

## 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 05 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760225

研究課題名（和文）閃亜鉛鉱型 MnAs 強磁性ナノ微粒子を用いたスピン起電力デバイスの研究

研究課題名（英文）Spin motive-force device with zinc-blende MnAs nanoparticles

研究代表者

ファム ナム ハイ（PHAM NAM HAI）

東京大学・大学院工学系研究科・特任助教

研究者番号：50571717

研究成果の概要（和文）：本研究では半導体スピントロニクスの実用に向けた GaAs 半導体中に分散している MnAs 微粒子の作製技術を確認するとともに、MnAs 微粒子を含む磁気トンネル接合および単電子スピントランジスタを作製し、それらのデバイスにおけるスピン依存伝導特性の評価を行った。その結果：(1) 相分離ダイアグラムにおけるスピノーダル分解によるバラツキの少ない MnAs 微粒子の作製技術を確認できた。(2) 単電子スピントランジスタにおけるスピン蓄積と長いスピン緩和時間を実現した。(3) 非磁性電極と MnAs 微粒子を含む二重トンネル接合における磁気抵抗効果とその起源を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：We aimed at the development of fabrication technology of homogeneous ferromagnetic MnAs nanoparticles embedded in a GaAs matrix for semiconductor spintronic applications. We successfully developed (1) the spinodal decomposition technique using the phase decomposition diagram for fabrication of homogenous MnAs nanoparticles. Using this technique, we successfully fabricated (2) single electron transistors with strong spin accumulation and long spin relaxation time, and (3) double barrier tunnel junctions with zinc-blended MnAs nanoparticles and non-magnetic electrodes with magnetoresistance enhanced by in-elastic co-tunneling.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：薄膜・量子構造

## 1. 研究開始当初の背景

近年、半導体中の電子の電荷制御に加え、電子のスピン自由度を取り入れて、新しい機能デバイスを実現しようとする半導体スピントロニクスの研究が盛んに行われている。電子のスピン自由度を半導体中で用いるために、最も重要な課題は次の三つである：1)

半導体にスピンを注入すること、2) 半導体中のスピンを制御すること、3) そのスピンを検出すること。上記の 1) と 3) を実現するには、半導体と整合性が良い強磁性半導体が世界的に研究されている。しかし、強磁性半導体のキュリー温度が室温よりかなり低いため、現状では実用に向かない。その理由は強磁性

半導体の固溶限界を超え、大量の磁性原子を均一に導入できないことにある。強磁性半導体の他に、キュリー温度が高い強磁性金属を半導体基板の上に成長しようという研究も行われている。たとえば、GaAs と Si 基板上に Fe, Co, MnAs などの強磁性金属薄膜のエピタキシャル結晶成長が試みられる。しかし、一般に強磁性金属の結晶構造は半導体の結晶構造と異なるため、強磁性金属/半導体/強磁性金属という多層構造のエピタキシャル成長は極めて難しい。従って、強磁性金属を利用して、実用的なレベルまで 1) スピン注入と 3) のスピン検出を同時に実現することが難しい。

## 2. 研究の目的

以上の状況を打開するために、本研究では自己形成の「強磁性ナノ微粒子」を含む半導体材料、具体的に GaAs 半導体中に閃亜鉛鉱型 MnAs 強磁性ナノ微粒子が分布するグラニュー材料に着目する。この材料系は強磁性半導体や磁性金属/半導体ハイブリッド構造よりも次の点で優れている。

・ **スピン起電力と巨大磁気抵抗効果の発生** : MnAs 強磁性ナノ微粒子の磁化量子トンネルの際、微粒子磁気エネルギーを電気エネルギーに変換することによって、静磁場において起電力を発生することができる。また、それと伴う巨大な磁気抵抗効果が得られる。これらの効果を利用することによって、高機能なスピン起電力デバイス（超高感度の磁気センサーとスピン電池）を実現できる。

・ **室温動作可能** : 閃亜鉛鉱型 MnAs 強磁性ナノ微粒子では固溶限界を超えた 100% の Mn を Ga サイトに置換できるため、微粒子サイズが 2-3nm と小さいにも関わらず、室温で強磁性を示す。これにより室温動作可能なデバイスを作製できる。

