

## 論文の内容の要旨

### 論文題目

Epitaxial Growth and Properties of Ferromagnetic MnAs Thin Films  
on Semiconductors and Mn δ-doped GaAs Based Heterostructures

### 和訳：

半導体基板上の強磁性 MnAs 薄膜および Mn デルタドープ GaAs を  
ベースとしたヘテロ構造のエピタキシャル成長と物性

氏名 Ahsan Mohammad Nazmul (アーサン・モハッモド・ナズムル)

半導体をベースとする材料及びヘテロ構造中にスピンに起因する機能を導入することによってスピンエレクトロニクデバイスと呼ばれる新しい機能デバイスの実現が期待できる。近年、このような観点から、III-V 族半導体をベースとした新しい磁性材料や構造の研究が行われてきた。特に、(1) MnAs/GaAs や Fe/GaAs などのような強磁性金属/半導体ヘテロ構造及び (2) InMnAs や GaMnAs などの希薄磁性半導体などが注目を集めている。前者に関しては強磁性金属と半導体との結晶構造の違いから半導体基板上に平坦な表面と急峻な界面を持った強磁性金属の成長が困難であることや薄膜多層構造の成長が難しいといった問題が残されている。また、後者に関しては希薄磁性半導体の強磁性転移温度は低く、高い強磁性転移温度を得ることが大きなボトルネックとなっている。本研究はこれらの二種類の材料システムに対してこのような解決すべき点を念頭において研究を進めてきた。

序論に続き第二章「半導体 Si 及び GaAs 基板上に成長した強磁性金属 MnAs 薄膜の磁気光学特性」では Si(001), Si(111) 及び GaAs(001), GaAs(111)B 基板上に成長した MnAs 薄膜の磁気光学的な性質を調べた。MnAs は室温以上に強磁性転移温度を持つ強磁性金属である。Si(001) 及び GaAs(001) 基板上では成長条件によって MnAs(1100) 面あるいは MnAs(1101) 面に膜の成長面を制御することができる。一方、Si(111) 及び GaAs(111)B 基板上では MnAs(0001) 面が成長面となる。そこで本論文では Si(001), Si(111), GaAs(001) そして

GaAs(111)B 基板上に成長した MnAs( $\bar{1}100$ )、MnAs( $\bar{1}101$ )及び MnAs(0001)の結晶成長方位を持つ MnAs 薄膜の磁気円二色性 (MCD) を調べた。MCD は膜における左円偏光と右円偏光の反射率の差を示し、特に材料のバンド構造上の特異点などでは強い強度を示す。本研究では光波長 200 から 1000 nm 領域で MCD スペクトルを調べた。MCD の強度・スペクトル形状とともに MnAs の成長方位に大きく依存することがわかった。これは MnAs 膜膜の一軸結晶磁気異方性が薄膜の成長方位に依存するために生ずると明らかにした。また、MCD はエピタキシャル膜の結晶性に対しても顕著に変化する。GaAs 基板上に成長した MnAs の結晶性は Si 基板上に成長したものより優れており、GaAs 基板上の MnAs 薄膜の MCD 強度は Si 上に成長した場合に比べて強く観測された。MnAs の電子構造についてはいくつかのモデルがあるが本研究で得られた MCD スペクトルは Goodenough が提案したイオンモデルに良く一致していることを示した。さらに、フルポテンシャル線形マフィンティン軌道法(FLMTO)を用いたカ一樁円率の計算結果にも非常に良く一致する。このように本章では MnAs 薄膜の磁気光学効果だけではなく薄膜の電子構造に対しても統括的な理解を与えた。

第三章「Si(111)基板上の強磁性金属 MnAs 薄膜の成長過程」では半導体 Si(111)基板上に MnAs 薄膜の初期成長過程及び膜質やモフォロジーと磁気的な性質について調べた。平坦な表面表面及び急峻なヘテロ界面の作製が強磁性金属/半導体構造の重要な課題となっており、強磁性トンネル接合などのデバイス作製にはこの課題の克服が必要である。本論文では、Si(111)基板を用い MnAs 薄膜の MBE 成長初期過程を調べた。Si 基板上の強磁性 MnAs 薄膜に関する本研究は既存の半導体デバイス及び回路技術と互換性を保ち今後の新しいスピニエレクトロニクデバイス作製及び応用に大きく寄与すると期待できる。特に Si (111) 表面の三角的な原子配置及びその基板上に成長する MnAs(0001)面の六角的な原子配置間は対称にあることと互いの面間の格子ミスマッチが比較に小さいことがエピタキシャル的な結晶成長を促進すると期待できる。本研究は半導体 Si(111)基板上に MnAs 薄膜を成長する際、成長条件として  $As_4/Mn$  のフラックス比と基板温度を変えながら初期成長過程及び膜質やモフォロジーと磁気的な性質について調べた。MnAs 薄膜の成長モード（2 次元あるいは 3 次元的）、膜質、モフォロジー、及び磁気特性と磁気異方性なるは  $As_4/Mn$  のフラックス比と基板温度に強く依存することを示した。成長条件を制御することによって所望の磁気特性(所望の保持力及び飽和磁化)が得られることは将来のスピニエレクトロニクデバイス作製に大きな自由度を与える。

第四章「GaAs 中に Mn を  $\delta$  ドープした膜の構造評価と伝導特性」では GaAs 中に Mn を  $\delta$  ドープした構造という新しいスピニエレクトロニクス構造に関して調べた。 $\delta$  ドーピングの大きな特長は局所的に高密度の不純物を

