

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26630123

研究課題名(和文) エネルギー依存スピン分極率の人工的デザイン技術の開拓

研究課題名(英文) Development of the artificial design technique of the energy dependence of the spin polarization

研究代表者

大矢 忍 (Ohya, Shinobu)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：20401143

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)：強磁性量子ヘテロ構造の理想系と言える強磁性半導体を用いた系で基礎研究を進め、強磁性転移により量子効果が増強されることや量子効果により磁気異方性が変化することを初めて明らかにした。半導体Geやそれをベースとした強磁性半導体GeFe上に高品質なFe/MgO単結晶を成長できることを明らかにし、それらの系で世界で初めてトンネル磁気抵抗効果(TMR)を観測した。Fe量子井戸を有するFe/MgO/Fe/MgO/Geにおいては、200%程度の大きなTMRを得ることに成功した。電流電圧特性にFe量子井戸膜厚の変化に対する系統的な変化が見られ、Ge基板上で初めてFe量子井戸の量子効果に起因した信号が観測された。

研究成果の概要(英文)：Using ferromagnetic-semiconductor quantum heterostructures, which are an ideal model system of a ferromagnetic quantum heterostructure, we have shown that the quantum size effect is strengthened by the ferromagnetic transition of the quantum well and that magnetic anisotropy is changed by the quantum size effect. We have demonstrated epitaxial single-crystal growth of Fe/MgO on a semiconductor Ge and a ferromagnetic GeFe, which is a ferromagnetic semiconductor based on Ge, and we have successfully observed tunneling magnetoresistance (TMR) in these structures for the first time. High TMR ratios up to 200% were observed in Fe/MgO/Fe/MgO/Ge, which contains an Fe quantum well. We observed a systematic change in the I-V characteristics when varying the thickness of the Fe quantum well. This is the first observation of the quantum size effect in the Fe quantum well grown on Ge.

研究分野：電子工学

キーワード：スピントロニクス 分子線エピタキシー 量子効果 ヘテロ構造

## 1. 研究開始当初の背景

強磁性金属多層膜においては、近年大きなスピン依存伝導現象が観測されており、それらを用いて磁化の不揮発性を利用した磁気ランダムアクセスメモリなどの新たなデバイスが実現されている。一方、現在の高速な情報社会を支えている半導体デバイスにおいては、その設計技術としてバンドエンジニアリングという概念が用いられているが、金属多層膜では、この概念はほとんど利用されていない。例えば、強磁性金属量子井戸において、スピン依存共鳴トンネル伝導を実現できれば、スピン依存伝導を増大させることができることが予想されている。半導体と金属を組み合わせハイブリッド構造を作製することにより、電子の波動関数の波数を制御でき、電子のバンド選択性を上げることができる。それにより、スピン依存伝導をより正確に制御でき、増強することができる可能性がある。

## 2. 研究の目的

本研究では、筆者らが10年以上にわたり開拓してきた強磁性半導体量子ヘテロ構造におけるスピン依存共鳴トンネル伝導の理解と応用をさらに進めるとともに、主に半導体 Ge をベースとした材料系にそれと格子整合する Fe/MgO/Ge を組み合わせハイブリッド化することにより、スピン依存伝導や共鳴トンネル伝導の研究を進め、金属におけるバンドエンジニアリングの概念を開拓することが目的である。バンドエンジニアリングの概念を金属系に応用するためには、多層膜の結晶性を極力高めることが重要である。また、半導体と金属多層膜を組み合わせることにより、トンネル電子のフェルミ面の大きさを小さくすることができ、面内波数  $k_{\parallel}$  の制御性が上がることが期待される。

## 3. 研究の方法

- ・強磁性半導体 GaMnAs は、GaAs や AlAs と格子整合する理想的な材料であり、これらの材料系で得られる実験結果は、他の材料系の研究を進める上でも不可欠な知見となる。筆者は2007年に、GaMnAs 量子井戸を有する AlAs 二重障壁量子ヘテロ構造において、初めて共鳴トンネル効果を観測しており、それに関連した様々な研究を進めてきた。しかし、キャリア濃度が  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$  程度と非常に多く、正孔のコヒーレント長が 1 nm 程度と極めて短いことが想定される状況下で、10 nm 程度のもの厚さのある量子井戸を介して共鳴トンネル伝導が起こる理由や、それが磁気異方性に与える影響などがまだ理解できていなかった。本研究では、トンネル伝導の詳細な測定からそれらを明らかにすることを試みた。
- ・Ge 基板やそれをベースとした材料上に作製

