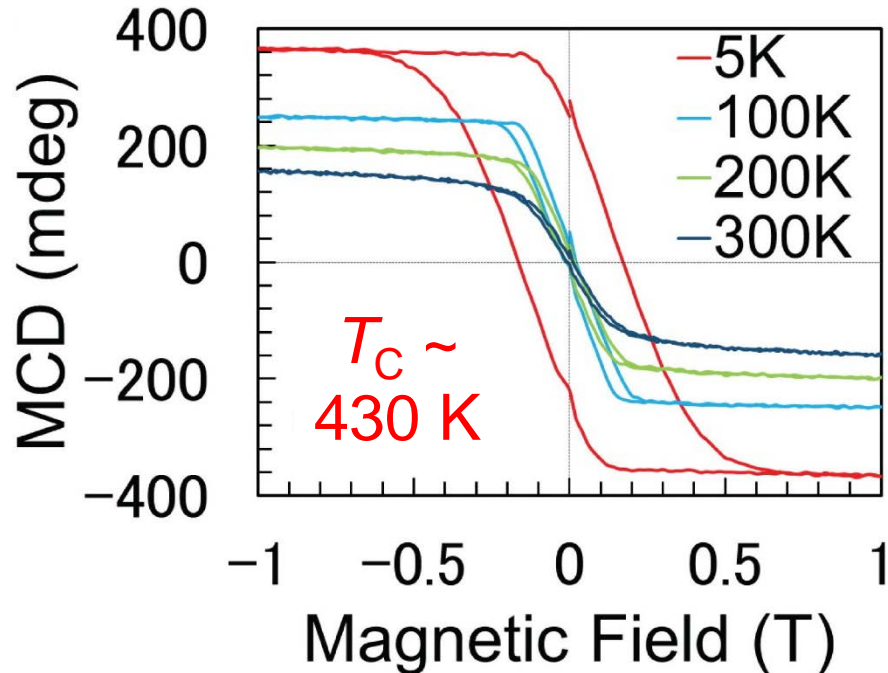
T_C vs. %Fe



T_C values of GaFeSb (340 K) and InFeSb (~340 K) are the highest among those of III-V FMSs.

High T_C ferromagnetism in p-(Ga,Fe)Sb and n-(In,Fe)Sb

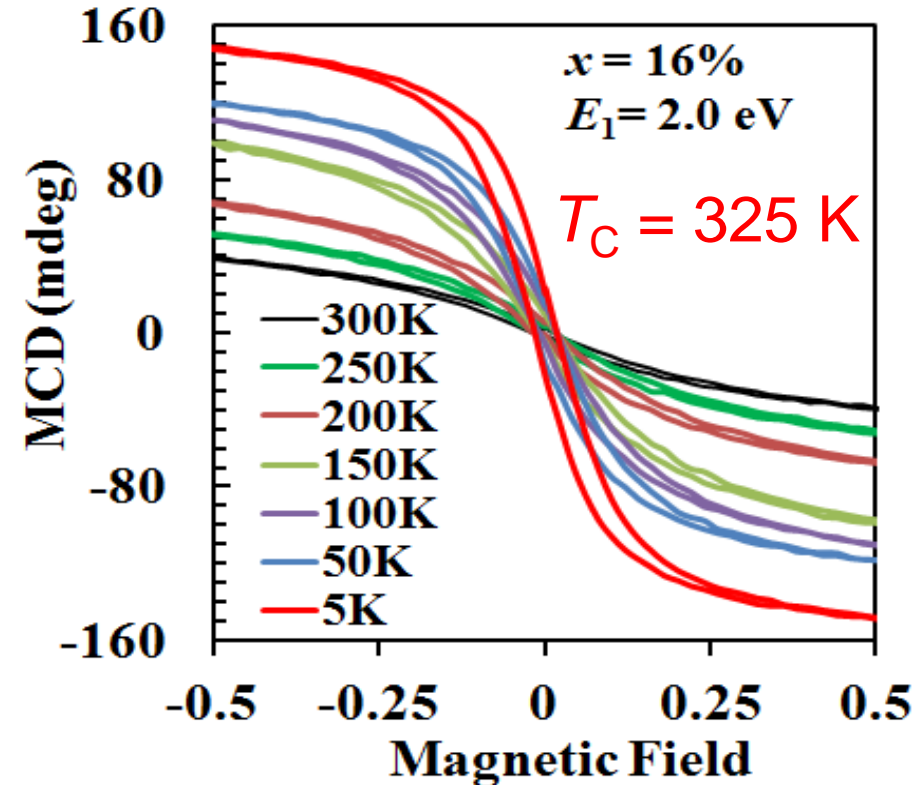
p-type (Ga,Fe)Sb 30% Fe



High T_C (> 400 K) and perpendicular MA by increasing:

