

博士論文（要約）

Spin-dependent tunneling and related
phenomena in fully epitaxial ferromagnetic
metal/semiconductor hybrid heterostructures
(フルエピタキシャル強磁性金属/半導体ハイ
ブリッドヘテロ構造におけるスピン依存トンネ
ル伝導および関連現象)

鈴木 亮太

磁気トンネル接合素子は、磁気抵抗メモリや磁気センサなどのスピン機能素子に幅広く利用されており、世界中で精力的に研究がなされている。研究や産業で使用されているほとんどの磁気トンネル接合素子においては、電極にFeや、Feをベースとした合金が用いられ、トンネル障壁にはMgOが用いられている。しかし、これらの材料系は、現在のエレクトロニクスを支えている半導体技術との整合性を持たないため、磁気トンネル接合素子と半導体技術を整合させて新たな半導体デバイスを実現することは容易ではない。高品質の強磁性金属/半導体構造を実現できれば、スピンMOSFET等[1]の新しいスピントロニクス素子を実現できると期待される。さらに、半導体分野で活用されているバンドエンジニアリングの概念を、強磁性金属ベースの磁気トンネル接合素子に応用することにより、トンネル磁気抵抗効果を増大できる可能性がある。本論文では、高品質な結晶成長が可能な分子線エピタキシー装置を用いて、強磁性金属と半導体をハイブリッドさせたフルエピタキシャルの新たなスピン機能素子を実現する試みについて述べる。

Fe量子井戸層を有する二重障壁磁気トンネル接合素子においては、Fe量子井戸の量子サイズ効果によるトンネル磁気抵抗効果の増大が理論的に予測されている。しかし実験的には、このような構造においては、量子サイズ効果に起因した微分コンダクタンスの振動は観測されているものの、トンネル磁気抵抗効果の増大は観測されていない。その原因として、ほとんどの研究において、大きなフェルミ波数をもつ強磁性金属電極が用いられていることが挙げられる。そこからFe量子井戸層にキャリアが注入される際には、複数の量子化したバンドを介してトンネルが起こるため、トンネルキャリアのスピン偏極率が下がってしまうと考えられる。これを克服し、トンネル磁気抵抗効果の増大を観測するために、面内フェルミ波数の小さな半導体を電極に用いる方法が考案されている[2]。半導体電極からFe量子井戸層にキャリアを注入した場合、量子化した単一のバンドの底のみを介したトンネル伝導が可能となる。これにより、スピン偏極率の高いトンネル伝導が得られ、トンネル磁気抵抗効果の大きな上昇が見込める。そこで本論文では、Fe/MgO/Fe量子井戸/MgO/Ge:B/ p^+ -Ge(001)基板から構成される二重障壁磁気トンネル接合素子を用いて、トンネル磁気抵抗効果の増大を目指して研究を行った[3]。分子線エピタキシー法により上記素子を作製し、反射高速電子回折像および透過電子顕微鏡像により、すべての層がエピタキシャルに成長していることを確認した。トンネル磁気伝導測定を行ったところ、297 Kで137%、3.5 Kで237%の大きなトンネル磁気抵抗比が得られた。Ge電極からFe/MgO/Feにキャリアを注入することによってトンネル磁気抵抗効果を観測することに初めて成功した。素子の微分コンダクタンスのバイアス電圧依存性を測定したところ、明瞭な振動が観測された。また、Fe量子井戸の膜厚を変化させると、振動の位置が移動していく様子が確認された。これらの振動のピーク位置は、Phase accumulation modelによる計算結果との良い一致を示した。従って、これらの振動はFe量子井戸における量子サイズ効果に起因していると言える。このようにして、Fe量子井戸を有する共鳴トンネルダイオードにおいて、半導体電極をキャリア注入源として用いて量子サイズ効果を観測することに初めて成功した。以上のように、本研

究により、Ge 基板上に高品質な Fe/MgO/Fe を作製できることがわかった。また、強磁性金属層と半導体層間でのコヒーレントなキャリア伝導が可能であることも明らかとなった。