した MgO, Fe 金属多層膜では、Ge 基板をキャリア注入源としたトンネル磁気抵抗効果は世界的にも全く観測されていなかった。本研究では、Fe と格子整合する強磁性半導体 GeFe を片側の強磁性電極とした磁気トンネル接合を作製して、トンネル磁気抵抗効果の観測を試みた。

- ・Ge 基板上 Fe/MgO/Fe 量子井戸/MgO からなる磁気トンネル接合を作製し、トンネル磁気抵抗効果の実現を目指した。また、Fe 量子井戸における共鳴トンネル伝導の観測と、それによるトンネル磁気抵抗効果の増大を試みた。

## 4. 研究成果

- ・GaMnAs 量子井戸二重障壁ヘテロ構造において、GaMnAs 量子井戸中の Mn 濃度を変えた系統的な測定を行った。その結果、Mn 濃度が強磁性転移の起こる 0.7% よりも低い場合には、Mn 濃度の増大に伴い、共鳴トンネル伝導が弱くなっていく通常の半導体で見られる振る舞いが観測された。しかし、0.7% を超えると、突如として共鳴トンネル効果が再度見え始め、Mn 濃度の増大と共に強くなっていくことが明らかになった。この結果は、従来の半導体物理の理解に反する結果である。強磁性転移が、キャリアの散乱を抑え、電子に均一な場を感じさせる強い影響力を持っていることが初めて明らかになった。この結果は、他の様々な強磁性金属についても適用できることが期待され、将来の量子効果を用いたスピントロニクスデバイスの実現につながるものと期待される。[I. Muneta, S. Ohya *et al.*, Nature Commun. 7 12013 (2016).]

- ・強磁性半導体 GaMnAs において形成された量子準位においては、状態密度の磁場方位依存性の対称性が、共鳴状態が形成されていない他のエネルギー領域とは異なることが明らかになった。状態密度の磁場方位依存性は、フェルミ面においては、磁気異方性と 1 対 1 対応しており、本結果は、量子効果により磁気異方性を制御できることを意味している。基本的には磁気異方性は物質固有のもので、エネルギーバンドにより変化するものだと考えられていない。我々の実験では、通常は 2 回対称である磁気異方性が、共鳴トンネル効果により 4 回対称に変化することが明らかになった。通常、GaMnAs では、不純物バンドの伝導が支配的であるが、共鳴トンネル効果は価電子帯の正孔によって引き起こされる。価電子帯と不純物バンドは異なる磁気異方性を有しており、それらの伝導の相対的な強さが変わることにより、磁気異方性が変化していると考えられる。本結果は、強磁性体における新たな磁気異方性の制御技術の創出につながるものと期待される。[I. Muneta, S. Ohya *et al.*, Nature Commun. 8, 15387 (2017).]

- ・強磁性半導体 GeFe を用いた Fe/MgO/GeFe 磁気トンネル接合を作製し、GeFe 上に高品質な MgO の成長することに世界で初めて成功し、またトンネル磁気抵抗効果を初めて観測した。IV 族半導体ベースの強磁性体を用いた世界で初めて結果である。本成果は日本応用物理学会の英文学術誌 Applied Physics Express 誌に出版され、Highlights of 2016 に選定された。[Y. K. Wakabayashi *et al.*, APEX (2016) *selected as Highlights of 2016*, K. Takiguchi *et al.*, AIP Adv. submitted.]
- ・Ge 基板上に Fe 量子井戸を有する高品質エピタキシャル Fe/MgO/Fe/MgO 二重障壁磁気トンネル接合を作製し、200%程度の大いなるトンネル磁気抵抗効果を得ることに成功した。Ge 基板から注入されたキャリアを介してトンネル磁気抵抗効果が得られたのは初めてである。また、Fe 量子井戸の膜厚を 4 nm から 10 nm まで変えることによって、系統的に変化する  $d^2I/dV^2$ - $V$  特性のピークを観測することに成功した。これは共鳴トンネル伝導に関係しているものと思われる。Ge 基板から注入されたキャリアにより、このような Fe 量子井戸における量子伝導が観測されたのも世界で初めてである。[芦原、大矢他、第 63 回応用物理学会春季学術講演会 2016 年、鈴木、大矢他、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会(2017 年)投稿予定。]