- Fe density ($> 20\%$)
- Thickness (> 20 nm)

n-type (In,Fe)Sb 16% Fe



$T_C = 390$ K when heavily Fe doped ($\sim 35\%$ Fe)

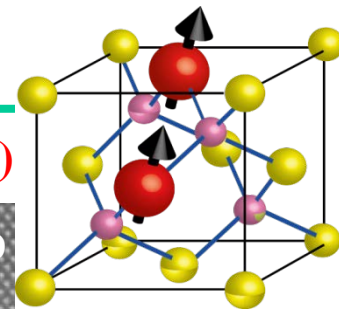
S. Goel et al., Phys. Rev. B **99**, 014431 (2019).

S. Goel et al., Phys. Rev. Mater. **3**, 084417 (2019).

N. T. Tu et al., APEX **11**, 063005 (2018).

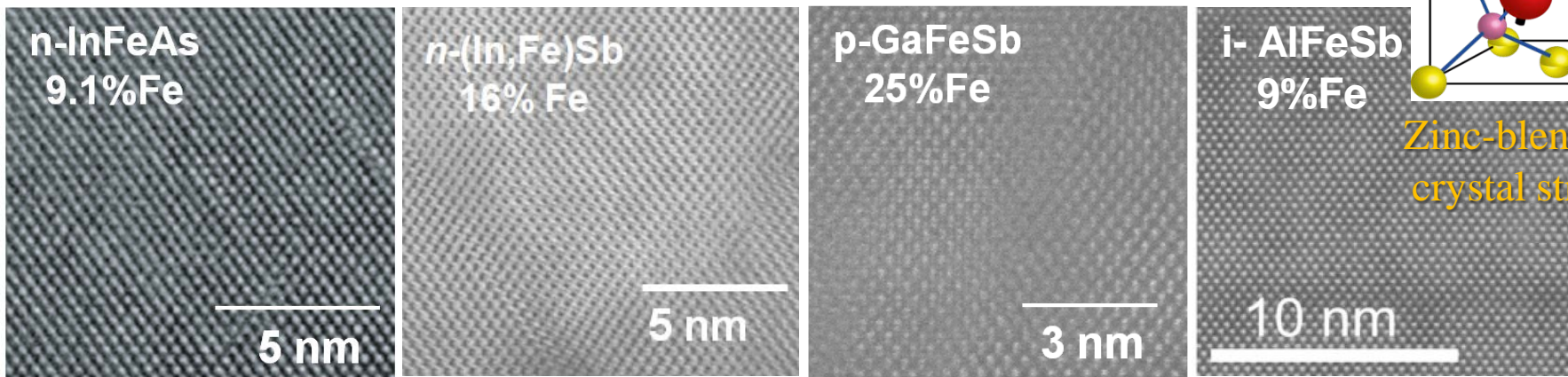
N. T. Tu, et al., APEX **12**, 103004 (2019).

