様 式 C－19、F－19、Z－19 （共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２７ 年　 ５ 月 ２６ 日現在

機関番号：１１３０１
研究種目：挑戦的萌芽研究
研究期間：2014～2014
課題番号：２６６０００６８

研究課題名（和文）同時ドーピング強磁性半導体の作製と新規素子開拓

研究課題名（英文）Ferromagnetic semiconductors codoped with donors and their devices

研究代表者
松倉　文礼（Matsukura, Fumihiro）

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・教授

研究者番号：５０２６１５７４

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,000,000円

研究成果の概要（和文）：非磁性ドナー元素Liを共添加した(Ga,Mn)Asの結晶成長を分子線エピタキシ法により行った。1%以上のLiを共添加することにより、(Ga,Mn)As中でのMnの固溶度が増加することを明らかにした。Mnを15%、Liを1%添加した(Ga,Mn)As:Liにおいて、(Ga,Mn)Asに対するこれ迄の最高値である140 mTの磁化を観測し、このことから大部分のMnは格子位置を置換していることを明らかにした。更に、(Ga,Mn)As:Liは顕著な面内磁気異方性を示し、異方性の方向が温度に依存するという興味深い現象を観測した。

研究成果の概要（英文）：We grow (Ga,Mn)As codoped with nonmagnetic Li donors by molecular beam epitaxy. We show that the solubility of Mn in GaAs is increased by Li doping above 1%. (Ga,Mn)As with Mn composition of 15% and Li composition of 1% shows the magnitude of magnetization of 140 mT, which is the largest value reported so far, and the result indicate that the most of introduced Mn substitute into cation sites. We observe pronounced in-plane magnetic anisotropy, whose direction depends on temperature.

研究分野：工学

キーワード：スピントロニクス　強磁性半導体　分子線エピタキシ　同時ドーピング　磁気異方性

１．研究開始当初の背景

強磁性半導体(Ga,Mn)As は申請者らによって 1996 年に開発された材料であり、報告されているキュリー温度 T_C の最高値は 200 K である。(Ga,Mn)As は正孔誘起強磁性を示し、正孔は III 族 Ga 位置を 2 価で置換してアクセプタとして働く格子位置 Mn により供給される。キュリー温度の向上には強磁性に寄与する有効 Mn 組成と正孔濃度の増加を必要とする。しかし、Mn 組成が増加するとフェルミ・エネルギの上昇を抑制する効果(自己補償効果)が顕著になる。一部の Mn が格子間位置に入りドナーとして働き正孔を補償する現象である。格子位置 Mn と格子間 Mn は反強磁性的に結合するので、Mn 組成の増加は正孔濃度と有効 Mn 組成の増加に繋がらない。一方で、非磁性ドナー元素を共添加することで Mn の固溶度が上昇し、かつ自己補償効果が抑制できる可能性が理論計算により示されている。平衡状態の計算結果であり、非平衡結晶に対しては実験的に検証する必要がある。これは高濃度不純物ドープ半導体に共通な現象であり、学理的にも興味深い。

２．研究の目的

代表的な強磁性半導体(Ga,Mn)As の最高のキュリー温度の報告値は 200 K に留まっており、室温に至っていない。

本研究では、

(1) 結晶成長時のドナー不純物の同時ドーピングによる有効 Mn 組成の向上

(2) 結晶成長後の熱処理による正孔濃度向上による(Ga,Mn)As のキュリー温度の向上

(3) ドナーを同時ドーピングした(Ga,Mn)As に特有な物理現象の探索

を目的とする。

３．研究の方法

既存の分子線エピタキシ(MBE)装置により Li ドープした(Ga,Mn)As を成長する。作製した試料の構造評価は X 線回折装置を用いて行う。磁気的特性の評価は超伝導量子干渉素子磁束計、伝導特性は磁気輸送測定評価装置を用いて行う。電界素子への加工はフォトリソグラフィを用いて行う。これらの評価により、試料の熱処理前後の特性を明らかにする。一連の研究は研究代表者と研究協力者である大学院生(1 名)で行う。

