



令和 2 年 12 月 3 日 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 国立大学法人東京大学 学校法人京都産業大学

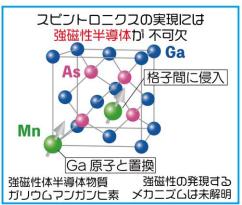
半導体が磁石にもなるとき何が起こるのか?

ーエレクトロニクスから次世代スピントロニクス社会実現への一歩ー

【発表のポイント】

- ○エレクトロニクスとスピンを融合したスピントロニクス技術で鍵を握る「強磁性半導体」について、これまで 不明であった半導体が強磁性体になるメカニズムを原子レベルで明らかにしました。現状ではまだ低 温下でのみ発現する強磁性半導体の強磁性状態を、情報機器の動作環境である室温で達成で きるようになれば、次世代情報化社会に飛躍的発展をもたらすことが期待されます。
- 〇このメカニズム解明は、原子力機構、東京大学、京都産業大学等の研究グループが、放射光 を利用することにより、従来の実験手法では分離が難しい複数の磁性成分の分離に成功し、 強磁性半導体の代表的な物質が温度の降下とともに強磁性状態に変わっていく様子を直接 観察したことによります。
- 〇本成果は、従来の強磁性半導体の性能向上及び新規強磁性半導体の物質設計の指針となり、次世代スピントロニクス技術の実現に大きく貢献するものと期待されます。

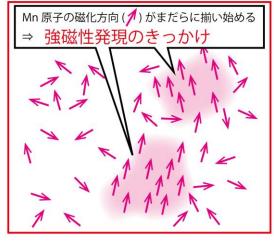






ガリウムマンガンヒ素の 強磁性発現のメカニズムを SPring-8 BL23SU で解析





【概要】

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(理事長 児玉敏雄、以下「原子力機構」という。)物質科学研究センターの竹田幸治研究主幹、東京大学大学院工学系研究科の大矢忍准教授、Pham Nam Hai 准教授(現:東京工業大学工学院)、小林正起准教授、田中雅明教授、東京大学大学院理学系研究科の藤森淳教授(現:名誉教授)らの研究グループは、東京工業大学、京都産業大学との共同研究で、強磁性半導体が常磁性状態から強磁性状態に変化していく過程を詳細に観察することで、原子レベルでの強磁性発現メカニズムを明らかにすることに成功しました。

次世代情報化社会に欠くことができないスピントロニクス技術の材料として、強磁性半導体が注目されています。スピントロニクスとは、エレクトロニクス材料にさらに磁石の性質(スピン)を付け加えることで、扱える情報量を飛躍的に増大する次世代技術であり、世界中でしのぎを削ってその研究開発が進められています。強磁性半導体の最大の課題は、低温でのみ強磁性が発現することであり、発現温度の高温化のためには強磁性発現のメカニズムについての正確な理解が切望されています。

本研究では、大型放射光施設 SPring-8 の原子力機構専用ビームライン BL23SU を利用して、強磁性半導体の代表的な物質のひとつである(Ga,Mn)As 中の Mn 原子の磁性情報だけを抜き出し、温度の降下とともに Mn 原子が常磁性状態から強磁性状態に変化していく過程を詳細に観察することで、原子レベルでの強磁性発現メカニズムを明らかにすることに成功しました。

本研究で明らかにされた原子レベルでの強磁性発現メカニズムについての知見は強磁性半導体の性能向上への鍵となります。これは新規強磁性半導体の物質設計へのベースとなる研究結果であり、既に極低温では実証されている<u>スピントランジスタなどをはじめとした次世代スピントロニクスデバイスの室温動作実現に向けた指針を与えるものです。</u>

本研究成果は、米国応用物理学会誌「Journal of Applied Physics」のオンライン版に 12 月 4 日(日本時間)に掲載され、<u>掲載号の表紙に選ばれるとともに Featured Article として解説記事と併せて公開</u>されました。