・ **半導体との整合性が良い** : III-V 族半導体ヘテロ構造の作製が容易である。これにより、既存の半導体エピタキシャル成長技術を用いて、様々なデバイス構造を容易にエピタキシャル成長できる。

・ **超高密度のスピン起電力デバイスが作製可能** : 閃亜鉛鉱型 MnAs 強磁性ナノ微粒子のサイズが 2-3 nm 程度と小さいため、Terabit/inch<sup>2</sup> に達した超高密度なスピン起電力デバイスが作製できる。

従って、グラニュー材料は強磁性半導体を持つ「半導体との良好な整合性」と強磁性金属を持つ「高いキュリー温度」を持ち合わせる材料だけでなく、それらの材料の特性を大幅に改善する可能性を秘めている。本研究では、次のように具体的な目標を設定する。  
☆ GaAs 半導体中に分布する閃亜鉛鉱型 MnAs 微粒子の形成過程を制御し、微粒子の大きさと分布を均一になるように工学的に

制御する方法を開発する。

☆ 閃亜鉛鉱型 MnAs 強磁性ナノ微粒子を含む磁気トンネル接合を作製し、スピン起電力効果および巨大な磁気抵抗効果を観測する。その起源を明らかにして、それらの効果を制御し、室温動作とデバイス化を実現する

## 3. 研究の方法

### ◆ 分子線エピタキシー法による結晶成長

分子線エピタキシー装置 (MBE) を用いて、非平衡状態で Mn を GaAs 半導体にドーピングし、混晶膜 GaMnAs を成長する。GaMnAs 混晶膜を 480°C と高温で熱処理することによって、強磁性ナノ構造を自己形成させる。この時に、バラツキが少ない均一な強磁性ナノ微粒子を作製するために、次のように工夫を行う。

### ・ 相分離ダイアグラムによるスピノーダル分解の制御

事前に GaMnAs の熱力学的な自由エネルギー関数を測定することによって、混晶膜の相分離ダイアグラムを決定する。この相分離ダイアグラムを用いて、スピノーダル分解が起こるように、磁性原子の濃度および熱処理温度を選択する。スピノーダル分解を利用することによって、バラツキが少ない均一な強磁性ナノ MnAs 微粒子を作製できる。

### ◆ 半導体ナノプロセスによるデバイス作製と特性評価

MBE や電子線真空蒸着法を用いて、トンネル障壁や電極など、強磁性ナノ MnAs 微粒子を含む磁気トンネル構造を作製する。これらの構造を半導体ナノプロセスを用いて、メモリ素子や単電子スピントランジスタ素子を作製する。これらのデバイスにおけるスピン起電力効果、磁気抵抗効果、スピン蓄積効果やスピン緩和時間を評価する。さらに、これらの効果の起源を明らかにする。

## 4. 研究成果

### 4.1. バラツキが少ない微粒子の作製に向けた強磁性半導体の相分離ダイアグラムの研究

格子モデルを用いて強磁性半導体の相分離ダイアグラムの測定方法を提案し、実際に GaMnAs に応用することによって、GaAs 格子中の Mn 原子の相分離ダイアグラムの測定に成功した (図 1a)。その結果、相分離エネルギーの実験値が分かり、第一原理計算による計算値とよく一致したことが分かった。さらに、このダイアグラムを用いて、粒子サイズと粒子間隔が均一な MnAs 微粒子の作製に成功した (図 1b)。これによって、バラツキの少ない微粒子の作製方法を確立できた。また、同様な方法を Ge 結晶構造中に形成された GeMn ナノコラムにも応用できることが分か

った。従って、本研究によって得られた手法は幅広い半導体：強磁性ナノ構造に応用できることを示すことができた。  
 発表論文：J. Appl. Phys. 109, 073919 (2011), J. Appl. Phys. 110, 073903 (2011).

