

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4月11日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360010

研究課題名（和文） 強磁性窒化物半導体量子構造の物性とスピントロニクスデバイス応用に関する研究

研究課題名（英文） Study on the Physical Properties of Ferromagnetic Nitride Semiconductor Quantum Nanostructures and their Device Application

研究代表者

朝日 一（ASAHI HAJIME）

大阪大学・産業科学研究所・教授

研究者番号：90192947

研究成果の概要（和文）：希土類金属を添加した窒化物磁性半導体層を非磁性の窒化物半導体層で挟んだ多重量子井戸構造において、単層の窒化物磁性半導体層より磁化が増大し、Siを共添加することにより更に磁化が増大することを確認した。磁性層でのキャリア濃度増大の効果と結論された。この構造では磁性原子添加効果により磁場中でのフォトルミネセンス（PL）発光ピークの大きなシフトが観測された。ナノロッド構造とすることにより容易磁化方向の制御が可能であることを示した。量子ディスク構造、円偏光発光ダイオード構造を成長しPL発光を観測した。

研究成果の概要（英文）：In the multi-quantum well (MQW) structures consisting of rare-earth atom doped magnetic nitride semiconductor and non-magnetic nitride semiconductor, enhanced magnetization was observed. By Si co-doping, further enhancement was observed. These enhancements are understood by the effect of carrier increase in the magnetic semiconductor layers and the enhancement in the interaction between carrier spin and magnetic atom spin. In this MQW sample, large energy shift of photoluminescence (PL) peak was observed due to the magnetic atom doping effect. The possibility of the control of easy magnetization axis was demonstrated. The quantum disk structures and circular-polarized light emitting diode structures were grown and PL emission was observed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	7,200,000	2,160,000	9,360,000
2010年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
2011年度	2,100,000	630,000	2,730,000
総計	14,500,000	4,350,000	18,850,000

研究代表者の専門分野：電子材料工学

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：(1) スピントロニクス (2) 半導体物性 (3) MBE (4) ナノ材料 (5) 結晶工学

1. 研究開始当初の背景
半導体と磁性体の物性を1つの物質で発現させ、それを用いて半導体スピントロニクス

デバイスを創製し、次世代の高度情報化社会で要求される超高集積化・超高速化・不揮発性・超省エネルギー化や量子情報処理・量子

計算などを実現しようとの研究は日本を含め多くの研究機関で研究が進められている。しかし、その多くは GaAs, InAs の III-V 族半導体に遷移金属 Mn を添加した希薄磁性半導体 GaMnAs, InMnAs で研究されているが、これらの希薄磁性半導体の強磁性キュリー温度は遥かに室温以下であり、実用デバイスとはなりえない。このため室温以上で強磁性を示す希薄磁性半導体の創製が求められていたが、我々は GaN に Cr を添加することにより良好な室温強磁性を見出した[1]。さらに、強い発光特性を示すという従来の希薄磁性半導体では観測されていなかった特性も実現した[2]。また、GaCrN/AlN/GaCrN トンネル磁気抵抗 (TMR) 効果デバイスを作製し、TMR を観測した[3]。その後、希土類添加 GaN においても室温強磁性を観測し[4]、これら我々の報告に誘発されて、各所で Cr 添加、希土類添加の窒化物半導体の研究が活発化した。さらに、GaGdN/GaN 超格子構造において「キャリア誘起強磁性」と理解される効果による磁化特性、磁気モーメントの増大を観測し[5]、また、GaCrN/AlGaN, GaGdN/AlGaN 量子構造において PL 発光における量子サイズ効果を確認した。これらの量子ナノ構造では、電子系が量子化されており、スピン系との相互作用には新規な物性・特性が期待されるが、実験的には未踏の領域である。

[1] M. Hashimoto, Y.K. Zhou, M. Kanamura and H. Asahi, "High temperature (> 400K) ferromagnetism in III-V-based diluted magnetic semiconductor GaCrN grown by ECR molecular beam epitaxy", *Solid State Com.* 122 (2002) 37-39.

[2] M. Hashimoto, H. Tanaka, R. Asano, S. Hasegawa and H. Asahi, "Observation of photoluminescence emission in ferromagnetic semiconductor GaCrN", *Appl. Phys. Lett.* 84 (2004) 4191-4193.

[3] M. S. Kim, Y.K. Zhou, M. Funakoshi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Tunnel magnetoresistance in GaCrN/AlN/GaCrN ferromagnetic semiconductor tunnel junctions, *Appl. Phys. Lett.* 89 (2006) 232511-1 - 232511-3.