【研究開発の背景】

エレクトロニクス(電子工学)は、電子の持つ「電気を流す性質(電荷)」と「磁石になる性質(スピン)」のうち、電荷のみを制御する技術でした。しかし、1998年の巨大磁気抵抗効果発見(2007年のノーベル物理学賞受賞)以降、電荷だけでなくスピンも制御するスピントロニクス^{注1}技術が発展してきました。スピントロニクスは、微細加工技術と相まって瞬く間に実用化され、ハードディスクの小型化高速化に大いに貢献しました。そして、次世代スピントロニクス材料として注目されているのが強磁性半導体^{注2}です。強磁性半導体は、本来、非磁性の半導体に磁石(強磁性)の性質を新たに付け加えたもので、まさにエレクトロニクスとスピンを融合した物質です。強磁性半導体の研究は、代表的な半導体であるガリウムヒ素(GaAs)に少量のマンガン(Mn)を添加したガリウムマンガンヒ素 Gai、Mn,As ((Ga,Mn)As)において強磁性が発見されたことから大いに発展しました。(Ga,Mn)As は現在でも強磁性半導体の中でも最も代表的な物質です。強磁性というのはある温度(転移温度)より低温側で発現する現象であり、強磁性半導体を実用材料として利用するには強磁性が室温で実現する必要があります。発見から 20 年以上経った現在においても(Ga,Mn)As の強磁性転移温度の最高記録は-73°Cにとどまり、その強磁性発現のメカニズムの解明は非常に重要で、研究者間で見解が分かれ長年に渡る論争が続いています。

【研究内容と成果】

ガリウムマンガンヒ素(Ga,Mn)As が強磁性になるメカニズムを正しく知るためには、強磁性の担い手である Mn 原子の 3d 軌道の電子が持つスピンに注目して、その磁化過程を観察することが必要であると考えました。そこで、円偏光している X 線に対する電子のスピンの応答の変化を活用した X 線吸収磁気円二色性(XMCD)測定^{注3}という実験手法により、元素と電子軌道のそれぞれについて選択的に磁性状態を観測することによって、Mn 3d 電子がどのように強磁性の性質を持ち始めるのかを調べました。この実験には、高い強度を持つ円偏光 X 線が必要であるため、大型放射光施設 SPring-8 ^{注4}を利用して実験を行いました。

図1は、Mnが4%添加された強磁性転移温度(元)が65 Kの(Ga,Mn)As 試料について、XMCD 信号強度から求めた Mn 3d 電子の磁気モーメント^{注5}のそれぞれの温度での磁場依存性を明らかにした結果です。温度が下がるにつれて磁気モーメントが増大しているのは、強磁性状態が強くなっていっていることを示しています。この測定結果について、弱い磁場で急激に立ち上がった後は磁場に対して変化しない強磁性(ferromagnetic: FM)成分、磁場に対して直線的に変化する(Linear)成分、磁場に対して曲線的に変化する超常磁性(superparamagnetic: SPM)成分の3つの成分に分解して抽出(図1挿入図)し、それぞれの存在割合 P_{FM}、P_{Linear}、P_{SPM}(つまり P_{FM} + P_{Linear} + P_{SPM} = 1)の温度依存性を示したものが図2です。注目すべきは、P_{SPM}成分の温度依存性であり、温度の低下に従って、強磁性成分 P_{FM} は予想どおりたより低い温度から増加するのに対し、P_{SPM}成分はたよりかなり高い温度から増加し、た付近で最大となった後、P_{FM}成分の増加に従い減少に転じていることです。これは、たよりも高い温度ですでにまばらに SPMをもたらす強磁性的な微小領域(SPM領域)が形成されていることを示しています。そして、この傾向は Mn 濃度の違いから強磁性転移温度 たが異なる別の試料においても共通であることもわかりました。

この物質が強磁性になっていく過程を模式図で表すと図3のようになります。温度が低下するに従って、たよりも高い温度で前駆的にまばらに形成されたSPM領域が、たのところでお互い重なり合うことにより、全体として強磁性になっていく様子が今回の研究結果から明らかになりました。今回観測された磁化過程は、理論的に予測されている磁気ポーラロンモデル注6で(Ga,Mn)Asの強磁性発現のメカニズムがよく説明できることを強く示しています。

