

ニッポン放送賞

N 型強磁性半導体(In, Fe)As の量子物性
と波動関数による磁性制御

東京大学工学系研究科 電気系工学専攻
博士課程3年

LE DUC ANH

概 要

「電荷」と「スピン」両方の自由度を活用するスピンドバイスは、次世代のエレクトロニクスと情報技術を拓く技術として期待されている。スピンドバイスを作製するためには新機能材料が必要であり、半導体と磁性の両方の性質を合わせもつ強磁性半導体の作製がその中心的な課題の1つである。これまで Mn ベース強磁性半導体が主な研究対象であったが、いくつかの問題点があり実用的なスピンドバイスには適していない。本研究では、この問題を解決するために Fe ベース強磁性半導体の研究を行い、世界初の n 型 III-V 族強磁性半導体として (In, Fe) As を実現した。さらにこの (In, Fe) As を含む超薄膜ヘテロ構造・量子井戸構造を作製し、明瞭な量子サイズ効果を観測した。また (In, Fe) As を含む量子井戸構造中の波動関数を電気的手法により制御することによって、磁性を制御できることを示した。この電氣的な磁性制御の方法は、従来手法に比べて圧倒的な低消費電力と高速性が期待できる。また、これらの実験から、(In, Fe) As は非常に大きな s-d 交換相互作用エネルギーを持つことも明らかにした。本研究の成果は、近い将来、室温強磁性半導体の作製や次世代の低消費電力かつ高速なスピンドバイスの実現につながると期待できる。

1. 研究の背景

1. 半導体スピントロニクスとスピントランジスタ

今日の高度情報化社会においては、情報処理を担う論理演算デバイスと情報の蓄積(記録、記憶)を担うメモリデバイスが重要な役割を果たしている。代表的なデバイスとして、前者はトランジスタ、後者はハードディスクがある。半導体中の電子の「電荷」を制御するトランジスタは高速動作が出来るが、内部状態を保持するために外部エネルギーを消費してしまう。それに対して、強磁性体中の電子の「スピン」を制御するハードディスクは内部状態を長期間保持できる(不揮発性をもつ)が、高速動作が出来ない。もし半導体の高速制御性と磁性体の不揮発性を単一デバイス(スピンドバイス)上に組み合わせることができれば、現在社会の情報仕組みに革新的な変化を起こすに違いない。このようなことを目標としている研究分野は半導体スピントロニクスと呼ばれる。

代表的なスピンドバイスとして、電気のみならずスピン自由度によって出力を制御できるスピントランジスタが複数提案されている。例えば、通常電界効果トランジスタ(FET)構造でソース、ドレイン、チャンネルのうち2つを強磁性材料で作れば、ゲート電圧だけでなく各部の磁化方向を制御することによって出力を制御できる新機能トランジスタができる[1]。このようなデバイス(Spin MOSFET)が出来れば、高密度不揮発性メモリや低消費電力かつ再構成可能な電子回路を作ることができ、集積回路の微細化によらない高性能化を実現できる[2]。

2. Mn ベース強磁性半導体とその問題点

このようなスピン半導体デバイスを実現するために、強磁性体と半導体両方の特性を持つ強磁性半導体(Ferromagnetic Semiconductor, FMS)の開発が中心的な課題の1つになっている。FMSは、通常の半導体に磁性原子(Mn, Cr, Feなど)を多量に添加(濃度~数%)することによって作製され、結晶中の磁性原子の局在磁気モーメントはキャリアとの相互作用

を介して強磁性的な相互作用をもち、強磁性が発現すると考えられる。このタイプの FMS はキャリア誘起強磁性をもつと理解されている。

磁性半導体の研究の歴史は古く 1960 年代に遡るが、1990 年代以降、(In, Mn)As[3]、(Ga, Mn)As[4] といった III-V 族ベースの FMS が作製されて以来、世界的に研究が盛んになり、現在も Mn ドープ III-V 族 FMS が中心的な研究対象となっている。しかし、以下の問題点により、これらの材料は実用化に適していない：

- ① 強磁性状態を維持できる上限温度であるキュリー温度 (T_c) は室温よりかなり低い (現在 (Ga, Mn)As の T_c は最高でも 200K 程度である)。
 - ② n 型 FMS が存在しない。III-V 族半導体中では Mn が III 族サイトに置換するとアクセプタ (Mn^{2+}) になるため、p 型 FMS しか実現できない。一般的な理論モデルでも n 型材料では電子・スピンの相互作用が弱すぎて強磁性の発現は困難とされている。
 - ③ 正孔は価電子帯でなく、Mn 由来の不純物バンド中にあるので局在性が強い。このため、非磁性半導体で広く用いられるヘテロ構造による量子効果の利用やバンド構造の設計が困難である。
- これらの3つの難問を解決しなければ、スピン半導体デバイスの実現は不可能である。

II. n 型強磁性半導体の実現：(In, Fe)As [5,6]

室温で動作するスピントランジスタの実現に向けて、従来の Mn ベース FMS の限界を超える新材料の創出が強く求められる。具体的には、下記のような性質を持つ FMS を開発する必要がある。

- 強い強磁性を持つ。 $(T_c$ が室温以上、大きな磁気特性を有する)
- p 型でも n 型でも作製できる。しかもこれらの接合構造が簡単に作製可能。
- キャリア(電子、正孔)が不純物バンドではなく、母体半導体の伝導帯 / 価電子帯にある。しかもキャリアが高いコヒーレンス性を保つ。

