

氏名(本籍地)	及川晴義(東京都)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第6833号
学位授与年月日	平成26年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	II-VI族希薄磁性半導体における電場による磁性の変調

主査	筑波大学教授	理学博士	黒田 眞司
副査	筑波大学教授	理学博士	門脇 和男
副査	筑波大学教授	博士(工学)	末益 崇
副査	筑波大学客員教授	理学博士	大田 憲雄
副査	日本大学教授	博士(工学)	中川 活二

## 論 文 の 要 旨

本論文は、II-VI族希薄磁性半導体(Zn,Cr)Teの外部電界による磁性制御の研究およびその成果を纏めたものである。希薄磁性半導体の中には(Ga,Mn)Asをはじめ強磁性を示すものがあり、スピントロニクスへの応用の観点から注目されているが、強磁性を示す半導体の特徴の一つとして、外部刺激による磁性の変調・制御が可能であることが挙げられる。特に、(In,Mn)As, (Ga,Mn)Asなどの磁性半導体ではMetal-Insulator-Semiconductor (MIS)構造においてゲート電圧印加による強磁性特性の変調が報告され、さらに最近では強磁性金属における電場による磁性制御も報告されている。本研究で対象とする(Zn,Cr)Teは強磁性を示す半導体であり、転移温度はCr組成20%程度で室温に達することが知られており、またその強磁性発現は(Ga,Mn)Asなどにおけるキャリア誘起とは異なるメカニズムによると考えられている。本研究では(Zn,Cr)TeのMIS構造を作製し、実際に外部電場による磁性変化の観測に成功し、その起源について(Zn,Cr)Teの強磁性発現メカニズムに基づいた考察を行った。本論文は6章から構成されており、その内容について以下に詳述する。

第1章、第2章では、本研究の背景説明としてスピントロニクス、希薄磁性半導体、およびその外部電場による制御についての研究の現状が簡単に紹介され、および本研究が対象とする希薄磁性半導体一般、および(Zn,Cr)Teの物性についての説明が述べられている。第3章では、外部電場による磁性の変調の前段階として、(Zn,Cr)Teと非磁性半導体からなる変調ドーブヘテロ構造における磁性の変化についての実験の結果が述べられている。(Zn,Cr)Teにおいては、アクセプターである窒素を一様にドーブすると強磁性が抑制されることが既に知られているが、本研究では分子線エピタキシー(MBE)法により窒素をドーブした非磁性半導体層と(Zn,Cr)Teからなるヘテロ構造を作製し、両者の界面におけるいわゆるリモートドーピングの効果による(Zn,Cr)Te層の磁性の変調を試みた。具体的には、ZnTeあるいは(Zn,Mg)Teに窒素ドーブを施したもの、あるいは施していないものの4種類の非磁性半導体層とCr組成5%程度の

(Zn,Cr)Te 層からなるヘテロ構造を作製し、それぞれの磁化特性の違いを詳しく調べた。その結果、窒素ドーピング(Zn,Mg)Te と(Zn,Cr)Te とからなる変調ドーピングヘテロ構造において、転移温度の低下など強磁性の抑制が最も顕著に現れ、予想通りにリモートドーピングの効果による磁性の変化が確認された。この現象の解釈として、ヘテロ界面に発生する内部電場により(Zn,Cr)Te のバンドが屈曲し、それにより Cr の電子状態が変化し、Cr 間の磁氣的相互作用が変化するというモデルが提示され、さらに外部電場の印加による(Zn,Cr)Te の磁性変調の可能性が示唆された。

第4章では、電場による磁性変調を行う MIS 構造デバイスで用いられる絶縁層の成膜と特性評価の結果が述べられている。一般に半導体、金属に係わらず磁性層の磁性を外部電場により変化させるためには、1 MV/cm 以上の非常に大きな電場を印加する必要がある、厚さ数十 nm 程度でこのような高電場に耐える良好な絶縁性を有する絶縁層の成膜が必要である。しかしながら、通常よく用いられるスパッター法などで成膜した酸化物の絶縁層では絶縁耐圧やリーク電流などの点で十分ではない。そこで本研究では良好な絶縁性を有する絶縁層の物質およびその成膜法を検討し、AlN の反応性蒸着法による成膜および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の原子層堆積(ALD)法による成膜を取り上げ、成膜条件の探索および得られた薄膜の絶縁特性の評価を行った。その結果、AlN および Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のいずれにおいても、成膜条件を最適化することにより、厚さ数十 nm 程度で耐電圧 1 MV/cm、リーク電流 10 nA/cm<sup>2</sup> 以下の優れた絶縁性を示す絶縁層の成膜に成功した。

