

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25年4月15日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010年度～2012年度

課題番号：22360020

研究課題名（和文）Mn-GaAs系二次元構造制御による新奇強磁性物質の創製と磁性発現機構の解明

研究課題名（和文）Development of the novel ferromagnetic materials by the two-dimensional structure control and clarification of the mechanism of the ferromagnetism for Mn-GaAs

研究代表者

中村 淳 (NAKAMURA JUN)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・教授

研究者番号：50277836

研究成果の概要（和文）：原子レベル結晶成長技術と精緻な第一原理電子状態計算を駆使し、GaAs表面におけるMnの成長素過程を詳細に明らかにした。最表面に吸着したMn原子は、As-rich条件下においては表面第二層のGa原子位置を優先的に置換し、表面のAsが少ない条件では格子間位置に組み込まれることが明らかとなった。希薄磁性半導体薄膜を実現するためには、Gaを優先的に置換する必要がある、本研究により、その必要条件が示された。

研究成果の概要（英文）：A combined experimental and theoretical study on the incorporation of Mn in GaAs has been presented. We have successfully controlled the location of Mn atoms at GaAs(001) surfaces by changing the surface atomic geometry. While Mn atoms prefer to substitute Ga sites at a subsurface layer under the As-rich conditions, the incorporation into interstitial sites becomes more favorable as the surface As coverage is decreased. The present results provide a mechanism for the enhanced incorporation of substitutional Mn atoms in GaMnAs under low-temperature (i.e., As-rich) growth conditions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	5,800,000	1,740,000	7,540,000
2011年度	7,700,000	2,310,000	10,010,000
2012年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
総計	15,000,000	4,500,000	19,500,000

研究分野：表面界面物理学、計算物理学、デバイス工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：III-V族化合物半導体表面、初期吸着構造、第一原理計算、電子回折法、強磁性

1. 研究開始当初の背景

電子の電荷とスピンをデバイスに利用する分野—スピントロニクス—においては、半導体材料と磁性体材料を融合した新しい材料開発が必要とされている。近年、既存半導体デバイスのアナロジーから、金属/酸

化物絶縁体/半導体 (Metal-Oxide-Semiconductor; MOS) 構造をもつ電界効果トランジスタ (Field-Effect-Transistor; FET) の電極部にハーフメタリック強磁性体 (少数スピン電子状態は半導体的、多数スピン電子状態は金属

的な性質を持つ物質) を利用した、スピ
ンMOSFET デバイスが提案されている。こ
うしたスピントロニクス新デバイスにお
いては、室温で強磁性を維持できる理
想的なハーフメタリック強磁性体の開
発が必須である。こうした材料の有
力な候補の一つが希薄磁性半導体
であり、半導体に磁性不純物を添
加して作製される。近年、最も勢
力的に研究が進んでいるのが、GaAs
など III-V 族化合物半導体のホ
スト材料に、遷移金属元素をドー
パントとして導入し、不飽和の d
電子をスピン偏極させた系である。

一方、Mn-Mn 間の局所的な相互作
用の機構解明に向けた原子レベル研
究も、ごく最近始まっている。走査
トンネル顕微鏡の探針を用いたア
トムマニピュレーション技術によ
り、GaAs(110)表面上で Ga 原子
を置換した Mn 原子対を作製し、そ
の局所的な走査トンネル分光測定
が行われている。この実験により、
基板のホール状態を介して Mn 原
子コアの 3d 電子間に強磁性結合
が生じていることが実証されている。

こうした背景に基づき、研究代表
者ら(電通大)は、GaAs(110)表面
上の Ga 置換 Mn 原子が 1 列に並
んだ構造を考え、その電子・スピン
状態をスピン密度汎関数理論に基
づく第一原理計算を用いて詳細に
評価した。その結果、(1) <110>
配向の Mn 原子鎖は他配向の原子
鎖に比べて構造的に安定であり、
Mn 原子あたり 4.0 μ B もの磁気
双極子モーメントを持つ強磁性状
態が基底状態となること、(2) Mn
原子間スピン結合は極めて異方的
、すなわちスピン結合は<110>
方向には大きい<001>方向には
際めて小さくなること、(3) <110>
配向の Mn 原子鎖のバンド構造も
極めて異方的な電子状態(1次元
ハーフメタリック状態)を持つこ
と、などがわかった。さらに重要
な知見として、我々は、GaAs(110)
表面上<110>Mn 原子鎖のハーフ
メタリック状態は Mn 原子鎖近傍
に空間的に局在し、Mn-3d 軌道
と GaAs 基板表面の「表面状態」
間 p-d 混成軌道で構成されている
ことを明らかにした。つまり、従
来の研究で理解されていた GaAs
バルク中の Mn-Mn 相互作用とは
異なり、Mn の低次元表面配列構
造においては、GaAs 表面状態を
介した Mn-3d 軌道間の二重交換
相互作用により強磁性状態が発
現するのである。こうした強磁性
発現には Mn の吸着位置が格子
間サイトではなく Ga 置換サイト
であることが本質的に重要である。

