

## 論文の内容の要旨

論文題目 III-V based ferromagnetic semiconductors and their heterostructures: A new quaternary alloy ferromagnetic semiconductor (InGaMn)As and tunneling transport in ferromagnetic semiconductor tunnel junctions

(III-V 族強磁性半導体とそのヘテロ構造：新しい四元混晶強磁性半導体(InGaMn)As および強磁性半導体トンネル接合におけるトンネル伝導現象)

氏名 大矢 忍

近年、従来の半導体エレクトロニクスに今まで使われてこなかった“電子のスピン”という新しい自由度を取り入れて、今までにない新しい機能を持つ次世代のデバイスを作製しようという試みが盛んに行われている。数 ns オーダーの高速なスピン反転を利用した超高速半導体不揮発性メモリ、スピン MOSFET、再構成可能な論理回路、集積型半導体光アイソレータ、量子コンピュータなどの様々な今までにないデバイスが、電子のスピン自由度を半導体に取り入れることによって実現できると期待されている。この新しい研究分野は「半導体スピネレクトロニクス」と呼ばれており、この分野の研究は、現在、世界的に活発に行われている。

これらのデバイスを実現する材料として最も期待されているのが、強磁性半導体 (Ferromagnetic semiconductor; FMS) である。FMS は、非磁性の化合物半導体に Mn など遷移金属磁性元素を数%程度以上添加することによって作製される混晶半導体であり、これまでに II-VI 族化合物半導体をベースとした (CdMn)Te、(ZnMn)Te、(ZnCr)Te などや、III-V 族化合物半導体をベースとした (InMn)As、(GaMn)As などが研究されてきた。FMS は通常の金属磁性体や磁性酸化物とは異なり、単結晶であること、分子線エピタキシー法 (Molecular beam epitaxy; MBE) で成長可能であること、原子レベルでの急峻な界面をもつヘテロ構造が作製可能であること、原子レベルでの膜厚制御が可能であること、量子サイズ効果と強磁性を組み合わせることによって新しい機能を実現できる可能性を有することなど、様々な利点を持つ。

これらの利点を最も発揮できる III-V 族 FMS の研究は、(InMn)As や (GaMn)As などの三元混晶を用いたものに限られてきた。しかし、四元混晶の強磁性半導体 (InGaMn)As を作製することができれば、従来の三元混晶にはない様々な自由度を持つことが期待される。(InGaMn)As は In 組成を変えることによって、バンドギャップを 0.4 から 1.5 eV までの大きな範囲で制御することができる。InP 基板上に成長できるため、1.3  $\mu\text{m}$  または 1.55  $\mu\text{m}$  の波長にバンドギャップを合わせることができれば、光通信への応用も期待される。また、In 組成を変えることによって、バンド構造や歪を制御することができる。これにより磁化容易軸 (磁気異方性) の制御が可能となる。このように (InGaMn)As は様々な潜在的な可能

性を有する。しかし、本研究が行われるまで(InGaMn)Asの研究は全く行われてこなかった。

本研究では、(InMn)As や(GaMn)As と同様に、(InGaMn)As が低温分子線エピタキシー(Low-temperature MBE; LT-MBE)を用いて GaAs(001)基板および InP(001)基板に成長できることを初めて示した。InP 基板に成長した場合、最大で 21%という高濃度の Mn 組成をもつ(InGaMn)As を成長することに成功した。(強磁性 GaMnAs においては 9%、InMnAs においては 20%程度の Mn を導入できると報告されている。) 様々な Mn 濃度を有する InP 基板上[(In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>)<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>]As に対して X 線解析を行い、Mn 濃度が増加するに従って、格子定数がベガード側に従って線形に増加することを示した。さらに、磁気円二色性(Magnetic circular dichroism; MCD)の測定を行い、(InGaMn)As のバンド構造が GaMnAs と同様に閃亜鉛型であることを明らかにした。また、In 組成を変えることによって、MCD スペクトルの E<sub>0</sub> ピークがシフトすること、すなわちバンドギャップを制御できることを示した。InP 基板上[(In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>)<sub>0.88</sub>Mn<sub>0.12</sub>]As の MCD 測定においては、GaMnAs で報告されてきた値よりも 3 倍程度大きい 500 mdeg におよぶ大きな MCD 強度が観測され、(InGaMn)As が磁気光学効果の大きな材料であることを示した。InP 基板上[(In<sub>0.53</sub>Ga<sub>0.47</sub>)<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>]As の MCD 測定において、Mn 濃度が増えるに従って MCD スペクトルの E<sub>0</sub> ピークが高エネルギー側にシフトする現象を観測し、Mn 濃度の増加に対してバンドギャップが増加している可能性を示唆した。MCD の磁場依存性の測定および磁気輸送特性の評価により、低温における(InGaMn)As の強磁性転移を観測した。また、(InGaMn)As への歪の加え方によって、垂直磁気異方性と面内磁気異方性を制御できることを示した。成長後の低温アニールが(InGaMn)As のキュリー温度を向上させる上で非常に有効であり、特に InP 基板上[(In<sub>0.44</sub>Ga<sub>0.56</sub>)<sub>0.79</sub>Mn<sub>0.21</sub>]As に対して低温アニールを施すことによって、最高で 130 K の高いキュリー温度が得られた。これは In 系 FMS においてこれまでに報告されている値としては最高値である。