第5章では、本研究の目標である電場による磁性制御デバイスの作製および磁性変調の実験結果について述べられている。本研究では、窒素ドーピング ZnTe と(Zn,Cr)Te からなる変調ドーピングヘテロ構造の上に絶縁層を介しゲート電極を装着した MIS 構造デバイスを作製した。その際、絶縁層として第4章で述べた AlN あるいは Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の固体絶縁層を用いた構造、および固体絶縁層の代わりにイオン液体を浸透させたポリマーを用い、(Zn,Cr)Te 層との界面に生成する電気二重層により電場を印加するデバイス構造との両方を作製し、電場による磁性の変化を測定した。その結果、前者の固体絶縁層からなるデバイスでは、ゲート電圧を印加した状態で測定した磁化の磁場依存性(*M-H* 曲線)において、ゲート電極側に負の電圧を印加した際に飽和磁化の増大が見られたものの零磁場付近のヒステリシスに変化は見られなかった。一方、イオン液体を用いたデバイスでは同じくゲート電圧を印加した状態の *M-H* 曲線で、固体絶縁層からなるデバイスと同様、負のゲート電圧印加下で飽和磁化の増大が見られただけでなく、逆に正のゲート電圧印加下でヒステリシスの形状に変化が見られ、保磁力の低下が確認された。この実験結果は、第3章で提示された、窒素ドーピング ZnTe と(Zn,Cr)Te とのヘテロ界面において内部電場による(Zn,Cr)Te のバンドの屈曲に伴い Cr の電子状態が変化するというモデルで、外部電場の印加によりその変化がさらに増進されたものとして定性的に説明できることが示された。

第6章では本研究の纏めが述べられており、本研究では(Zn,Cr)Te を対象とし、キャリア誘起とは異なるメカニズムで強磁性を発現する磁性半導体において電場による磁性変調に世界で初めて成功した。

## 審 査 の 要 旨

[批評]

近年、磁性半導体および強磁性金属の磁性を外部電場の印加により変調・制御する試みが報告され基礎・応用の両面で注目を集めているが、本研究では(Zn,Cr)Te からなる MIS 構造デバイスを作製し、電

場による磁性の変調が可能であることを実証している。この成果の意義は、これまで電場による磁性制御が報告された磁性半導体の種類に新たに(Zn,Cr)Te が加えられたという点に留まるものではない。これまで電場による磁性制御が報告されているほぼすべての磁性半導体では、強磁性はキャリア誘起のメカニズムにより発現すると理解されており、磁性の変化は電場により誘起されたキャリア濃度の変調を通じたものと解釈されている。それに対し、(Zn,Cr)Teはキャリア誘起とは全く異なるメカニズムで強磁性が発現すると考えられ、異なるメカニズムのもとで発現する強磁性半導体においても外部電場による磁性の変化が確認されという点では新たな局面を拓く成果と言え、磁性半導体の強磁性メカニズムの理解の点で大きな学術的意義を有すると高く評価される。また、本研究におけるMIS構造デバイス作製の過程では、第4章で述べられているように良好な絶縁特性を有する絶縁層の物質・成膜法の探索に多大な時間を費やし、特にALDによるAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の成膜においては、本論文の著者は成膜装置を一から独力で自作し、成膜条件を丹念に探索し、磁性の電場制御に耐えうる良好な絶縁層の成膜に至った。この成果は、絶縁層の研究・開発のなかでこれまであまり報告例のない、高電圧下で良好な絶縁特性を示す絶縁層の物質・成膜法の開発という面でも評価に値すると言える。

#### 〔最終試験結果〕

平成26年2月20日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

#### 〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。