n型とp型の両方で室温強磁性半導体を実現



Zinc-blende type crystal structure

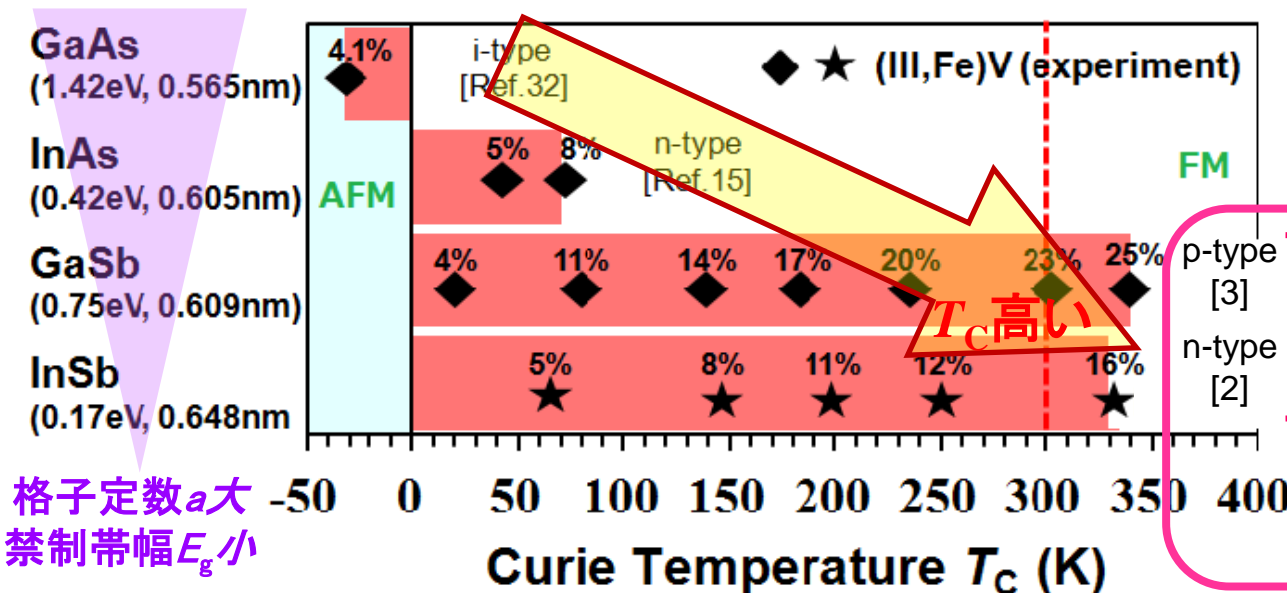
p型とn型両方の強磁性半導体を実現 (Fe + InAs, GaSb, InSb, AlSb)



[1] Appl. Phys. Lett. **101**, [2] Appl. Phys. Express **11**, [3] Appl. Phys. Lett. **108**, [4] Appl. Phys. Lett **107**,
182403 (2012). 063005 (2018). 192401 (2016). 232405 (2015).

高いキュリー温度 (T_C)

Fe添加強磁性半導体の禁制帯幅 E_g と T_C の関係



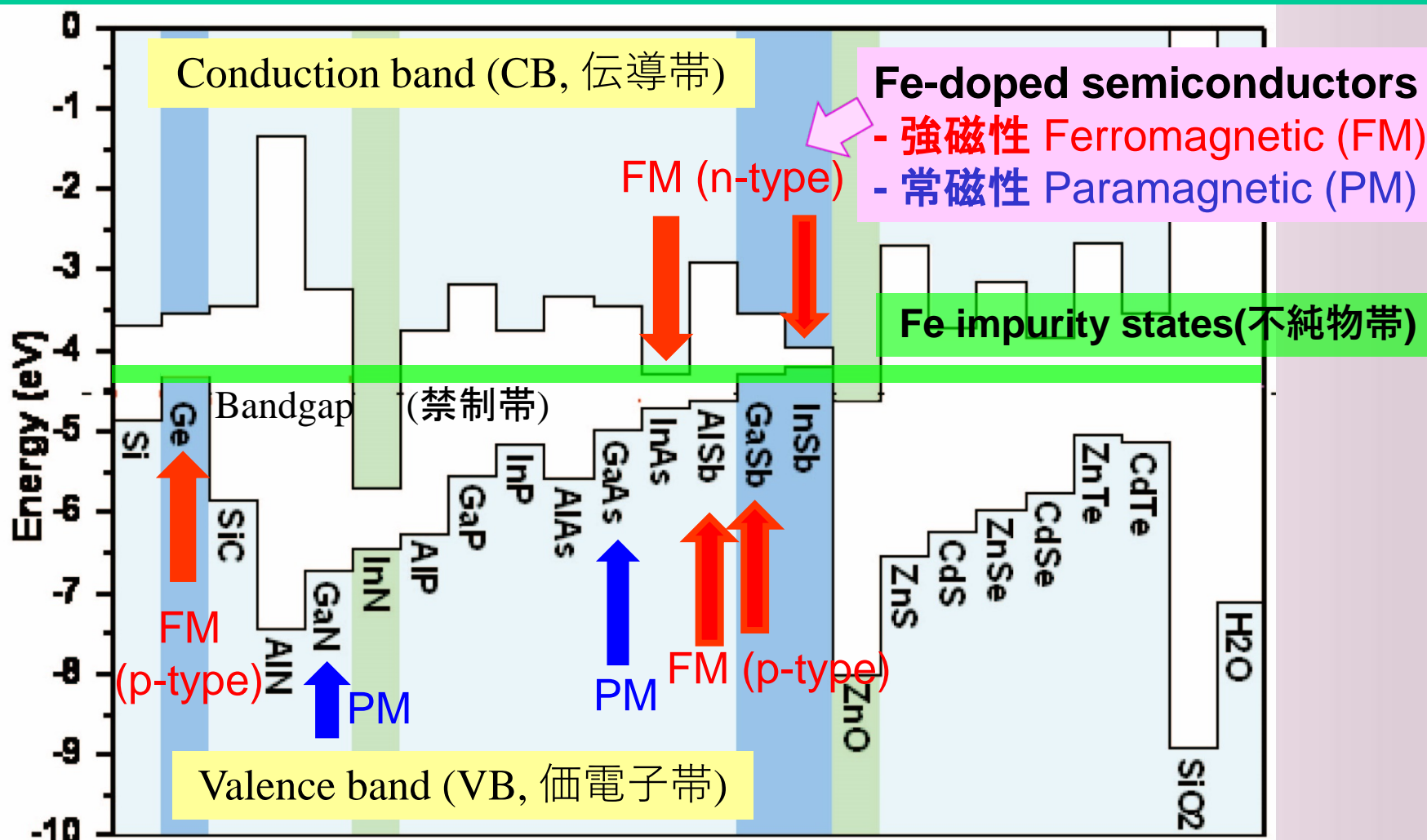
Appl. Phys. Exp. **11**, 063005 (2018).

