

電気二重層トランジスタ構造によるn型強磁性半導体(In,Fe)As 量子井戸の磁気特性の変調

レデウツクアイン¹、中川裕治²

¹電気系工学専攻 田中・大矢研究室

²理工工学専攻 岩佐研究室

Abstract –(In,Fe)As は III-V 族半導体において唯一の n 型電子誘起強磁性材料で、電子・Fe スピン間に大きな *s-d* 交換相互作用エネルギーを有する。このため、トランジスタ構造を用いたキャリア特性制御により磁気物性を温度一定のまま制御することが可能で、材料の物性解明とデバイス応用が大いに期待されている。本研究は電気二重層トランジスタ(EDLT)構造を用いて(Al_{0.5}, Ga_{0.5})Sb でキャップした(In,Fe)As 量子井戸の磁気特性の変調を行った。成長した(In,Fe)As 量子井戸において高い移動度 (~1000 cm²/Vs) と大きな磁気抵抗(~7.5%)が観測され、キャリア密度の制御範囲がとても小さいにも関わらず、磁気抵抗の変調に成功した。

1. 著者紹介

レデウツクアイン – 専門は半導体スピントロニクス。本研究では結晶成長、EDLT デバイス作製、磁気特性測定を担当した。

中川裕治 – 2次元層状物質のデバイス化と電気測定を専門としている。本研究では EDLT デバイス作製と電気特性測定を担当した。

2. 背景と目的

n型強磁性半導体(In,Fe)As の強磁性はキャリア電子と局在スピンの *s-d* 交換相互作用によって誘起されると考えられている。このため、トランジスタ構造を用いてキャリアを制御することによって磁気物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、不揮発性論理デバイスに用いるなど、この材料の様々な応用が可能となる。(In,Fe)As では大きな *s-d* 交換相互作用エネルギーが見積もられ、電子濃度を十分に増大できれば(~10²⁰ cm⁻³)キュリー温度(*T_C*)が増大し室温でも強磁性状態が維持されると予測されている[1,2]。さらに、*T_C* はフェルミレベルでの状態密度に比例するため、量子井戸のような 2次元強磁性構造では *T_C* が量子化することも理論的に予測される[3]。このため電界効果で電子濃度を広い範囲で制御して磁気物性の変化を調べること

は理論面でも応用面でも重要な課題である。

電気二重層トランジスタ(EDLT)を用いた先行研究では、InAs/(In,Fe)As/InAs 三層構造量子井戸におけるキャリア変調量は 10¹² cm⁻² 程度であった[4]。この値は酸化物薄膜やファンデルワールス層状結晶において報告されている変調量と比べて 1桁から 2桁小さい [5, 6]。また、(In,Fe)As 層が表面に近いほどキャリアの変調量が小さくなることがわかっている。従って、Fe 原子が表面に拡散して表面状態を作り、フェルミレベルをより強くピンニングしていることが小さいキャリア変調量の原因として推測される。(In,Fe)As 層を表面から離すことが解決策として挙げられるが、磁性を制御するためには、電界効果によって表面に誘起されたキャリアが(In,Fe)As 層に注入、蓄積されることが必要である。

そこで本自発融合研究では (Al_{0.5}, Ga_{0.5})Sb をキャップ層として用い、図 1A に示す(Al_{0.5}, Ga_{0.5})Sb / (In,Fe)As / InAs / AlSb ヘテロ構造を作製する。この構造により (In,Fe)As 層を表面から離すことができる。また、図 1B に示すように(Al_{0.5}, Ga_{0.5})Sb は伝導帯のエネルギー準位が高いため、ここに誘起されたキャリアは(In,Fe)As 層に注入されると考えられる。(Al_{0.5}, Ga_{0.5})Sb と(In,Fe)As は格子定数(どちらも 6.1 Åである)が近いエピタキシャル成長が容易である。なお、この構造では量子井戸全体のキャリア密

度の変化だけでなく、(In,Fe)As/InAs に広がっていたキャリアが電界効果で(In,Fe)As に偏るキャリア濃度分布の変化による磁性変化も期待される。EDLTの巨大な静電容量は電気二重層の厚さがイオン半径程度であることに起因しており、キャップ層を挟むことはこれを害するものである。しかしキャップが数 nm 程度であれば、キャップしない場合と同程度のキャリアが蓄積できることが示されている[7]。(In,Fe)As 層を表面から離しつつ、キャリアの蓄積量を保つような最適なキャップ層の厚みが存在すると考えられる。