上述の目的のため、Mn の代わりに鉄 (Fe) を磁性不純物として用いた。III-V 族半導体中で Fe は 3 価の状態 (Fe^{3+}) で III 族サイトを置換すると、キャリアを出さず中性状態となることが期待できる。その結果、キャリア特性は磁性不純物と独立に制御可能であり、p 型も n 型も自在に作製できる。また、伝導キャリアは Fe 由来ではないので、伝導帯や価電子帯に存在する。実際、我々は InAs に Fe を添加した (In, Fe)As 薄膜を分子線エピタキシー (MBE) を用いて成長することにより、これまで不可能だった n 型 FMS を実現した [5, 6]。

1. (In, Fe)As の材料作製と結晶構造

InAs に Fe を添加した (In, Fe)As 試料は基板温度 236 °C の低温で分子線エピタキシー (MBE) より作製される (低温 MBE 法)。その構造は図 1a に示される。成長中の反射高速電子線回折 (RHEED) 像にはストリークかつ明瞭な回折パターンが現れ、良好な単結晶薄膜を成長できたことを示す。高分解透過型電子顕微鏡 (HRTEM) 像 (図 1c) により Fe が 9% まで添加したにも関わらず、母体材料 (InAs) と同じ閃亜鉛鉱構造が保たれていることが分かる。また 3次元原子マッピング法 (3DAP) を用いて Fe 原子が薄膜全体にわたり均一に分布し In サイトを置換していることを確認した (図 1d)。

2. (In, Fe)As の伝導特性と磁気特性

すべての (In, Fe)As 試料においてホール効果とゼーベック効果の測定結果は n 型半導体を示唆する。電子濃度 n が Fe 濃度 ($\sim 10^{21}\text{cm}^{-3}$) より 2~3 桁小さく、キャリア移動度はほとんど温度に依存しないことから、(In, Fe)As 中では中性不純物散乱が支配的で、Fe がほとんど中性状態 Fe^{3+} として存在することが判明した。したがって、III-V 族中で Fe を磁性不純物として用いると、Fe 濃度による磁性の制御に加えキャリア特性を独立に設計することができる。また、ホール効果とゼーベック効果から見積もった (In, Fe)As の伝導電子の有効質量は InAs と同程度に軽い ($0.03\sim 0.17m_0$)。これはキャリア電子が強い局在性を持つ Fe 由来の不純物バンドではなく、伝導帯に存在することを示している。

(In, Fe)As では、非磁性ドナー (Si, Be) を添加することにより電子濃度 n を制御することができる。図 1e に示すように、同じ Fe 濃度 (5%) の (In, Fe)As 試料で n が $6 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$ 以上の試料では強磁性が観測された。即ち、(In, Fe)As は初めて実験的に確認された電子誘起の III-V 族強磁性半導体である。このキャリア濃度の閾値は (Ga, Mn)As の値 ($\sim 6 \times 10^{19}\text{cm}^{-3}$) より 1 桁も小さい。この結果は (In, Fe)As が強い強磁性を持つことを示唆する。平均場理論では、 T_c がキャリア濃度と比例することが予測されるので、(In, Fe)As の n も 10^{20}cm^{-3} まで上げられれば、室温でも強磁性が維持されると期待できる有望な材料である。

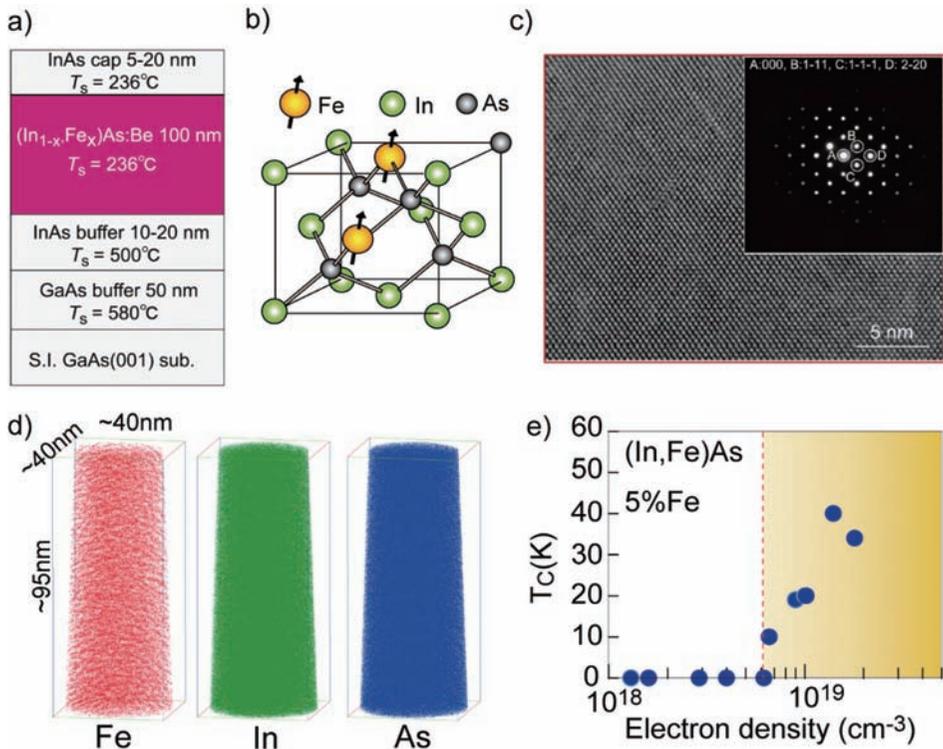


図 1. (a) 試料の断面構造。(b) (In, Fe)As の閃亜鉛鉱構造。(c) Fe 濃度 9.1% の (In, Fe)As 膜の透過電子顕微鏡 (TEM) による格子像。挿入図はその回折パターン。薄膜全体が閃亜鉛鉱型結晶構造であり、他の結晶構造の第 2 相の析出は見られない。(d) Fe 濃度 5.0% の (In, Fe)As 膜の 3 次元原子マッピング。各点 (赤、緑、青) が 1 原子 (Fe, In, As) に相当する。(e) Fe を 5% 添加した (In, Fe)As 試料のキュリー温度 T_c の電子濃度依存性。強磁性になる電子濃度の閾値は $6 \times 10^{18}\text{cm}^{-3}$ である。