[5] S. Haneda et al, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, L9 (2000).

室温強磁性半導体

p型 (Ga,Fe)Sb: $T_C = 340$ K
 n型 (In,Fe)Sb: $T_C = 335$ K
 n型 (In,Fe)As: $T_C = 305$ K (オフ基板)

Chemical Trend of Ferromagnetism and Bandstructure



E. Malguth et al., Phys. Status Sol. 245, 455 (2008).

Fe related IB is extrapolated using the "vacuum pinning rule"

Fe不純物帯とCB, VBのエネルギー位置の関係が磁性と伝導を決める

Fe不純物準位(不純物帯)がバンド端 E_c or E_v に一致する(近い)場合に強磁性が発現する → $s, p-d$ 共鳴バンド構造

M. Tanaka, JJAP (2021) invited review. 18

強磁性半導体の問題点を解決しつつあり

Fe-doped III-V narrow-gap semiconductors (InAs, GaSb, InSb)

- N型とP型の両方のキャリアタイプの強磁性半導体を作製することができるか？ (エレクトロニクスに整合性の良いIII-V族ではN型がなかった)

Yes, we can!

- 強磁性半導体の物性、磁性を電気的手段で制御することができるか？ (低消費電力かつ高速で制御する必要がある)

Yes, we can!

- 高いキュリー温度 T_C ($> 300\text{K}$)をもつ強磁性半導体を作製できるか？

Yes, we can!

- バンド構造、物性、強磁性の機構を理解し、制御することができるか？
→ ヘテロ構造、量子ナノ構造、機能材料とデバイスの設計と作製

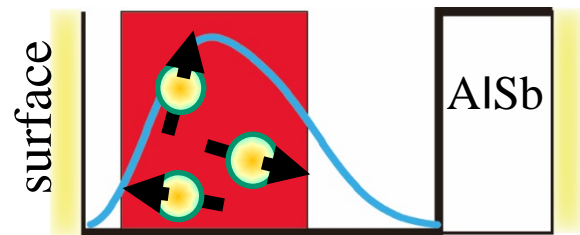
in progress

- (In,Fe)As-based spin-Esaki diode [Featured Article in APL (2018)].
- Proximity-Induced spin-triplet superconductivity in n -(In,Fe)As [PRL (2019)].
- Gate-controlled MR in n -InAs/ p -GaFeSb [Nat. Phys. (2019); Nat. Comm.(2022)].
- FMR and magnetic anisotropy control of (Ga,Fe)Sb at 300 K [PRB (2019)].
- SOT magnetization switching [Nat. Commun. (2019), Nat. Electron. (2020)].
- FeAs/InAs superlattices, giant MR, gate control [Nat. Commun. (2021)].
- Topological Dirac semimetal α -Sn/InSb [Adv. Mater. (2021)].