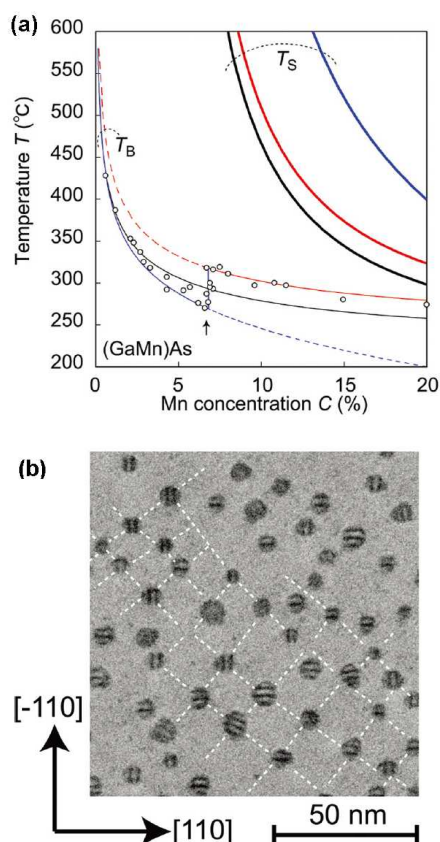


図1. (a) GaMnAsにおける相分離ダイアグラムの測定結果。 $T_B$ と $T_S$ はそれぞれバイノーダルとスピノーダル分解の曲線。(b) スピノーダル分解による微粒子の作製例。微粒子が正方格子のように並ぶことが分かる[J. Appl. Phys. 109, 073919 (2011)]。

#### 4.2. MnAs 微粒子を有した単電子スピントランジスタの作製とスピン緩和時間の観測

MBE 結晶成長技術と半導体ナノプロセス技術を駆使して、単一 MnAs 微粒子を含んだ単電子スピントランジスタの作製に成功した(図 2a,b)。素子のトンネル磁気抵抗 (TMR) 比のバイアス依存性を調べたところ、TMR 比がバイアスに対して振動する現象を観測した(図 2c)。スピン蓄積を考量した Self-consistent の数値計算によって、微粒子のスピン緩和時間が  $10\mu\text{s}$  と長いことが分かった。この値は今まで報告された金属微粒子のスピン緩和時間として最も長く、最近に報告された Co 微粒子のスピン緩和時間より 2 桁(約 100 倍)、バルクの金属よりも 7 桁(10,000,000 倍)である。この長いスピン緩和時間が微粒子の量子サイズ効果によって説明できた。この成果は次世代の超高密度と

超低消費電力の磁気メモリおよび再構成可能な論理回路の応用につながると期待される。  
 発表論文：Nature Nanotechnology 5, 593-596 (2010).

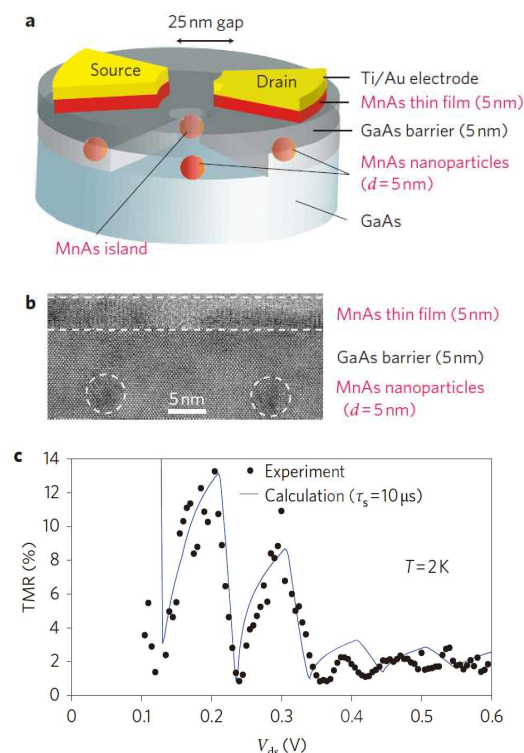


図 2. (a) 強磁性 MnAs 微粒子を含む単電子スピントランジスタ構造と (b) GaAs 中に埋め込まれた MnAs ナノ微粒子の透過型電子顕微鏡像。(c) 単電子輸送とスピン蓄積による TMR 振動。この振動からスピン緩和時間が  $10\mu\text{s}$  と見積もった。この値は金属微粒子においてもっとも長い値である [Nature Nanotechnology 5, 593-596 (2010)]。