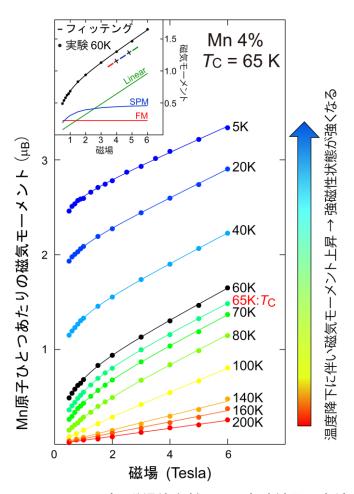


図1 Mn 4%の(Ga,Mn)As の XMCD の温度・磁場依存性。 ●は実験結果で実線は解析結果を示しています。 挿入図は Tc 直下の温度での磁性成分の分離の様子を表しており、3つの磁性成分(FM, Linear, SPM)を足し合わせたものが実線の解析結果(フィッティング)となります。

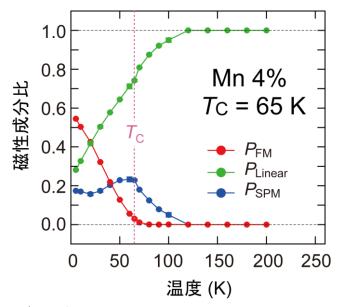


図2 3つの磁性成分それぞれの割合の温度依存性。温度の低下に従って、強磁性成分 P_{FM} は T_{C} から増加するのに対して、超常磁性成分 P_{SPM} は T_{C} よりかなり高い温度から増加し、 T_{C} 付近で最大となった後、 P_{FM} 成分の増加に従い減少に転じています。

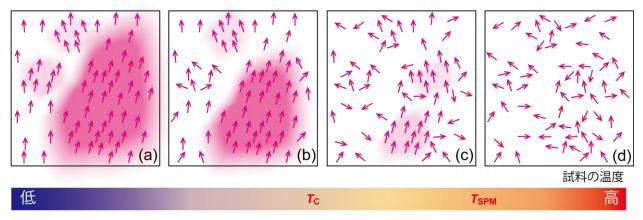


図3 (Ga,Mn)As の磁化過程の模式図。矢印は Mn 原子の磁気モーメントの向きを表しています。
(a) $T_{\rm C}$ よりも十分に低い温度。(b) $T_{\rm C}$ 付近の温度。(c) 超常磁性(SPM)領域が発生する温度 $T_{\rm SPM}$ 付近の温度。(d) $T_{\rm SPM}$ よりも十分に高い温度。ピンクの領域では磁気モーメントの向きが揃っており、温度の降下とともにそれぞれが重なり合いピンクの領域が広がっています。

【今後の展開】

本研究で、(Ga,Mn)As の強磁性の担い手である Mn 3d 電子の磁化過程を抜き出して観測したことで、この物質の強磁性発現のメカニズムが磁気ポーラロンモデルで説明できることを示しました。強磁性半導体の代表的物質である(Ga,Mn)As の強磁性発現機構についての正確な理解は、この物質の性能向上につながるだけでなく、まだ明らかになっていない他の強磁性半導体の強磁性発現メカニズムを理解するうえでも重要な知見です。さらに本研究結果は、新規強磁性半導体の物質設計においても指針を与えるものと期待され、室温での強磁性を実現する強磁性半導体の開発とその社会実装を目指した研究に向けて重要な一歩となります。

【付記】

各研究者の役割は以下の通りです。

竹田(日本原子力研究開発機構(MSRC)): 測定装置の改良・整備、研究計画立案、実験、解析 斎藤(日本原子力研究開発機構(MSRC)): ビームライン等測定システムの高度化、ディスカッション 山上(京都産業大学): ディスカッション

大矢、Pham、小林、田中(東京大学大学院工学系研究科(CSRN)): 試料作製、試料キャラクタライズ、ディスカッション

藤森(東京大学大学院理学系研究科): 研究計画立案、ディスカッション、研究総括

【書誌情報】

雜誌名: Journal of Applied Physics

論文題名: "Direct observation of the magnetic ordering process in the ferromagnetic semiconductor Ga₁
xMnxAs via soft x−ray magnetic circular dichroism"

(軟X線吸収磁気円二色性による強磁性半導体 Ga_{1-x}Mn_xAs の磁化過程の直接観測)

著者名: Yukiharu Takeda¹, Shinobu Ohya^{2,3,4}, Pham Nam Hai^{2,5} Masaki Kobayashi^{2,3}, Yuji Saitoh¹, Hiroshi Yamagami^{1,6}, Masaaki Tanaka^{2,3}, and Atsushi Fujimori^{1,7}