#### 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 4 件)

1. K. Takiguchi, Y. K. Wakabayashi, K. Okamoto, M. Tanaka, and S. Ohya, "Fe concentration dependence of tunneling magnetoresistance in magnetic tunnel junctions using group-IV ferromagnetic semiconductor GeFe", AIP Advances, submitted.
  2. I. Muneta, T. Kanaki, S. Ohya, and M. Tanaka, "Artificial control of the bias-voltage dependence of tunnelling anisotropic magnetoresistance using quantization in a single-crystal ferromagnet", Nature Commun. **8**, 15387 1-8 (2017). DOI: 10.1038/ncomms15387. UTokyo Research News: 「磁性をデザインする新たな手法を開拓」など。プレスリリース：日本経済新聞オンライン版速報プレスリリース(2017年5月23日)などに掲載された。
  3. Muneta, S. Ohya, H. Terada and M. Tanaka, "Sudden restoration of the band ordering associated with the ferromagnetic phase transition in a semiconductor", Nature Commun. **7**, 12013 1-7 (2016). DOI: 10.1038/NCOMMS12013. UTokyo Research News: 「半導体の基礎物理学で新たな発見」。プレスリリース有。
  4. Y. K. Wakabayashi, K. Okamoto, Y. Ban, S. Sato, M. Tanaka, and S. Ohya, "Tunneling magnetoresistance in trilayer structures composed of group-IV ferromagnetic semiconductor  $Ge_{1-x}Fe_x$ , MgO, and Fe", Appl. Phys. Express **9**, 123001 1-4 (2016). DOI: 10.7567/APEX.9.123001, selected as Highlights of 2016.
- [学会発表](計 31 件)
1. 大矢忍 (招待講演), "スピントランジスタの原理動作実証に向けた材料開拓と新規物性探索", 中性子産業利用推進協議会 平成 29 年度磁性材料研究会, 2017 年 10 月 発表予定.
  2. Kosuke Takiguchi, Yuki K. Wakabayashi, Kohei Okamoto, Yoshisuke Ban, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Increase of tunneling magnetoresistance in trilayer structures composed of group-IV ferromagnetic semiconductor  $Ge_{1-x}Fe_x$ , MgO, and Fe", SpinTech IX International School and Conference, , Fukuoka International Congress Center, Fukuoka, Japan, 2017, to be presented.
  3. I. Muneta, H. Terada, T. Kanaki, S. Ohya, M. Tanaka, (invited) "Band structure and ferromagnetism in ferromagnetic semiconductor GaMnAs", Collaborative Confence on Materials Research (CCMR) 2017, to be presented.
  4. 大矢忍 (招待講演), "スピントランジスタの原理動作実証に向けた材料開拓と新規物性探索", 日本磁気学会 第 75 回ナノマグネティクス専門研究会, 東京大学, 東京, 2017 年 5 月 26 日.
  5. S. Ohya and M. Tanaka (invited), "Spin transistors and novel spin-related quantum phenomena obtained with ferromagnetic semiconductors", 13th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering, The MET Hotel, Thessaloniki, Greece, April 22, 2017.
  6. Kosuke Takiguchi, Yuki K. Wakabayashi, Kohei Okamoto, Yoshisuke Ban, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Increase of tunneling magnetoresistance in trilayer structures composed of group-IV ferromagnetic semiconductor  $Ge_{1-x}Fe_x$ , MgO, and Fe", 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 15a-501-3, パシフィコ横浜, 神奈川県横浜市, 2017 年 3 月 15 日.
  7. 大矢忍, 宗田伊理也, 金木俊樹, 寺田博, 田中雅明 (招待講演), "GaMnAs において観測された強磁性転移に伴う正孔のコヒーレンスの復活", 第 21 回スピン工学の基礎と応用(PASPS-21), I-4, 北海道大学, 札幌, 2016 年 12 月 12-13 日.
  8. I. Muneta, S. Ohya, H. Terada and M. Tanaka (invited), "Sudden restoration of the