[4] N. Teraguchi, A. Suzuki, Y. Nanishi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto and H. Asahi, "Room-temperature observation of ferromagnetism in diluted magnetic semiconductor GaGdN grown by RF-molecular beam epitaxy", *Solid State Com.* 122 (2002) 651-653.

[5] Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Structural and magnetic properties of GaGdN/GaN superlattice structures", *Thin*

Solid Films 518 (2010) 5659-5661.

2. 研究の目的

本研究の目的は、我々が初めて成長・実現した室温透明発光強磁性の遷移金属および希土類原子を添加した GaN ベース強磁性半導体を基に、それらの強磁性窒化物半導体量子ナノ構造を作製し、量子ナノ構造と磁化特性との関係の明確化、新規物性・特性探索を行い、高性能強磁性半導体を創製するとともに新規な半導体スピントロニクスデバイス創製に関する研究を行うことである。具体的には、(1) GaCrN/AlGaN, GaGd(Dy)N/AlGaN の強磁性半導体層と非磁性半導体層からなる超格子構造、量子井戸構造を作製し、磁性原子（磁性層）間の相互作用に変調を施し、磁化特性の向上効果を明らかとする、(2) 量子ナノロッド構造、量子ドット構造の作製を行い、磁化特性への効果ならびに新規物性・特性を明らかとする、(3) これらの結果に基づき、新規な半導体スピントロニクスデバイスの創製を目指す、ことを研究目的としている。

3. 研究の方法

まず、遷移金属、希土類原子添加 GaN 強磁性半導体の特性向上、新規物性・特性探索の観点から、強磁性半導体層と非磁性半導体層からなる超格子構造、量子井戸構造、量子ナノロッド構造の作製と評価について検討を行う。

(1) GaCrN/GaN, GaDyN/GaN の強磁性半導体層/非磁性半導体層からなる超格子構造を成長し、磁化特性の改善について検討を行う。

(2) GaCrN/AlGaN, GaGdN/AlGaN, GaDyN/AlGaN の量子井戸構造について、特に新規物性・特性の観点から検討を行う。

(3) 長波長化を狙いとして、InGaGdN の成長を検討する。

(4) InGaGdN/GaN 量子井戸構造を成長し、磁化特性、発光特性に関して検討する。

(5) ナノロッド構造に量子井戸構造、超格子構造を組込んだ強磁性半導体量子ナノロッド構造の作製を行い、新規物性・特性の検討を行う。

(6) InGaGdN/GaN 量子井戸発光ダイオードの試作を行い、円偏光レーザ創製の可能性を明らかとする。

4. 研究成果

(21年度)

(1) GaGdN/AlGa_N 超格子構造を MBE 成長し、X 線回折測定により良質の超格子構造が形成されており、また、XAFS 測定により磁性原子 Gd が III 族サイトを置換していることが確認された。磁化測定の結果、GaGdN 単層より磁気モーメントが増大することが観測された。バンドギャップの大きい AlGa_N 非磁性層からキャリア(電子)が GaGdN 磁性層に流入したことによるキャリア誘起強磁性によるものと理解される。

(2) GaGdN/AlGa_N 多重量子井戸超格子(MQW-SL)構造を成長した。GaGdN 量子井戸からのフォトルミネセンス(PL)ピークは磁場中で大きなレッドシフトが観測された。Gd を添加していない GaN/AlGa_N MQW-SL 構造では極くわずかのレッドシフトしか観測されておらず、磁性原子添加による効果と考えられる。

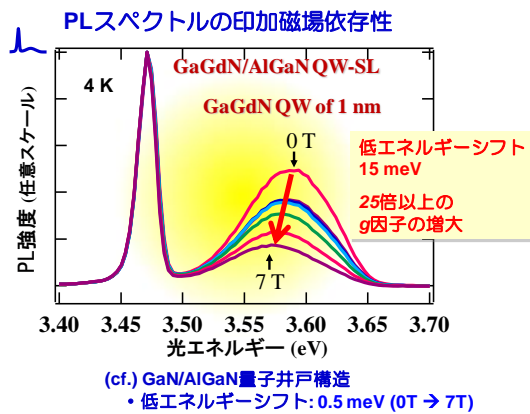


図1 GaGdN/AlGa_N 多重量子井戸超格子(MQW-SL)構造からのPL発光スペクトルの印加磁場依存性。

(3) InGa_N/GaGdN 多重量子井戸(MQW)構造を成長した。バリア層に磁性原子 Gd を添加したこの構造では、キャリアが強磁性層(GaGdN)から非磁性層(InGa_N)へ移動するためにキャリア誘起強磁性の抑制が起こり、GaGdN 単層より小さな磁気モーメントとなることが分かった。

(4) 自己形成 GaN ナノロッドの成長中に Gd の添加を行うことにより、GaGdN/GaN 量子ディスクの形成に成功した。

(22年度)