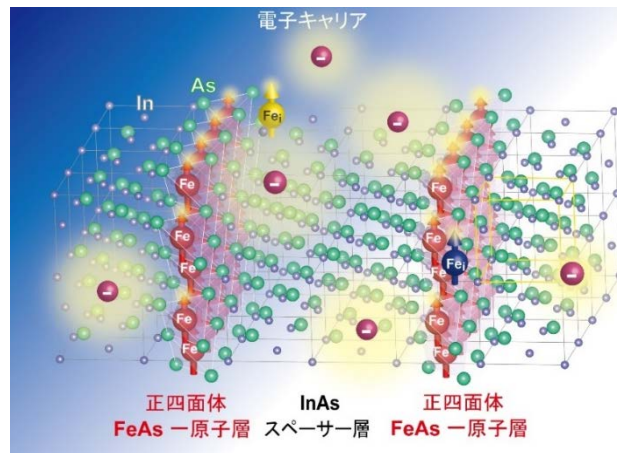
量子ヘテロ構造によるスピンバンドエンジニアリングと波動関数工学

Fe変調ドープ量子井戸
InAs / (InFe)As / InAs

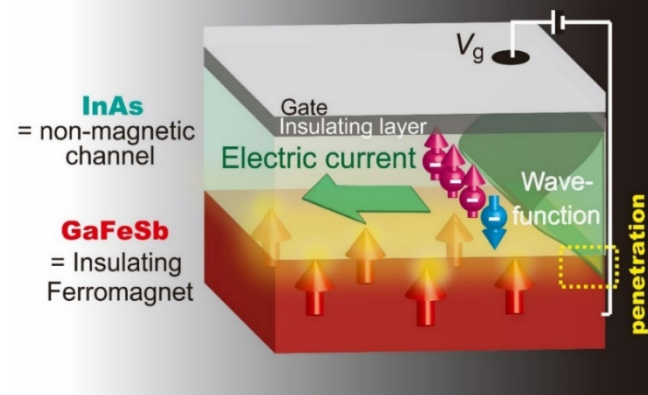
$$T_C \propto \sum_{\text{occupied } i \text{ FMS}} \int |\varphi_i(z)|^4 dz$$



InAs中にFe 2D添加
FeAs / InAs超格子



磁気近接構造
InAs / (Ga,Fe)Sb



Phys. Rev. B **92**, 161201(R) (2015). Nature Comm. **12**, 4201 (2021).
Adv. Mater 2023, 2301347 (2023).

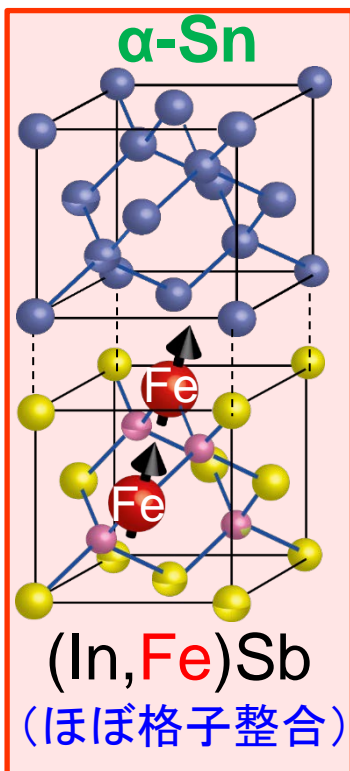
Nature Phys. **15**, 1134 (2019).
Nature Commun. **13**, 6538 (2022).

