



2021 年 12 月 20 日

東京工業大学
科学技術振興機構（JST）
東京大学
理化学研究所
総合科学研究機構（CROSS）
J-PARC センター

巨大な磁場応答を示す三角格子磁性半導体

ー三拍子揃った稀有な磁性材料の発見ー

【要点】

- 従来の磁性半導体とは異なり、スピンの非共面的に並ぶ三角格子磁性半導体の開発に成功。
- 開発した磁性半導体では、磁気秩序温度よりもはるかに高い温度から巨大な異常ホール効果が現れることを発見。
- 巨大な磁場応答の利用に向けた、磁性半導体材料の新たな設計指針につながると期待。

【概要】

東京工業大学 理学院 物理学系の打田正輝准教授、石塚大晃准教授らの研究グループは、東京大学大学院工学系研究科の川崎雅司教授、理化学研究所創発物性科学研究センターの永長直人グループディレクター、東京大学物性研究所の徳永将史准教授、中島多朗准教授、東京大学大学院新領域創成科学研究科の有馬孝尚教授、総合科学研究機構の大石一城副主任研究員らの研究グループと共同で、磁性を担う元素が三角格子をなす新しい**磁性半導体**（用語 1）を開発し、**磁気秩序温度**（用語 2）よりもはるかに高温から巨大な**異常ホール効果**（用語 3）を発現させることに成功した。

打田准教授らは、希土類元素であるユウロピウムが特徴的な三角格子を形成しているヒ化ユウロピウム EuAs に着目し、**分子線エピタキシー成長**（用語 4）による EuAs 単結晶薄膜の作製に成功した。系統的な測定の結果、EuAs が 1) 低

いキャリア密度（用語 5）、2）強い交換相互作用、3）有限のスピンカイラリティ（用語 6）という、巨大な異常ホール効果の実現に必要な三拍子が揃った稀有な材料であることを発見した。さらに、理論計算が予測する通り、異常ホール効果により電流が曲げられる割合を示す異常ホール角（用語 7）が 0.1 を超え、この巨大応答が磁気秩序温度よりもはるかに高い温度から現れることを明らかにした。今回の成果は、図 3 右に示すようなスピンの非共面的に並んだ構造が、半導体において巨大な磁場応答を生み出すことを示しており、トポロジカルな磁気秩序構造を持つ磁性半導体の材料開拓と、その巨大磁場応答を利用したスピントロニクスデバイス応用につながると期待される。

本研究成果は、米国科学誌「*Science Advances*」に日本時間 12 月 23 日（米国東部時間 12 月 22 日）に掲載された。

●背景

少数のキャリアによる電流の流れ方とスピンの並び方が互いに関係した磁性半導体は、これまでも盛んに研究が進められてきたが、そのスピンの並び方は単純な強磁性・反強磁性状態に限られていた。一方、近年スキルミオン（用語 8）に代表されるような、スピンの非共面的に並んだトポロジカルな磁気秩序構造に注目が集まっているが、そうした構造に関連する伝導特性の研究は大量のキャリアを持つ金属に限られてきた。そこで打田准教授らは、スピン配置に強く影響する格子構造に着目して、磁性半導体の研究を開始した。

●研究の経緯

代表的な磁性半導体には、EuO などユウロピウムカルコゲナイドや、磁性元素で一部を置換した (Ga,Mn)As（ヒ化ガリウム (GaAs) のガリウムをマンガンで置換）などの半導体（図 1 上）があり、その磁気特性や伝導特性が長年にわたり研究されてきた。一方、本研究で対象としたヒ化ユウロピウム EuAs については、これまで 1970 年代に結晶構造が報告されているのみであり、磁性体であるのか、さらには半導体であるのかという点すら一切明らかになっていなかった。打田准教授らは、他の希土類モノクタイド（用語 9）が単純な塩化ナトリウム型構造をとるのとは異なり、EuAs ではユウロピウムが特徴的な三角格子を形成している点に注目した。

