

令和元年6月24日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H06089

研究課題名(和文)半導体表面・界面におけるスピン輸送エンジニアリング

研究課題名(英文) Spin transport engineering in surface and interface states of semiconductors

研究代表者

安藤 裕一郎 (Ando, Yuichiro)

京都大学・工学研究科・特定准教授

研究者番号：50618361

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では(A)シリコン・ゲルマニウム反転層、(B)ガリウムヒ素・インジウムヒ素系二次元電子ガス、(C)トポロジカル絶縁体表面および(D) LaAlO₃/SrTiO₃二次元電子ガスという4つの異なる特性を有する“表面・界面”を用いたスピン流輸送特性を解明し、その包括的理解を行った。トポロジカル絶縁体では銅をチャンネルとしたスピバルブ素子を作製し、非常に高効率なスピン流電流変換現象を検出した。この変換効率はこれまで報告されている物質の中でもっとも高い変換効率を示した。またLaAlO₃/SrTiO₃二次元電子ガスでは新たに強磁性体接合の近接効果に由来する異方性磁気抵抗効果を検出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

LSIは構成素子の微細化により高性能化を果たしてきたが、現在、様々な要因から物理的限界に直面しつつある。そのような中、電子のスピンを活用するスピントロニクスが注目されている。これまでのスピントロニクスの研究はバルク材料を対象としてきた。しかし、デバイスの微細化に伴い表面・界面の寄与・影響が顕在化している。したがって、実用レベルの微細デバイスでは表面・界面を対象としたスピントロニクス技術が極めて重要になると考えられる。本研究ではこのような界面や表面をフィールドとしたスピントロニクス技術を確立することを目的とする。

研究成果の概要(英文)：Spin transport properties in the surface and interface states of (A) inversion layer of silicon and germanium (B) two dimensional electron gases in GaAs based HEMT structure, (C) topological insulators, and (D) LaAlO₃/SrTiO₃ two dimensional electron gases were investigated. As for the (C) surface states of the topological insulators, a clear reciprocal spin-charge interconversion was demonstrated in copper-based lateral spin valves with topological insulators. The Rashba length, an indicator of spin-charge conversion efficiency was estimated to be more than 10 nm which is the longest value reported so far. As for the (D) LaAlO₃/SrTiO₃ study, proximity induced anisotropic magnetoresistance effect was detected indicating ferromagnetism in LaAlO₃/SrTiO₃ two dimensional electron gases.

研究分野：半導体スピントロニクス

キーワード：半導体 スピントロニクス 界面 表面

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

電界効果トランジスタ（MOSFET）や高電子移動度トランジスタ（HEMT）は反転層や2次元電子ガス等、バルクとは異なる特性を有する領域、“界面・表面”をプラットフォームとしている。今後、界面・表面を活用するデバイスは増加の一途を辿ると予想される。その理由は、①微細デバイスでは比表面積が増大し、界面・表面の影響が顕在化する、②界面・表面は特異な物性を示す場合が多く、物性探索の可能性が無限である為である。

一方、Beyond CMOS 技術の1つとして、電子のスピン情報を利用する“スピントロニクス”がある。電子スピンは、①電子の内部自由度であり、2状態を取りうる、②電界や磁界により2状態間を遷移する、③強磁性体との間に相互作用がある。等の特徴がある。これらの性質により、スピン依存抵抗、スピン固有の演算処理、省電力動作等が実現できる。原理的には全ての電子デバイスにスピン機能を付加できるため、当該技術の汎用性は極めて高い。材料探索を基軸とした次世代 CMOS 技術とは異なるアプローチであり、且つ共存可能である点も大きな強みである。しかし、これまでは“バルク半導体”を対象とした研究が大半を占めていた。界面・表面への展開が必須であると言える。

2. 研究の目的

本研究で対象とする界面・表面は(A)シリコン(Si)・ゲルマニウム(Ge)の反転層、(B)ガリウムヒ素(GaAs)・インジウムヒ素(InAs)系2次元電子ガス(2DEG)、(C)トポロジカル絶縁体(TI)の表面状態(名称は“絶縁体”だが厳密には半導体に属する。)の3つである。これらの材料の共通点は、界面・表面の特性がrobust(強固)であることである。未結合手等を起源とするショックレー状態等も代表的な半導体表面状態ではあるが、特性が不安定であり、工学応用には適していない。本研究では(A)~(C)の界面・表面状態への室温スピン注入・輸送・検出に関する要素技術を確立し、界面・表面におけるスピン輸送特性の解明、およびスピン操作の原理実証を行った。対象材料の選択理由を以下に纏める。