４．研究成果

代表的な強磁性半導体である(Ga,Mn)As の磁気特性向上に向けて、ドナーを同時添加(ドーピング)した(Ga,Mn)As の作製を行った。磁性元素 Mn 間の相互作用をキャリアである正孔が媒介することにより、(Ga,Mn)As の強磁性秩序は発現する。強磁性秩序に寄与する格子位置 Mn 組成と正孔濃度の増加により。その磁気特性の向上が期待される。しかし、(Ga,Mn)As 中に大量の Mn を導入しようとすると、一部の Mn は格子間位置に入るようになる。格子間 Mn は格子位置 Mn と反強磁性的に結合することとドナーとして働くことから、格子間 Mn の形成を抑制して格子位置への Mn の固溶度を増やす必要がある。これに対する有効な手法として非磁性ドナーの共添加が理論計算により提案されていたが、実験的な検証はなかった。

本研究では、非磁性ドナー元素として Li を採用し、Li を共添加した(Ga,Mn)As の結晶成長を分子線エピタキシ法により行った。熱処理前後の試料の特性を X 線回折、輸送、磁化測定により評価した。

結晶成長中の高速電子線回折法による試料表面の観測から、1%以上の Li を共添加することにより、(Ga,Mn)As 中での Mn の固溶度が増加することを明らかにした。Li の添加により(Ga,Mn)As の格子定数が減少することから、結晶中に Li が取り込まれていることが分かった(図 1(a))。Mn を 15%、Li を 1%添加した(Ga,Mn)As:Li において、(Ga,Mn)As に対するこれ迄の最高値である 140 mT の磁化を観測し(図 2)、このことから大部分の Mn は格子位置を置換していることを明らかにした。一方で、熱処理をすることで、試料の電気伝導率は増加するものの、キュリー温度は Li を含まない(Ga,Mn)As のものと大差ない。これは熱処理による電気伝導率の増加は格子間 Mn の拡散によるものであり、Li は処理により除去できないことを示唆しておいる。こ

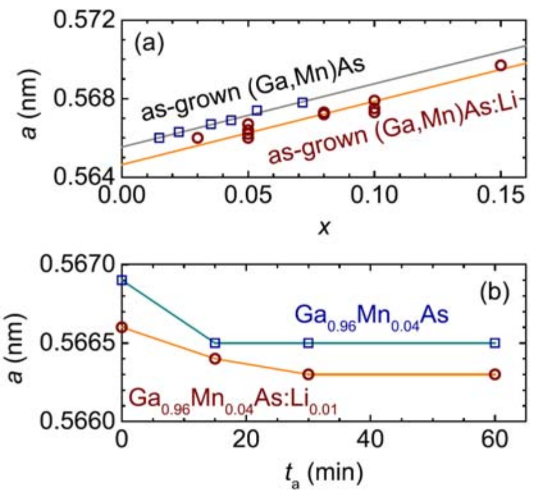

図 1　Li を 1%ドープした(Ga,Mn)As:Li と(Ga,Mn)As の格子定数 a。(a) 熱処理前の試料の仕込み Mn 組成 x 依存性。(b) 熱処理時間 t_a 依存性。熱処理温度は 250°C。