Ⅲ. n 型 FMS (In, Fe) As 超薄膜における量子サイズ効果

現在の高速電子デバイスにおける半導体材料は、その寸法が nm オーダーの構造で利用されるものが多い。微細化による集積度の向上と高性能化とともに、量子サイズ効果(Quantum Size Effect, QSE)を積極的に利用することも行われている。半導体ヘテロ構造によって低次元電子系を作ることによって多くの新機能が生み出されてきた。FMS においても、ナノスケールの物性を理解して設計し、QSE を実現することが望まれる。しかし、これまでの Mn ベース FMS ではキャリア(正孔)が不純物バンドにあるためコヒーレンス長が非常に短く(1nm 以下)、超薄膜を作製しても伝導キャリアの量子化を実現することが非常に難しい[7, 8]。

FMS ではキャリアが強磁性相互作用の仲介役を果たすため、その電子状態が量子化することは磁気物性に興味深い現象を起こすことが予想される。例えば、FMS 材料の T_c はキャリアの状態密度に比例するため、2次元電子系では T_c が量子化する現象が予測される[9]。また、FMS の量子井戸構造ではその波動関数を制御することによって、超高速かつ超低消費電力の磁化スイッチングも原理的に可能と考えられる[10, 11, 12]。

上記のことから、スピンドバイス応用に向けて、n 型 FMS(In, Fe) As の超薄膜ヘテロ構造において量子物性を調べる必要がある。具体的には、①量子サイズ効果を観測すること、②量子効果を利用した波動関数制御法によって (In, Fe) As 薄膜の磁性変調を実現することを目的として研究を行った。

1. 実験手法

QSE を観測するために、反射型磁気円二色性測定 (Magnetic Circular Dichroism, MCD) を主に用いる。反射 MCD は材料の左右円偏光の反射率の差を測定する手法である。図 2a に示されるように、円偏光吸収・反射では角運動量保存則で：

右円偏光は主に $|-3/2\rangle \rightarrow |-1/2\rangle$

左円偏光は主に $|+3/2\rangle \rightarrow |+1/2\rangle$

の遷移に相当する。ある磁場(FMS では内部磁場)でバンドがスピン分裂すると、左右円偏光の反射の差がでる。その時 MCD は下記のように表れる：

$$\text{MCD} = \frac{90}{\pi} \frac{(R_{\sigma+} - R_{\sigma-})}{2R} \propto \frac{90}{\pi} \frac{1}{2R} \frac{dR}{dE} \Delta E \quad (1)$$

ここで E はエネルギー、 R は母体半導体の反射率、 $R_{\sigma+}$ と $R_{\sigma-}$ はそれぞれ右と左円偏光に対する反射率を表す。 ΔE はスピン分裂エネルギーで、材料の磁化に比例する。このため MCD スペクトルは母体半導体のバンド構造の特異点でピークが現れ、そのピーク強度は磁化に比例する。従って、MCD 測定は磁化特性と磁性材料のバンド構造の両方の知見を与える。例えば図 2b に膜厚 100nm の (In, Fe) As と非磁性 InAs 基板の MCD スペクトルを比較した[13]。いずれもバルク状の InAs のバンド構造の特異点における光学遷移の $E_1(2.61\text{eV})$, $E_1 + \Delta_1(2.88\text{eV})$, $E_0'(4.39\text{eV})$, $E_2(4.74\text{eV})$ のピークを示す。QSE で FMS のバンド構造の変化を観測するには、MCD が最もふさわしい手法である。

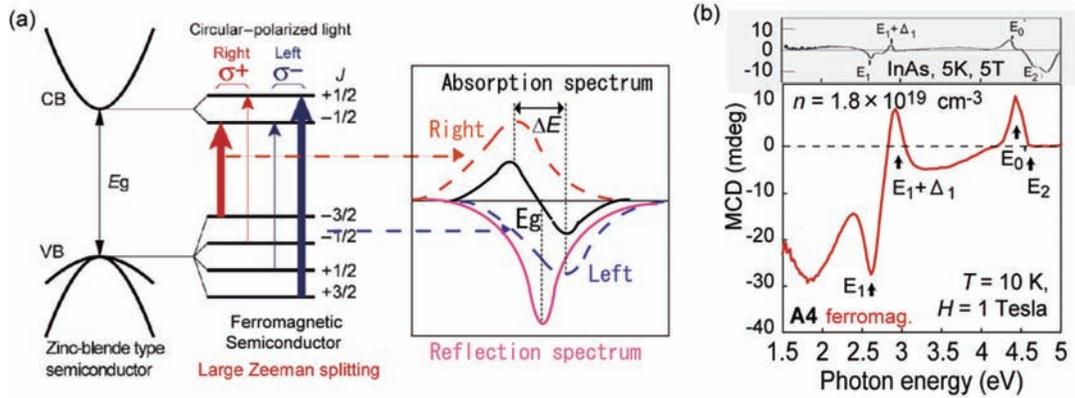


図2. (a) MCD 測定 の 原理 の 概 念 図 。 (b) (In,Fe) As と InAs の MCD スペクトル の 比較 。 FMS の MCD ピーク位置は母体材料のバンド構造の特異点に対応する。