#### 4.3. 非磁性電極・MnAs 微粒子・非常性電極の二重トンネル接合における磁気抵抗効果

閃亜鉛鉱型 MnAs 微粒子を含む二重トンネル接合を作製し、上部と下部の電極が非磁性であるにもかかわらず、二重トンネル接合の数%の磁気抵抗効果を観測した。この磁気抵抗効果の温度依存性は微粒子を介したコトunnelと明瞭な相関があるため、微粒子のコトunnel過程と関係があることを示した。  
 発表論文：J. Appl. Phys. 111, 063716 (2012).

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

1) 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).

2) P. N. Hai, S. Ohya and M. Tanaka, “Long spin-relaxation time in a single metal nanoparticle”, Nature Nanotechnology 5, 593-596 (2010).

3) P. N. Hai, S. Yada and M. Tanaka, “Phase decomposition diagram of magnetic alloy semiconductor”, J. Appl. Phys. 109, 073919 (2011)

4) S. Yada, P. N. Hai, S. Sugahara, M. Tanaka, “Structural and magnetic properties of Ge<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub> thin films grown on Ge (001) substrates”, J. Appl. Phys. 110, 073903 (2011).

5) R. Akiyama, S. Ohya, P. N. Hai, and M. Tanaka, “Magnetoresistance enhanced by inelastic cotunneling in a ferromagnetic MnAs nanoparticle sandwiched by nonmagnetic electrodes”, J. Appl. Phys. 111, 063716 (2012).

〔学会発表〕 (計 40 件)

招待講演 (計 9 件)

1) P. N. Hai, 2010 APS Annual March Meeting; L36.00010; “Electromotive force and huge magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with zinc-blende MnAs nano-magnets”; Portland, Oregon, USA, March 15-19, 2010.

2) 大矢 忍, 宗田伊理也, フナム ハイ, 高田健太, 田中雅明; 2010 年春季第 57 回応用物理学関係連合講演会のシンポジウム「スピントロニクスデバイスの新展開」; 18p-ZJ-8; “強磁性半導体 GaMnAs ヘテロ構造におけるスピン依存伝導”; 東海大学, 2010 年 3 月 17 日.

3) P. N. Hai, R. Akiyama, S. Ohya and M. Tanaka; The 37<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors; TuD3-1; “Electromotive force and huge magnetoresistance induced by zinc-blende MnAs nanomagnets”; Takamatsu, Kagawa, Japan, May 31-June 4, 2010.

4) P. N. Hai and M. Tanaka; Solid State Systems Symposium (4S-2010); 4S-2010-16; “Emerging semiconductor spintronic devices and materials”; Hochiminh city, Vietnam, June 17-18.

5) M. Tanaka, P. N. Hai, I. Muneta, and S. Ohya (invited), Sweden-Japan Workshop on Quantum Nanoelectronics (QNANO 2011), “III-V based magnetic heterostructures and nanostructures: Bandstructure, spin dependent tunneling, and magnetoresistance”, Visby, Sweden, June 12-14, 2011.

6) S. Ohya, K. Takata, I. Muneta, P. N. Hai, Y. Xin, M. Tanaka; 5<sup>th</sup> International Workshop on Spin Currents; AP-6; “Valence-band structure of the ferromagnetic semiconductor GaMnAs”,

Sendai, Miyaghi, Japan, July 25 - 28, 2011.

7) S. Ohya, I. Muneta, K. Takata, Y. Xin, P. N. Hai, and M. Tanaka, Joint Polish- Japanese Workshop “Spintronics - from new materials to applications”, “Valence-band structure of (III,Mn)As ferromagnetic semiconductors”, Warsaw, Poland, 15-18 November 2011.

8) P. N. Hai and M. Tanaka, 3rd International Workshop on Nanotechnology and application (IWNA 2011), “Top-down and bottom-up fabrication of nano-scale spintronic devices and their spin-dependent transport characteristics”, Vietnam National University, Ho Chi Minh City, Vietnam, November 10-12, 2011.