このため、本自発融合研究では極めて薄い($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$) キャップ層を持つ(In,Fe)As 量子井戸構造において EDLT を作製し、($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$) キャップ層の膜厚の変化に対する(In,Fe)As 量子井戸の物性のゲート変調効果を評価し、ゲート変調効果を増大させるための最適なキャップ膜厚を調べることを目的とする。

3. 実験結果

3.1 試料成長

本自発融合研究で用いた試料は分子線エピタキシー(MBE)法より成長した。量子井戸構造は($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$ (t nm))/(In,Fe)As (10 nm, Fe 6%)/InAs (5 nm)である。ここで t はキャップ層の厚みで、 $t = 2, 5, 10$ nm の3種類の試料(それぞれ試料 A, B, C と名付ける)を測定した。Fe 原子が析出しないように上部の($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$)/(In,Fe)As 層の成長において成長温度を 236°C に下げた。図 1C に成長中の表面状態を反映する反射高速電子線回折(RHEED)パターンを示す。試料 B ($t = 5$ nm) の試料が最も結晶性良く成長できている。試料 C の $t = 10$ nm においては、($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$) キャップ層の RHEED パターンに薄いアモルファスの輪が見えて、膜が変質しかけていることを示唆している。

3.2 EDLT の作製

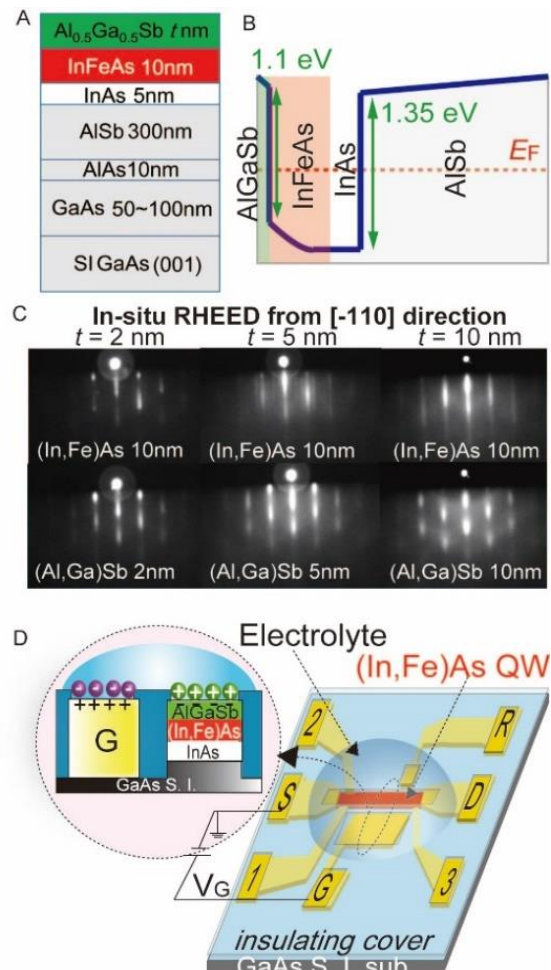


図 1. A. 成長した量子井戸構造。 B. 量子井戸構造における伝導帯の実空間バンド構造(実線)。 C. ($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$)層、(In,Fe)As 層の成長中の RHEED パターン。 $t = 5$ nm の試料が最も上手く成長できている。 D. EDLT デバイス構造の平面図。ゲート電圧 V_G を印加することでキャリアが誘起される。

図 1D にデバイスの平面図を示す。フォトリソグラフィとイオンミリングにより試料を $50 \times 200 \mu\text{m}^2$ のホールバー形状に加工し、真空蒸着装置で Cr (5 nm)/Au (50 nm)膜を付けてサイドゲート(G)と伝導性測定電極(S, D, 1, 2, 3, R)を形成した。次に表面全体を絶縁レジストで覆い、チャンネル、サイドゲート電極、配線用電極パッドに接触ホールを開ける。最後にチャンネルとサイドゲート電極の上にイオン液体(DEME-TFSI)を滴下してデバイスが完成する。ゲート電圧 $V_G > 0$ (< 0)をかけると、イオン液体中の正(負)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、半導体の表面付近に電子が蓄積(あるいは空乏化)されるようになる。試料 A, B, C においてそれぞれ複数の EDLT デバイスを作製し実験を行った。