2. (In, Fe) As 超薄膜における量子サイズ効果 [14]

表1と図3aに(In, Fe) As超薄膜試料構造を示す。系統的な評価のため、(In, Fe) As層の膜厚 t を2, 5, 10nmに、InAs/(In, Fe) As/InAsの3層構造の膜厚 L を12~40nmに変化した。これらの試料のMCDスペクトルを厚い試料F(膜厚100nmの(In, Fe) As試料)のスペクトルと比較する。図3bに膜厚 t が2, 5, 10nmの試料A, B, CのMCDスペクトルを示す。 t が小さくなればなるほどMCDピークが試料Fのピーク位置から高いエネルギーに移動(ブルーシフト)することが見て取れる。一方、図3cのように試料B, D, Eにおいて、(In, Fe) As層の膜厚 t が同じ(5nm)でもInAs層の膜厚が薄い方にMCDピークのシフト量が増大した。したがって、MCDピークのブルーシフト現象は(In, Fe) As膜厚 t ではなく、InAs/(In, Fe) As/InAsの3層構造の膜厚 L で決まると言える。

上記のMCDのブルーシフト現象は次のように説明できる：InAs/(In, Fe) As/InAs中の電子はGaAs/InAs界面での0.9eVの伝導帯オフセット[15]とInAs表面での真空ポテンシャルによって成長方向に束縛される。図3dのように、もし電子キャリアのコヒーレンス長がInAs/(In, Fe) As/InAs三層構造の膜厚 L より長ければ、この三層構造全体の伝導帯ポテンシャルが1つの量子井戸を形成し、電子状態が量子化される。よって、電子エネルギーの量子化現象が各特異点でのバンドギャップを増大させ、MCDスペクトルのブルーシフトとして観測される。すなわち、上記の結果は(In, Fe) As薄膜のQSEを示している。

QSEが t ではなく L で決まることと、 $L = 40\text{nm}$ の薄膜構造(試料E)でも起こることから、(In, Fe) Asの電子キャリアは40nm以上の長いコヒーレンス長を持って、その波動関数がInAs/(In, Fe) As/InAs三層構造全体に広がるのが分かる。これは、(In, Fe) Asでは電子が不純物バンドでなく伝導帯にあることを示している。

表1. すべての InAs/(In, Fe) As/InAs 三層構造試料。Fe 濃度は5%に固定される。
 T_C は MCD の磁場依存性のアロットプロットで見積もった値。

試料名	Top InAs (nm)	(In _{0.95} , Fe _{0.05}) As t (nm)	Bottom InAs (nm)	三層構造膜厚 L (nm)	T_C (K)
A	5	2	5	12	0
B	5	5	5	15	22
C	5	10	5	20	17
D	5	5	20	30	30
E	5	5	30	40	30
F	10	100	20	130	34

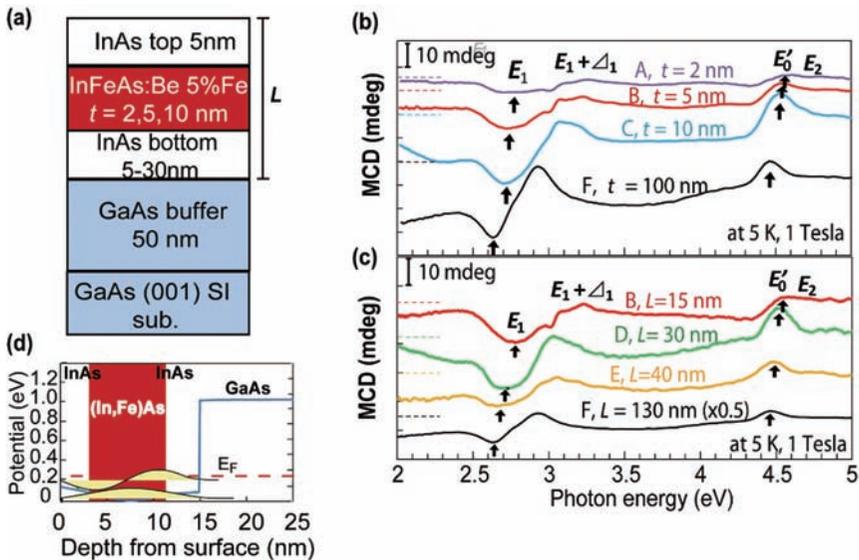


図3. (a)量子サイズ効果を調べるための試料構造。(b)試料A,B,Cと試料FのMCDスペクトル。(c)試料B,D,Eと試料FのMCDスペクトル。黒い矢印はピーク位置を指す。試料Fに比べて全試料(A-E)のMCDスペクトルがブルーシフトした。(d) InAs/(In, Fe) As/InAs 三層構造量子井戸、青い線が各層の伝導帯からなる量子井戸ポテンシャル。

IV. (In, Fe) As 量子井戸における波動関数工学：電気的手段による磁性の変調[16, 17]

キャリア誘起FMSでは、キャリア特性を外部から制御することによって磁性を温度一定のまま制御することが原理的に可能である。この機能により、FMSを不揮発性論理デバイスに用いるなど、様々な応用が可能となる。特に高密度集積可能性と低消費電力の観点を考

