

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月4日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2008～2011

課題番号：20686002

研究課題名（和文） 次世代半導体量子ナノスピネレクトロニクスデバイスの創製

研究課題名（英文） Creation of the next-generation semiconductor-based nano-spin electronics devices

研究代表者

大矢 忍（OHYA SHINOBU）

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：20401143

研究成果の概要（和文）：

GaMnAs を中心とした強磁性半導体材料における価電子帯構造と量子デバイスに関して、様々な新たな知見を得た。GaMnAs 磁気トンネル接合において、2.6 Kにおいて175%という本材料系における本温度領域での最も大きなトンネル磁気抵抗効果を得た。GaMnAs 量子井戸に電極を有する3端子デバイスを作製し、量子準位と磁気電流比を制御することに成功した。スピン依存共鳴トンネル分光法を用いて GaMnAs の価電子帯構造を系統的に明らかにすることに世界で初めて成功した。

研究成果の概要（英文）：

This project has opened up new possibilities for ferromagnetic-semiconductor GaMnAs-based quantum devices, and has clarified the valence-band structure of GaMnAs and its related materials. We have achieved a high tunneling magnetoresistance (TMR) up to 175% at 2.6 K in the GaMnAs/AlMnAs/ GaMnAs magnetic tunnel junctions. This value is the highest value ever reported in the same temperature region in the GaMnAs-based magnetic tunnel junctions. We fabricated three-terminal GaMnAs quantum-well(QW) devices, and succeeded in controlling the quantum levels and the magneto current ratio by modulating the voltage of the QW electrode. By using the resonant tunneling spectroscopy, we have systematically clarified the valence band structure of GaMnAs for the first time.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
2009年度	9,700,000	2,910,000	12,610,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
総計	19,600,000	5,880,000	25,480,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目： 応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード： スピントロニクス、量子ヘテロ構造

1. 研究開始当初の背景

GaMnAs を代表とする強磁性半導体を用いたスピン依存伝導の研究が盛んに行われている。通常の強磁性金属と比較して、GaMnAs を用いたヘテロ構造は原子レベルでの極め

て急峻な界面を有するため、スピン依存共鳴トンネルダイオード等の量子ナノデバイスに応用できると期待されていた。実際に筆者らの研究により、2007年に GaMnAs 量子井戸二重障壁ヘテロ構造においてスピン依存共

鳴トンネル効果が初めて観測された。研究開始当初、GaMnAs などの一般的な強磁性半導体においては、大きな $p-d$ 交換相互作用が存在するという考え方が一般的に受け入れられていた。その考え方をもとに、強磁性半導体量子井戸中の量子準位の大きなスピン分裂を利用することができれば、トンネル磁気抵抗効果(TMR)を数百から数万%まで増大させたり、また様々な新しい機能を実現できたりする可能性が理論的に予測されていた。また、筆者は、今までの研究を土台として、共鳴トンネル効果を利用した、超高速の書き換え可能な不揮発性論理回路 Spin-MOBILE (Spin Monostable - Bistable transition Logic Element)の基礎動作を実証できるのではないかと考え、本研究を開始した。

2. 研究の目的

本研究では、強磁性半導体を用いて、これらの材料系におけるスピンの依存した共鳴トンネル現象の理解を深めると共に、この現象を利用した量子効果デバイスの基礎動作を実証することを最終目標とした。この目標を達成する上で、下記のような課題を中間目標とした。

- I. 単一障壁磁気トンネル接合における高い TMR の観測
- II. 強磁性半導体量子井戸を有するヘテロ構造におけるスピン依存共鳴トンネル効果による TMR の大きな増大
- III. 強磁性半導体量子井戸を有するヘテロ構造における負性微分抵抗特性の観測
- IV. 強磁性量子井戸を有するヘテロ構造の 3 端子化、量子準位の制御
- V. Spin-MOBILE の基本動作の実証
- VI. Spin-MOBILE における不揮発的論理演算出力書き換え動作の実証