2. 研究の目的

本研究は、化合物半導体であり希
薄磁性半導体のホスト材料として
最も注目・利用されている GaAs
に、低次元の Mn ドープ構造を導
入することにより新奇強磁性物質
を創製するとともに、理論計算手
法を駆使し、そ

の強磁性発現機構解明を目論むも
のである。ごく最近、研究代表者
らのグループは、GaAs(110)表面
上の Mn-Mn 相互作用は、表面固
有の 2次元電子状態を介すること
で、バルク GaAs 中に比べて飛
躍的に大きな強磁性結合強度が発
現することを見出した。この予備
知見を活かし、2次元電子状態を
利用した新奇強磁性半導体材料
の設計・作製を進めることが目的
である。第一原理計算手法を駆使
した物質設計(研究代表者)と、
最先端の分子線エピタキシー技術
により Mn 配列構造を制御し望
みの物質を創製する実験研究(研
究分担者)のコラボレーションに
より、原子レベルで制御された
2次元系強磁性半導体物質の設
計・作製指針を確立する。

3. 研究の方法

研究代表者は精緻な第一原理理
論計算手法を用いて物質設計なら
びに理論検討を、研究分担者は
複合・表面界面分析装置により、
Mn ドープされた種々の GaAs 2
次元構造の作製・制御・評価を行
った。対象としては、我々の予備
計算ですでに特異なハーフメタ
リック特性を示すことが理論予
測されている GaAs(110)表面
上の 1次元/2次元 Mn 配列構
造の作製、原子配列評価から始
め、GaAs(001)表面上の Mn 吸
着素過程と構造解析、それらの
熱力学的安定性、構造制御の可
能性を原子レベルで実験・理論
の両面から評価した。

理論計算は電気通信大学が担
当し、研究室所有のワークステー
ションを利用し、第一原理計算を
実行した。実験は物質・材料研
究機構に所有する、超高真空チェ
ンバー内でその場観察可能な複
合装置(電子回折、電子分光、
操作トンネル顕微鏡、蒸着装置
等を装備)を用いて、原子レベル
の吸着実験を実施した。

4. 研究成果

GaAs(110)-(1x1)再構成表面
の Ga-As 二量体中の Ga 原子を
Mn 原子で置換すると、基板の
表面状態を介して、隣接する Mn
原子同士が強磁性的相互作用を
する。(1) <110>配向の Mn 原
子鎖は他配向の原子鎖に比べて
構造的に安定であり、Mn 原子
あたり 4.0 μ B もの磁気双極子
モーメントを持つ強磁性状態が
基底状態となること、(2) Mn
原子間スピン結合は極めて異
方的、すなわちスピン結合は
<110>方向には大きい<001>
方向には際めて小さくなること、
(3) <110>配向の Mn 原子鎖
のバンド構造も極めて異方的な
電子状態(1次元ハーフメタリ
ック状態)を持つこと、などは
すでに我々の先行研究(Hirayama
and Nakamura et al., J.Vac.Sci.
Technol.B 27, 2062 (2009);
Virtual Journal of Nanotechnology
にも Editorial Choice で採択;
他)でも明らかに