える上でトランジスタ構造においてゲート電圧による磁性制御ができることが望まれる。これまで電氣的な磁性制御に成功したFMSではキャリアのコヒーレンス性が低いため3次元系として振る舞って、そのキュリー温度 T_C がキャリア濃度に比例する [8, 9, 18, 19]。そのため、図4aの上パネルに示すように、ゲート電圧でキャリア数を変化させることにより磁性が変化する。ただし、この手法は大きなシートキャリア濃度 ($10^{13} - 10^{14} \text{cm}^{-3}$) を蓄積・空乏化する必要があるため、消費電力は大きく、動作速度も電荷移動時間によってナノ秒程度に制限されてしまうという問題がある。

一方、InAs/(In, Fe) As/InAs 三層構造のような2次元電子系では、 T_C はステップ型の状態密度に比例するためある範囲にはキャリア濃度に依存しない (T_C の量子化現象)。この場合、磁化 (T_C) は (In, Fe) As 層と2次元電子の波動関数の重なりで決まる [10, 11, 12, 13]。このため図4aの下パネルに示すように、ゲート電圧によって2次元電子の波動関数の形を制御することによって、量子井戸のシート電子濃度を変えず磁性を大きく変化させることが可能である。大きな電荷の蓄積の必要性を避けることによって、超低消費電力かつ超高速な磁化制御が可能である。この奇妙な機能は、量子サイズ効果がある (In, Fe) As しか実現できない。本研究では、InAs/(In, Fe) As/InAs 量子井戸の電界効果トランジスタ構造においてこの機能を実現することを試みた。

1. 試料とトランジスタの作製

試料構造は図4bに示されるように、2つの三層量子井戸構造を AlSb バッファ層の上に作製した。試料 A の量子井戸は表面から InAs(2nm)/(In, Fe) As(8nm)/InAs(5nm) からなる。それに対して試料 B は InAs(2nm)/(In, Fe) As(5nm)/InAs(2nm)/InAs:Si(5nm) である。(In, Fe) As 層中の Fe 濃度が6%で、Si 添加濃度は $5 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ である。InAs/AlSb のヘテロ界面の伝導帯では高いバンドオフセット (1.35eV) があるので、上部の15nmの3層構造 InAs/(In, Fe) As/InAs で量子井戸が形成される。試料 A と試料 B の設計の違いによって波動関数と (In, Fe) As 層の重なり状況が異なる：正の V_G をかけると試料 A では重なりが最大の状態から減少していくのに対して、試料 B では重なりが増大するようになる。量子井戸の設計によって T_C の挙動を制御することを目指した。

量子井戸の波動関数を制御するために電気二重層トランジスタ構造を採用した。図4cにデバイスの平面図を示す。作製プロセスは以下ようになる。

- 試料を $50 \times 200 \mu\text{m}^2$ のホールバーに加工。
- ホールバーのソース(S)とドレイン(D)端子、伝導測定端子(端子1, 2, 3)、およびサイドゲート(G)とリファレンス端子(R)を Au(50nm)/Cr(5nm) の蒸着で形成。
- 最後に半導体チャネルとゲートの上に電界液 (DEME-TFSI) を垂らしてデバイスを完成。

ゲート電圧をかけると、電界液中のイオンが半導体表面に付着して電気二重層を形成する。この電気二重層は非常に薄いキャパシターとして働き、量子井戸ポテンシャルを傾けて波動関数を動かす。

