

研究課題別評価書

1. 研究課題名
半導体スピンバンドエンジニアリングとデバイス応用
2. 氏名
大矢 忍
3. 研究のねらい

強磁性半導体や強磁性ナノ微粒子が半導体に埋め込まれた材料系においては、半導体と磁性体の性質が融合することによって引き起こされるユニークかつ多彩な様々な現象が観測されている。本研究では、これらの材料系から成るナノヘテロ構造を作製し、スピン依存伝導と量子サイズ効果を応用することによって、これらの新しい材料系における強磁性秩序、バンド構造、量子効果に関する様々な知見を得ることにより、量子効果とスピン依存伝導を組み合わせた半導体スピンバンドエンジニアリングの基礎概念の構築と、デバイスの基礎動作の実現を目指した。

4. 研究成果

4. 1 高 Mn 組成(12.2~21.3%)を有する強磁性半導体 GaMnAs の作製と評価

強磁性半導体は、半導体をベースとしたスピントロニクスデバイスを実現する上で、有望な材料として期待されている。従来研究されてきた強磁性半導体材料の中でも、GaAs の一部の Ga 原子を Mn 原子で置換することによって得られる GaMnAs が、特に優れたユニークな特性を有しているため、最も良く研究されている。GaMnAs は低温分子線エピタキシー法を用いることによって作製することができる。GaMnAs の問題点は、そのキュリー温度が室温よりも低いという点にある。本研究では、まずこの問題に焦点を当てた。

Ga_{1-x}Mn_xAs においては、Mn 組成 x を増加させることにより、キュリー温度が増加することが理論的に予測されている。しかし、通常は、GaMnAs の Mn 濃度を 10% 以上まで増やすと六方晶の強磁性金属微粒子である MnAs が膜内に形成されてしまい、単一強磁性相を有する薄膜を作製することが困難であった。本研究では、成長温度を 150°C~190°C の低温まで下げ、さらに GaMnAs の膜厚を 10 nm まで薄くすることにより、12.2~21.3% の高い Mn 濃度を有する GaMnAs を作製することに成功した。図1に示す透過型電子顕微鏡写真より、六方晶 MnAs 微粒子の存在しない閃亜鉛鉱型 GaMnAs が良好に作製できていることが分かる。磁気円二色性、異常ホール効果、および磁化測定の結果、得られたキュリー温度の最高値は 172.5 K ($x=15.2%$) であった。(この時点で、2004 年にノッティンガム大(英国)で得られていたキュリー温度の最高値 173 K とほぼ並ぶ結果が得られた。)

磁化特性の解析の結果、キュリー温度が Ga 格子位置にドーパされた Mn 濃度にほぼ比例して増大していることが明らかになった。本研究で作製した高濃度 Mn を有する GaMnAs 薄膜においては、Ga 格子位置の Mn の濃度は約 7~8% 程度であり、ほとんどの Mn 原子が格子間に存在していることが分かった。従って、今後本材料系のキュリー温度を増大させるためには、格子位置 Mn 濃度を増大させることが重要な課題であると言える。

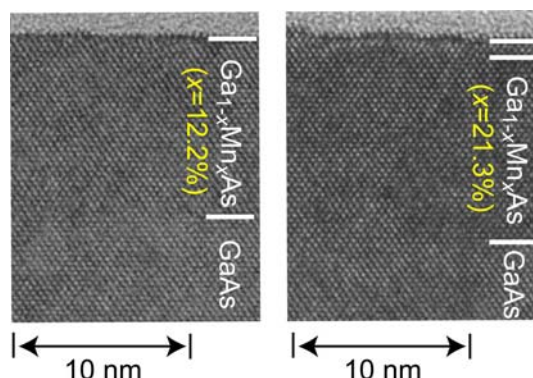


図1 作製した Ga_{1-x}Mn_xAs の断面透過型電子顕微鏡写真。

4. 2 強磁性半導体 GaMnAs 量子井戸を有する二重障壁ヘテロ構造におけるスピン依存伝導特性

強磁性半導体を量子井戸とするヘテロ構造においては、量子井戸に形成されるスピン分裂した共鳴準位を用いることにより量子井戸にスピンフィルター効果を持たせることができると期待されており、今までにそれを用いた様々なデバイスの提案がなされてきた。しかし、実際には、強磁性半導体量子井戸においては、スピン分裂した共鳴準位を反映したスピン依存共鳴トンネル効果は観測されていなかった。本研究では、強磁性半導体 GaMnAs 量子井戸を有する二重障壁ヘテロ構造を作製し、スピン依存共鳴トンネル効果とそれによるトンネル磁気抵抗効果(TMR)の増大現象を初めて観測することに成功した。