- 超低消費電力の磁性変調
- 超高速磁化制御(~600fs)
- Fe100%まで超高密度添加可能
- 巨大磁気抵抗効果 (MR比500%)
- ゲート電界で制御可能
- 波動関数制御による磁気近接効果 (magnetic proximity effect)
- 新しい巨大近接磁気抵抗

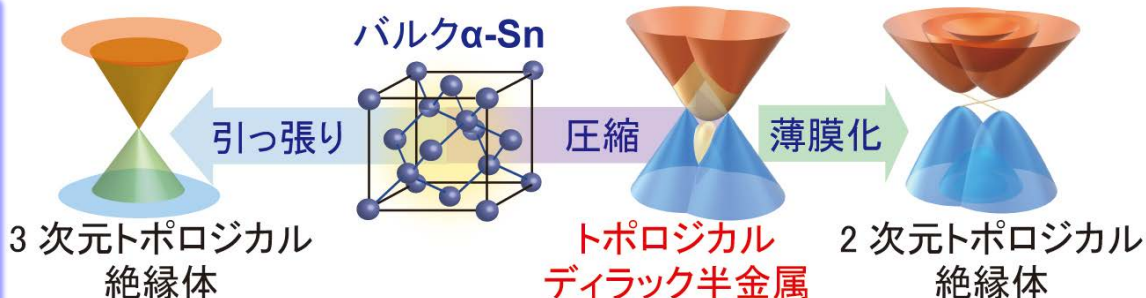
- ✓ 電子キャリアのコヒーレンス性を保持、強磁性状態を発現
- ✓ 外場 (ゲート電界) で波動関数と磁性を制御
- ✓ 磁性を電界で高速に制御する新たな手段
- 半導体スピントロニクス・デバイスの可能性

α -Sn: 豊かなトポロジカル相図を持つ単元素材料

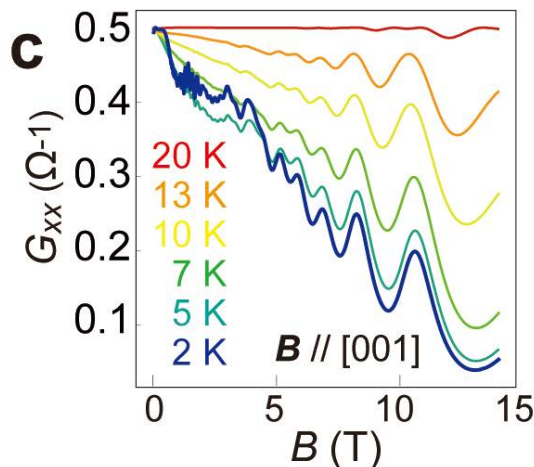
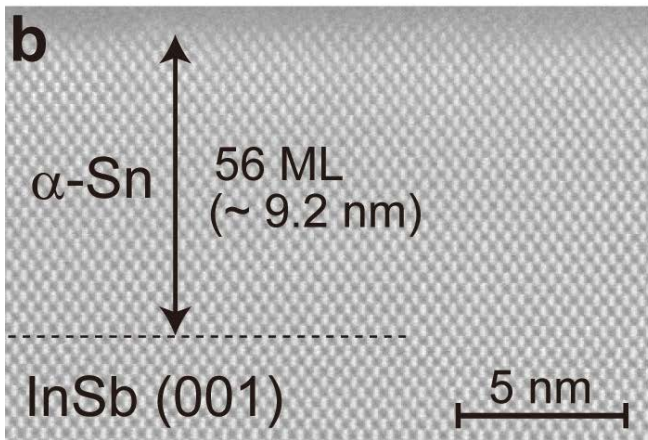
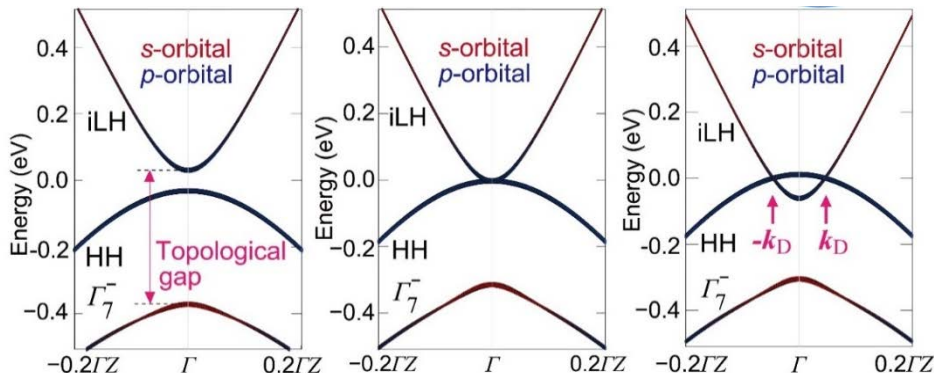
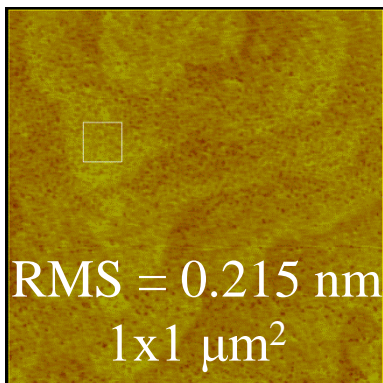
L. D. Anh, K. Takase, T. Chiba, Y. Kota, K. Takiguchi, M. Tanaka, Adv. Mater. **33**, 2104645 (2021).



