

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26790039

研究課題名(和文)希薄磁性半導体GaMnAsのナノ領域の磁気特性測定法の開発と強磁性発現機構の解明

研究課題名(英文)Nanoscopic studies on the mechanism of the ferromagnetism in GaMnAs

研究代表者

加来 滋 (kaku, shigeru)

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：80583137

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：GaMnAsは半導体GaAsに少量の磁性元素Mnが添加され、半導体と磁性体の性質を併せ持つ物質である。GaMnAsが強磁性となるメカニズムは必ずしも解明されていない。我々は、原子分解能を持つSTMとそれを応用した弾道電子顕微鏡とスピンSTMを用いて、強磁性発現の起源と関係するスピン偏極電子構造の測定を目的とした。弾道電子顕微鏡実験用の試料作成には困難があったが、スピンSTMの一連の実験は実施できた。磁化反転前後の電子状態を磁性探針で測定することで、スピン偏極した電子状態を示唆する初期的なデータの取得に成功した。実験的な改良点も見出すことができ、今後より明瞭な実験から解明を目指せると期待される。

研究成果の概要(英文)：GaMnAs is one of the typical diluted magnetic semiconductors which have both natures of semiconductors and ferromagnetics. The mechanism of the ferromagnetism in GaMnAs has not been clarified perfectly until now. We have tried to measure the spin-polarized electronic structure whose understanding may be important clues to clarify the mechanism using by STM, SP-STM and BEEM from the nanoscopic perspective. The growth of the sample structure suiting with our BEEM measurement is so difficult that we cannot make it successful, while we could conduct a series of experiments with SP-STM technique. We compared the two different dI/dV spectra measured in cases of spin up and spin down of a GaMnAs, respectively. Since we got preliminary results and also some points that should be improved in the measurement methods, it is expected that these additional experiments will give us clearer understanding about the mechanism.

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 表面 ナノ 走査プローブ顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

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精力的に研究されている。その中で、半導体に磁性元素をドーブし、半導体と磁性体の性質を併せ持つ希薄磁性半導体は、既存の半導体産業技術との整合性も良く、磁性元素濃度等のパラメータで、強磁性相転位温度(T_c)や保持力といった磁気的性質を制御可能であることから、特に注目される材料の一つである。

しかし、現状、 T_c が室温に達しないことが応用上の大きな課題である。そもそも、代表的な希薄磁性半導体である GaMnAs の電子構造が未解明であり、強磁性発現機構の統一見解も得られていない。今後、 T_c が室温を越える材料の開発指針を得るためには、GaMnAs の電子構造理解は不可欠である。

従来、GaMnAs のフェルミレベル(ϵ_F)は価電子帯中に位置し、Mn の Ga サイト置換による正孔(p)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化すると説明されていた($p-d$ Zener モデル)。しかし最近、 ϵ_F は不純物帯に位置し、強磁性発現機構が従来のモデルと異なるという報告もなされており、統一見解に至っていない。

一方まだ少数だが、マクロの研究では得られない情報を高分解能の手法で得ようとする研究もあり、最近の STM(走査トンネル顕微鏡)の実験では、 ϵ_F は Mn 原子の不均一分布のために、一様に定義できない可能性が指摘されている。今後も高分解能の研究が進展することで、強磁性発現機構の解明に大きな役割を果たすと期待されている。

2. 研究の目的

高分解能測定の特長は、原子分解能だけでなく、磁区・磁化方向が同定できることも挙げられる。強磁性体の電子構造では、スピン分裂(スピン偏極電子構造)の理解が非常に重要であるが、GaMnAs も多磁区構造が残存し得るため、マクロの手法だけでは定量測定は難しい。一方の局所領域測定では、磁区と磁化方向を同定した上で、定量的にスピン偏極した電子構造を調べられる。

しかし、現状では、高分解能の磁区観察と電子構造測定などの局所物性測定を組合せ可能な実験システムは報告されていない。このような実験システムがあれば、GaMnAs に限らず、広く磁性材料の物性を研究する強力なツールになると期待できる。加えて、磁区の局所操作(形状操作・反転操作)機能も追加できれば、ナノ領域における磁性半導体の研究にとって、技術的に大きなインパクトがあると考えた。

このような視点に立ち、以下の3点を目的

とした。

STM の応用である BHMM(Ballistic Hole Magnetic Microscopy) を用いた、『ナノ分解能 + 磁区・磁化方向の同定と操作 + 電子構造測定』が可能な実験システムを開発する。

BEEM/BHMM の実験が難しい場合、スピン偏極 STM を導入し、GaMnAs を超伝導マグネット内で磁化反転および測定可能とするシステムを作る。

を用いて、磁区構造と磁化方向を同定した上で、局所的なスピン偏極電子構造の測定により、強磁性発現機構を解明する。

3. 研究の方法

[A] BEEM/BHMM システムの構築と測定

弾道電子顕微鏡(BEEM)を応用した BHMM 技術をベースとする。BEEM は原子分解能こそ無いが、通常の STM と同等の空間分解能を持ち、探針バイアス極性に依りて探針から試料内に弾道的に放出された電子または正孔を利用して、超格子構造内部の輸送特性を高分解能で調べられる。