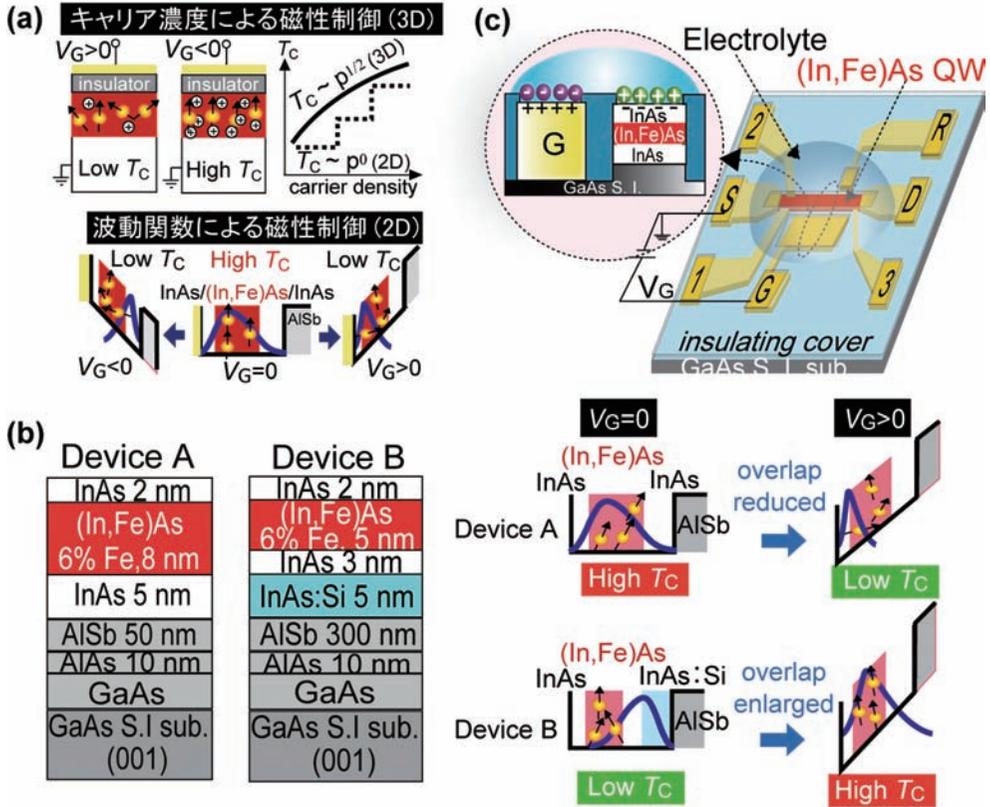


図4. (a) キャリア濃度による磁性制御法と波動関数による磁性制御法の概念図。(b) デバイス A と B の試料断面構造とその動作の概念図。(c) トランジスタデバイスの構造。

2. ゲート電圧による磁性の制御

次にゲート電圧による (In, Fe) As 量子井戸の伝導特性と磁気特性の変化をホール効果測定で評価した。(In, Fe) As 量子井戸のホール抵抗は大きな正常ホール抵抗 (Normal Hall Resistance - NHR) と磁化に比例する異常ホール抵抗 (Anomalous Hall Resistance - AHR) からなる。NHR からシート電子濃度 n_{sheet} を見積り、AHR から磁化の評価を行った。またゼロ磁場における残留 AHR (Remanent AHR) の温度依存性をプロットして、値がゼロになる温度で T_C を評価する。ゲート電圧 V_G によって n_{sheet} がデバイス A で $6 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ ($V_G = 0 \text{V}$) から $8 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ ($V_G = 6 \text{V}$) と $5.52 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ ($V_G = -3 \text{V}$) まで変化し、デバイス B で $1.06 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ ($V_G = 0 \text{V}$) から $1.2 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ ($V_G = 4 \text{V}$) まで変化した。いずれも磁性の変化を起こさせるために非常に小さい電子濃度の変化量である。

図5a と 5c に 15K でデバイス A で測定した AHR を示す。 V_G を印加すると、磁化曲線が 0.5V で少し増強され、6V と -3V でヒステレシスが消える。ゲート電圧を取り去ると磁化は元の状態に戻る。つまり、ゲート電界によって磁化を可逆的に制御できる。さらに、図5b と 5d は同デバイスの各 V_G での残留 AHR の温度依存性を示す。正の V_G 側では T_C が 24K \rightarrow 24.5K ($V_G = 0.5 \text{V}$) \rightarrow 16K ($V_G = 6 \text{V}$) で変化し、負の V_G 側では T_C が最初の 24K から

単調に14K ($V_G = -3V$) までに減少した。一方、デバイス B では $V_G = 2V$ を印加すると強磁性状態が強く増強することが分かる (図 5e)。図 5f をみると T_C が 26K ($V_G = -1V$) \rightarrow 35K ($V_G = 2V$) \rightarrow 30K ($V_G = 4V$) に上がることが分かる。図 5h に両デバイスの V_G による T_C の変化をまとめている。波動関数制御法で最大の $\Delta T_C/T_C = -42\%$ が $5.4 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ という微小な電子濃度変化 Δn_{sheet} で実現可能になった (デバイス A の $V_G = -3V$ で)。この Δn_{sheet} は (Ga, Mn) As 実験 [9] におけるキャリア濃度の変化量より 2~3桁も少なく、電荷量の 2乗に比例する消費エネルギーは 4~6桁も小さくなることが分かる。つまり、従来のキャリア濃度を制御する手法より、本研究で実現した波動関数制御による電氣的な磁性制御の手法の方がはるかに低消費電力である。また、デバイス A と B の異なる T_C の挙動から、量子井戸構造を適切に設計することによって、磁性の挙動を制御できることを示している。この新しい自由度はデバイス応用上とても有用である。

3. Zener 平均場理論による T_C の変化の再現

図 5g に $V_G = 0, 6, -3V$ の場合のデバイス A の量子井戸のポテンシャルと電子波動関数の自己無撞着計算結果を示す。波動関数が V_G によって両端に移動するため、量子井戸中の (In, Fe) As 層との重なり分が小さくなる効果が明らかである。このために T_C が減少したと考えられる。

次に、量子井戸の電子状態が分かった上で 2次元 Zener 平均場モデルで T_C を理論的に求めた。 T_C を下記のように波動関数から計算できる [10, 11, 13]:

$$T_C^{MF} = \frac{S(S+1)}{12} \frac{J_{sd}^2}{k_B} \frac{m^*}{\pi \hbar^2} N_{Fe} \sum_{E_i < E_F} \int_{(In, Fe) As (n > n_h)} |\phi_i(z)|^4 dz \quad (2)$$

ここで $S = 5/2$, m^* は電子有効質量、 N_{Fe} は Fe 濃度、 $\phi_i(z)$ は i 番目の波動関数、 J_{sd} は s - d 交換相互作用パラメータである。図 5g の赤い四角は計算した T_C で、このモデルで実験値 (黒い丸) を非常によく再現できることが分かった。また、 J_{sd} から s - d 交換相互作用エネルギー ($N_0 a$) は 3.6eV と見積もられる。