3. 研究の方法

2に示したII~VIに関して、それぞれの具体的な研究方法は下記の通りである。

- I. GaMnAs 磁気トンネル接合中のトンネル障壁層において、下部 GaMnAs 層中の Mn 格子間欠陥の拡散が抑制されることが、TMR を低下させる要因として知られていた。筆者らは、新しく AlMnAs をトンネル障壁として利用することを考えた。これにより、下部 GaMnAs 層の Mn 格子間欠陥を表面に拡散させることが可能となり、下部 GaMnAs 層の磁気特性が改善され、TMR 比が増大するのではないかと考えた。
- II. AlMnAs を上部トンネル障壁層とする GaMnAs 量子井戸共鳴トンネルダイオード構造を作製し、GaMnAs 量子井戸のキュリー温度を上昇させることにより、

TMR の増大を試みた。

- III. 量子井戸膜厚を限界まで薄くし、成長温度を MnAs の析出温度以下の限界の温度まで上げることにより、Mn 格子間欠陥や As アンチサイト欠陥等を減らし、特性の改善を試みた。
- IV. 量子井戸に有効的に電界が印加される素子構造を設計し、3端子動作を試みた。
- V VIは①~④の知見を応用することにより実現することを考えた。

4. 研究成果

- I. AlMnAs を用いることにより、2.6 K において、その温度領域において GaMnAs 磁気トンネル接合で報告されている TMR 比としては最高値である 175%を得ることに成功した。AlMnAs を用いることにより、GaMnAs のキュリー温度は 30 K から 60 K に上昇した。[成果雑誌論文④参照]
- II III. GaMnAs 量子井戸を 2.5 nm まで薄膜化したり、上部障壁層として AlMnAs を用いたりすることにより、量子効果による TMR の増大が大きくなり、当時 20%程度であった TMR 比が 40%まで増大した。[成果雑誌論文②参照] しかし、GaMnAs 共鳴トンネルダイオードで期待されていたような数万%に及ぶような大きな TMR は得られなかった。この結果については、その後、後述するように、本研究を通して新たな本質的な原因が判明した。
- III. 負性微分抵抗までは及ばなかったが、 $dI/dV-V$ 曲線においても明瞭な振動が観測できるようになった。[成果雑誌論文②参照]
- IV. 外部電極の電位を制御することにより、量子準位を制御することに成功した。[成果雑誌論文③参照]

本研究では、合計約 800 試料程度を分子線エピタキシー法にて成長し、素子特性の改善を試みた。その結果、上記①~④に示したような様々な改善や新たな結果が得られた。しかし、スピン依存共鳴トンネル効果による TMR の増大自体は、理論的に予測されている値(数万%以上)よりもはるかに小さな値までしか改善されなかった。この結果の原因を根本から理解するため、筆者は、まず上記のような共鳴トンネル分光実験が価電子帯構造を解明する上で極めて有力な手法であることに着目し、広範囲の様々な Mn 濃度と様々なキュリー温度を有する GaMnAs/ AlAs/ GaAs:Be 単一障壁構造を作製し、垂直伝導特性の測定を行った。この構造においては、GaMnAs 中の正孔が AlAs と GaMnAs の表面で反射されて GaMnAs 層に閉じ込められるた

め、量子化する。量子準位のエネルギーは、正孔の有効質量やバンドオフセットなどのバンド情報を含んでいる。これらの値は、量子準位のGaMnAs膜厚依存性を調べることで、定量的にまたは半定量的に決定することができる。この共鳴トンネル分光の有用性については、筆者が本研究を通じて初めて気付いたものである。表面GaMnAs層で量子化が起こることも、筆者らが本研究を始めるまでは、知られていなかった。

従来はGaMnAsにおいては、フェルミ準位が価電子帯中に存在し、大きな $p-d$ 交換相互作用($N_0\beta \sim 1.2$ eV, N_0 はカチオン濃度、 β は $p-d$ 交換積分)が存在しているという概念が10年以上にわたって一般的に受け入れられていた。しかし、筆者らの詳細な共鳴トンネル分光実験により、フェルミ準位は価電子帯ではなく、バンドギャップ中に存在し、価電子帯の $p-d$ 交換分裂は無視できるほど小さい($N_0\beta$ は数十 meV 以下)ことが実験的に初めて明らかになった[成果雑誌論文①②参照。その他プレスリリース等も参照。]さらに、 $[(\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47})_{1-x}\text{Mn}_x]\text{As}$ などの類似の材料系についても同様の研究を行ったところ、ほぼ同様の結果が得られた。この結果は、GaMnAsで得られた上記の結果が、MnとAsを用いたIII-V族強磁性半導体に普遍的な特徴であることを強く示唆している。[S. Ohya *et al.*, submitted to Phys. Rev. B.] 1980年代から盛んに研究が行われているII-VI族希薄磁性半導体においては、大きな $s-d$ または $p-d$ 交換相互作用が存在することが実験的に明らかになっているが、本結果は、II-VI族とIII-V族でバンド構造が大きく異なることを意味している。