- 単元素材料
- ダイヤモンド型結晶構造
- III-V半導体との高い整合性



トポロジカル絶縁体 ← bulk α -Sn → トポロジカルDirac半金属



明瞭なShubnikov - de Haas振動を観測。先行研究より移動度が10倍高い

世界最高品質のトポロジカルDirac半金属 α -Snの作製に成功した

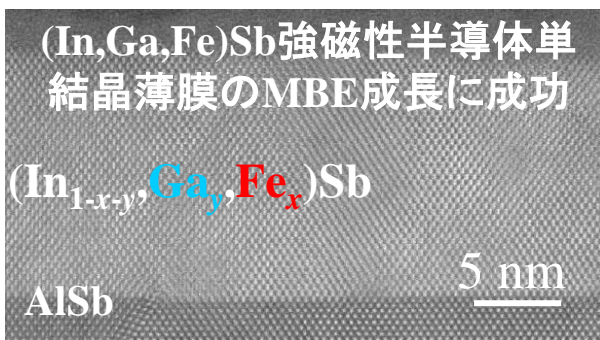
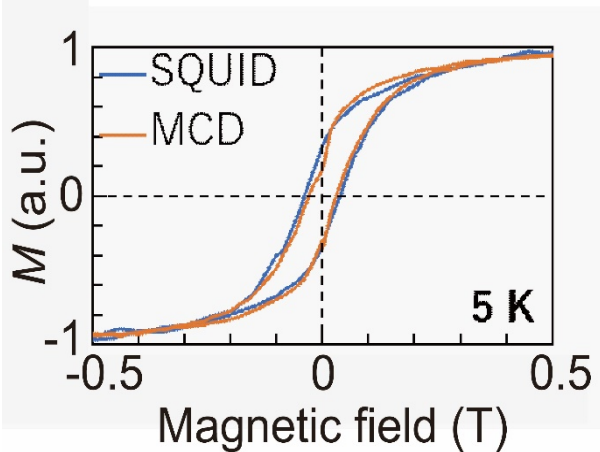
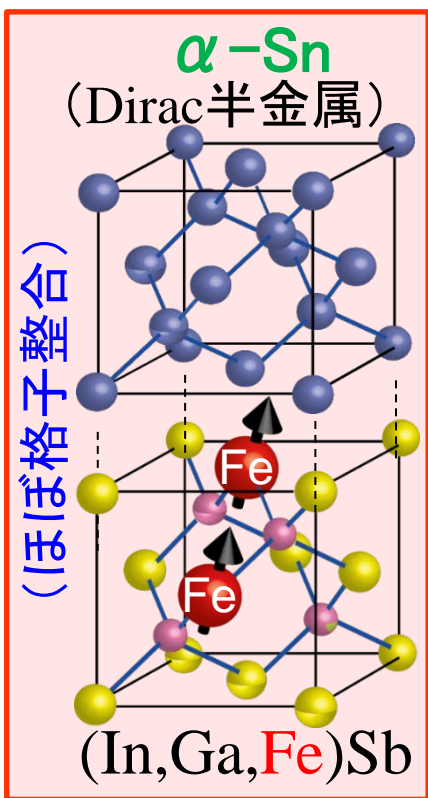
トポロジカル半金属 α Sn – 超伝導 β Sn / 強磁性半導体