9) M. Tanaka, P. N. Hai, and L. D. Anh, “A new Fe-based n-type electron- induced ferromagnetic semiconductor: (In,Fe)As”, 2nd International Workshop on Magnetic Materials and Nanostructures, Tokai, Japan, January 10-13, 2012.

国際学会発表 (計 18 件)

1) P. N. Hai, M. Tanaka; Joint Japan/Australia Workshop on Frontier Photonics and Electronics; 4-4; “Spinmotive force in magnetic tunnel junction”; University of New SouthWale, Sydney, Australia, March 4-5, 2010.

2) S. Ohya, I. Muneta, P. N. Hai, M. Tanaka; 2010 APS Annual March Meeting; P35.00008; “Investigation on the valence-band structure of ferromagnetic-semiconductor GaMnAs using spin-dependent resonant tunneling spectroscopy”; Portland, Oregon, USA, March 15-19, 2010.

3) S. Ohya, I. Muneta, P. N. Hai, M. Tanaka; The 6th International Conference on Physics and Applications of Spin Related Phenomena in Semiconductors (PASPS6); F-1; “Fermi level position and valence band structure in GaMnAs studied by spin-dependent resonant tunneling spectroscopy”; Tokyo, Japan, August 1-4, 2010.

4) P. N. Hai, S. Ohya, M. Tanaka; The 6th International Conference on Physics and Applications of Spin Related Phenomena in Semiconductors (PASPS6); G-4; “Spin-dependent transport and long spin-relaxation time in a hexagonal MnAs nanoparticle”; Tokyo, Japan, August 1-4, 2010.

5) P. N. Hai; University of Wurzburg - University of Tokyo Joint Workshop on Advances in Nanophotonics and Spintronics; “Spin-dependent transport in a single-electron spin transistor”; Wurzburg, Germany, October, 4-5, 2010.

6) P. N. Hai, S. Ohya, M. Tanaka; 55th Magnetism and Magnetic Materials Conference; “Long spin-relaxation time (10μs) in a single ferro magnetic-metal MnAs nanoparticle”;

FE-05; Atlanta, Georgia, USA, November, 14-18, 2010.

7) R. Akiyama, S. Ohya, P. N. Hai, M. Tanaka; 2011 APS Annual March Meeting; "Magnetoresistance due to inelastic spin-flip cotunneling within Coulomb blockade regime in III-V semiconductor / MnAs nanoparticle heterostructures"; T15.00008; Dallas, Texas, USA, March 21-25, 2011.

8) L. D. Anh, P. N. Hai, M. Tanaka; 5th International Workshop on Spin Currents; P1-30; "A new Fe-based n-type ferromagnetic semiconductor", Sendai, Miyagi, Japan, July 25 - 28, 2011.

9) R. Akiyama, S. Ohya, P. N. Hai, and M. Tanaka; 6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH6); WP-15; "Magnetoresistance induced by spin-dependent inelastic cotunneling in a ferromagnetic MnAs nanoparticle with non-magnetic electrodes", Matsue, Shimane, Japan, August 1-5, 2011.

10) P. N. Hai, L. D. Anh, and M. Tanaka; 6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH6); FP-27; "A new Fe-based n-type ferromagnetic semiconductor (In,Fe)As", Matsue, Shimane, Japan, August 1-5, 2011.

11) L. D. Anh, P. N. Hai, and M. Tanaka; 6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH6); FP-28; "Correlation between magnetic circular dichroism, anomalous Hall effect and magnetization in (In,Fe)As", Matsue, Shimane, Japan, August 1-5, 2011.

12) P. N. Hai, L. D. Anh and M. Tanaka; 56th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference; DF-03; "(In,Fe)As: A new Fe-based n-type electron-induced ferromagnetic semiconductor", Scottsdale, Arizona, USA, October 30 - November 3, 2011.

13) L. D. Anh, P. N. Hai and M. Tanaka; 56th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference; DF-11; "Intrinsic ferromagnetism in (In,Fe)As and its dependence on Fe concentration", Scottsdale, Arizona, USA, October 30 - November 3, 2011.