一方、BHMM は、電極として Au/Co/Au といった磁性膜構造を用いることで、磁性層(Co)の磁化方向にスピン偏極させた弾道キャリアを注入することができる。そのため、超格子構造内に GaMnAs 層を設けることで、GaMnAs の磁気的特性を反映した情報を得ることができる。これにより、STM が本来持つ分解能と電子構造測定機能に加え、BHMM では磁区・磁化方向の同定も可能とできる。

さらに、測定時よりも大電流のスピン偏極キャリアを注入することで、スピントランスポーター効果による GaMnAs の局所磁化反転・磁壁駆動を実現する。

これらにより、同一の実験システムの中で、『ナノ分解能 + 磁区・磁化方向の同定と操作 + 電子構造測定』を可能とし、従来に無かった、ナノ領域で様々な複合的な実験が可能な環境を開発する。

この実験システムにおいては、超格子構造内に GaMnAs 量子井戸を用意すると、その中の量子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。具体的には、磁区・磁化方向を同定した上で、下記の(i)と(ii)を局所領域で調べることにより、電子構造を詳細に理解する。

- (i) ϵ_F の位置(価電子帯 or 不純物帯)
- (ii) 電子構造のスピン分裂 ($p-d$ 交換分裂の有無・定量測定)

[B]SP-STM システムの構築と測定

フェルミレベルの位置と、価電子帯との相互関係に注目した電子構造測定、そして電子構造のスピンスピン分裂解明を行うという点では BEEM 測定と同じである。BEEM 測定は試料構造の設計と成長が難しい一方で、SP-STM のほうは、針の先端の磁性原子の安定性保持の難しさがある。いずれが研究に最終的に適しているかは、両方を進める中で判断した。

スピン STM では、試料に磁気的影響を与えずに済む層状反強磁性の Cr 探針を用いた。これで、同じく Cr(001)単結晶の良く認知された原子ステップ磁気秩序を確認することに成功した。また、探針の材料も現状ベストと思える材料を探索して、独自の加工を施すことで、作成を容易にした。

GaMnAs は Mn 濃度 3% - 5% の試料を用いた。ヘキ開の後(110)面の測定を行った。磁化反転のために、近接永久磁石で磁化反転ができるシステムを作った。また、本当に磁化が反転していることを確認するために、その場で異常ホール効果・プレーナーホール効果測定により磁化反転を確認できるようにした。同一の場所を磁化反転前後で測定し、強磁性発現と関係があるであろうスピン偏極電子状態の検出を試みた。

4. 研究成果

(1)BEEM 測定用 GaMnAs 試料の作成について

まず、最初に GaMnAs の(110)面に Au 電極を超高真空中で製膜し、ショットキー障壁を設けて、GaMnAs 中の Mn サイト、その周辺のサイト、Mn の無いサイトの分離と、それぞれの電子状態の違いの測定を試みた。しかしながら、Mn ドープにより GaMnAs がメタリックに近くなるとキャリア濃度が多くなるためショットキー障壁の絶縁性の確保が難しく、空間的に安定な障壁界面を作ることが容易ではなくなり、理想的な BEEM 測定までたどり着くことができなかった。

従って、当初予定していた GaMnAs(001)ヘテロ MTJ 構造における BEEM 測定に進む前に、BEEM で安定に空間的な分解能を評価する必要性を認識した。

(2)BEEM 測定分解能の評価

そのため、Mn は入れず、シンプルな AlAs/GaAs の界面でどれだけ急進に信号が変化するかをもって、BEEM 分解能の評価を行った。先行論文でも AlGaAs/GaAs で同様の評価報告があったが、本研究では、合金ではない AlAs を使ってより急鋭な界面を得ることとし、さらに、Au 電極の

作製まで超高真空一環で行うことで、理想的なショットキー界面も持つサンプルを用意した。この結果、分かったこととしては、BEEM の信号の最も急激で明瞭な変化を生むのは、構造界面そのものではなく、構造界面を含むグレインが含まないグレインかで、結局はその両者のグレイン境界で大きな信号の変化が現れるということが分かった。また、グレイン境界以外でもゆっくりとした BEEM シグナルの変化が見られ、これは、AlAs 側よりも GaAs 側のほうが緩やかであり、かつ、BEEM 分解能として一般的に言われている金属半導体界面での全反射で決まる分解能領域よりも大きな幅を持った、ゆっくりとした変化であった。本研究では、計算的手法からも分解能の起源と評価に迫り、グレイン境界での信号の変化、グレイン境界以外での信号の変化、について、統一的なモデルを提案することができた。

