

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760006

研究課題名(和文) スピン偏極弾道電子放出顕微鏡による(GaMn)As電子構造と強磁性発現機構の解明

研究課題名(英文) Study of electronic structure of GaMnAs with spin-BEEM

研究代表者

加来 滋(Kaku, Shigeru)

東京工業大学・理工学研究科・助教

研究者番号：80583137

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：磁性半導体が磁石の特性を持つ理由を、代表的な物質であるGaMnAsにおいて調べることを目的とした。特に、原子が見えるくらいのナノメートルスケールでその物理を解明するための実験システムの開発と測定を試みた。微弱な特性の違いを検出できるように高精度の顕微鏡(BEEM)を使った測定系を開発した。これにより量子井戸1MLの厚みの違いによる電子状態のわずかな違いを検出できた。さらに、この手法をGaMnAsに適用するため、適切な人工超格子の構造と結晶成長条件を調べた。目的のGaMnAsの部分の情報だけを抽出できるように、現在実験計算両面でさらなる検討を行っている。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify the mechanism of ferromagnetism of diluted magnetic semiconductor, we tried to measure the electronic structure of GaMnAs which is prototype ferromagnetic semiconductor by the microscopic method such as STM and BEEM. We developed high-resolution BEEM system. I could measure the subtle signal which shows the difference of 1ML quantum well width. Furthermore, the most suitable super-lattice structure and crystal growth method had been investigated.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 希薄磁性半導体 プローブ顕微鏡 ナノ

1. 研究開始当初の背景

従来のエレクトロニクスは、主に半導体中の電子の電荷の部分を利用していましたが、近年、電子の持つ電荷とスピンの自由度の両方を利用するスピントロニクスが注目されている。中でも、希薄磁性半導体材料は磁性体と半導体の両方の性質を持ち、既存の半導体産業技術と整合性の良い材料として期待されている。

希薄磁性半導体の応用上の重要な課題として、室温より十分高い強磁性相転移温度(T_c)が得られていないことが挙げられる。そもそも、既存の希薄磁性半導体において、強磁性発現機構の統一見解が得られておらず、さらに、最も代表的な希薄磁性半導体である(Ga,Mn)Asの詳細な電子構造が未解明である。(Ga,Mn)As電子構造の理解は、既存材料の T_c 向上および新規高 T_c 材料設計のための指針を得る上で不可欠である。

2. 研究の目的

そのため、「高 T_c 磁性半導体材料の実現のために、(Ga,Mn)Asの電子構造の解明を通して強磁性発現機構を理解する」ことを目的とする。

3. 研究の方法

従来、(Ga,Mn)Asのフェルミレベル(E_F)は価電子帯中に位置し、Mnドーピングによる正孔とMnの局在 $3d$ 電子間の $p-d$ 交換相互作用による $p-d$ 交換分裂の結果として強磁性が安定すると説明されていた。しかし、最近 E_F が不純物帯に位置し、強磁性発現が2重交換相互作用によるとする結果も報告されている。さらに E_F は結晶内での不純物の不均一分布のために、一様に定義できないとする指摘もあり、統一見解に至っていない。

当研究室では、高 T_c の(Ga,Mn)Asを得るために、高濃度Mnドーピング結晶の成長過程を、STMを用いて調べてきた。特に、MBEによる結晶成長とSTMによる構造評価は複合研究となり技術的に難しいことから世界的にも余り進んでおらず、これまで我々のグループは、GaAs基板上の高濃度(Ga,Mn)Asの初期成長機構を解明する等、当該分野では先駆的に研究を行ってきた。最近では、スピン偏極STM(走査トンネル顕微鏡)や dI/dV 像測定による電子構造測定にも成功し、さらに発展した物性測定も可能となってきた。このため、原子分解能にスピン極性も含めて電子構造を測定できる利点を活かせば、希薄磁性半導体の電子構造の理解をさらに深められると考え、以下に示すような研究内容を着想した。