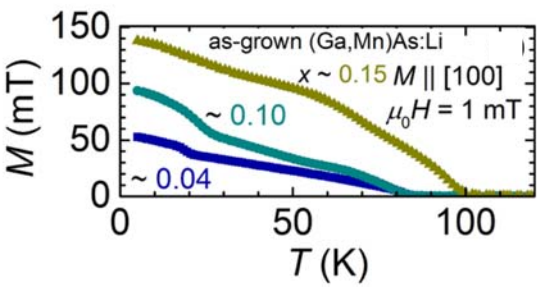

図 2　熱処理前の(Ga,Mn)As:Li (Li 組成 1%)の面内[100]方向の磁化 M の温度 T 依存性。

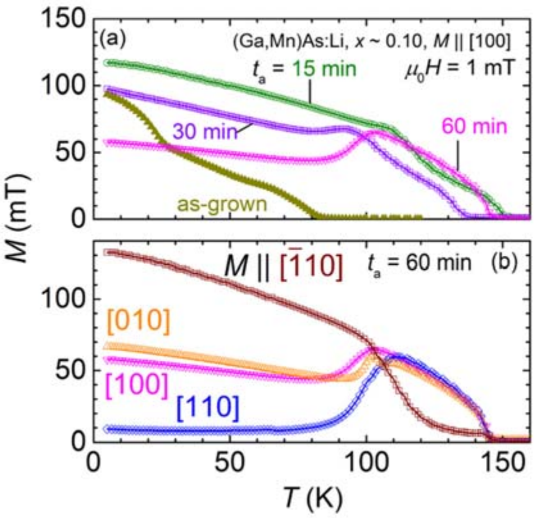

図３ Mn を 10%、Li を 1%ドープした(Ga,Mn)As の磁化 *M* の温度 *T* 依存性。(a) [100]方向の磁化 *M* の熱処理時間 t_a 依存性。熱処理温度は 250°C。(b) 面内の様々な結晶方向に対して測定した磁化 *M* の温度 *T* 依存性。(a)の試料の内 60 分熱処理したもの。

のことは、熱処理後においても Li をドープした(Ga,Mn)As の格子定数はドープしていないものの格子定数よりも小さいという実験結果と一致する(図 1(b))。

(Ga,Mn)As:Li をチャネルとして持つ電界効果素子を作製し、磁気輸送特性を評価した。(Ga,Mn)As:Li の輸送特性は (Ga,Mn)As と同様の磁気抵抗効果、異常ホール効果を示す。(Ga,Mn)As:Li の輸送特性の電界変調から、(Ga,Mn)As:Li の強磁性はキャリア誘起によることを示した。(Ga,Mn)As:Li は顕著な面内磁気異方性を示す。磁気異方性は図 3(a)に示すように熱処理にも依存する。面内一軸異方性の方向が温度に依存するという興味深い現象を磁化測定により観測した(図 3(b))。100 K 以下では[1̄10]方向、それ以上では[110]方向が磁化容易軸となる。この振る舞いは、磁気輸送測定、強磁性共鳴測定からも確認した。(Ga,Mn)As の面内一軸異方性の起源については多くの議論があるものの、未だ明らかにされていない。Li ドープで顕著になることから、結晶中のイオン配置の異方性が磁気異方性をもたらしている可能性を示唆している。

以上のことから、(Ga,Mn)As にドナー元素である Li を同時ドーピングすることで、(Ga,Mn)As の磁気特性が大きく変わることが分かった。これをキュリー温度等の磁気特性の向上につなげるためには、格子位置 Mn 量を増大するという役割を果たした後の Li を除去するための工夫が必要となる。

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　１件）

① S. Miyakozawa, L. Chen, F. Matsukura, and H. Ohno
Properties of (Ga,Mn)As codoped with Li
Applied Physics Letters 104, 222408-1-4 (2014) (査読有).

〔学会発表〕（計　３件）

① S. Miyakozawa, L. Chen, F. Matsukura, and H. Ohno
Temperature dependence of in-plane magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As:Li
第 19 回半導体スピン工学の基礎と応用、2014 年 12 月 15, 16 日、東京大学武田ホール

② S. Miyakozawa, L. Chen, F. Matsukura, and H. Ohno
Temperature dependent direction of in-plane uniaxial magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As codoped with Li
第 62 回応用物理学会春期学術講演会、2015 年 3 月 11-14 日、東海大学湘南キャンパス

③ S. Miyakozawa, L. Chen, F. Matsukura, and H. Ohno
Effect of Li codoping on in-plane uniaxial magnetic anisotropy in (Ga,Mn)As
17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, July 26-31, Sendai International Center (accepted).

〔図書〕（計　０件）

〔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　　件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等
http://www.ohno.riec.tohoku.ac.jp

６．研究組織

(1)研究代表者
松倉　文礼　(MATSUKURA, FUMIHIRO)
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・教授
研究者番号：50261574

(2)研究分担者
(　　　)

研究者番号：

(3)連携研究者
(　　　)

研究者番号：