本結果は、結果的には、強磁性半導体として最も典型的であり、かつ筆者が提案したデバイスに最も適していると考えられてきたGaMnAs等のIII-V族強磁性半導体材料系が、 $p-d$ 交換相互作用を積極的に生かしたデバイスには不適当であることを意味している。共鳴トンネル分光法により、今まで十分には理解されてこなかったこれらの基礎的なバンドパラメータが非常に明瞭な形で明らかになったことは、材料科学、スピントロニクスの今後の基礎研究および応用研究において、極めて重要であると考えている。今後は、本成果を踏まえつつ、従来の枠組みにとらわれずに、新たな材料探索を行い、新たなデバイス実現に向けて取り組む予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 14 件)

① S. Ohya, K. Takata, and M. Tanaka, “Nearly

non-magnetic valence band of the ferromagnetic semiconductor GaMnAs”, *Nature Phys.* **7**, 342-347 (2011). 査読有

② S. Ohya, I. Muneta, P. N. Hai, and M. Tanaka, “Valence-Band Structure of the Ferromagnetic-Semiconductor GaMnAs Studied by Spin-Dependent Resonant Tunneling Spectroscopy”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 167204 (2010). 査読有

③ 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). 査読有

④ 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). 査読有

[学会発表] (計 61 件)

招待講演 10 件、国際 31 件、国内 20 件

① S. Ohya, K. Takata, I. Muneta, P. N. Hai, Y. Xin, and M. Tanaka (*invited*), “Valence-band structure of the ferromagnetic semiconductor GaMnAs”, 5th International Workshop on Spin Currents, Sendai International Center, Sendai, Japan, July 25th, 2011.

② S. Ohya, I. Muneta, K. Takata, Y. Xin, P. N. Hai, and M. Tanaka (*invited*), “Resonant tunneling spectroscopy and valence-band picture of the ferromagnetic semiconductor GaMnAs”, BC-03, IEEE International Magnetics Conference (Intermag 2011), Taipei International Convention Center, Taipei, Taiwan, April 26, 2011.

③ S. Ohya (*invited*), “Valence-band structure of the ferromagnetic semiconductor GaMnAs investigated by resonant tunneling spectroscopy”, Applied Physics Society (APS) March Meeting 2011 T15.00001, Dallas, USA, March 23, 2011.

④ M. Tanaka and S. Ohya (*invited*), “Spin dependent resonant tunneling in III-V-based ferromagnetic-semiconductor heterostructures”, 55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, DD-07, Atlanta, USA, November 14-18, 2010.

⑤ S. Ohya (*invited*), “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.

〔図書〕(計3件)

- ① M. Tanaka and S. Ohya, "Spintronic Devices Based on Semiconductors", Bhattacharya P, Fornari R, and Kamimura H, (eds.), Comprehensive Semiconductor Science and Technology, volume 6, pp. 540–562, 2011, Amsterdam: Elsevier.
- ② M. Tanaka, S. Ohya, Y. Shuto, S. Yada, and S. Sugahara, "IIIV and Group-IV-Based Ferromagnetic Semiconductors for Spintronics", In: Andrews DL, Scholes, GD and Wiederrecht GP (eds.), Comprehensive Nanoscience and Technology, volume 4, pp. 447–462 Oxford: Academic Press. 2010 Elsevier.
- ③ 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.

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

○研究室ホームページ

<http://www.cryst.t.u-tokyo.ac.jp/ohya/index.html>

○プレスリリース

S. Ohya *et al.*, Nature Phys. 7, 342-347 (2011)

に掲載された論文記事について、様々なメディアで報道された：「東大、様々な強磁性半導体 GaMnAs 試料においてフェルミ準位の位置とバンド構造を系統的に解明」、日経プレスリリース、マイコミジャーナル、YAHOO! Japan ニュース、chem-index、Goo マネー、東大プレスリリースなど

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大矢 忍 (OHYA SHINOBU)
東京大学・大学院工学系研究科・准教授
研究者番号：20401143

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：