本研究では、STMの発展系である弾道電子放出顕微鏡(BEEM)を用いて、量子井戸内の離散化された(Ga,Mn)As電子準位の測定により、その電子構造と強磁性発現機構を調べる。

BEEMはSTM同様に原子分解能を持ち、探針バイアス極性に依りて探針から結晶内に弾道的に放出された電子または正孔のキャリアを利用して、ヘテロ構造内部の輸送特性を調べられる。(Ga,Mn)As量子井戸中には離散準位が生じ、空の準位と一致するエネルギーのキャリアだけが共鳴トンネル効果で通過して電流計で測定できるため、電圧-電流特性として電子構造を調べることができる。その中で、具体的には特に下記とを調べることで、強磁性発現機構を理解する。

E_F の位置(価電子帯 or 不純物帯)

$p-d$ 交換分裂の有無・定量測定

本研究では、BEEMのプロブとして磁性探針を用いることでスピン偏極BEEMを行い、スピンに依存した電子構造も調べる。さらに、液体He温度、液体 N_2 温度、室温での測定が可能であることから、 T_c 前後での電子構造変化も調べる。スピン偏極測定と T_c 前後での比較により $p-d$ 交換分裂について定量的な情報が得られると期待できる。加えて、電子構造はMn濃度により変化するため、Mn濃度特性測定からも有意な情報が得られると期待できる。

STMの応用であることからBEEMの試料面内の測定結果をマッピングでき、マクロ領域の平均としてではなく、電子構造の空間的な特性を原子分解能で定量評価可能である。

また、前述のように、スピン特性や温度特性、Mn濃度特性、量子井戸の膜厚特性などの複数の特性が一つの実験システム内で測定可能であることから、従来に無く総合的かつ定量的に(Ga,Mn)As電子構造の理解を提供できる。

そのため、本研究では既存のモデルの確認だけでなく、測定可能な限りにおいて、得られる情報は全て高精度に測定し、それらの結果から強磁性発現機構などの包括的な理解を得たい。

本研究では、試料の分子線エピタキシー法(MBE)での作成、磁性膜探針の作成、STM/BEEM測定が同一の真空システムで可能であり、真空を破らずに一連の実験を行った。

サンプルの表面に金属電極を作成し、探針と金属電極間に流れるトンネル電流(I_t)でSTMのフィードバック制御を行う。一方、探針からのキャリアの一部が弾道的に試料内部に侵入し、量子井戸を通過したもののだけが電流計(I_c)で検出される。また、STMシステムの測定では、ノイズや非本質的な信号が尤もらしい画像を作ることがある為、回路完成後にAu/GaAsやFe/GaAsにおけるショットキー障壁高さ等、既知の結果と同じ結果が得られることを確認し、BEEM測定の正しさを確認した。

初めに、磁性探針ではなく、一般的なタングステン(W)のSTM探針を使い、(Ga,Mn)Asの電子構造測定を行う。(Ga,Mn)Asの F が不純物帯に位置する場合は、不純物帯と価電子帯の両方の準位で弾道正孔が通過するが、 F が価電子帯に位置する場合には、不純物帯の準位を通過できないため電流として検出できない。この違いにより、 F が不純物帯と価電子帯のどちらに位置するのかを判断する。

さらに、10Kでの測定と、77Kまたは室温での測定の比較、すなわち T_c 前後を比較することで、強磁性相転移による電子構造の変化に注目する。特に、強磁性発現が $p-d$ 交換相互作用による場合は、 $p-d$ 交換分裂が確認できると予測される。逆に2重交換作用による場合は、不純物帯と価電子帯が分離しており、価電子帯中の電子構造はGaAs(Mn濃度ゼロ)の電子構造をほぼ維持していると予測される。

また、 $p-d$ 交換分裂はMn濃度の増加とともに大きくなるため、Mn濃度を変えて、定量的な変化を調べる。尚、Mn濃度によって強磁性発現のメカニズムが異なる場合などには、新規にその詳細な情報が得られることも期待できる。