量子準位の解析により、観測された量子準位が GaMnAs の価電子帯構造を強く反映していることが分かった。量子準位の解析により、フェルミレベルの位置をバンドギャップ中に設定しなくては実験結果を説明できないことが明らかになった。この結果は、GaMnAs の強磁性発現のモデルとして広く受け入れられてきた価電子帯伝導モデルとは大きく異なっていることが分かった。(この点については後述) さらに、得られた共鳴準位の解析から、GaMnAs の価電子帯が、GaAs の価電子帯にわずかなスピン分裂を加えることで再現できることが分かった。このようにして、GaMnAs の価電子帯の状況を、実験的に明瞭に示すことができた。

強磁性半導体においては、不純物バンドが存在していることが以前より指摘されており、このような系においては、光学測定においても、それらのバンドに起因したブロードな光学スペクトルが得られるため、明瞭なバンド構造の情報を得ることは難しい。また、光電子分光によるバンド構造解明へのアプローチも、フェルミレベルのピンニングや、試料ごとの作製条件のわずかな違いによる大きな特性の変化などに起因して、困難を極めている。本研究では、このように共鳴準位を利用した容易な方法により、バンド構造を明瞭にできることが分かった。この結果は、本研究において得られた(ある意味意外な)大きな収穫であり、今後、強磁性半導体の強磁性発現のメカニズムの解明や、新しい強磁性半導体の探索において、非常に重要な役割を果たすものと期待される。

4. 3 常磁性 AlMnAs トンネル障壁を有する強磁性半導体 GaMnAs 磁気トンネル接合(MTJ)

今まで、GaMnAs を用いた単一障壁ヘテロ構造における TMR に関する様々な研究が行われてきた。これらの研究では、障壁材料として AlAs、GaAs、InGaAs や ZnSe などの通常の半導体が利用されてきた。本研究では、Mn を導入した AlMnAs トンネル障壁を利用して MTJ を作製した。障壁に Mn を導入することにより、トンネル障壁の複素バンドを制御してスピン依存伝導を制御できる可能性がある。このようにドーピングによってバンド構造を制御できるのは、半導体を用いることの大きな利点だと言える。AlMnAs は低温においても常磁性であり、絶縁的な振る舞いを示すことが知られている。

本研究では、AlMnAs をトンネル障壁として導入することにより、特に下部の GaMnAs 層が薄い場合に、下部 GaMnAs 層中の格子間欠陥が AlMnAs 層を通り抜けて上部に拡散することによって、下部 GaMnAs 層のキュリー温度の低下が抑制されることが分かった。AlMnAs の障壁高さは、トンネル抵抗の障壁膜厚依存性より、WKB 近似を用いて 110 meV と見積もられた。また、2.6 K で 175% の TMR が得られた。この値は、この温度領域で報告されている GaMnAs MTJ の TMR 比としては世界最高値である。このような大きな TMR は、AlMnAs の複素バンド構造を考慮することにより理解できることが分かった。

4. 4 強磁性半導体 GaMnAs 量子井戸二重障壁ヘテロ接合におけるスピン依存共鳴トンネル分光

上記のように、GaMnAs を量子井戸として用いた量子ヘテロ

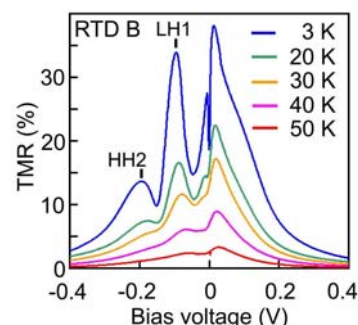


図2 GaMnAs 量子井戸を有する二重障壁構造で得られた TMR のバイアス依存性。量子サイズ効果による顕著な TMR の増大が観測された。

構造において形成される量子準位を解析することにより、GaMnAs の価電子帯構造を明らかにすることができることを、本研究では示した。しかし、上記の研究においては、GaMnAs 量子井戸のキュリー温度が 30 K 程度と低いことが問題であった。このように GaMnAs のキュリー温度が低い場合、GaMnAs はキュリー温度以下で絶縁的な振る舞いを示す。この特性は、金属的な伝導を示す一般的な GaMnAs の特性とは大きく異なっており、金属伝導を示すより高いキュリー温度を有する GaMnAs 量子井戸を用いた研究が不可欠となっていた。このようにキュリー温度が低減する理由は、GaMnAs 量子井戸が非磁性の障壁に挟まれており、Mn 格子間欠陥がこれらの障壁を抜けることができないためだと考えられる。

本研究では、上部トンネル障壁として AlGaAs(RTD A)または AlMnAs(RTD B)を有し、GaMnAs 量子井戸膜厚が 2.5 nm である二重障壁構造を作製した。量子井戸のキュリー温度は RTD A が 30 K、RTD B が 60 K である。両方の素子において、価電子帯の最も下の準位(正孔のエネルギーを基準とする)である HH1 が検出された。詳細な解析の結果、フェルミレベルがバンドギャップ内にあるとした筆者らの以前の結論を支持する結果が得られた。また、量子サイズ効果による顕著な TMR の増大を観測した(図2)。金属系も含めたすべての MTJ の研究において、量子サイズ効果による明瞭な TMR の増大が観測されたのは、初めてである。