3.3. (In, Fe)As 量子井戸の伝導特性とゲート変調効果

図 2 は、試料 A, B, C ゲート電圧 $V_G = 0$ V の場合の伝導特性である。抵抗の温度依存性はいずれの試料も高温で金属的であり、低温でやや増大し絶縁的な振る舞いを見せる。図 2B は各試料のシート電子濃度 (n_{sheet})、移動度 (μ) である。2K での正常ホール抵抗から n_{sheet} を求め、振る舞いが絶縁的になる点より高温側の 20K での抵抗を用いて μ を求めている。シート電子濃度 n_{sheet} は試料 B ($t = 5$ nm) が最小である一方で、移動度は試料 A ($t = 2$ nm) における $1140 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ から試料 C ($t = 10$ nm) の $660 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ まで単調に減少している。しかし先行研究の移動度 ($\sim 200 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) [4] と比較するといずれの試料も高い移動度を持っていると言える。

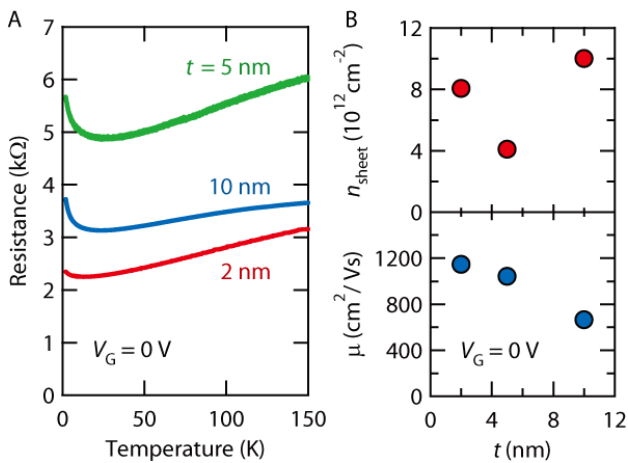


図 2. ゲート電圧 $V_G = 0$ V の場合の試料 A, B, C の伝導特性。A. 抵抗の温度依存性。B. 2 K におけるシート電子濃度 n_{sheet} (上) と 20 K における移動度 μ (下)。

先行研究とは異なり本研究ではドーパントを用いていないため、キャリアは欠陥等によって導入されたものである。図 1B のバンド図から、 $(\text{Al}_{0.5}, \text{Ga}_{0.5})\text{Sb}$ 層に起因するキャリアが (In, Fe)As 量子井戸に移動

することが分かる。図 1C の膜質と図 2B の n_{sheet} を比較すると、確かに膜質が良い $t = 5$ nm の試料で n_{sheet} が低くなっている。従って n_{sheet} は t よりも成長条件に依存したものであると予想される。一方、移動度が先行研究と比較して高いのは、イオン化欠陥の特に多いキャップ層と伝導層が離れている結果であると考察される。

しかし、今回の測定ではキャップ層が薄いほど移動度が高いという結果も得られた。この原因として考えられるものは AlGaSb キャップ層の膜質の影響とイオン液体の効果である。電子キャリアは AlGaSb/(In, Fe)As 界面で散乱を受けるので、移動度は AlGaSb キャップ層の膜質にも依存するだろう。このため膜質の低下が顕著であった $t = 10$ nm の試料 C においては移動度が半分に低下した。一方で $t = 2, 5$ nm の移動度の関係は膜質の評価 (RHEED, キャリア密度) とは対応していない。今回の測定は、 $V_G = 0$ V であってもイオン液体を乗せた状態で行っている。ゲート電圧をかけずともイオンが欠陥に吸着しその影響を補償するようなことがあれば、キャップ層が薄いほど移動度は高くなると考えられる。ただし後述のようにゲート電圧による移動度の変調量は小さいことを考慮すると、他の効果であることも予想される。更なる測定、特に同質の試料間での比較や液体を乗せる前後の比較が望まれる。

続いて $T = 220$ K においてゲート電圧を印加した結果を図 3A に示す。図 3A は掃引開始時の電流値を 100 として規格化している。電流の変化量としては、2, 3%程度で、先行研究と同程度にとどまっている。温度依存性の変化もほとんど見られない (図 3B)。電子密度、移動度についても、 $t = 10$ nm の試料 C での電子密度以外は目立った変化は見られなかった (図 3C)。

このように EDLT による変調量は予想に反して非常に小さいものであった。イオンが表面に集まっていないか、集まってもキャリアが表面にトラップされ伝導層に注入されていないかのどちらかである。前者に関しては、使用するイオン液体に含まれ

るイオンのサイズ、構造を最適化することによる改善が期待される。後者については、キャップ層を他の物質に変えること、例えば MgO や六方晶 BN のキャップを良質に作製することで解決されると考えられる。