添加することができること、さらに高密度のキャリアの誘起が可能であることである。一方、磁性半導体材料の InMnAs や GaMnAs などでは磁性イオン Mn 濃度を上げることができれば高い磁性転移温度が得られると推測されているが、このような材料では Mn の固溶限界は低く、Mn 濃度を 10%以上に上げることが困難である。本研究では  $\delta$  ドーピングによって Mn の固溶限界に関係なく高濃度の Mn を GaAs 中に添加することができることを示した。まずこの  $\delta$  ドープ構造の界面構造評価を二次イオン質量分析(SIMS)及び透過電子分析装置(TEM)によって行った。Mn 原子を数値でモノレヤー以下の濃度で  $\delta$  ドープした場合、Mn 原子は非常に急峻なプルファイルで局在し、この構造は成長温度 350°Cまで安定に存在することを示した。成長温度 400°Cでは表面偏析によって Mn の分布は GaAs 層中に若干広がるが 70%以上の Mn が界面に存在し、この場合でも準  $\delta$  ドープ構造が実現できていることを示した。Mn  $\delta$  ドープした GaAs 薄膜の伝導特性は成長温度(200 – 500°C)に大きく依存する。具体的には 200 – 400°Cでは成長温度を上げれば抵抗率は下がるが 500°Cでは抵抗率はまた上がる。すべての試料は低温では高い抵抗を示し、最も抵抗率の低かった 400°Cで GaAs キャップを成長したサンプルでも正孔濃度が低く強磁性的な磁性秩序は現れなかった。

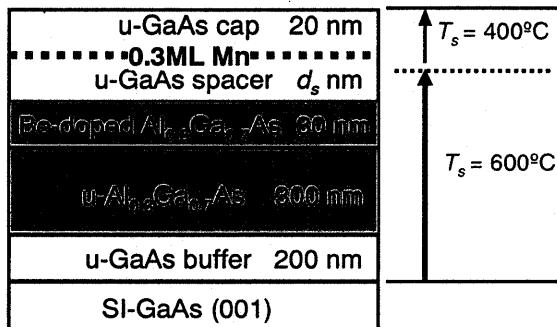


図 1 Mn  $\delta$ -doped GaAs / Be-doped p-type AlGaAs ヘテロ構造。Be 濃度は  $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 。

最後に第五章「Mn  $\delta$  ドープ GaAs / p-AlGaAs 変調ドープ構造の磁気輸送特性」では、Mn を  $\delta$  ドープした GaAs 層の下に Be をドープした AlGaAs 層を挿入していわゆる変調ドープ構造(図 1)を作製して、用いて二次元正孔ガス(2DHG)を Mn $\delta$  ドープ層に導入し、磁気輸送特性を調べた。この構造では Mn の  $\delta$  ドープ層からだけではなく Be をドープした p 型 AlGaAs からも正孔が供給される。図 2 にシート抵抗の測定温度依存性を示す。単層の Mn を  $\delta$  ドープした GaAs では正孔濃度が少なく強磁性的な磁性秩序を示さないが(図 2 挿入図(a))、変調ドーピングにより p 型 AlGaAs から正孔を供給することによってホール効果に強磁性的な磁性秩序が現れた(図 2 挿入図(b))。これは Mn の  $\delta$  ドープ層近傍に発生した 2DHG が遍歴的に Mn イオンと強い交換相互作用を生じ Mn-Mn 間に強磁性的な磁性秩序が現れたためであると説明できる。また、こ

の構造の強磁性転移温度は Mn $\delta$ ドープ層と GaAs / p-AlGaAs 界面間の GaAs スペーサー層厚 ( $d_s$ ) に大きく存在し、スペーサー層厚 3nm では最大 70K の強磁性転移温度を示した。これはスペーサー層厚 3nm では Mn 原子と 2DHG 波動関数の重なりが最も大きいからであると説明した。さらに、この構造では低温アニールを行うことによって強磁性転移温度は上昇し 320°C のアニールによって 160K といった現在得られている II-VI 族及び III-V 族磁性半導体の中では最も高い強磁性転移温度が現れることを示した。この値は磁性半導体 GaMnAs の最高値 110K を大きく上回る。本研究はこのように Mn を $\delta$ ドープすることによって局所的に高濃度の Mn を添加しさらにその近傍に変調ドーピングにより p-AlGaAs から正孔を供給することにより、GaAs をベースとした半導体ヘテロ構造において高い強磁性転移温度を実現した。これによって今後の新しいスピニエレクトロニクスデバイスへの道を開いた。

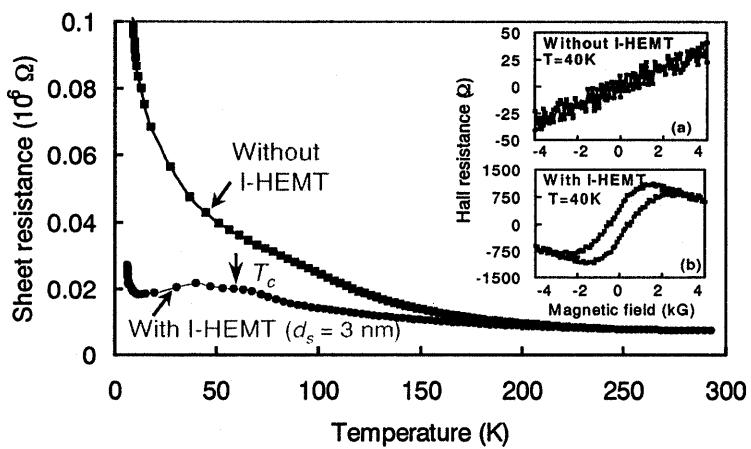


図 2 Mn  $\delta$ -doped GaAs / Be-doped AlGaAs のシート抵抗の温度依存。挿入図の (a) では I-HEMT ない及び (b) では I-HEMT ある場合の Hall ループを示す。