4. 5 三端子 GaMnAs 量子井戸二重障壁構造における量子準位制御とスピン依存電流の変調

強磁性半導体量子ヘテロ構造を用いた三端子デバイスは、スピン依存トンネル電流を外部から制御できる可能性を持つため、スピントランジスタ等への応用が期待されている。本研究では、量子井戸に電極を有する三端子 GaMnAs 量子井戸二重障壁ヘテロ構造を作製した。上部電極を接地して、基板電圧 (V) と量子井戸電極の電圧 (V_{QW}) を変化させ、上部電極から流れ出る電流 (I) を測定した。図3に d^2I/dV^2 の V と V_{QW} に対するマッピングを示す。量子準位が V_{QW} によって制御されていることが分かる。また、 I における磁気電流比(平行磁化時の電流と反平行磁化時の電流の比)が、 V_{QW} により変調されていることが分かった。現時点では、本素子は増幅機能を有していないが、ヘテロ構造の設計によっては、増幅機能を持たせることも可能だと考えられる。本成果は、新たなスピントロニクスデバイスの実現の可能性を示すものであると言える。

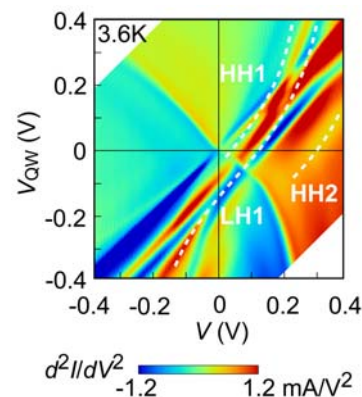


図3 三端子 GaMnAs 量子井戸二重障壁ヘテロ接合における d^2I/dV^2 マッピング。

5. 自己評価

半導体スピントロニクスにおいて非常に重要な材料と考えられている強磁性半導体 GaMnAs に関して、強磁性秩序とバンド構造の両側面から、その基礎物性に関する非常に重要な知見を得ることができた。これらの系における室温強磁性の実現は、GaMnAs の作製が報告されて以降、約10年以上にわたってこの分野の大きな問題となっている。本研究で用いた手法および得られた知見は、他の強磁性半導体材料系についても応用可能なものである。将来は、本研究で用いたスピン依存共鳴トンネル分光法を用いたバンド構造の解析と、バンド構造を考慮した系統的な強磁性発現機構の解明、そしてそれらの知見を生かした室温強磁性半導体の探索が行われていくものと思われる。そのような意味で、本研究で得られた結果は、大変重要な指針となると期待される。

強磁性微粒子が半導体に埋め込まれた系においても、大変興味深い様々な現象を得ることができた。特に、スピン起電力は、スピントロニクスデバイスの新しい方向性を示す結果である。今後は、いかにして室温動作するデバイスを実現できるかが重要な課題だと言える。

強磁性半導体のバンド構造は、様々な理論的な予測が行われてきたにも関わらず、解明されていなかった。本研究によりスピン依存共鳴トンネル分光が、このような目的において大変有益であることが実証された。特に、GaMnAs において、フェルミレベルがバンドギャップ中にあること、また価電子帯が Mn の導入に対して非常にロバストであるという事実は、従来強磁性半導体において

あまり予想されてこなかった新しい知見である。不純物バンドが系を支配しているという筆者にとっては予想外の結果により、これらの系のバンドをきちんとエンジニアリングすることは予想以上に難しいことが分かったが、この結果自体は、今後のこれらの系における研究の重要な指針になると期待される。

さきがけ研究の提案時に、量子井戸に電極を有する多端子スピン量子デバイスの提案を行ったが、実際に、低温動作ではあるものの、3端子のスピン量子効果デバイスの実現に成功した。強磁性半導体 GaMnAs の金属的な性質を利用し、量子効果とスピン依存伝導を外部電極の電位により制御できることを示すことができた。しかし、これと同時に新たな課題も浮き彫りになった。本研究では、提案通り、価電子帯を制御することに主眼が置かれたが、上記に述べたように、不純物バンドが重要な役割を持っているこの系においては、不純物バンドを制御する必要がある。そのためには、これらの系における不純物バンドの状況を正しく理解する必要がある。また、増幅機能を有するデバイスを実現する上で、スピン依存伝導と増幅機能を両立することも重要な課題である。増幅機能を実現するために、上部強磁性電極と強磁性量子井戸電極間にエネルギーが低く厚いトンネル障壁を設けると、それらの距離が離れるため、スピン依存伝導の効果は薄れていく。今後は、素子の設計によりこのような課題を克服していくことが重要である。