(A) Si, Ge 反転層 申請者はリン(P)をドーブ($10^{16}\sim 10^{19}\text{cm}^{-3}$)したバルクSi, Ge(膜厚100nm程度)を用いて室温スピン輸送の実証に成功している。しかし、スピントランジスタ等の実デバイスではゲートにより形成した反転層中をスピン輸送させるのが常套と言える。注意すべき点は、反転層中の電界分布やスピン軌道相互作用(SOI)の大きさはバルクSi, Geとは異なる点である。反転層中では面直電界に起因するRashba型のSOIが予想される。本研究では反転層中の室温スピン輸送技術を確立し、スピン寿命とゲート電界の関係および反転層中のSOIの強度を解明する。

(B) GaAs・InAs系2次元電子ガス GaAs・InAs系2DEGを用いたスピン輸送特性評価は複数の報告がある。しかし、それらは光を用いた低温実験が主流であり、電気的手法を用いた2DEGへスピン注入・検出や室温における挙動については検討されていない。GaAsやInAsの特長は結晶の反転対称性の破れに起因したDresselhaus型のSOIが存在することである。Dresselhaus型とRashba型のSOIが共存するため、特定の電界の下では両者の相殺が可能である。SOIがゼロの界面・表面のスピン輸送物性を評価でき、長距離・高速スピン輸送が期待できる。本研究で2DEGへの室温スピン注入検出技術を確立し、2種類のSOIがスピン輸送に与える影響について検討する。

(C) トポロジカル絶縁体(TI)表面状態 通常物質ではフェルミレベルを横切るバンドの数は $4n(0,1,2,\dots)$ となるが、TIは $4n+2$ となる物質群である。TIと通常物質(真空も含む)の接合界面には必ず表面金属層(以後、表面状態と表記)が形成され、特殊なバンド分散となる。TIの表面状態の特長としては、①有効質量ゼロのディラック電子系であり、電子の移動度が極めて高い。②スピンの向きと電子の運動方向に相関があり、特定の向きのスピンは特定方向のみに流れる(スピン運動量ロッキング, SML)等が挙げられる。SMLによりスピン偏極した電子は特定方向のみに輸送される。また電流印加方向に依存したスピン偏極を生成できる。スピンに対する“ダイオード”と見做すことができ、新奇スピン機能が期待できる。近年では新規TIの探索が活況を呈しており、例えばグラフェン構造をしたSi(シリセン)など、既存の半導体技術との親和性も高いTIも発見されている。即ち、本課題は基礎学理だけでなく工学応用の観点からも重要である。本研究では表面状態におけるスピン流輸送特性を解明し、新規スピン機能を室温で実現することを目標とする。

3. 研究の方法

(A) Si, Ge 反転層 スピン注入・検出電極を有するNチャネルMOSトランジスタを形成する。ゲート印加により反転層を形成し、反転層中のスピン輸送特性を評価する。予備実験としてバックゲートを用いてSi反転層を形成し、スピン注入・輸送実験を行った。しかし、注入されたスピンの多くは反転層を通らずスピン注入電極直下の n^+ -Si層(空乏層幅の抑制に使用)に残留し、消滅していることが判明した。本問題の解決策として、トップゲート機構による n^+ -Si層膜厚の低減、およびスピンドリフト効果(電界によってスピンの輸送方向が変調される効果。Si中で効果的に働くことは発表済)を用いた異方的スピン輸送を検討する。

(B) GaAs・InAs系2次元電子ガス GaAs系逆HEMT構造における2DEGにおいて、動力学的手法を用いた室温スピン輸送に成功している。そこで当該技術を応用し、ゲート印加時のスピン輸送特性を評価する。弱反局在磁気抵抗測定を用いてゲート印加時のSOI強度を評価し、スピン輸送特性との相関を検討する。

(C) トポロジカル絶縁体表面状態 TI(組成: $\text{Bi}_x\text{Sb}_{2-x}\text{Te}_y\text{Se}_{3-y}$)においてスピン運動量ロッキング(SML)に起因した磁気抵抗効果を電氣的に検出することに成功している。即ちTI表面における電流印加スピン偏極は実証済である。しかし、TI表面状態中のスピン流の輸送特性については未解明である。本研究ではスピン注入・検出電極を形成し、TI表面状態のスピン流輸送特性を解明および室温スピン輸送を目指す。