温度特性とMn濃度特性を調べる際は、(Ga,Mn)Asの厚みを変えることで量子準位の深さを色々変えて、その変化特性を見ることで、BEEMで検出された電流がどの電子準位に対応するものなのかを判断するのに役立つ。

磁性探針を用いることで、針先のスピンの極性の違いにより、(Ga,Mn)AsのMajorityとminority準位を区別して測定し、 $p-d$ 交換分裂をより定量的に評価する。

4. 研究成果

- (1) 超高真空を破らずに一貫してメタル電極を作製するための蒸着機構と、蒸着源を超高真空を破らずに補充できるシステムの開発を行った。また、BEEM用のメタル電極蒸着のためのマスクも設置し、任意形状のマスクにいつでも交換できるような、可変システムを構築した。
- (2) BEEM回路自体も成功し、そのテストをGaAs(001)上のAuのサンプル系において行った。
- (3) GaMnAs量子井戸中の電子状態は強磁性相ではスピン分裂しており、これを分離して測定するために磁性探針を用いたスピン偏極STMが必要であり、スピンSTMの構築に成功した。一般的なW針にFeを蒸着することで、磁性探針wの作製した。針が磁性を持っていることを確認するために、テストサンプルとして層状

反強磁性のCr(001)膜を作製した。Cr(001)薄膜は、GaAs上のAu薄膜上に簡単に成長できるように結晶成長をプロセスを新たに開発し、簡単にSP-STM用の針のチェックを行えるシステムを開発できた。また、これらの過程で、Au上のCr薄膜成長過程に関する新しい知見が多く得られ、本研究の基板技術としても有意であると同時に、基礎物理的観点からも意義のある成果が得られた。これにより、スピン偏極STMの探針の磁性確認を行うことの手段を得た。これらにより、磁性針を使ったGaMnAsの電子構造の磁気的特性まで含めた測定が可能な準備を整えることができた。

- (4) 弾道電子顕微鏡を用いた、GaMnAsの強磁性層における電子構造解明を目的として、半導体超格子構造の作製、および表面ベース電極の形成、これらが可能な真空システムを開発、ならびに、その弾道電子顕微鏡による測定を行うことができた。具体的には、AlAs/GaAs/AlAsのヘテロ構造(量子井戸)に関しては、実際に弾道電子顕微鏡による局所的な量子準位電子構造の測定を行うことができた。Bell-Keiserの輸送原理を利用し、トランスフォーマトリックスメソッドによる計算から、膜厚の空間不均一性が1MLに対応する量子準位のずれが観察された。このために、10乗の電流電圧プリアンプを開発してシステムのS/N比を向上させた。弾道電子顕微鏡による測定では、最表面が原子レベルで平坦で無いと、その凹凸情報が、測定結果に影響を与えてしまうため、現在は平坦化の技術向上を課題としている。しかしながら、実際にヘテロ構造を作製し、コレクタ電流の空間不均一性まで検出できたことから、GaMnAsを井戸とする構造を測ることで、電子構造の評価が可能なところまで到達できたと考えている。また、これらの研究を通して、スピンSTM以外に、磁気的に電子構造を測定する手段として、スピンバルブ電極を用いることが有効であることも見出し、実際にFe/Au/Fe電極を作製可能なシステムを作製した。
- (5) また、測定手法としては、Spin-STM針を用いる方法よりもスピンバルブBEEMの方が適するという知見が得られた。また、実際にGaMnAsを含んだ超格子構造を作製し、ヘキ開面の断面STMにより、Mnの局所電子状態を調べた。これは、低濃度のMnの磁性に関する情報を得られる実験の基礎となるものであり、強磁性発現する高濃度GaMnAsの強磁性発現メカニズムの解明のためにも有用な情報となると考えている。更にGaMnAsのダブルレイヤー電極構造を用いたスピン

バルブ機構によるスピン注入が、BEEMで磁性を調べる上で有用である可能性を見出し、新たにプローブ顕微鏡によるドメイン観察。制御の技術の足がかりが得られたと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

