



Title	III族窒化物希薄磁性半導体の創製とその評価に関する研究
Author(s)	木村, 重哉
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/23431">https://hdl.handle.net/11094/23431</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名 木 村 重 哉

博士の専攻分野の名称 博士(工学)

学位記番号 第 22059 号

学位授与年月日 平成 20 年 3 月 25 日

学位授与の要件 学位規則第 4 条第 1 項該当

工学研究科電気電子情報工学専攻

学位論文名 III 族窒化物希薄磁性半導体の創製とその評価に関する研究

論文審査委員 (主査)

教授 朝日 一

(副査)

教授 近藤 正彦 教授 伊藤 利道 教授 森 勇介

教授 片山 光浩 教授 杉野 隆 教授 尾崎 雅則

教授 栖原 敏明 教授 谷口 研二 教授 森田 清三

准教授 長谷川繁彦

## 論文内容の要旨

本論文では、III 族窒化物希薄磁性半導体をスピントロニクスデバイスへ応用可能とするために必要な課題である「磁性元素の母体材料への固溶度の改善」、「磁性元素の d 準位とバンドギャップとの位置の制御」、「相分離状態の観測と制御」、「結晶構造・結晶性と磁化特性の関係の検討と制御」をコンセプトとした新しい III 族窒化物希薄磁性半導体を創製し、そのための要素技術の確立と物性の追究をすることを目的として行った研究に関して論じた。

第 1 章で研究の背景と目的を示した。

第 2 章では本研究で用いた実験方法を述べた。

第 3 章では六方晶の III 族窒化物希薄磁性半導体に関する結晶成長と物性に関して論じた。まず研究報告例の少ない  $\text{InCrN}$  を MBE (分子線エピタキシ) 法で作製し、成長条件の最適化を行った。最適条件下で作製した  $\text{InCrN}$  において Cr が In サイトを置換していることを X 線微細構造 (XAFS) 測定により示した。続いて、新規四元混晶半導体である高 In 組成 ( $\text{In, Ga, CrN}$ ) の作製を行い、In 組成の制御によってバンドギャップを変調させることに成功した。さらに、( $\text{In, Ga, CrN}$ )、 $\text{GaCrN}$ 、 $\text{AlCrN}$  の局所構造と電子状態についての比較検討を行った。

第 4 章ではまず、MBE 法で成長した  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  基板上  $\text{GaCrN}$  において立方晶の導入が確認されたことを基に、Cr のドーピングが立方晶への相転移を促進することを示し、これを応用することによる c- $\text{GaCrN}$  の創製の可能性に言及した。

次に、 $\text{MgO}(001)$  基板上に立方晶  $\text{GaCrN}(001)$  を成長し、これがエピタキシャル成長していることを X 線回折測定 ( $\omega$ - $2\theta$  モードおよび逆格子マッピング) やフォトルミネッセンス測定、透過型電子顕微鏡の観察により明らかとした。また、V/III 比や成長温度などの結晶成長条件が、Cr の  $\text{GaN}$  へのドーピング特性や結晶性に大きな影響を与えることを示し、Cr 濃度が 0.2% の c- $\text{GaCrN}$  からは M-H 曲線が明瞭なヒステリシスを示す室温での強磁性を観測した。さらに、低温成長によって 6% の Cr 原子がカチオンサイトに固溶した立方晶  $\text{GaCrN}$  の作製に成功し、固溶度の改善と相分離状態が磁化特性へ及ぼす影響を明らかにした。

第 5 章では、デバイスへの応用性に優れた  $\text{Si}(001)$  基板上に ECR-MBE 法で多結晶  $\text{GaCrN}$  を作製した。磁化測定によって室温で単結晶  $\text{GaCrN}$  と同様のヒステリシス曲線を描くことを観測し、その有用性を示した。

第6章ではさらなる固溶度の改善を目的として GaN への Cr 原子のデルタドーブを試み、局所的に Cr 濃度の高い層を形成できることを示した。また、デルタドーブ層の Cr 原子周りの局所構造は Cr と Ga による微小でメタリックなクラスターとなっていることを XAFS 測定によって明らかとした。

第7章では、第6章での結果を基に、Cr のデルタドーブ時に活性窒素も同時に照射する成長法を試み、自然界では存在しない新規ハーフメタル材料の四面体配位 CrN の結晶成長を実現した。

第8章では、第3章から第7章までで得られた結果をまとめ、(In, Ga, Cr)N や立方晶 GaCrN、多結晶 GaCrN、Cr デルタドーブ GaN、四面体配位 CrN なる全く新しいⅢ族窒化物希薄磁性半導体の創製に成功し、スピントロニクスデバイスへの応用可能性を明らかとしたとの本研究の結論を述べた。

## 論文審査の結果の要旨

遷移金属及び希土類金属元素をⅢ族窒化物半導体 (GaN, AlN, InN) に添加した新磁性半導体は、室温において強磁性秩序が観察されていることから、これらの物性だけでなく、実用的な新しいスピントロニクス材料として注目されている。本論文では、分子線エピタキシ (ECR および RF-MBE) 法を用いて遷移金属 Cr をドーブしたⅢ族窒化物希薄磁性半導体に関して研究しており、以下の結果を得ている。

(1)InN、InGaN ベースの希薄磁性半導体として、遷移金属 Cr を添加した InCrN、(In, Ga, Cr)N の ECR-MBE 法による結晶成長を検討し、成長が可能であることを示している。また、これらの試料において、X 線微細構造 (XAFS) 測定で Cr のカチオンサイトへの置換を確認し、Cr 周りの電子状態も検討している。(In, Ga, Cr)N において In 組成によってバンドギャップが変調することも示している。さらに、InCrN、GaCrN、AlCrN の Cr 周りの局所構造と電子状態を相互に比較検討し、第一近接が母体材料に依存しないことや、母体材料による結晶場分裂の大きさの違い等を観測している。

(2)RF-MBE 法で MgO(001) 基板上に立方晶 GaCrN の結晶成長を行い、準安定相である立方晶での成長が可能であることを示し、Cr のドーピング特性や結晶性が成長条件に大きく依存するという結果を得ている。また Cr の固溶度が、成長温度を 700°C とした場合には 0.2% 以下と低いことを見出し、成長温度を 350°C とした低温成長によって 6% 程度にまで増加させることに成功している。磁化特性は、成長温度を 700°C として成長した Cr 濃度が 0.2% の c-GaCrN において室温で明瞭なヒステリシスを観測し、この試料が強磁性となるという結果を得ている。さらに、試料の成長温度と、結晶性や磁化特性との関係を詳細に検討している。

(3)ECR-MBE 法で Si(001) 基板上における多結晶 GaCrN の結晶成長を検討し、Cr 濃度が 0.7% の試料で Cr が Ga サイトを置換し、磁化特性が室温で明瞭なヒステリシスを持った強磁性的な振る舞いを示すという結果を得ている。

(4)RF-MBE 法で Cr の GaN へのデルタドーブを試み、Cr を局所的に高濃度でドーブすることに成功している。また、Cr のデルタドーブ時に活性窒素も同時に供給することによって、通常は NaCl 型となりやすい Cr 周りが四面体配位となるという結果を示している。

以上のように、本論文は (In, Ga, Cr)N や立方晶 GaCrN、多結晶 GaCrN、Cr デルタドーブ GaN、四面体配位 CrN なるいずれも全く新しいⅢ族窒化物希薄磁性半導体の創製に成功している。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。