4. 研究成果

各項目について得られた結果を下記に示す。

(A) **Si スピンデバイス** ゲートを用いて反転層もしくは蓄積層を形成し、スピン輸送特性を変調する研究を行った。その結果、スピン信号の数値の変調に成功した。また、ゲートによるスピン信号の変調はスピンドリフト効果のゲート電界依存性とスピン抵抗ミスマッチのゲート電界依存性の重畳によって引き起こされていることを発見した。また、トップゲート構造でのチャネルの変調を実現するため、原子層堆積装置を導入し、 Al_2O_3 薄膜の作製条件を探索した。その結果、 100°C 以下の低温堆積で絶縁性の高いゲート絶縁膜を作製することに成功した。

(B) **GaAs 逆 HEMT 構造** 強磁性体 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ をスピン注入源とし、スピンポンピング法によるスピン輸送を行った。輸送されたスピン流は Pt 電極による逆スピンホール効果により、電圧信号として検出した。その結果、室温におけるスピン輸送信号の検出に成功した。またイオン液体を用いてゲートを印加し、スピン輸送信号の変調を試みた。電気伝導特性には明瞭な変調が確認できたが、スピン流輸送特性に大きな変化は見られなかった。原因としては、二次元電子ガスのキャリアが十分に変調されている訳ではなく、それ以外の部分のキャリアが誘起された可能性が示唆された。

(C) **トポロジカル絶縁体** 新しくビスマスアンチモン ($\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$) に着目し研究を行った。当該試料はアンチモンの組成により、半金属の非トポロジカル相から半導体トポロジカル相まで大きく変調出来る利点がある。これらの試料のスピン流-電流変換を調査したところ、アンチモン組成が高い方が変換効率が高いことが分かった。しかし、これはトポロジカル相との相関はなく、運動量緩和に支配されていることが示唆された。

また、単結晶トポロジカル絶縁体をスコッチテープ法を用いて薄片化し、熱酸化シリコン基板上に固定した。その後、トポロジカル絶縁体と銅ベースの金属スピンバルブを接合したデバイスを作製した。当該技術には光学顕微鏡を用いた 100nm 程度の位置精度での作製技術が必要であるが、独自の作製プロセスを確立し、高精度で作製することに成功した。測定では金属スピンバルブの強磁性体金属 (ニッケル鉄合金) から銅チャンネルに直流電流を流すことにより、銅チャンネル中にスピン蓄積を生成した。更に蓄積したスピンの一部をトポロジカル絶縁体に吸収させることにより、トポロジカル表面状態中のスピン寿命やスピン電流変換効率を正確に評価する手法を確立した。銅チャンネル中に残留するスピン蓄積の量はトポロジカル絶縁体を接合することにより著しく低下し、トポロジカル絶縁体中にスピンが注入されていることが明らかとなった (図1 参照)。またこの時にトポロジカル絶縁体中ではスピン流から電流への変換が実現していることも明らかとなった。更にスピン流から電流への変換および電流からスピン流への変換の効率は相反性が成り立つことも確認した。また、スピン流と電流の変換効率であるラッシュバエデルシュタイン長は 5K で 10nm 以上とこれまで報告されている物質の中で最長であることが判明した。

(D) 上記の (A) ~ (C) に加え、 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ の二次元電子ガスについてもスピン輸送特性の研究を行った。この二次元電子ガスは d 軌道電子で構成されているという特長を有する。この素子でも室温におけるスピン輸送に成功した。特筆すべき点はスピン寿命が室温で数ナノ秒であり、スピン拡散長は室温で 300nm 程度と極めて長いことである。一方、d 軌道電子が存在している二次元電子層は、わずかな特性変調により強磁性体化する可能性がある。もしそのようなことが可能であれば、二次元電子層内部に強磁性層と非磁性層を作り分けることができ、人工的な接合のないスピンデバイスを形成できる可能性がある。そこで強磁性体を蒸着することによる近接効果強磁性体の実現およびスピン輸送起因の磁気抵抗効果の実現を目指し研究を実施した。実際に強磁性体を堆積した $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 二次元電子層の磁気抵抗効果を測定したところ、平行・反平行磁化配置の切り替えに伴う抵抗変化は観測されなかったが、異方性磁気抵抗効果に起因すると考えられる三角形の磁気抵抗効果信号が観測された (図2 参照)。接合した強磁性体自体の異方性磁気抵抗効果で期待される信号は数桁小さく、更に極性が反対である。従って、 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面が強磁性体化し、その近接効果により発現した異方性磁気抵抗効果の可能性が高いことが判明した。