Magnetic Anisotropy Constants and Anisotropic Magneto-Resistances in GaMnAs Depending on Layer Thickness
Daiki Nozaki, Shigeru Kaku, and Junji Yoshino 査読有
JPS Conf. Proc. 2, 010302 (2014)
<http://journals.jps.jp/doi/abs/10.7566/JSPSC.2.010302>

Origin of symmetric STM images for the asymmetric atomic configuration on GaAs(001)-c(4 × 4) surfaces
Shigeru Kaku, Jun Nakamura, Kazuma Yagyu, Junji Yoshino 査読有
Surface Science 625 (2014) 84-89
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0039602814000740#>

STM observation of MnAs initial growth surface on GaAs(001)-c(4 × 4) and (6 × 6) reconstructions
Masahiro Hiraoka, Shigeru Kaku, Junji Yoshino 査読有
Journal of Crystal Growth 378 (2013) 397-399
<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0022024812009682#>

Symmetric-asymmetric transformation of an image on GaAs(001)-c(4 × 4) α surface using scanning tunneling microscopy
Kazuma Yagyu, Shigeru Kaku and Junji Yoshino
査読有、J. Vac. Sci. Technol. A 30, 061403 (2012)
<http://scitation.aip.org/content/avs/journal/jvsta/30/6/10.1116/1.4754804>

〔学会発表〕(計24件)

第62回 応用物理学春季学術講演会 (2015年3月14日、東海大学、神奈川県)
GaAs中Mn不純物状態のSTM観察
津久井雅之、加来滋、吉野淳二

弾道電子顕微鏡による界面評価
加来滋、今宮健太、吉野淳二
超低速ミュオン顕微鏡が拓く物質・生命・素

粒子科学のフロンティア第3回領域会議公開シンポジウム (2014年、9月24日、東北大学、宮城県)

(Ga,Mn)Asの磁気輸送特性の膜厚依存性
吉野淳二、野崎大樹、加来滋
超低速ミュオン顕微鏡が拓く物質・生命・素
粒子科学のフロンティア第3回領域会議公開シンポジウム (2014年、9月24日、東北大学、宮城県)

第75回 応用物理学秋季学術講演会 (2014年9月19日、北海道大学、北海道)
BEEMによる量子井戸構造の解析と界面の評価
今宮健太、加来滋、津久井雅之、吉野淳二

第75回 応用物理学秋季学術講演会 (2014年9月17日、北海道大学、北海道)
GaAs(001)表面上への平坦金属薄膜の形成
加来滋、今宮健太、津久井雅之、吉野淳二

33rd Electronic Materials Symposium (2014年7月9日、ラフォーレ修善寺、静岡県)
Development of BEEM technique for study of quantum wells
K. Imamiya, M. Hiraoka, M. Tsukui, S. Kaku and J. Yoshino

Magneto-transport properties depending on (Ga,Mn)As-layer thickness in (Ga,Mn)As/GaAs and (Ga,Mn)As/AlAs superlattices
D. Nozaki, Y. Taketomi, S. Kaku and J. Yoshino
33rd Electronic Materials Symposium (2014年7月10日、ラフォーレ修善寺、静岡県)

Magnetic anisotropy and anisotropic magneto-resistance in non-magnetic III-V/GaMnAs superlattices depending on layer thickness and valence band offset
野崎大樹、堀井達哉、加来滋、吉野淳二
第61回 応用物理学春季学術講演会 (2014年、3月19日、青山学院大学、東京都)

GaMnAsの磁気異方性と異方性磁気抵抗の膜厚依存性
価電子バンドオフセットと面直歪依存性
野崎大樹、堀井達哉、加来滋、吉野淳二
第18回 半導体スピン工学の基礎と応用 PASPS-18 (2013年12月9日、大阪大学、大阪府)

SP-STM用探針の作製と評価手法の開発
加来滋、西尾真人、津久井雅之、平岡聖啓、吉野淳二
第74回 応用物理学秋季学術講演会 (2013

年、9月19日、同志社大学、京都府)