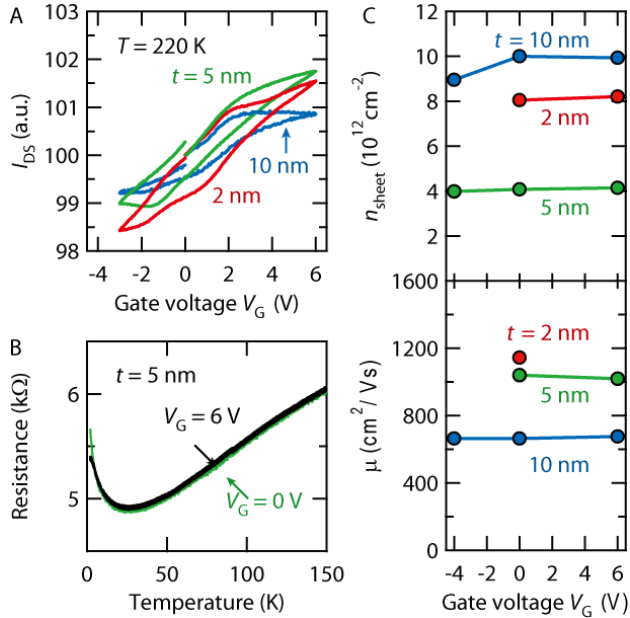


図 3. A. $T = 220$ K において V_G を印加した場合のソース・ドレイン電流の変化。B. $V_G = 0$ V と 6 V の場合のデバイス B の抵抗の温度依存性。C. V_G によるシート電子濃度 n_{sheet} (上) と移動度 μ (下) の変化。

3.4. (In,Fe)As 量子井戸の磁気特性とゲート変調効果

3.4.1. 試料 A, B, C の磁化特性とゲート変調効果

図 4A に試料 B ($t = 5$ nm) の異常ホール抵抗成分 (AHR) の磁場依存性 (AHR- H 曲線) を示す。4.2 K での AHR- H 曲線は強磁性的なヒステレシスを見せるが、温度が 7 K 以上になると AHR- H 曲線のヒステレシスが閉じて、全体の形が線形になっていく様子が観察できる。この結果から試料 B のキュリー温度 (T_C) が ~ 5 K であると見積もった。

試料 B の AHR はゲート電圧をかけても大きな変化は見られない。図 4B からは、ゲート電圧 (V_G) が 0 V と 4 V における試料 B の AHR- H 曲線がほとんど変化しないことが見て取れ、シート電子濃度の変化がわずかであったこと (図 3C) と整合している。また試料 A と C に関しても同様な結果が得られた。

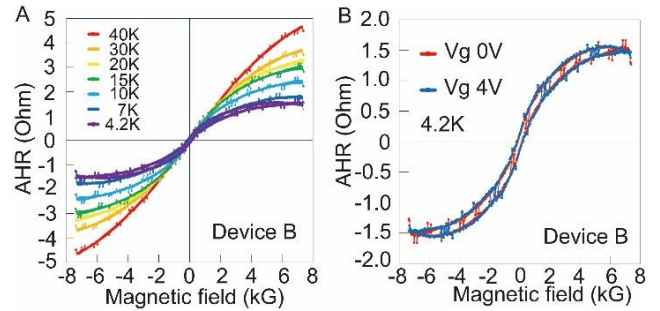


図 4. A. 試料 B ($t = 5$ nm) の各温度における異常ホール抵抗の磁場依存性。B. $V_G = 0$ V と 4 V の場合のデバイス B の AHR の比較。

3.4.2. (In,Fe)As 量子井戸の大きな磁気抵抗効果とゲート変調効果

図 5A に試料 A, B, C の 4.2 K における磁気抵抗測定結果を示す。どれも数%の負の磁気抵抗 (MR) が見られる。温度 4.2 K と磁場 7.5 kG の下で、(Al,Ga)Sb キャップ層の膜厚 $t = 2, 5, 10$ nm の順に対して MR の大きさはそれぞれ 2.3, 7.5, 4.4% である。図 2B の各試料における電子密度と比較すると、(In,Fe)As 量子井戸の MR の大きさはシート電子濃度 n_{sheet} と負の相関関係を持つことが分かる。