現在、金属強磁性体をベースとした強磁性体/絶縁層(数 nm)/強磁性体からなる三層構造の強磁性トンネル接合(Magnetic tunnel junction; MTJ)の研究が活発に行われている。この構造において、電子が絶縁層をトンネルする方向に流れる時、両強磁性層の磁化が平行である時にトンネル抵抗が低くなり(この時の抵抗を R<sub>P</sub> と定義)、反平行磁化の時に高くなる(この時の抵抗を R<sub>AP</sub> と定義)。この現象をトンネル磁気抵抗効果(Tunneling magnetoresistance; TMR)と呼ぶ。この現象の大きさを表す指標として「TMR 比」=(R<sub>AP</sub>-R<sub>P</sub>)/R<sub>P</sub> がよく用いられる。近年、この現象を応用した不揮発性、高速性を有する磁性ランダムアクセスメモリ(Magnetic Random Access Memory; MRAM)の研究・開発が精力的に進められている。MRAM は次世代メモリとして注目されている。2004 年には 16Mbit の MRAM が Infineon 社と IBM 社で開発され、注目を集めた。しかし、今まで MTJ の研究は、多結晶やアモルファス材料を用いたものがほとんどであった。MTJ においては、電子が絶縁層をトンネルするため、界面の平坦性が大変重要である。従って、もし、これらの構造を単結晶かつ急峻な界面を有する FMS を用いて実現できれば、さらに大きな TMR が得られると考

えられる。実際に、近年、GaMnAs/AlAs/GaMnAs や GaMnAs/GaAs/GaMnAs MTJ が作製され、それぞれにおいて 75% (8 K)、290% (0.39K) という非常に大きな TMR が観測された。これらの結果は FMS が MTJ 材料として大変有望であることを意味する。

MTJ の電極材料として四元混晶である InGaMnAs を用いれば、In 組成を変えて障壁高さ、歪、バンド構造などを制御でき、TMR をさらに大きくしたり、あるいはバンド構造の変化が TMR に与える影響を明らかにしたりすることができるかと期待される。また、歪によって垂直磁化膜が得られれば、将来の高集積化に対して大変有利である。本研究では、InGaMnAs / AlAs / InGaMnAs MTJ を作製し、2.4% と小さいながらも明瞭な TMR を In 系 FMS を用いたヘテロ構造において初めて観測した。また、この MTJ 素子に対して超電導量子干渉素子(Superconducting quantum interference device; SQUID)による磁化測定を行い、成長条件の最適化によってキュリー温度が向上すれば、TMR 比が増加することを示唆した。

FMS を用いて量子サイズ効果と磁性を組み合わせることができれば、FMS の可能性はさらに広がる。理論計算により、GaAs や GaMnAs を量子井戸として有する GaMnAs / AlAs / GaAs / AlAs / GaMnAs 共鳴トンネルダイオード(Resonant tunneling diode; RTD)や GaMnAs / AlAs / GaMnAs / AlAs / GaMnAs RTD においては、それぞれ 800%、10<sup>6</sup>% 程度もの大きな TMR が得られると予測されている。さらに、量子井戸に電極を作製することによって、スイッチング機能を有する不揮発性メモリなどの新しいデバイスを実現しようという提案も行われている。GaMnAs をベースとした量子構造の作製および量子サイズ効果の観測が試みられ、磁気光学効果の測定によって GaMnAs 中における量子サイズ効果の存在が示唆されている。しかし、磁気輸送特性の測定においては、上記の GaAs 量子井戸構造と GaMnAs 量子井戸構造のいずれにおいても、量子サイズ効果は全く観測されておらず、またその理由も明らかにされていない。

本研究では、In<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As を量子井戸として有する Ga<sub>0.94</sub>Mn<sub>0.06</sub>As / AlAs / In<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As / AlAs / Ga<sub>0.94</sub>Mn<sub>0.06</sub>As RTD を作製し、反平行磁化の時の抵抗が平行磁化時の抵抗よりも低くなるという今まで FMS ヘテロ構造において観測されたことのない「負の TMR」と、「AlAs 膜厚の増加に伴い TMR 比が正と負の間で振動する現象」を、FMS ヘテロ構造において初めて観測した。

さらに、Luttinger Kohn *k*-*p* Hamiltonian モデルおよび transfer matrix 法を用いて GaMnAs / AlAs / InGaAs / AlAs / GaMnAs RTD における TMR の振る舞いに関する理論計算を行い、実験的に観測された TMR 振動が InGaAs 量子井戸における量子サイズ効果に起因することを示唆した。