Initial growth of Cr/Au(111) ultrathin film”
S. Kaku, M. Hiraoka and J. Yoshino
International Symposium on Science Explored by
Ultra Slow Muon (USM2013)
(2013年8月11日、Kunibiki Messe, Matsue,
Japan)

Magnetic anisotropy and anisotropic
magneto-resistance in GaMnAs depending on
layer thickness
D. Nozaki, T. Horii, S. Kaku and J. Yoshino
International Symposium on Science Explored by
Ultra Slow Muon (USM2013) (2013年8月11
日、Kunibiki Messe, Matsue, Japan)

Experimental study of a symmetric STM
image on asymmetric GaAs(001)-c(4×4)a
S. Kaku, K. Yagyū and J. Yoshino
32nd Electronic Materials Symposium
(2013年7月11日、ラフォーレ琵琶湖、滋
賀県)

STM測定と第一原理計算による GaAs-c(4
×4) の電子構造解析
加来 滋, 中村 淳, 柳生数馬, 吉野淳二
第60回 応用物理学春季学術講演会
(2013年、3月29日、神奈川工科大学、神奈
川県)

GaMnAs/InGaAs/GaMnAs MTJのトンネ
ルスペクトルによる GaMnAs の電子構造の
解明
古川直寛, 新井 亮, 加来 滋, 吉野淳二
第60回 応用物理学春季学術講演会
(2013年、3月27日、神奈川工科大学、神奈
川県)

GaMnAs の磁気異方性と異方性磁気抵抗
の膜厚依存性
野崎 大樹, 堀井 達哉, 加来 滋, 吉野 淳
二
第17回 半導体スピン工学の基礎と応用
PASPS-17 (2012年12月19日、九州大学、
福岡県)

Au(111)基板上に形成された Cr ナノ構造の
STM 観察
加来 滋, 吉野 淳二
第17回 半導体スピン工学の基礎と応用
PASPS-17 (2012年12月19日、九州大学、
福岡県)

Novel self-assembled nanostructures
observed on Cr-deposited Au(111)
S. Kaku and J. Yoshino
The 17th International Conference on
Molecular Beam Epitaxy (MBE2012, 2012年
9月24日、Nara Prefectural New Public

Hall, Nara, Japan)

STM observation of initial growth
surface of MnAs on GaAs(001)
Masahiro Hiraoka, Shigeru Kaku and Junji
Yoshino
The 17th International Conference on
Molecular Beam Epitaxy (MBE2012, 2012年
9月24日、Nara Prefectural New Public Hall,
Nara, Japan)

GaMnAs の異方性磁気抵抗の膜厚依存性
野崎大樹, 堀井達哉, 加来 滋, 吉野淳二
第73回 応用物理学秋季学術講演会
(2012年、9月14日、愛媛大学 松山大学、
愛媛県)

21. MnAs 初期成長の GaAs(001)基板表面再
構成依存性
平岡聖啓, 加来 滋, 吉野淳二
第73回 応用物理学秋季学術講演会 (2012
年、9月12日、愛媛大学 松山大学、愛媛県)

22. UHV-STM による Au(111)基板上の自己
組織化 Cr ナノ構造の観察
加来 滋, 吉野淳二
第73回 応用物理学秋季学術講演会 (2012
年、9月12日、愛媛大学 松山大学、愛媛県)

23. STM observation of novel nano-string
structures on Cr-deposited Au(111)」
S. Kaku and J. Yoshino
31st Electronic Materials Symposium
(2012年7月12日、ラフォーレ修善寺、静
岡県)

24. Comparative study of initial growth of
MnAs on GaAs(001) c(4×4)a and (6×6)
reconstructions」
M. Hiraoka, S. Kaku, and J. Yoshino
31st Electronic Materials Symposium
(2012年7月12日、ラフォーレ修善寺、静
岡県)

6. 研究組織

(1)研究代表者

加来 滋 (Kaku, Shigeru)
東京工業大学大学院理工学研究科・助教
研究者番号: 80583137