

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5月15日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21560015

研究課題名（和文） 強磁性窒化物半導体のナノ構造における磁性制御に関する研究

研究課題名（英文） Study on control of magnetic properties in ferromagnetic nitride semiconductor nanostructures

研究代表者

周 逸凱 (ZHOU YIKAI)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：60346179

研究成果の概要（和文）：

GaGdN/AlGaIn 対称型多重ダブル量子井戸構造及び GaDyN/GaN 二重障壁構造を、プラズマ支援分子線エピタキシー法を用いて、GaN(0001)テンプレート基板の上に成長させた。いずれの構造において、磁化測定より室温において強磁性を示す明瞭なヒステリシスループが観察された。磁場 PL スペクトルから、GaN より高エネルギー側に GaGdN 量子井戸層からの発光を確認し、通常の GaN (g 因子 2) と比べ、g 因子が約 60 であることが得られた。また、GaDyN/GaN 二重障壁構造において、膜厚を変えるとこによって、磁性層間の層間相互作用が確認できた。量子ナノ構造において、磁性制御が容易に実現できることがわかった。

研究成果の概要（英文）：

GaGdN/AlGaIn multi-double quantum well and GaDyN/GaN double barrier structures were grown by radio-frequency plasma-assisted molecular-beam epitaxy on GaN (0001) templates. Ferromagnetic behavior is confirmed for the samples at room temperature for all samples. Strong photoluminescence was observed from both GaGdN and GaN quantum wells at higher energy side of GaN excitonic peak. Enhanced g-factor was estimated to be about 60 for GaGdN/AlGaIn structure sample with quantum wells thickness of 1 nm. It is larger than GaN (g factor: 2). It is found that the interlayer coupling exists between GaDyN quantum wells. It is easy to control magnetic properties in the nanostructures.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

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、半導体物性、MBE、ナノ材料、結晶工学

1. 研究開始当初の背景

III 族窒化物半導体は、発光波長が赤外から紫外線まで変化させられることができ、可視光用の発光・受光デバイス材料として研究開発が進められている。この材料のおかげで、白色 LED による照明、大型ディスプレイ、ブルーレイなどが実現できた。それは大変重要

なエレクトロニクス材料であることがいうまでもない。と同時に、磁性元素を窒化物半導体に添加すれば、それも室温で強磁性を示す大変有望なスピントロニクス材料でもある。今まで我々の研究では、窒化物強磁性半導体の磁性は、添加した磁性元素の濃度、そして、キャリア（電子）濃度と深く関わって

いることがわかった。この二つの要素を制御すれば、磁性を制御ができる。

2. 研究の目的

本研究は磁性を含む量子井戸構造においてキャリア（電子）の閉じ込めと磁性現象の関係の解明及び磁性制御を目的とする。

(1) 磁性元素を含むシングル量子井戸超格子においては、閉じ込められた電子の波動関数の広がりを変化させ、波動関数の広がりとの関係性を明らかにする。

(2) 対称型ダブル量子井戸超格子においては、電子と磁性イオン (Dy^{3+} 或いは Gd^{3+}) との相互作用を明らかにする。

(3) 多重量子井戸において、層間にどのような磁気的なカップリング（相互作用）するかを明らかにする。

3. 研究の方法

結晶成長は、現有の MBE 成長装置を用いて行った。約 $700^{\circ}C$ で、GaN テンプレート上に、Dy 或いは Gd 組成を変化させて、GaDy (Gd)N 単層薄膜を成長させ、反射高速電子線回折

(1) (RHEED)、X 線回折測定、XAFS 測定、ラマン散乱測定、及び磁化測定などから、磁気モーメントが最も大きい条件を確立させた。

(2) 単層膜の GaN 及び GaDy (Gd)N を、ホール効果測定し、キャリア（電子）濃度を明らかにした。

(3) GaDy (Gd)N/AlGaIn 量子井戸構造中の GaDyN と AlGaIn の膜厚を変え、結晶成長を行い、磁化特性評価装置 (SQUID) 及び高感度交番力磁力計を用いて、磁気特性を調べ、キュリー温度、磁気モーメントなどを明らかにした。

(5) GaDy (Gd)N/AlGaIn の発光特性、特に磁場中の発光特性（磁気光学特性）を調べ、発光ピークエネルギーと GaDy (Gd)N 膜厚の関係を調べた。