- band ordering associated with the ferromagnetic phase transition in a semiconductor", EMN Las Vegas Meetings, H04, South Point Hotel, Las Vegas, USA, Oct. 12, 2016.
9. Kohei Okamoto, Yuki K. Wakabayashi, Wataru Ashihara, Yoshisuke Ban, Shoichi Sato, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Tunneling magnetoresistance in trilayer structures composed of group-IV ferromagnetic semiconductor  $\text{Ge}_{1-x}\text{Fe}_x$ , MgO, and Fe", 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS), P1-10, Kobe International Conference Center, Kobe, Hyogo, Japan, August 8, 2016.
  10. 大矢忍 (招待講演), "スピントランジスタの原理動作実証に向けた材料開拓と新規物性探索", さきがけ「界面の構造と制御」研究領域 第4回懇話会, 東北大学青葉山キャンパス, 仙台, 2016年7月2日.
  11. 大矢忍, 金木俊樹, 寺田博, 宗田伊理也, 若林勇希, 真藤達也, 竹嶋健人, 田中雅明 (招待講演), "スピントランジスタの原理動作実証に向けた材料開拓と新規物性探索", 日本磁気学会 第59回スピントロニクス専門研究会/第58回化合物新磁性材料専門研究会, 産業技術総合研究所, つくば, 2016年7月8日.
  12. 大矢忍 (招待講演), "エピタキシャル単結晶薄膜およびその接合界面を生かしたスピントロニクス", ATI スピントロニクス研究会, 4, TKP ガーデンシティ御茶ノ水, 東京, 2016年6月2日.
  13. Kohei Okamoto, Yuki K. Wakabayashi, Wataru Ashihara, Yoshisuke Ban, Shoichi Sato, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Observation of tunneling magnetoresistance in trilayer structures composed of group-IV ferromagnetic semiconductor  $\text{Ge}_{1-x}\text{Fe}_x$ , MgO, and Fe", 第63回応用物理学会春季学術講演会, 20a-W241-11, 東京工業大学, 東京都目黒区, 2016年3月20日.
  14. Wataru Ashihara, Yuki K. Wakabayashi, Kohei Okamoto, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Modulation of the Spin Polarization of Tunneling Carriers in a Ferromagnetic Quantum Well by Injecting Carriers from a Semiconductor", 第63回応用物理学会春季学術講演会, 19p-P1-57, 東京工業大学, 東京都目黒区, 2016年3月19日.
  15. Wataru Ashihara, Yuki K. Wakabayashi, Kohei Okamoto, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Modulation of the Spin Polarization of Tunneling Carriers in a Ferromagnetic Quantum Well by Injecting Carriers from a Semiconductor", 第7回低温センター研究交流会, P-35, 東京大学, 東京都文京区, 2016年2月23日.
  16. Kohei Okamoto, Yuki K. Wakabayashi, Wataru Ashihara, Yoshisuke Ban, Shoichi Sato, Masaaki Tanaka, and Shinobu Ohya, "Observation of tunneling magnetoresistance in trilayer structures composed of group-IV ferromagnetic semiconductor  $\text{Ge}_{1-x}\text{Fe}_x$ , MgO, and Fe", 第7回低温センター研究交流会, P-37, 東京大学, 東京都文京区, 2016年2月23日.
  17. 大矢忍, "半導体をベースとした新規スピントロニクスデバイスの開拓", 総合研究機構研究成果報告会, 東京大学, 東京都文京区, 2015年12月16日.
  18. 宗田伊理也, 大矢忍, 田中雅明 (招待講演), "トンネル分光とTAMRで観測した強磁性半導体のバンド構造", 「スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク」構築に向けて 東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究S研究会, 東北大学電気通信研究所, 仙台, 2015年12月5日.
  19. Iriya Muneta, Shinobu Ohya, and Masaaki Tanaka, "Separation of the valence band and impurity band associated with the ferromagnetic transition in GaMnAs", 第20回半導体スピ工学の基礎と応用 (PASPS20), P-8, 東北大学附属ナノスピ実験施設, 宮城県 仙台市, 2015年12月3日.
  20. 大矢忍, 田中雅明 (招待講演), "III-VおよびIV族強磁性半導体研究の最近の進展: バンド構造、フェルミ準位、ヘテロ構造デバイス", 未来研究イニシアティブ「計算機ナノマテリアルデザイン新元素戦略」ワークショップ ~ナノスピントロニクスのデザインと実証をめざして~, 国際高等研究所, 京都, 2015年9月25日.
  21. 宗田伊理也, 大矢忍, 田中雅明, "GaMnAsにおける強磁性転移に伴う価電子帯と不純物帯の分離", 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 16a-3A-3, 名古屋国際会議場, 愛知県 名古屋市, 2015年9月16日.
  22. Iriya Muneta, Toshiki Kanaki, Shinobu Ohya, and Masaaki Tanaka, "Control of Tunnel Anisotropic Magnetoresistance by the Quantum Size Effect in GaMnAs Heterostructures", 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems, Th-PE-10, Sendai International Center, Sendai, Miyagi, Japan, July 30, 2015.
  23. S. Ohya, Y. K. Wakabayashi, Y. Ban, S. Sakamoto, Y. Takeda, A. Fujimori, and M. Tanaka (invited), "Promising features of the