L. D. Anh, K. Ishihara, ..., M. Tanaka, Nature Commun., in press.

α -Sn/FMSへテロ接合の物性とデバイス

α -Snの超伝導物性と量子デバイス

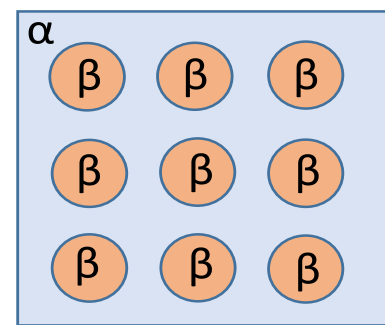
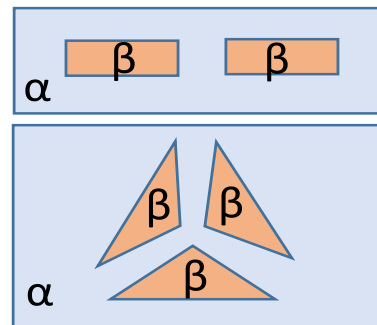
α -Snと β -Snの接合系



170°C (薄膜) →

α -Sn (半金属 ダイヤモンド構造)

β -Sn (金属, 正方晶構造 超伝導 (3.7 K))



- 調整可能な圧縮歪み
- 面直磁化による時間反転対称性破れ

- 量子異常ホール効果、量子スピンホール効果
- カイラルアノマリー
- 非相反伝導

α -Sn(トポロジカル)薄膜面内に β -Sn(超伝導)のパターンをFIBやレーザー描画で自由自在に作製可能 → 量子回路

強磁性半導体の問題点を解決しつつあり

Fe-doped III-V narrow-gap semiconductors (InAs, GaSb, InSb)

- N型とP型の両方のキャリアタイプの強磁性半導体を作製することができるか？ (エレクトロニクスに整合性の良いIII-V族ではN型がなかった)

Yes, we can!

- 強磁性半導体の物性、磁性を電気的手段で制御することができるか？ (低消費電力かつ高速で制御する必要がある)

Yes, we can!

- 高いキュリー温度 T_C ($> 300\text{K}$)をもつ強磁性半導体を作製できるか？

Yes, we can!

- バンド構造、物性、強磁性の機構を理解し、制御することができるか？

→ ヘテロ構造、量子ナノ構造、機能材料とデバイスの設計と作製

in progress

→ applications to various fields

- (In,Fe)As-based spin-Esaki diode [Featured Article in APL (2018)].
- Proximity-Induced spin-triplet superconductivity in n -(In,Fe)As [PRL (2019)].
- Gate-controlled MR in n -InAs/ p -GaFeSb [Nat. Phys. (2019); Nat. Comm.(2022)].
- FMR and magnetic anisotropy control of (Ga,Fe)Sb at 300 K [PRB (2019)].
- SOT magnetization switching [Nat. Commun. (2019), Nat. Electron. (2020)].
- FeAs/InAs superlattices, giant MR, gate control [Nat. Commun. (2021)].
- Topological Dirac semimetal α -Sn/InSb [Adv. Mater. (2021)].

スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク拠点 (Spin-RNJ)

国内の主要研究機関（大学、国研、企業）で活動し、世界をリードする研究者の力を結集してネットワークを構築、世界の研究機関とも連携し、イノベーションを通じて社会へ貢献する

日本学術会議マスタープラン2014, 2017, 2020重点大型研究計画, 「未来の学術振興構想」(2023)、文部科学省「学術研究の大型プロジェクト」ロードマップ2014、2020、2023に採択

欧州

米北
国米

スピントロニクス学術連携研究教育センター

中核拠点大学(東京大学、東北大学、大阪大学、慶應大学、京都大学)に設立: 全国の大学、国研、企業の研究者が利用 本部: 東京大学

東北大金研(国際共共拠点)

東北大学

JAEA

筑波大学

産業技術総合研究所

物質・材料研究機構

東京大学

東京工業大学

東京農工大学

慶應義塾大学

早稲田大学

理化学研究所

南米

NTT, 東芝
日立, NEC
ソニー
パナソニック
TDK, など
企業も参加

北海道大学

京都大学
大阪大学

九州大学

広島大学

名古屋大学

アジア・太平洋

- 世界をリードする研究グループ間の連携とネットワーク型学術研究基盤を構築 → 先導的イノベーションの創出
- 物理学、電子工学、磁気工学、材料科学、化学、情報科学など異分野を横断する新しい科学技術の創造と展開
- 新産業の創造、現産業の強化と活性化、省エネルギー・環境調和型社会の構築
- 次世代を担う創造性ある研究者・技術者を育成