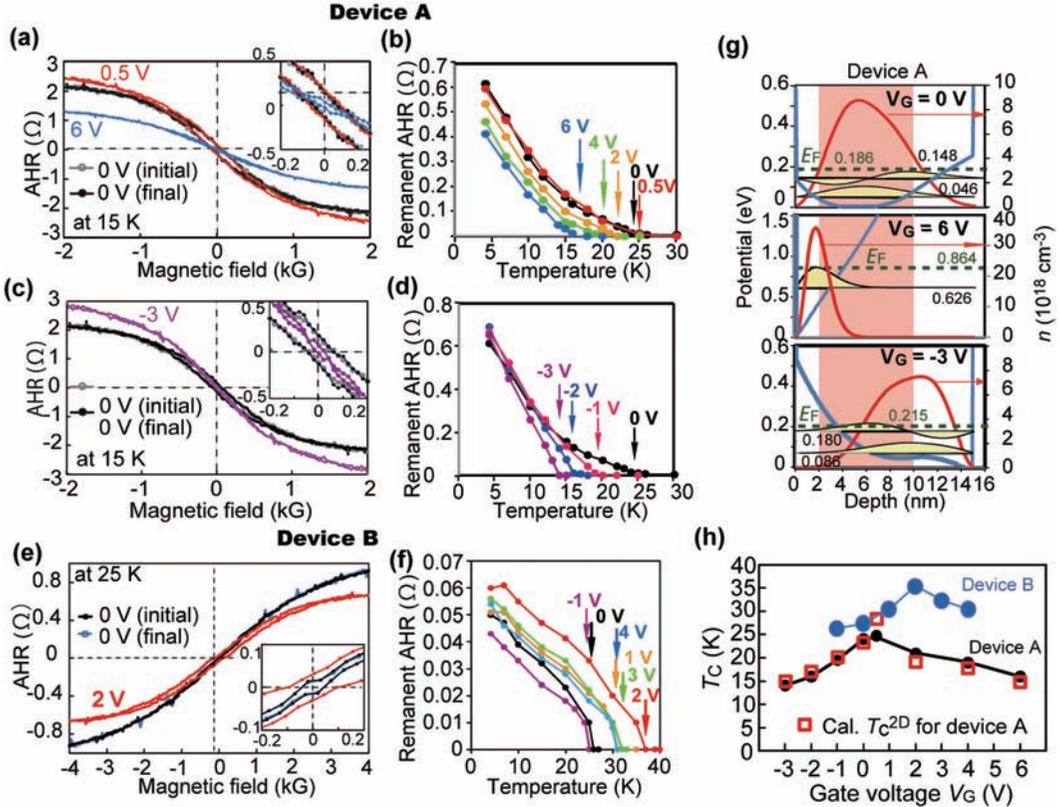


図5. (a)と(b)デバイスAの各 $V_G > 0$ における異常ホール抵抗と残留異常ホール抵抗の温度依存性。(c)と(d)デバイスAの各 $V_G < 0$ における異常ホール抵抗と残留異常ホール抵抗の温度依存性。(e)と(f)デバイスBの各 V_G における異常ホール抵抗と残留異常ホール抵抗の温度依存性。(a)(c)(e)の挿入図に原点付近のデータを示す。(g)デバイスAの自己無撞着計算による量子井戸のポテンシャル(青い線)と波動関数(黄色い線)の変化の再現結果。赤い線は量子井戸内の電子濃度分布。(h) V_G による T_C (デバイスA:黒い丸、デバイスB:青い丸)と2次元 Zener 平均場理論によって計算したデバイスAの T_C (赤い四角)。

4. 強い s - d 交換相互作用の起源と High- T_C FMS へ向ける新しい方針

FMS の強磁性の強さを議論するとき、キャリア(s, p 軌道の電子)と局在スピン(Fe の場合は d 軌道の電子)の相互作用の強さの指標として $s(p)$ - d 交換相互作用エネルギー $N_0 a(\beta)$ が良く用いられる。由来の Mn ベース磁性半導体では $N_0 a$ は材料によらず 0.2eV と小さく、また $N_0 a$ は広ギャップ半導体に行けば行くほど大きいという理解が定着していた [20]。現在 Mn ベース FMS で最も T_C が高い (Ga, Mn) As では $N_0 \beta = 1.2\text{eV}$ である [21]。このため上記の (In, Fe) As 量子井戸で見積もった 3.6eV の $N_0 a$ は非常に大きく、Mn ベース FMS と同じ理論でとても理解できない。従って、この結果は従来の理解がまだ不十分であることを示唆すると共に、(In, Fe) As を含む狭ギャップ FMS も室温強磁性になる可能性が十分にあることを意味する。

s, p - d 交換相互作用エネルギーは、Andersons モデル [22, 23, 24] によって次式で表される：

$$N_0\alpha(\beta) = -2|V_{s(p)d}|^2 \left(\frac{1}{E_{C(V)} - \varepsilon_d} + \frac{1}{U - E_{C(V)} + \varepsilon_d} \right) \quad (3)$$

ここで $V_{s(p)d}$ は $s(p)$ と d 軌道の重なり に比例するパラメータ、 $E_{C(V)}$ は伝導帯 (価電子帯) 端のエネルギー、 ε_d は磁性不純物の d 準位のエネルギー、 U は d 軌道の内部クーロンエネルギーである。よって、強い s - d 交換相互作用の起源を理解するため、(In, Fe) As のバンド構造の情報が必要である。我々は (In, Fe) As のバンド構造を角度分解光電子分光 (ARPES) で調べた [25]。この結果より Fe の d バンドが伝導帯端に重なることが分かった。この伝導帯端と Fe の d バンドが共鳴している ($E_C \approx \varepsilon_d$) ため、式 (3) より非常に大きな $N_0\alpha$ が実現されることが説明できる。従って、磁性不純物の d 準位と母体半導体のバンドの位置関係をうまく設計すれば高い T_C を持つ FMS になりえることを示す。