図 5B と 5C に試料 A と B の EDLT デバイスにおける磁気抵抗 (MR) とシート電子濃度 (n_{sheet}) のゲート電圧による変化を示す。僅かな n_{sheet} の変化 ($< 2 \times 10^{11}$ cm^{-2}) に対して磁化特性がほぼ変わらない一方、MR の大きさでは顕著な変化が見られた。同一の試料においても n_{sheet} が増大すると MR が減少することが確認された。

(In,Fe)As バルク試料における負の磁気抵抗効果は既に観測されているが、その大きさは精々 0.5% 程度だった [8]。従って、本自発融合研究の (In,Fe)As 量子井戸の MR 値は同じ Fe 濃度のバルク (In,Fe)As 試料の MR 値に比べて 1 桁も大きい。バルク (In,Fe)As の磁気抵抗効果の起源はスピン無秩序散乱 (spin disorder scattering) 機構で説明され、その大きさは下記の Khosla-Fischer 式で与えられる [9] :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = -B_1 \ln(1 + B_2^2 H^2) \quad (1)$$

$$B_1 = A_1 J \rho_F [S(S+1) + \langle M^2 \rangle] \quad (2)$$

$$B_2^2 = \left[1 + 4S^2 \pi^2 \left(\frac{2J\rho_F}{g_0} \right)^4 \right] \frac{g_0^2 \mu^2}{(\alpha k T)^2} \quad (3)$$

ここで $\frac{\Delta_0}{\rho_0}$ は MR 比、 A_1 は定数、 J は s - d 交換相互作用係数、 ρ_F はフェルミ準位での状態密度、 S は Fe 原子スピン (=5/2)、 M は磁化、 g_0 は電子のランデ係数、 μ はボーア磁子、 k は Boltzmann 係数、 T は絶対温度、 α は 1 オーダーの値を持つ定数である。従って温度一定の場合に磁気抵抗の大きさを決めるのは M と $J\rho_F$ である。図4に示したようにゲート電圧によって M はほぼ変わらないため、MR の変化は $J\rho_F$ の変化に起因すると考えられる。

さらに、(In,Fe)As 量子井戸では 2 次元電子系の状態密度の量子化によって、僅かな n_{sheet} の変化では占有される量子準位が変わらず ρ_F も変化しない。よって、仮に上述の Khosla-Fischer モデルが 2 次元電子系にも成立するとすれば、図 5B に示している試料 A、B における MR のゲート変調効果は s - d 交換相互作用係数 J の変調によると考えられる。また (In,Fe)As 量子井戸試料の MR がバルク (In,Fe)As 試料の MR より 1 桁大きいことは、2 次元量子井戸では s - d 交換相互作用が増大することを示唆する結果である。強磁性半導体の低次元構造における s - d 交換相互作用の増大現象は理論的に予言されており [10]、 p 型強磁性半導体 (Ga,Mn)As 量子井戸において s - d 交換相互作用エネルギーが量子束縛の寸法とポテンシャルに依存する現象も観測されている [11]。つまり、本研究の EDLT デバイスではゲート電圧で量子井戸ポテンシャルの変形させることによって s - d 交換相互作用係数 J を変調した効果を磁気抵抗の変調効果として捉えている可能性がある。そうであれば、試料の磁気抵抗を測定すれば s - d 交換相互作用エネルギーとそのゲート電圧による変調を高感度で評価することが可能で、とても興味深い実験結果となる。ただし、Khosla-Fischer の式(1-3)は 3 次元系の磁性材料に基づくので、強磁性半導体量子井戸のような 2 次元系にはこれらの式をそのまま用いることができる保証がな

い。また、最近強磁性量子井戸ではゲート電圧によるキャリアの波動関数の移動が量子井戸の磁気特性に大きな影響を与えることが示され、今回の実験でその効果を考慮する必要がある [2,4]。このため上述の s - d 交換相互作用係数 J の変調効果を磁気抵抗の変化から定量的評価するには、強磁性 2 次元系の磁気伝導理論が要求される。