上記の研究においては、Fe 量子井戸における量子サイズ効果の観測には成功したものの、トンネル磁気抵抗効果の増大には至らなかった。MgO/Ge 間には 5% もの大きな格子不整合度がある。これがコヒーレントなキャリアの伝導を阻害していると考えられる。他のフルエピタキシャルな強磁性金属/半導体構造の候補を探索したところ、Fe/ γ -Al₂O₃/SrTiO₃ 構造が有望であることがわかった。この構造の格子不整合度は、Fe/ γ -Al₂O₃ 間で 2.5%、 γ -Al₂O₃/SrTiO₃ 間で 1.3% と比較的小さい。そのため、コヒーレントなキャリア伝導が期待できる。SrTiO₃ は Nb を添加することにより *n* 型になる酸化物半導体であり、巨大誘電率[4]、超伝導[5]、他の酸化物との界面での高移動度の二次元電子ガス[6, 7]、二次元正孔ガス[8, 9]などの様々な興味深い物性を有している。さらに、SrTiO₃ は Si 上にエピタキシャル成長が可能であることが知られており[10]、既存の半導体技術との整合性も良い。これらのことから、強磁性金属/SrTiO₃ 構造を用いることにより、半導体スピントロニクス素子に、新たな機能性を付与できると期待される。しかし、フルエピタキシャルの強磁性金属/SrTiO₃ 構造の研究はほとんど行われていない[11]。そこで本論文では、分子線エピタキシー法により、Fe (18 nm)/MgO (3 nm)/Fe (10.7 nm)/ γ -Al₂O₃ (1.6 nm)/Nb: SrTiO₃ (001) 基板からなる二重障壁磁気トンネル接合素子を作製し、トンネル磁気伝導特性を評価した[12]。反射高速電子回折像および透過電子顕微鏡像により、素子のすべての層がエピタキシャルに成長していることを確認した。素子の測定を行い、300 K で 219% もの大きなトンネル磁気抵抗比を得ることに成功した。これは典型的な Fe/MgO/Fe の値よりも大きい。SrTiO₃ 電極の面内フェルミ波数の小ささに起因した *k*-space filtering により、トンネル磁気抵抗比が増大した可能性があると考えられる[13]。実際にバンド計算を行ったところ、SrTiO₃ の面内フェルミ波数は *k*-space filtering の効果が見込めるほど十分に小さいことがわかった。これは Fe や Fe ベースの合金を電極に用いた磁気トンネル接合素子と SrTiO₃ との良い整合性を示す結果であると考えられる。

さらに、上記の素子と同様の構造を持つ、Fe (8.0 nm)/MgO (3 nm)/Fe (8.0 nm)/ γ -Al₂O₃ (2.2 nm)/Nb: SrTiO₃ (001) 基板からなる、二重障壁磁気トンネル接合素子において、バイアス電圧を大きくするにつれて、トンネル磁気抵抗比が上昇する特異な振る舞いを観測した。この振る舞いの原因を探るため、素子抵抗のバイアス電圧依存性を測定したところ、ゼロバイアス近傍に巨大なピークが存在することがわかった。素子抵抗のピークの非対称性から、ゼロバイアス近傍における素子全体の抵抗値は、非対称な構造を持つ下部の Fe/ γ -Al₂O₃/Nb: SrTiO₃ 層に支配されていると考えられる。それにより、Fe/MgO/Fe 層で生じるトンネル磁気抵抗効果がゼロバイアス近傍で非常に小さくなっていると考えられる。また、素子のコンダクタンスの温度依存性を測定したところ、素子抵抗の巨大なピークは γ -Al₂O₃ 層で生じたクーロンブロッケード効果に起因している可能性があることがわかった。Fe/MgO/Fe 層と Fe/ γ -Al₂O₃/Nb: SrTiO₃ 層の直列抵抗を仮定して計算を行ったところ、低バ

イアス電圧領域ではFe/MgO/Fe層の電圧降下がほとんど起こらず、その結果、非常に高いバイアス電圧領域においても、大きなトンネル磁気抵抗効果が観測されることがわかった。実験的には、3.5 Kで、バイアス電圧−4 Vにおいても、23%の大きなトンネル磁気抵抗比が得られた。この結果は、磁気トンネル接合素子にFe/ γ -Al₂O₃/Nb:SrTiO₃層を接続することにより、高バイアス領域においても高いトンネル磁気抵抗比が得られることを示している。

これらの結果から、フルエピタキシャル強磁性金属/半導体ハイブリッド構造を用いることにより、新たなスピン機能素子の実現可能であることが明らかになった。さらに、今後の強磁性金属/半導体構造を用いたスピン機能素子の研究においては、材料選択が極めて重要であることも明らかになった。

参考文献

- [1] S. Sugahara and M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **84**, 2307 (2004).
- [2] S. Ohya *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 167204 (2010).
- [3] R. Suzuki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 152402 (2018).
- [4] R. C. Neville *et al.*, J. Appl. Phys. **43**, 2124 (1972).
- [5] N. Reyren *et al.*, Science **317**, 1196 (2007).
- [6] G. Herranz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 216803 (2007).
- [7] Y. Z. Chen *et al.*, Nat. Commun. **4**, 1371 (2013).
- [8] H. Lee *et al.*, Nat. Mater. **17**, 231 (2018).
- [9] L. D. Anh *et al.*, Adv. Mater. **32**, 1906003 (2020).
- [10] R. A. McKee *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 3014 (1998).
- [11] T. Marukame *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 6012 (2005).
- [12] R. Suzuki *et al.*, AIP Adv. **10**, 085115 (2020).
- [13] G. Autès *et al.*, Phys. Rev Lett. **104**, 217202 (2010).