所属: ¹日本原子力研究開発機構物質科学研究センター(MSRC)、²東京大学大学院工学系研究科スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)、³東京大学大学院工学系研究科電気系工学専攻、⁴東京大学大学院工学系研究科附属総合研究機構、⁵東京工業大学工学院電気電子系、⁵京都産業大学理学部物理科学科、⁷東京大学大学院理学系研究科物理学専攻

DOI 番号: https://doi./10.1063/5.0031605

【本件に関する問合せ先】

(研究内容について)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構物質科学研究センター 研究主幹 竹田幸治

国立大学法人東京大学 大学院工学系研究科 附属総合研究機構/電気系工学専攻/附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 准教授 大矢忍

(報道担当)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 広報部 報道課長 小野 徳久

国立大学法人東京大学 大学院工学系研究科 広報室

国立大学法人東京大学 大学院理学系研究科·理学部 広報室

学校法人京都産業大学 広報部

【用語説明】

注1. スピントロニクス

電子の二つの性質、「電荷」と「スピン」は、それぞれ電子工学(エレクトロニクス)と磁気工学(マグネティクス)において別々に活用されてきました。1990 年代に微細加工技術(ナノテクノロジー)が大きく進展したことで電荷とスピンを効果的に融合して利用する分野が構築されました。これがスピントロニクスという分野です。

注 2. 強磁性半導体

半導体の中に鉄やコバルト、マンガンなどの磁性をもつ原子(磁性元素)を混入させた物質であり、発見当初は数%程度の濃度しか添加できなかったこともあって希薄磁性半導体と呼ばれました。しかし、試料作製技術の進歩により数 10%程度の磁性元素を含む物質も報告され、強磁性半導体と呼ばれるようになりました。半導体は本来は磁石の性質を持ちませんが、強磁性半導体では半導体と磁性体の特性が互いに関連した特異な現象が観測されており、半導体スピントロニクス材料として注目されています。最近では鉄を含む強磁性半導体の中に強磁性が室温で実現している物質の発見の報告があり、その応用可能性と強磁性発現メカニズムに興味がもたれています。

注 3. X 線吸収磁気円二色性(XMCD)測定

物質にあるエネルギーの軟 X 線を照射すると強い光吸収が起こります。この光吸収が起こるエネルギーはそれぞれの原子ごとに違っているので、複数種類の原子を含んだ物質であっても特定の原子に的を絞った情報を得ることができます。さらに強磁性体の場合は、右回りと左回りの円偏光軟 X 線を照射すると、それぞれの光吸収強度に違いが出ます。この現象は磁気円二色性として知られています。そして、物質の温度や物質に印加する磁場の大きさを変えながら磁気円二色性を調べることにより、磁性を生み出している特定の原子の電子スピンがどのような状態になっているかの情報を引き出すことができます。

注 4. 大型放射光施設 SPring-8

兵庫県の播磨科学公園都市にある世界最高性能の放射光を生み出す理化学研究所の施設で、SPring-8 の名前は Super Photon ring-8 GeV(ギガ電子ボルト)に由来します。放射光とは、電子を光とほぼ等しい速度まで加速し、電磁石によって進行方向を曲げた時に発生する、指向性が高く強力な電磁波です。SPring-8 では、この放射光を用いて、ナノテクノロジーやバイオテクノロジー、産業利用まで幅広い研究が行われています。

注 5. 磁気モーメント

磁石としての強さと向きを表すベクトル量。

注 6. 磁気ポーラロンモデル

強磁性半導体(Ga,Mn)As における強磁性発現メカニズムのモデルは大きく二つ挙げられます。Zener p-d 交換モデルと磁気ポーラロンモデルです。Zener p-d 交換モデルは、三価のガリウム(Ga³)を二価のマンガン(Mn²+)で置換することで、スピンを持ったマンガンが電気伝導を担うキャリアの供給源にもなるというものです。もうひとつの磁気ポーラロンモデルは、マンガンは三価のままでキャリアがその周りに弱く束縛されているものです。Zener p-d 交換モデルでは、スピンを持つキャリアが結晶内を自由に移動することで、遠く離れた磁性元素同士のスピンの向きを揃えます。一方、磁気ポーラロンモデ

ルでは、マンガンの周りに束縛されたキャリアが隣接するキャリアの軌道が重なることでマンガン同士 のスピンの向きが揃います。