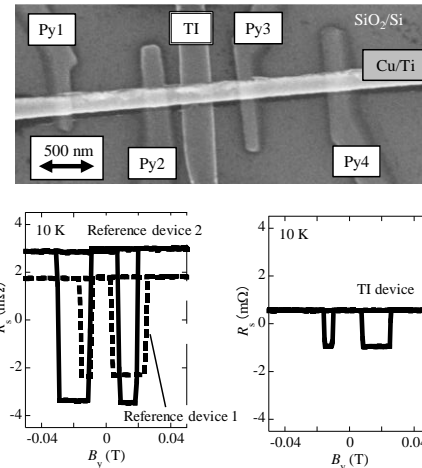


図1. 作製した銅ベーストポロジカル絶縁体デバイスとスピン吸収実験の結果。

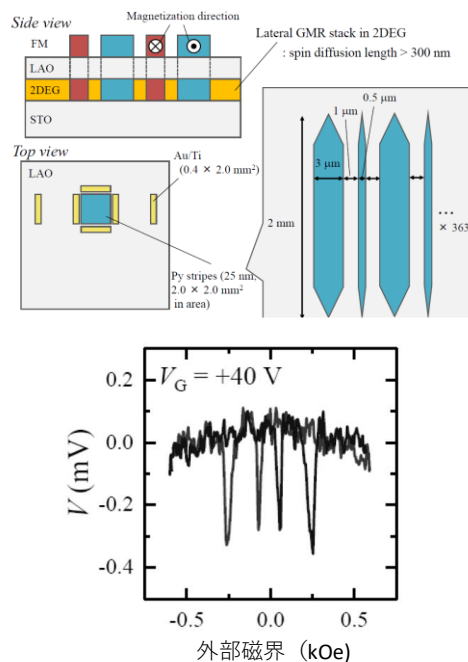


図2. 作製したデバイスと磁気抵抗測定の結果。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 13 件)

- (1) S. Dushenko, H. Ago, K. Kawahara, T. Tsuda, S. Kuwabata, T. Takenobu, T. Shinjo, Y. Ando, and M. Shiraishi, “Gate-tunable spin-charge conversion and a role of spin-orbit interaction in graphene”, *Physical Review Letters* **116**, 166102 (2016)
- (2) Hiroyuki Emoto, Yuichiro Ando, Gaku Eguchi, Ryo Ohshima, Eiji Shikoh, Yuki Fuseya, Teruya Shinjo, Masashi Shiraishi, “Transport and spin conversion of multi-carriers in semi-metal Bismuth”, *Physical Review B* **93**, 174428 (2016).
- (3) Takayuki Tahara, Yuichiro Ando(共同筆頭), Makoto Kameno, Hayato Koike, Kazuhito Tanaka, Shinji Miwa, Yoshishige Suzuki, Tomoyuki Sasaki, Tohru Oikawa, Masashi Shiraishi, “Observation of large spin accumulation voltages in non-degenerate Si spin devices due to spin drift effect : Experiments and theory”, *Physical Review B* **93**, 214406 (2016).
- (4) Y Fan Yang, Subhamoy Ghatak, A. A. Taskin, Kouji Segawa, Yuichiro Ando, Masashi Shiraishi, Yasushi Kanai, Kazuhiko Matsumoto, Achim Rosch, and Yoichi Ando
“Switching of Charge-Current-Induced Spin Polarization in the Topological Insulator BiSbTeSe₂”
Physical Review B **94**, 075304 (2016)
- (5) Yuichiro Ando and Masashi Shiraishi, “Spin to Charge Interconversion Phenomena in the Interface and Surface States”, *Journal of the Physical Society of Japan* **86** (1), 011001(2017)
- (6) Ryo Ohshima, Yuichiro Ando, Kosuke Matsuzaki, Tomofumi Susaki, Mathias Weiler, Stefan Klingler, Hans Huebl, Eiji Shikoh, Teruya Shinjo, Sebastian T. B. Goennenwein, and Masashi Shiraishi, “Strong evidence for d-electron spin transport at room temperature at a LaAlO₃/SrTiO₃ interface”, *Nature Materials* **16**, 609(2017).
- (7) Masasyuki Matsushima, Yuichiro Ando, Sergey Dushenko, Ryo Ohshima, Ryohei Kumamoto, Teruya Shinjo and Masashi Shiraishi, “Quantitative investigation of the inverse Rashba-Edelstein effect in Bi/Ag and Ag/Bi on YIG”, *Applied Physics Letters* **110**, 072402(2017).
- (8) Soobeom Lee, Naoto Yamashita, Yuichiro Ando, Shinji Miwa, Yoshishige Suzuki, Hayato Koike, and Masashi Shiraishi, “Investigation of spin scattering mechanism in silicon channels of Fe/MgO/Si lateral spin valves”, *Applied Physics Letters* **110**, 192401(2017).
- (9) Naoto Yamashita, Yuichiro Ando, Hayato Koike, Shinji Miwa, Yoshishige Suzuki, and Masashi Shiraishi, “Thermally Generated Spin Signals in a Nondegenerate Silicon Spin Valve”, *Physical Review Applied* **9**, 054002(2018).
- (10) Ei Shigematsu, Yuichiro Ando, Sergey Dushenko, Teruya Shinjo, and Masashi Shiraishi, “Spin-wave-induced lateral temperature gradient in a YIG thin film/GGG system excited in an ESR cavity”, *Applied Physics Letters* **112**, 212401(2018). (Selected as Editor’s Pick)
- (11) S. Dushenko, M. Hokazono, K. Nakamura, Y. Ando, T. Shinjo and M. Shiraishi, “Tunable inverse spin Hall effect in nanometer-thick platinum films by ionic gating”, *Nature Communications* **9**, 3118(2018).
- (12) F. Rortais, S. Lee, R. Ohshima, S. Dushenko, Y. Ando and M. Shiraishi, “Spin-orbit coupling induced by bismuth doping in silicon thin films”, *Applied Physics Letters* **113**, 122408(2018).
- (13) S. Lee, F. Rortais, R. Ohshima, Y. Ando, S. Miwa, Y. Suzuki, H. Koike and M. Shiraishi, “Quantitative and systematic analysis of bias dependence of spin accumulation voltage in a nondegenerate Si-based spin valve”, *Physical Review B* **99**, 064408(2019).