(6) X 線吸収微細構造 (XAFS) から Dy の添加濃度及び微細構造を測定し、構造解析を行い、第 2 相の析出の有無などを調べた。

(7) GaDy (Gd)N/AlGaIn 量子井戸構造中の GaDyN と AlGaIn の膜厚を変え、結晶成長を行い、磁気特性を調べ、キュリー温度、磁気モーメント、キャリア濃度などを明らかにした。

(8) 量子井戸構造に対して、磁場 PL 測定を行い、磁気光学特性を調べた。

以上のように、様々な量子井戸構造を作製し、その中の磁気現象とキャリア関係磁性と量子井戸の関係を明らかにし、磁性制御を図った。

4. 研究成果

(1) GaGdN/AlGaIn 多重量子井戸の巨大磁気

光学効果の発見及量子井戸構造における磁性制御の実現

作製した GaGdN/AlGaIn 対称型多重量子井戸 (MQW) に対して、X 線回折 (XRD) 測定を行い、XRD カーブには明瞭なサテライトピークが観測され、良好な MQW 構造が形成されていることが確認された。GaGdN/AlGaIn MQW は室温強磁性を示し、磁化は単層の GaGdN より強かった。キャリア誘起強磁性が現れているものと考えられる。

GaGdN 井戸層からの PL 発光が観測され、この発光ピークは磁場中において大きなレッドシフト (7 T で 15 meV のシフト) が観測された (図 1)。磁性原子 Gd を含まない GaN/AlGaIn MQW では、ほとんどレッドシフトを示さず (0.5 meV 以下)、観測された大きなレッドシフトは Gd に起因するものであると考えられる。Gd をドープすることによって強い有効内部磁場が発生し、大きなゼーマンシフトが起こったためと考えられる。図 2 では、GaN 及び GaGdN 量子井戸の発光ピークエネルギーの磁場依存性を示す。GaGdN 量子井戸の g 因子を見積もると、約 60 であることがわかった。通常の GaN 薄膜では考えられない値である。量子井戸に磁性を添加することで、大きな磁気モーメントが得られた。実験データから、井戸幅が狭いほど、磁気モーメントが大きい。井戸中では、キャリアの波動関数があまり広がらない方が、強い閉じ込め効果によって、磁性イオンとの間に強い相互作用が生まれることがわかった。また、バリアの高さなどを変化させることで、磁性制御ができることがわかった。

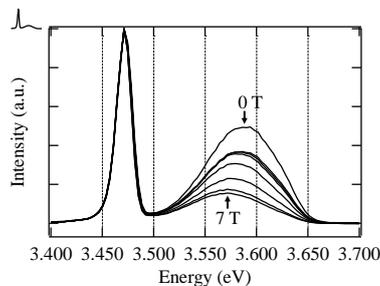


図 1 GaGdN/AlGaIn MQW の発光スペクトルの磁場依存性。

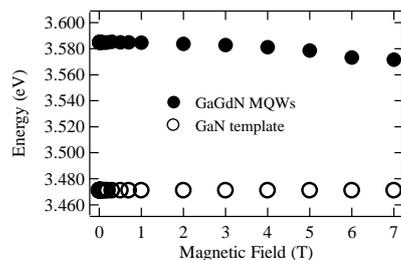


図 2 GaGdN/AlGaIn MQW の発光ピークエネルギーの磁場依存性

(2) GaDyN/AlGaN 多重量子構造のキャリア誘起磁性の発見

図3にGaDyN / AlGaN MQW 構造及びX線回折パターンを示す。X線回折(XRD)測定結果より、DyNのような二次相の析出が確認されず、明瞭なサテライトピークが観察されたことから、良質なMQW構造が得られたことを確認した。また、図4は10 Kで得られたGaDyN / AlGaN MQWのPLスペクトルである。GaNテンプレートより高エネルギー側にGaDyN量子井戸層からの発光スペクトルや、Dyイオンによる発光スペクトルを観察した。量子井戸層が形成されていることやDy原子がGaサイトに入っていることがわかった。

図6に室温におけるGaDyN/AlGaN MQWの磁化-磁場曲線を示す。単層膜のGaDyNより、量子井戸の方は磁化が大きいことが観察された。その理由としては、GaDyN単層膜に比べ、GaDyN量子井戸では高いキャリア密度が存在し、キャリア誘起磁性によって、より大きな磁化が得られた。キャリア誘起磁性を利用し、キャリア濃度を制御することで、磁性を制御することができる。つまり、キャリアは磁性制御の一つ重要な要素であることがわかった。この性質を利用して、新奇なスピンドバイスが作製することが可能である。