(1) InGaGdN/GaN 多重量子井戸(MQW)構造を成長し、良質のMQW構造が形成されることが分かった。MQW構造では、同じ厚さのInGaGdN単層膜より磁化が増大した。バンドギャップの大きいGaN中のキャリアがInGaGdN層に流れ込むことによるキャリア誘起強磁性と理解される。

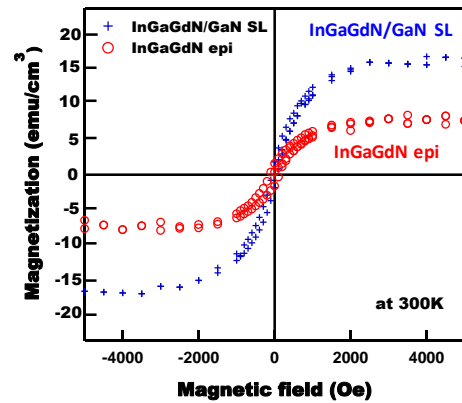


図2 InGaGdN/GaN MQW 構造と InGaGaN 単層に対する磁化-磁場依存性。

(2) InGaGdN/GaN MQW 構造の GaN 層に Si を添加した場合には更に磁化が増大することが確認された。GaN 中のキャリアが InGaGdN 層に流れ込むことによるキャリア誘起強磁性と理解される。Si 添加により MQW 構造が向上することが分かった (Si サーファクタント効果)。

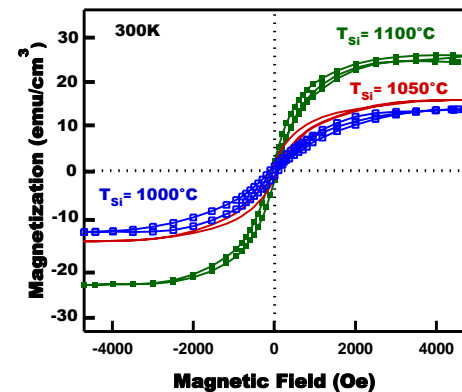


図3 GaN 障壁層に Si を添加した InGaGdN/GaN MQW 構造での磁化-磁場依存性。

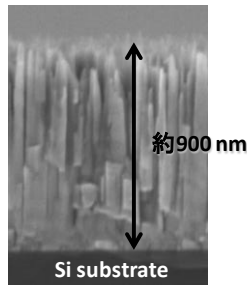
(3) 自然酸化膜付き Si (001) 基板の上に GaGdN ナノロッドを作製し、二段階・三段階で成長温度を変化させることにより、ナノロッド形状の制御ができることを明らかとした。成長温度が高いほどナノロッドの直径は細く、高さは高く、ナノロッド間の空隙は広がった。高温成長ナノロッドの上に形成した低温成長ナノロッドの直径は徐々に太くなることを確認した。他方、低温成長から高温成長と変化させて成長ナノロッドの直径は細くなった。

(4) GaGdN/AlGaN 多重量子ディスクでは、AlGaN バリア層の厚さを厚くすると AlGaN バリア層から GaGdN ディスク層に流れ込むキャリアが増え、キャリア誘起強磁性により磁化特性が改善することが明らかとなった。

(23年度)

(1) GaDyN/AlGaN 多重量子井戸(MQ)構造を成長し、室温において強磁性的な秩序を観測した。GaDyN 単層より強い飽和磁化が観測され、キャリア誘起強磁性によるものと考えられる。さらに、量子井戸層からのフォトルミネセンス(PL)発光に加えて、Dy³⁺の内殻遷移による PL 発光を観測した。

(2) GaGdN/GaN 多層構造成長によりアスペクト比の大きなナノロッド構造とすることで、形状磁気異方性による成長面に垂直方向磁化の増大を実現した。



	Gd BEP [Torr]	Gd [%]	アスペクト比 (H:D)	Mr/Ms (⊥) / Mr/Ms (//)
A	1 × 10 ⁻⁹	1.2	20:1	0.97
B	2 × 10 ⁻⁹	2.2	8:1	0.94
C	3 × 10 ⁻⁹	8.7	5:1	0.28

アスペクト比(H/D)の増加⇒残留磁化比の増加

図4 GaGdN ナノロッド構造におけるアスペクト比と残留磁化の垂直/水平方向比の関係。

(3) InGaGdN/GaN 多重量子ディスク構造の成長に成功した。室温強磁性ならびに可視域での PL 発光を観測した。これにより強磁性半導体量子ディスク構造からの単一光子発光実現への第1歩を達成した。