6. 研究総括の見解

強磁性半導体 GaMnAs の価電子帯の制御と多端子スピンデバイスの提案を実現するための研究を展開した。大矢氏はスピン依存共鳴トンネル分光法により、この物質のフェルミレベル近傍のバンド構造を探索し、バンドギャップ中の不純物バンド内にフェルミレベルが存在することを見出すなど、これまでの常識を覆す新たな基本物性を明らかにしてきた。当初提案の多端子スピン量子デバイスに関しても、低温で作動する3端子スピン量子デバイスを実現した。これらの材料系においては、価電子帯の制御だけでなく、不純物バンドを制御することも重要であることが分かり、将来に向けての新たな課題も提案でき、実り多い成果が得られた。

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. S. Ohya, K. Ohno, and M. Tanaka, "Magneto-optical and magnetotransport properties of heavily Mn-doped GaMnAs", Appl. Phys. Lett. **90**, 112503 (2007).
2. S. Ohya, P. N. Hai, Y. Mizuno, and M. Tanaka, "Quantum-size effect and tunneling magnetoresistance in ferromagnetic-semiconductor quantum heterostructures", Phys. Rev. B **75**, 155328 (2007).]
3. S. Ohya, I. Muneta, P. N. Hai, and M. Tanaka, "GaMnAs-based magnetic tunnel junctions with an AlMnAs barrier", Appl. Phys. Lett. **95**, 242503 (2009).
4. S. Ohya, I. Muneta, and M. Tanaka, "Quantum-level control in a III-V-based ferromagnetic-semiconductor heterostructure with a GaMnAs quantum well and double barriers", Appl. Phys. Lett. **96**, 052505 (2010).
5. S. Ohya, I. Muneta, P. N. Hai, and M. Tanaka, "Valence-Band Structure of Ferromagnetic-Semiconductor GaMnAs Studied by Spin-Dependent Resonant Tunneling Spectroscopy", submitted to Phys. Rev. Lett. in press

②著書

1. S. Ohya and M. Tanaka (Invited Review), "TMR in Semiconductors" Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials, Vol. 5 Spintronics and Magnetoelectronics edited by Helmut Kronmüller and Stuart Parkin, John Wiley & Sons Ltd. (Chichester, UK), 3064 pages, July 2007. Handbook of Magnetism and

③招待講演

- 1) 大矢 忍、ファム ナム ハイ、水野 洋輔、田中 雅明;平成19年秋季応用物理学会関連連合講演会 シンポジウム ナノスピントロニクスにおける量子効果と関連現象 6p-S-5, ” III-V族強磁性半導体ヘテロ構造におけるトンネル磁気抵抗効果と共鳴トンネル効果”, 北海道工業大学、2007年9月6日(招待講演)
- 2) 大矢 忍、ファム ナム ハイ、田中 雅明;日本磁気学会 第159回研究会・第20回スピントロニクス専門研究会, ”強磁性半導体量子ヘテロ構造におけるスピン依存共鳴とトンネル効果”, 化学会館、2008年3月3日(招待講演)
- 3) S. Ohya, “Spin-dependent Resonant Tunneling in III-V-based Ferromagnetic Semiconductor Quantum Heterostructures”, 2008 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2008), F-10-2, Tsukuba International Congress Center, Japan, Sep 26, 2008. (招待講演)
- 4) 大矢 忍、宗田伊理也、ファムナムハイ、高田健太、田中 雅明;2010年春季応用物理学会関連連合講演会 シンポジウム「スピントロニクスデバイスの新展開」 18p-ZJ-8, ” 強磁性半導体GaMnAsヘテロ構造におけるスピン依存伝導”, 東海大学、2010年3月18日(招待講演)

B. 本研究課題に関連した成果で主なもの

①著書

1. M. Tanaka, M. Yokoyama, P-N. Hai, and S. Ohya (Invited review paper), “Properties and functionalities of MnAs/III-V hybrid and composite structures”, in Spintronics, Semiconductors and Semimetals, Vol. 82, edited by T. Dietl, D. D. Awschalom, M. Kaminska, and H. Ohno (Academic Press, New York, November 2008). 500 pages, ISBN-13: 978-0-08-044956-2, ISBN-10: 0-08-044956-5.
2. Masaaki Tanaka and Shinobu Ohya, “Spintronic Devices Based on Semiconductors”, Comprehensive Semiconductor Science and Technology, MS40, Elsevier, to be published.
3. M. Tanaka, S. Ohya, Y. Shuto, S. Yada, and S. Sugahara, “III-V and Group-IV Based Ferromagnetic Semiconductors for Spintronics”, Comprehensive Nanoscience and Technology, MS137, Elsevier, to be published.