[学会発表] (合計 59 件)

【 国際会議 】 (計 27 件)

1. S. Lee, F. Rortais, R. Ohshima, Y. Ando, S. Miwa, Y. Suzuki, H. Koike and M. Shiraishi, “Bias dependence of spin accumulation voltages in non-degenerate Si spin valves”, APS March Meeting (2019/3, Boston, USA)
3. Y. Ando and M. Shiraishi, [invited talk] “Spin-charge interconversion in topological surface states detected by copper-based lateral spin valves”, One-Day Symposium on Spintronic Properties of Graphene and Related 2D Materials (2018/11, Chiba, Japan)
5. S. Lee, F. Rortais, Y. Ando, S. Miwa, Y. Suzuki, H. Koike and M. Shiraishi, “Injection current dependence of spin signals in non-degenerate n-Si”, International Symposium on Photonics and Electronics Science and Engineering 2018 (2018/3, Kyoto, Japan)
6. Y. Ando, T. Tahara, Y. Suzuki, S. Miwa, H. Koike and M. Shiraishi, “Room temperature operation of silicon-based spin transistors” ICSI-10 (2017/5, Coventry, UK)
7. Y. Ando, S. Dushenko, E. Shigematsu, and M. Shiraishi [invited talk], “Spin to charge conversion in graphene and carbon nanotube mats”, SPIE (2017/8, San Diego, USA)
8. Y. Ando, M. Shiraishi [invited talk], “Room temperature operation of silicon based spin MOSFET with a large spin accumulation”, SPIE Nanoscience + Engineering(2016/8, San Diego, USA)

他 19 件

【 国内会議 】 (計 32 件)

1. Y. Ando and M. Shiraishi, “Spin-charge interconversion in topological surface states” 第42回 日本磁気学会 学術講演会 “Frontiers of spin-orbitronics”(2018/9 日本大学理工学部)
2. Y. Ando, R. Kumamoto, S. Dushenko, T. Shinjo, and M. Shiraishi “Spin-charge conversion in Bi_{1-x}Sb_x layer” 第64回応用物理学会春季学術講演会 (2017/3, 横浜)
3. 安藤裕一郎, 小池 勇人, 白石誠司 “シリコンスピントロニクス の現状と将来展望” シリサイド半導体研究会(2017/3, 横浜)

他 29 件

〔図書〕 (計 0 件) 該当なし

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 件)

- 名称：スピントロニクス素子、スピントランジスタ及び磁気抵抗メモリ
 発明者：ドゥシェンコ セルゲイ, 白石 誠司, 外園 将也, 安藤 裕一郎
 権利者：ドゥシェンコ セルゲイ, 白石 誠司, 外園 将也, 安藤 裕一郎
 番号：特願 2018-126805
 出願年：2018 年
 国内外の別： 国内
- 名称：高速磁化反転方法、高速磁化反転デバイス、及び磁気メモリ装置
 発明者：本多周太 安藤裕一郎
 権利者：本多周太 安藤裕一郎
 番号：特願 2018-126805
 出願年：2019 年
 国内外の別： 国内

○取得状況 (計 0 件) 該当なし

6. 研究組織

- (1) 研究分担者：該当なし
- (2) 研究協力者：該当なし

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。