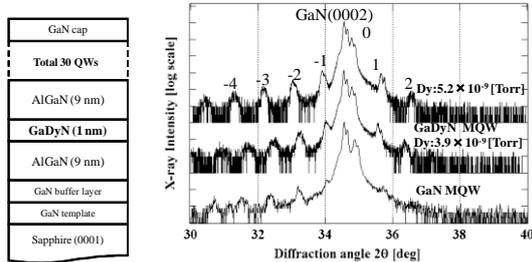


図3 GaDyN/AlGaN MQWの構造図及びX線回折パターン。

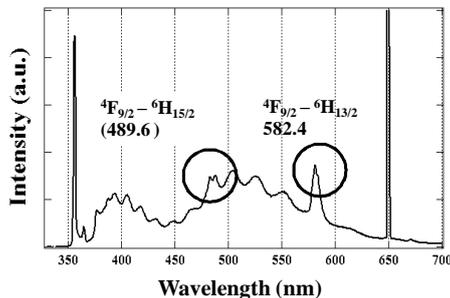


図4 GaDyNのPLスペクトル(10 K)。

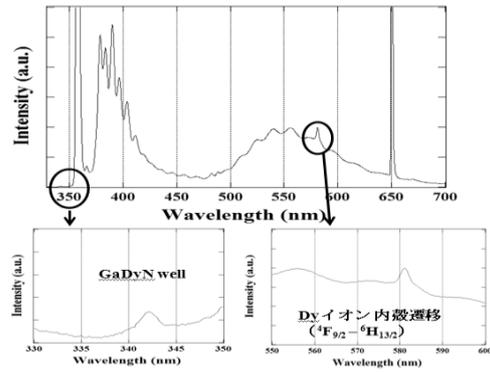


図5 GaDyN/AlGaN MQWのPL測定結果。

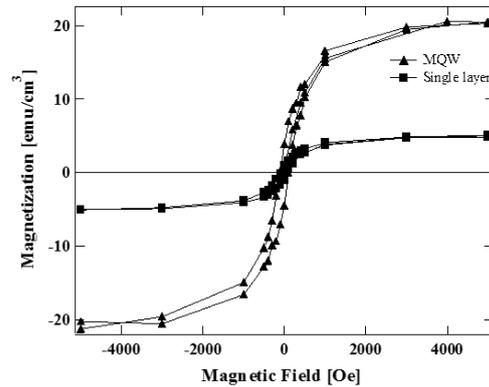


図6 室温におけるGaDyN/AlGaN MQWの磁化-磁場曲線。

(3) GaDyN/GaN 二重障壁構造の層間相互作用の発見

GaDyN (80 nm) / GaN (4 nm) / GaDyN (d nm) / GaN (4 nm) / GaDyN (15 nm)と想定した構造を成長させた。中間の磁気層である厚さd nmのGaDyN層については、d = 3, 5, 8 nmを想定して成長させた(図7)。作製したGaN / GaDyN二重障壁構造の結晶構造はX線回折(XRD)測定を用いて評価した。図3に示しているX線回折パターンよりDyNのような二次相の析出が確認できず、GaNより低角度側にGaDyNから回折ピークが観察されていることから、GaDyN薄膜の形成が確認できた。また、交番力磁力計を用いた磁気特性評価から、室温において磁性や異方性が確認され、膜厚dと磁性の間に関連性が確認された。図8では、中間磁気層の膜厚を変えることで、単位体積あたりの飽和磁化及び保磁力が印加磁場の方向によって、増加したり、減少したりする現象が見られ、それは、磁場方向が面内であると強磁性的な層間相互作用を示し、逆に面直の場合は反強磁性的な層間相互作用を示していることがわかった。この層間相互作用を利用して磁性制御を行うことができる。

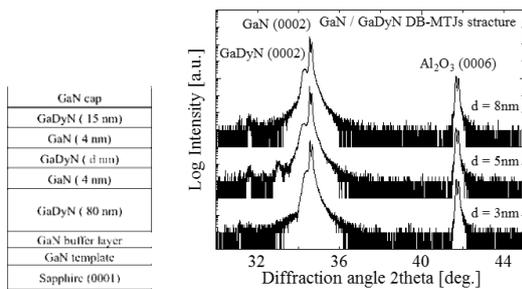


図7 GaDyN/AlGaN 二重障壁構造の構造図及びX線回折パターン。

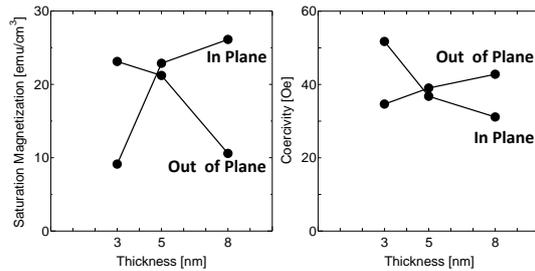


図8 GaDyN/AlGaN 二重障壁構造の飽和磁化及び保磁力の中間磁気層の膜厚依存性。

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 15 件)