一方で、シグナルをより明瞭に観察・解析することで、グレイン内部にある、ヘテロ構造界面のシグナルの変化を捉えられる可能性を示唆する結果も得られた、これをさらに進めれば、BEEM で Mn があるサイト無いサイトの電子状態の違いをどこまでの分解能で評価できるのかについて、さらに定量的に迫ることが今後期待できる。

(3)スピン偏極 STM を用いた GaMnAs 電子状態の測定

まず、これまでもスピン STM に挑んできたが、技術的にハードルが高く、なかなか有意な信号を得られなかった。しかし、標準試料として高品質の Cr バルク単結晶を用意することができ、自ら研磨を行うことで原子レベルに清浄で平坦な原子ステップを有する表面も得ることができた。

さらに、高品質で加工性にも優れた多結晶 Cr フレークも調達先を見つけることができ、独自に加工することで、容易に Cr 探針を作成することができるようになった。このような技術的な進捗により、Cr(001)表面上の奇数偶数層の磁気秩序を SP-STM で定常的に観測することに成功した。

これを用いて、GaMnAs(110)ヘキ開面の強磁性にかかわりのある電子状態の測定にも取り組んだ。

結晶面まで良く定義されたダイヤモンドスクライバーを導入することで、従来に比べ革新的にヘキ開実験効率を向上させることができた。

Cr の磁性探針を使って GaMnAs 上の状態密度測定を行い、かつ、永久磁石を使って、磁化反転させることで、電子構造のスピン偏極測定に初めて成功した。しかしながら、針の分解能がベストでなかったこと、針の安定性つまり先端の磁性原子の状態安定性が十分でなかったことから、1次元的で数点のみの測定に留まらざるを得なかった。

しかしながら、Valence band からエネルギー Gap 内の電子状態を、磁化反転と SP-STM を組み合わせて実験に成功できたことは意味がある。現在針の性能の向上と、より長時間の測定が可能であるとともに超伝導マグネットで磁化反転可能な STM システムへの技術移転を進めており、微視的な SP-STM による GaMnAs スピン偏極電子状態の解明に一定の見通しを得ることができた。

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)

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/JPS CP.2.010302>

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

〔学会発表〕(計 16 件)

第 64 回応用物理学学会学術講演会
(2017 年 3 月 14 日、パシフィコ横浜、神奈川県)
Simulation of Anisotropic Magnetoresistance Effect at Finite Temperature in GaAs/GaMnAs Superlattice Structure
H. Asano, D. Nozaki, S. Kaku, J. Yoshino

第 64 回応用物理学学会学術講演会
(2017 年 3 月 14 日、パシフィコ横浜、神奈川県)
Scanning mode manipulation of Ga adatom on GaAs(110) surface
S. Kaku, K. IMAMIYA, T. ANDO, J. YOSHINO

第 64 回応用物理学学会学術講演会
(2017 年 3 月 14 日、パシフィコ横浜、神奈川県)
Evaluation of BEEM spatial resolution by using GaAs/AlAs heterostructure

K. Imamiya, S. Kaku, T. Ando, J. Yoshino

ICSPM24
(2016 年 12 月 14 日、Hawaii convention center, USA).
Real-time STM Imaging of Ga Adatom Motion Clinging to the Tip on a GaAs(110) Surface
S. Kaku, K. Imamiya, T. Ando, J. Yoshino

SPSTM6
(2016 年 8 月 28 日、千葉大学、千葉県).
Study of spin properties on GaMnAs(110) surface by STM/SP-STM
S. Kaku, T. Ando, K. Imamiya, and J. Yoshino

PASPS-9
(2016 年 8 月 8 日、Kobe International Conference Center、兵庫県).
STM/STS measurements of local electronic states on Mn impurities on GaAs(110) surface/subsurface
S. Kaku, M. Tsukui, M. Hiraoka, J. Yoshino

第 63 回応用物理学学会学術講演会
(2016 年 3 月 19 日、東京工業大学、東京都)
Ga_{1-x}Mn_xAs の巨大熱電能の起源の解明
荒川 和哉、武富 優綺、加来 滋、吉野 淳二

MSS-17
(2015 年 7 月 27 日、Sendai International Center、宮城県)
X-STM measurements of band bending across GaAs/AlAs heterojunction
S. Kaku, M. Tsukui, T. Ando, and J. Yoshino

34th Electronic Materials Symposium (2015 年 7 月 16 日、ラフォーレ琵琶湖、滋賀県)
GaMnAs の巨大熱電能
K. Arakawa, Y. Taketomi, S. Kaku, and J. Yoshino

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

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)
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

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

33rd Electronic Materials Symposium
(2014年7月10日、ラフォーレ修善寺、静岡県)
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

〔その他〕
ホームページ
<http://www.ss.phys.titech.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

加来 滋 (Kaku, Shigeru)
東京工業大学・理学院・助教
研究者番号：80583137