- group-IV-based ferromagnetic semiconductor  $\text{Ge}_{1-x}\text{Fe}_x$ ", Energy Materials Nanotechnology (EMN) East Meeting, C08, Beijing Xijiao Hotel, Beijing, China, April 22, 2015.
24. 大矢忍、宗田伊理也、若林勇希、小林正起、坂本祥哉、竹田幸治、伴芳祐、藤森淳、田中雅明(招待講演), "強磁性半導体の材料開拓と強磁性発現機構の理解", 第1回放射光連携研究ワークショップ, ステーションコンファレンス東京, 東京, 2015年3月17日.
  25. I. Muneta, T. Kanaki, S. Ohya, and M. Tanaka, "Different symmetry of the magnetization-direction dependence between the impurity band and valence band in GaMnAs", American Physical Society March Meeting, S31.00002, Henry B. Gonzalez Convention Center, San Antonio, Texas, USA, 2015年3月5日.
  26. 大矢忍, "半導体をベースとした新規スピントロニクス材料の開拓", 総合研究機構研究成果報告会, 東京大学, 東京都文京区, 2014年12月26日.
  27. 宗田伊理也、金木俊樹、大矢忍、田中雅明, "Different symmetry of the magnetization-direction dependence between the impurity band and valence band in GaMnAs", 第19回半導体スピニ工学の基礎と応用(PASPS19), O-14, 東京大学, 東京都文京区, 2014年12月16日.
  28. I. Muneta, T. Kanaki, S. Ohya, and M. Tanaka, "Identification of impurity band and valence band in GaMnAs by tunneling anisotropic magnetoresistance spectroscopy", 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-S10-3, 北海道大学, 北海道札幌市, 2014年9月20日.
  29. I. Muneta, H. Terada, S. Ohya, and M. Tanaka, "Sudden restoration of valence-band ordering associated with ferromagnetic phase transition in GaMnAs", 32nd International Conference of the Physics of Semiconductors (ICPS), Austin Convention Center, Austin, Texas, USA, August 12, 2014.
  30. I. Muneta, T. Kanaki, S. Ohya, and M. Tanaka, "Valence band and impurity band in GaMnAs investigated by resonant tunneling spectroscopy and tunneling anisotropic magnetoresistance spectroscopy", 8th International Conference on Physics and Applications of Spin Phenomena in Solids (PASPS VIII), BA7, Crystal Gateway Marriott, Washington D. C., USA, July 31, 2014.
  31. Iriya Muneta, Hiroshi Terada, Shinobu Ohya, and Masaaki Tanaka, "Comparison of the resonant tunneling spectroscopy results

between GaAs:Be and GaMnAs", 東京大学ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構公開シンポジウム「ナノ量子情報エレクトロニクスの新展開」, 東京大学伊藤国際研究センター, 東京都文京区, 2014年5月19日.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.cryst.t.u-tokyo.ac.jp/ohya/>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

大矢 忍 (OHYA Shinobu)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：20401143

(2)研究分担者 なし

(3)連携研究者 なし

(4)研究協力者 なし