- (1) H. Tambo, S. Hasegawa, H. Kameoka, Y. K. Zhou, S. Emura and H. Asahi, Low-temperature molecular beam epitaxy growth and properties of GaGdN nanorods, J. Cryst. Growth, 査読有, 323 (2011) 323-325.
- (2) D. Krishnamurthy, S.N.M. Tawil, M. Ishimaru, S. Emura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, Structural characterization of MBE grown InGaGdN/GaN and InGaN/GaGdN superlattice structures, D. Phys. Stat. Sol. (c), 査読有, 8 (7-8) (2011) 2245-2247.
- (3) M. Almokhtar, S. Emura, Y. K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, Photoluminescence from exciton-polarons in GaGdN/AlGaN multiquantum wells, J. Phys.: Condens. Matter. 査読有, 23 (2011) 325802-1-325802-4.
- (4) Y. K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Large magneto-optical effect in low-temperature-grown GaDyN, Phys. Stat. Sol. (c), 査読有, 8 (7-8) (2011) 2173-2175.
- (5) S. Hasegawa, R. Kakimi, S.N.M. Tawil, D. Krishnamurthy, Y. K. Zhou and H. Asahi, Growth of Gd-doped InGaN/GaN multiple quantum wells and their characterization, Phys. Stat. Sol. (c), 査読有, 8 (7-8) (2011) 2047-2049.
- (6) 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. (a), 査読有, 7 (2011) 1576-1578.
- (7) 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, 査読有, 518 (2010) 5659-5661.
- (8) G. Meng, X.D Fang, Y. K. Zhou, J.U Seo, W.W Dong, S. Hasegawa, H. Asahi, H. Tambo, M.G Kong and L. Li, Ultra-low turn-on field from ultra-long ZnO nanowire arrays emitters, J. of Alloys Comp. 査読有, 491 (2010) 72-76.
- (9) M. Takahashi, Y. K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Magnetic Properties of GaGdN Studied by SX-MCD and XAFS, J. Supercond. Nov. Magn., 査読有, 23 (2010) 107-109.
- (10) Y. K. Zhou, M. Takahashi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Annealing effect in GaDyN on optical and magnetic properties, J. Supercond. Nov. Magn., 査読有, 23 (2010) 103-105.
- (11) M. Takahashi, Y. Hiromura, S. Emura, T. Nakamura Y. K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, The third magnetic phase of GaGdN detected by SX-MCD, AIP Conf. Proc. Ser., 査読有, 23 (2010) 411-412.
- (12) S. Emura, M. Takahashi, H. Tambo, A. Suzuki, T. Nakamura, Y. K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, Ferromagnetism and Luminescence of Diluted Magnetic Semiconductors GaGdN and AlGdN, Mater.

Res. Soc. Symp. Proc., 査読有,
Ser.1111 (2009) 49-60.

- (13) S. Kimura, S. Emura, K. Tokuda, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, Structural Properties of AlCrN, GaCrN and InCrN, J. Crystal Growth, 査読有, 311 (2009) 2046-2048.
- (14) Y.K. Zhou, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Formation of Aligned CrN Nano-clusters in Cr-delta-doped GaN, J. Phys.: Condens. Matter., 査読有, 21 (2009) 064216-1-064216-4.
- (15) H. Tambo, S. Kimura, Y. Yamauchi, Y. Hiromura, Y.K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Crystal Growth and Characterization of GaCrN Nanorods on Si Substrate, J. Cryst. Growth, 査読有, 311 (2009) 2962-2965.