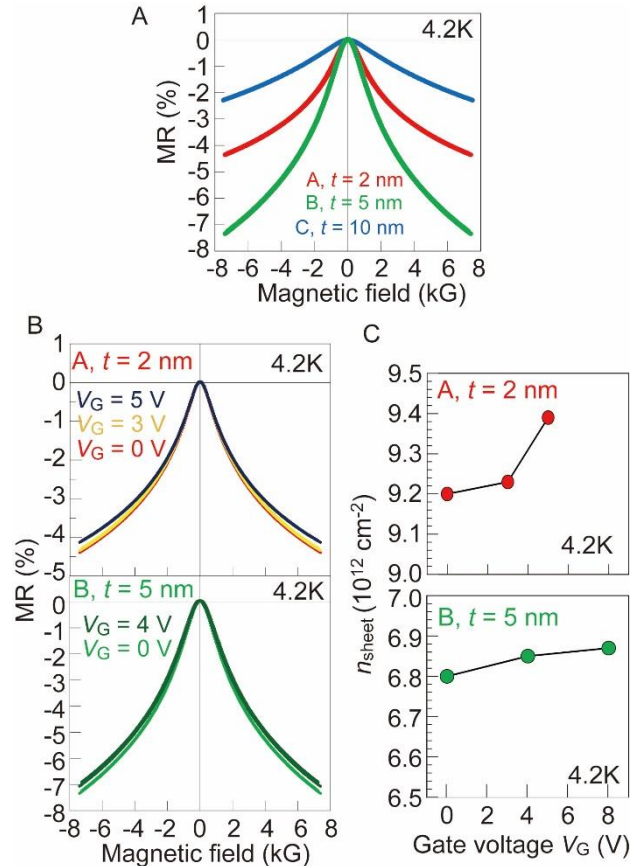


図 5. A. 試料 A, B, C の 4.2 K における磁気抵抗測定結果。B, C. 試料 A と B の EDLT デバイスにおける磁気抵抗(MR)とシート電子濃度(n_{sheet})のゲート電圧による変化。

4. まとめと今後の展開

本自発融合研究では、極めて薄い ($\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{Sb}$) キャップ層 (膜厚 $t=2,5,10$ nm) を付ける (In,Fe)As 量子井戸構造の EDLT 構造において、ゲート電圧の伝導特性と磁気特性に対する変調効果を評価した。

伝導特性について、 $(\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})\text{Sb}$ キャップ層を $(\text{In,Fe})\text{As}$ 量子井戸の上に作製することによって、量子井戸の電子移動度が約 $1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ となって先行研究の5倍の値になった。電子移動度は $(\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})\text{Sb}$ キャップ層の膜厚と膜質に依存することも分かった。磁気特性について $(\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})\text{Sb}$ キャップをした $(\text{In,Fe})\text{As}$ 量子井戸はキュリー温度が低くなる一方、数%程度の大きな磁気抵抗効果が観測された。

一方、EDLT による変調量は予想に反して非常に小さいものであった。使用する電解質のイオンサイズ、構造を最適化、キャップ層を他の物質に変えることによって改善が期待される。ゲート電圧による n_{sheet} の小さい変化にもかかわらず、 $(\text{In,Fe})\text{As}$ 量子井戸の磁気抵抗は変調された。その原因はまだ定量的には説明できないが、量子井戸ポテンシャルを変形させることによって s - d 交換相互作用係数 J を変調した効果だと思われる。この現象をより詳細に解明するためには、 n_{sheet} を更に広い範囲で制御した上での磁気抵抗の変化の系統的な調査、強磁性2次元系の磁気伝導理論の構築が要求される。

5. 謝辞

本研究の遂行を快く許可していただいた指導教員の田中雅明教授、岩佐義宏教授、並びに副指導教員の樽茶清吾教授・山田淳夫教授に感謝いたします。貴重な研究の機会を与えていただいた MERIT プログラムに感謝いたします。

6. 参考文献

1. P. N. Hai, L. D. Anh, M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **101**, 252410 (2012).
2. L. D. Anh, P. N. Hai, M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **104**, 046404 (2014).
3. 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).
4. L. D. Anh, P. N. Hai, Y. Kasahara, Y. Iwasa, M. Tanaka,

- Phys. Rev. B **92**, 161201(R) (2015).
5. K. Ueno, S. Nakamura, H. Shimotani, et al. Nat Mater **7**, 855 (2008).
6. J. T. Ye, S. Inoue, K. Kobayashi, et al. Nat Mater **9**, 125 (2010).
7. P. Gallagher, M. Lee, T. Petach, et al. Nat Commun **6**, 6437 (2015).
8. P. N. Hai, L. D. Anh, S. Mohan, T. Tamegai, M. Kodzuka, T. Ohkubo, K. Hono, M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **101**, 182403 (2012).
9. R. P. Khosla and J. R. Fischer, Phys. Rev. B **2**, 4084 (1970).
10. T. Dietl, A. Haury, Y. Merle d'Aubigne, Phys. Rev. B **55**, R3347 (1997).
11. N. P. Stern, R. C. Myers, M. Poggio, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, Phys. Rev. B **75**, 045329 (2007).