V. 結論と今後の展開

本研究では世界初の n 型 III-V 族強磁性半導体 (FMS) として (In, Fe) As を実現し、(In, Fe) As 薄膜において量子物性を調べた。また、InAs/(In, Fe) As/InAs 三層構造で明瞭な量子サイズ効果を観測した。(In, Fe) As の電子キャリアは伝導帯に存在し、40nm 以上の長いコヒーレンス長を持つことが分かった。

さらに、量子サイズ効果を利用して、(In, Fe) As の三層量子井戸において波動関数を制御することにより、キャリア濃度の変化を要しない電氣的な手法による磁性の制御を初めて実現した。この手法は従来のキャリア濃度による磁性の制御法に比べ消費電力が低く、デバイス設計自由度が高いことを示した。これは次世代のスピndeバイスを更に低消費電力化かつ高速化することが期待できる。

これらの実験から、(In, Fe) As 量子井戸は非常に大きな s - d 交換相互作用エネルギーを持つことを明らかにした。このことは、(In, Fe) As に十分に電子キャリアを供給できれば室温で強磁性を示す可能性が高いことを示唆する。

本研究はまだ主に材料開発の段階にあるが、今後の展開と応用は様々に考えられる：

- (In, Fe) As の強い電子誘起強磁性の起源を解明し、現在の未熟な FMS の理論体系により深い理解を与える。この研究は高い T_C をもつ FMS の作製につながると期待できる。
- n 型 FMS (In, Fe) As と p 型 FMS の (In, Mn) As, (Ga, Fe) Sb, (Al, Fe) Sb のヘテロ構造を作製しスピndeバイスを実現する。これらの材料は格子定数が近いいためヘテロ構造の作製は容易にできる。(In, Fe) As と (Ga, Fe) Sb あるいは (In, Mn) As の pn 接合でスピン江崎ダイオード、 npn (pn) 接合でスピンバイポーラトランジスタ、スピン共鳴トンネルダイオードなどのデバイスも作製できると期待される。

VI. 参考文献

- [1] S. Sugahara, M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2307-2309 (2004).
- [2] T. Matsuno, S. Sugahara, & M. Tanaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, 6032-6037, (2004).
- [3] H. Munekata, H. Ohno, S. von Molnar, A. Segmuller, L.L.Chang and L. Esaki, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1849 (1989).

- [4] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, Y. Iye, *Appl. Phys. Lett* **69**, 363 (1996) ; T. Hayashi, M. Tanaka, T. Nishinaga, H. Shimada, H. Tsuchiya and Y. Ootuka, *J. Crystal Growth* **175/176**, 1063 (1997); M. Tanaka, *J. Vac. Sci. Technol.* **B 16**, 2267 (1998).
- [5] P. N. Hai, L. D. Anh *et al.*, *Appl. Phys. Lett* **101**, 182403 (2012).
- [6] P. N. Hai, L. D. Anh, M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett*, **101**, 252410 (2012).
- [7] H. Ohno *et al.*, *Nature* **408**, 944-946 (2000).
- [8] D. Chiba *et al.*, *Appl. Phys. Lett* **89**, 162505 (2006) 他
- [9] N. Kim, J. W. Kim, S. J. Lee, Y. Shon, T. W. Kang, G. Ihm and T. F. George, *Journal of Superconductivity: Incorporating Novel Magn.* **18**, p. 189, (2005).
- [10] B. Lee, T. Jungwirth, A. H. MacDonald, *Semicond. Sci. Technol.* **17**, 393 (2002).
- [11] B. Lee, T. Jungwirth, A. H. MacDonald, *Phys. Rev. B* **61**, 15606 (2000).
- [12] E. Dias Cabral, M. A. Boselli, R. Oszwaldowski, I. Zutic, I. C. da Cunha Lima, *Phys. Rev. B* **84**, 085315 (2011).
- [13] K. Ando & H. Munekata, *J. Magn. Magn. Mat* **272**, 2004 (2004).
- [14] L.D. Anh, P. N. Hai, M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 042404 (2014).
- [15] Y. C. Ruan, W. Y. Ching, *J. Appl. Phys* **62**, 2885 (1987).
- [16] L. D. Anh, P. N. Hai, Y. Kasahara, Y. Iwasa, M. Tanaka, cond-mat, arXiv:1503.02174 (2015).
- [17] L. D. Anh, P. N. Hai, Y. Kasahara, Y. Iwasa, M. Tanaka (招待講演 - 第 37 回応用物理学会秋季学術講演会講演奨励賞受賞記念講演)、2015 年度応用物理学会春季学術講演会、14a-D2-2, 東海大学、2015 年 3 月 11-14 日。
- [18] Y. Yamada *et al.*, *Science* **332**, 1065 (2011).
- [19] F. Xiu *et al.*, *Nature Materials* **9**, 337 (2010).
- [20] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, *Phys. Rev. B* **63**, 195205 (2001).
- [21] J. Okabayashi *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, R4211-R4214 (1998).
- [22] P. W. Anderson, *Phys. Rev* **124**, 1 (1964).
- [23] J. R. Schrieffer and P. A. Wolff, *Phys. Rev.* **149**, 491 (1966).
- [24] A. K. Bhattacharjee, G. Fishman, B. Coqblin, *Physica* 117B&118B (1983).
- [25] M. Kobayashi, unpublished.