[学会発表] (計 19 件)

- (1) Y.K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Large magneto-optical effect in low-temperature-grown GaCrN and GaCrN:Si", 9th International Conference on Nitride Semiconductors, Glasgow, UK, July 13, 2011.
- (2) Y.K. Zhou, M. Almokhtar, H. Kubo, N. Mori, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Large Zeeman splitting in GaGdN/AlGaIn magnetic semiconductor double quantum well", Superlattices, 5th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors, Mie, Japan, May 23, 2011.
- (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), Las Vegas, Nevada, USA, April 22, 2011
- (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, Boston, USA, December 2, 2010.
- (5) Y. K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Large magneto-optical effect in low-temperature-grown GaDyN", International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, U.S.A., September 23, 2010.
- (6) S. Hasegawa, M. Kin, D. Abe, K. Higashi, Y.K. Zhou and H. Asahi, "Magnetotransport properties in Gd-doped GaN grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy", International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, U.S.A., September 21, 2010.
- (7) D. Krishnamurthy, S.N.M. Tawil, M. Ishimaru, S. Emura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, "Structural characterization of MBE grown InGaGdN/GaN and InGaIn/GaGdN superlattice structures", International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, U.S.A., September 21, 2010.
- (8) H. Tambo, S. Hasegawa, M. Uenaka, Y.K. Zhou, S. Emura and H. Asahi, "GaGdN/AlGaIn multiple quantum disks grown by RF-plasma-assisted molecular-beam epitaxy", International Workshop on Nitride semiconductors (IWN2010), Tampa, Florida, U.S.A., September 21, 2010.
- (9) H. Tambo, H. Kameoka, Y.K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Low-temperature molecular beam epitaxy growth and properties of GaGdN nanorods", 16th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Berlin, Germany, August 21, 2010.
- (10) A. Yabuuchi, M. Maekawa, A. Kawasuso, S. Hasegawa, Y.K. Zhou and H. Asahi, "Defect structure of MBE-grown GaCrN diluted magnetic semiconductor films", 12th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques, North Queensland, Australia, August 4, 2010.
- (11) Y.K. Zhou, M. Almokhtar, H. Tani, H. Kubo, N. Mori, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Enhanced magneto-optic

effect in GaGdN/AlGaN ferromagnetic semiconductor double quantum well superlattices”, The 6th International Conference on the Physics and Applications of Spin Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, August 2, 2010

- (12) S. Emura, H. Tani, H. Raebiger, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, “Interfacial stress and thermal expansion effects for PL spectra in AlGaIn/GaN MQW”, 30th International Conference on the Physics of Semiconductors, Seoul, Korea, July 26, 2010.
- (13) Y.K. Zhou, M. Almokhtar, H. Tani, H. Kubo, N. Mori, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “MBE growth and characterization of GaGdN/AlGaIn magnetic semiconductor double quantum well superlattices”, 3rd International Symposium on Growth of III-Nitrides, Montpellier, France, July 5, 2010.
- (14)
- (15) H. Tambo, S. Hasegawa, K. Higashi, R. Kakimi, S.N.M. Tawil, Y.K. Zhou, S. Emura, H. Asahi, “Structural and magnetic properties of diluted magnetic semiconductor GaGdN nanorods”, 37th International Symposium on Compound Semiconductor 2010 (ISCS2010), Takamatsu, Kagawa, Japan, June 3, 2010.
- (16) Y.K. Zhou, S. Nonoguchi, J.Q. Liu, Y. Tanaka, S. Hasegawa and H. Asahi, “Improvement in luminescence properties of TlInGaAsN/TlInP multi-layers grown by gas source molecular beam epitaxy”, 6th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka University, Osaka, June 1, 2010.
- (17) Y.K. Zhou, M. Almokhtar, H. Tani, H. Kubo, N. Mori, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Enhanced Zeeman effect in GaGdN/AlGaIn ferromagnetic semiconductor double quantum well superlattices”, 6th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka University, Osaka, June 1, 2010.

(18) S. Hasegawa, H. Tani, M. Kin, Y.K. Zhou and H. Asahi, “MBE growth of GaGdN/AlGaIn multiple quantum wells and their magnetic properties”, 13th SANKEN International Symposium, Osaka International Airport Conference Hall, Osaka, January 8, 2010.

(19) Y. K. Zhou, H. Ichihara, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Large Zeeman splitting in low-temperature-grown GaDyN”, International Symposium of Post-Silicon Materials and Devices Research Alliance Project, Osaka, Japan, September 5-6, 2009.

[その他]

ホームページ等

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

周 逸凱 (ZHOU YIKAI)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：60346179

(2) 研究分担者

朝日 — (ASAHI HAJIME)

大阪大学・産業科学研究所・教授

研究者番号：90192947

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