14) L. D. Anh, P. N. Hai, and M. Tanaka, "Properties of n-type ferromagnetic semiconductor (In,Fe)As: Fe concentration and thickness dependence", 2nd International Workshop on Magnetic Materials and Nanostructures, Tokai, Japan, January 10-13, 2012.

15) M. Tanaka, S. Oyha, R. Nakane, P. N. Hai, S. Yada, R. Akiyama, Y. Ban, S. Sato, I. Muneta, R.

Okazaki, and L. D. Anh, "Spintronics: Materials and Devices: A New Spin on Semiconductors - Spintronics Research Opens the Way to New Semiconductor Technology", International Symposium on Secure-Life Electronics, Takeda Hall, University of Tokyo, January 17-18, 2012.

16) M. Tanaka, P. N. Hai, L. D. Anh, S. Mohan, and T. Tamegai, "Spintronics: Materials and Devices", International Symposium on Secure-Life Electronics, Takeda Hall, University of Tokyo, January 17-18, 2012.

17) P. N. Hai, L. D. Anh and M. Tanaka, "N-type electron-induced ferromagnetic semiconductor with tetrahedral Fe-As bonding", International Symposium on Secure-Life Electronics, Takeda Hall, 4-7, University of Tokyo, January 17-18, 2012.

18) P. N. Hai, L. D. Anh and M. Tanaka, "Intrinsic ferromagnetism in (In,Fe)As and its dependence on Fe concentration", International Symposium on Secure-Life Electronics, Takeda Hall, B-7, University of Tokyo, January 17-18, 2012.

その他に国内学会発表は 13 件ある。

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称: 磁気-電気のエネルギー変換装置、起電力発生装置、および磁気センサー装置  
発明者: ファムナムハイ、大矢忍、田中雅明、Stewart E. Barnes、前川禎通

権利者: 東京大学

種類: 特許

番号: 61/158128

出願年月日: 2009年3月7日

国内外の別: 国内および PCT 特許仮出願 (出願番号 61/158128)

○取得状況 (計 1 件)

名称: 論理回路および単電子スピントランジスタ

発明者: ファムナムハイ、菅原聡、田中雅明

権利者: 科学技術振興機構

種類: 特許

番号: 特許第 4574675 号

取得年月日: 2010年8月27日

国内外の別: 国内および米国

〔その他〕

ホームページと新聞報道

1) The Japan Journal, January 2010, p.31. Breakthrough - A New Principle of "Electromotive Force". A joint Japan-U.S.

research team has found that, contrary to conventional wisdom, an electromotive force can be induced by a static magnetic field in circuits that contain ferromagnetic materials.

2) 東京大学よりプレスリリース、2010年7月5日「金属ナノ微粒子における長いスピンの緩和時間を観測」

<http://www.u-tokyo.ac.jp/public/pdf/220705.pdf>

3) 日刊工業新聞、2010年7月12日掲載「東大、金属ナノ微粒子で10マイクロ秒と世界最長の「スピン緩和時間」観測」

<http://www.nikkan.co.jp/news/nkx0720100712eaac.html>

4) 日経プレスリリース、2010年7月5日「東大、金属ナノ微粒子における長いスピンの緩和時間を観測」

<http://release.nikkei.co.jp/detail.cfm?relID=255610>

5) Nanotech Japan 2010.7.20「金属ナノ微粒子における長いスピンの緩和時間を観測」

[https://nanonet.nims.go.jp/modules/news/article.php?a\\_id=872](https://nanonet.nims.go.jp/modules/news/article.php?a_id=872)

6) マイコミジャーナル 2010/07/07「東大、金属ナノ微粒子で10 $\mu$ sのスピン緩和時間の観測に成功」

<http://journal.mycom.co.jp/news/2010/07/07/002/index.html>

7) アクティブサイエンスレビュー 2010年7月15日「東大、金属ナノ微粒子で10マイクロ秒と世界最長の「スピン緩和時間」観測」

<http://sci-review.activeray-sci.com/?eid=1597786>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

フナム ハイ (PHAM NAM HAI)

東京大学・大学院工学系研究科・特任助教  
研究者番号：50571717

### (2) 研究分担者

### (3) 連携研究者