なっていたが、さらに本基盤研究課題を通して、こうした特異な Mn-Mn 間相互作用は、特殊な 1 次元構造のみならず、実験的に作製が容易な、2 次元 Mn 超薄膜においても出現すること、GaAs(110)表面上<110>Mn 原子鎖のハーフメタリック状態は Mn 原子鎖近傍に空間的に局在し、Mn-3d 軌道と GaAs 基板表面の「表面状態」間 p-d 混成軌道で構成されていることなどを明らかにした (Hirayama, Natori, and Nakamura, Phys.Rev.B 87, 075428 (2013))。また、GaAs(001)表面上の Mn 吸着構造については、これまで well-defined な構造解析は皆無に等しかったが、我々の研究により、As 分子線圧、基板温度、Mn 吸着量に応じて、極めて精緻な吸着構造の相図を作成することに成功した。これにより、少なくとも GaAs(001)表面上においては望みの構造を得る実験的な指針が確立したと言える。その中でも、Mn 0.25 原子層吸着時に現れる(2x2)-Mn 吸着構造については、実験と理論の協同により、確定的な原子配列モデルを提案することができた。この表面構造では Ga-As 二量体が特徴的な配列構造をとるが、構造安定化メカニズムの支配的要因は、表面二量体間の静電的相互作用であることが、実験結果と第一原理電子状態計算の対応から明らかとなった。また、さらに、最表面に吸着した Mn 原子は、As-rich 条件下においては表面第二層の Ga 原子位置を優先的に置換するが、表面の As が少ない条件では格子間位置に組み込まれることが明らかとなった。希薄磁性半導体薄膜を実現するためには、Mn 原子は優先的に Ga 原子を置換する必要がある、As-rich 条件下において、こうした希薄磁性半導体作製の必要条件を満たすことが明らかとなった (Ohtake, Hagiwara, and Nakamura, Phys.Rev.B 87, 165301 (2013))。このように、原子レベルで制御された結晶成長を詳細に調べることで、希薄磁性半導体薄膜として機能する材料開発に向けて、重要な知見を抽出することができた。今後は、吸着過程続く結晶成長条件のさらなる素過程解明に向かって研究が進むであろう。

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 2 件)

① Akihiro Ohtake, Atsushi Hagiwara, and Jun Nakamura: Controlled incorporation of Mn in GaAs: Role of surface reconstructions, Physical Review B 87, 165301 (1-5) 2013 (査読有)

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.165301

② Motoi Hirayama, Akiko Natori, and Jun

Nakamura: Magnetic properties of a single molecular layer of MnAs on GaAs(110), Physical Review B 87, 075428 (1-6) 2013 (査読有)

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.075428

[学会発表] (計 9 件)

① 加来滋、中村淳、吉野淳二: STM 測定と第一原理計算による GaAs-c(4×4) α, β の電子構造解析、第 60 回応用物理学会春季学術講演会、2013 年 3 月 29 日、厚木

② Kazuya Okukita, Atsushi Hagiwara, Akihiro Ohtake, and Jun Nakamura: Incorporation of Cr or Mn at the GaAs(001)-c(4x4)a surface, 40th Conference on the Physics & Chemistry of Surfaces & Interfaces (PCSI-41), Jan.21, 2013, Hawaii, USA.

③ Kazuya Okukita and Jun Nakamura: Structural stability and electronic states of Cr or Mn on GaAs(001)-c(4x4), The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2012), Sep.27, 2012, Nara.

④ Akihiro Ohtake: Initial stage of heteroepitaxy on GaAs(001): adsorbate-induced surface reconstructions, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2012), Sep.24, 2012, Nara. (招待講演)

⑤ Atsushi Hagiwara, Akihiro Ohtake, and Jun Nakamura: Atomic Arrangements and structural stability of the Mn adsorbed GaAs(001) surfaces, American Vacuum Society 59th International Symposium & Exhibition (AVS-59), Oct.30, 2012, Tampa, USA.

⑥ 大竹晃浩、萩原敦、中村淳: Mn 吸着 GaAs(001)表面の原子配列、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 14 日、松山

⑦ 菅野雄介、大竹晃浩、平山基、中村淳: GaAs(001)-(2x2)Mn 表面の原子配列と電子状態評価、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 23 日、富山

⑧ Akihiro Ohtake, Motoi Hirayama, Yusuke Kanno, and Jun Nakamura: Mn-induced surface reconstructions on GaAs(001), 38th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS-38), May 3, 2011, Berlin, Germany.

⑨ 菅野雄介、大竹晃浩、中村淳: Mn 吸着(2x2)-GaAs(001)表面構造および電子状態、日本物理学会第 67 回年次大会、2011 年 3 月 26 日、西宮

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 淳 (NAKAMURA JUN)
電気通信大学・大学院情報理工学研究科・
教授
研究者番号：50277836

(2) 研究分担者

大竹 晃浩 (OHTAKE AKIHIRO)
物質・材料研究機構量子ドットセンター・
主幹研究員
研究者番号：30267398