超格子構造の自己形成現象を発見した。

(5) InGaGdN/GaN MQW 層を活性層とした円偏光発光デバイス(LED)構造を成長し、PL 発光を観測した。

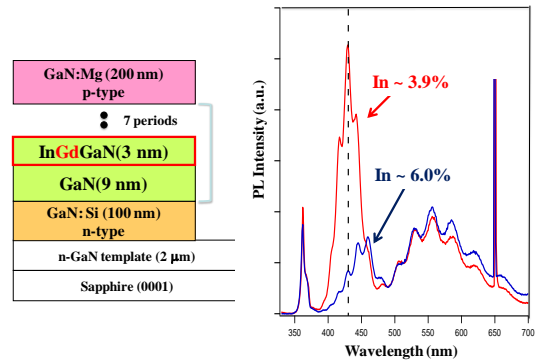


図5 InGaGdN/GaN MQW 層を活性層とした LED 構造と PL 発光スペクトル。

(6) トンネル磁気抵抗効果素子の実現を目指して、GaDyN/GaN 二重障壁構造を成長し、良質な結晶が得られた。室温強磁性が観測され、各層の厚さと磁性の間に相関のあることが観測された。

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24件)

- ① Y. K. Zhou, M. Almokhtar, H. Tani, H. Kubo, N. Mori, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Observation of large Zeeman splitting in GaGdN/AlGaN ferromagnetic semiconductor double quantum well superlattices, Solid State Communications (2012) 査読有り印刷中
- ② S. N. M. Tawil, D. Krishnamurthy, R. Kakimi, M. Ishimaru, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Influence of Si-doping on the characteristics of InGaGdN/GaN MQWs grown by MBE, Phys. Stat. Sol. C8 (2) (2011) 491-493. 査読有り
- ③ H. Tambo, S. Hasegawa, M. Uenaka, Y. K. Zhou, S. Emura and H. Asahi, GaGdN/AlGaN multiple quantum disks grown by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy, Phys. Stat. Sol. A208 (7) (2011) 1576-1578. 査読有り
- ④ S. N. M. Tawil, D. Krishnamurthy, R. Kakimi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Studies on the InGaGdN/GaN magnetic semiconductor heterostructures grown by plasma-assisted molecular-beam epitaxy, J. Cryst. Growth 323 (2011) 351-354. 査読有り
- ⑤ Y. K. Zhou, S. W. Choi, S. Kimura, S.

Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Structural and magnetic properties of GaGdN/GaN superlattice structures, Thin Solid Films 518 (2010) 5659-5661. 査読有

[学会発表] (計 2 2 件)

- ① S. Hasegawa and H. Asahi, Growth and characterization of GaN-based dilute magnetic semiconductors, Asia-Pacific Workshop on Materials Characterization 【招待講演】, 2011 年 9 月 23 日, Chennai (インド)
- ② H. Asahi, S. Hasegawa, Y.K. Zhou and S. Emura, Rare-earth doped III-nitride semiconductors for semiconductor spintronics, European Materials Research Society Fall 2011 Meeting 【招待講演】, 2011 年 9 月 20 日, Warsaw (ポーランド)
- ③ S. Hasegawa, Y.K. Zhou, S. Emura and H. Asahi, Growth and characterization of GaN-based dilute magnetic semiconductors and their nanostructures, 2011 Villa Conference on Interactions Among Nanostructures 【招待講演】, 2011 年 4 月 23 日, Las Vegas (米国)
- ④ H. Asahi, S. Hasegawa, Y.K. Zhou and S. Emura, Growth and characterization of transition-metal and rare-earth doped III-nitride semiconductors for spintronics, 2010 MRS Fall Meeting 【招待講演】, 2010 年 12 月 1 日, Boston (米国)
- ⑤ 朝日一、長谷川繁彦、周逸凱、江村修一、強磁性半導体による光半導体スピントロニクスデバイス, 2010 年春電子情報通信

学会総合大会【招待講演】2010 年 3 月 17 日, 仙台

- ⑥ H. Asahi, S. Hasegawa, Y.K. Zhou and S. Emura, Growth and characterization of GaN-based room-temperature ferromagnetic semiconductors for semiconductor spintronics, 11th Takayanagi Kenjiro Memorial Symposium, 【招待講演】, 2009 年 11 月 12 日, 静岡

[その他]

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/pem/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

朝日 一 (ASAHI HAJIME)
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号: 90192947

(2) 研究分担者

長谷川 繁彦 (HASEGAWA SHIGEHICO)
大阪大学・産業科学研究所・准教授
研究者番号: 50189528

江村 修一 (EMURA SHUICHI)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号: 90127192

周 逸凱 (ZHOU IKAI)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号: 60346179

(3) 連携研究者

該当なし