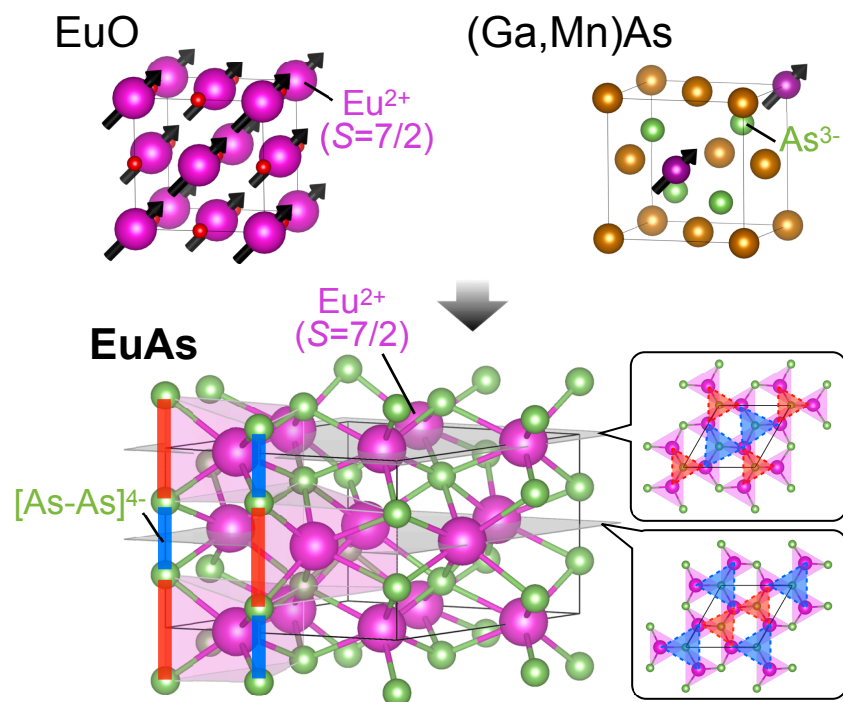


図 1. (上) 代表的な磁性半導体である (Ga, Mn)As と EuO の結晶構造。(下) 本研究で対象とした EuAs の結晶構造。巨大なスピンを持つ Eu²⁺ イオンが、異なる大きさの三角形からなる三角格子をなす。

●研究成果

EuAs はこれまで多結晶のみが合成されていたが、本研究では、面内格子定数が近い Al₂O₃ (アルミナ) を基板に用いることで、分子線エピタキシー成長による EuAs 単結晶薄膜の作製に成功した。この薄膜について電子エネルギー損失分光測定 (用語 10) を実施したところ、薄膜中のユウロピウムは巨大なスピンモーメントを持つ Eu²⁺ イオンとして歪んだ三角格子面 (図 1 下) を形成し、ヒ素は面直方向に二量体を形成し [As-As]⁴⁺ として安定に存在することがわかった。

この EuAs 薄膜の電気伝導特性を調べたところ、抵抗率が半導体的な温度依存性を示し、23 K で磁気秩序を示すことがわかった (図 2 左)。また、磁場をかけながら同じ測定をおこなったところ、磁気秩序温度よりもはるかに高温の 200 K 程度から巨大な磁気抵抗効果 (用語 11) が現れ始め、伝導キャリアと局在スピンの間に強い結合があることが明らかになった。さらに大強度陽子加速器施設 (J-PARC) 物質・生命科学実験施設 (MLF) (用語 12) の中性子小角・広角散乱装置 (大観) で偏極中性子を用いて磁気構造を調べたところ、ゼロ磁場ではユウロピウムのスピンモーメントが三角格子面に平行に配列しており、三角格子面内で隣接するスピンモーメントの間には反強磁性的な相関があることが分かった。これ

は磁気秩序温度以上において、面直方向に磁場を加えることでスピンの三角格子面から起き上がり非共面的に並ぶようなスピンゆらぎがあることを示唆している。これは **EuAs** が、近年新たに提唱された理論において巨大な異常ホール応答の実現に必要とされている、1) 低いキャリア密度、2) 強い交換相互作用、3) 有限のスピンカイラリティという 3 つの条件を満たす物質であることを示す結果である。

実際に、パルス強磁場を用いて **EuAs** 薄膜のホール抵抗率を測定したところ、磁場及び磁化に比例しない異常ホール抵抗成分が現れ、温度低下とともに急激に増大することが明らかになった (図 2 右)。その成分の大きさは、異常ホール角 0.1 を超える巨大なものであり、磁気秩序温度よりもはるかに高温から現れる (図 3 左)。このことは、歪んだ三角格子上においてスピンカイラリティのゆらぎがキャンセルせずに残り (図 3 右)、少数のキャリアと強く結びつくことで、巨大な異常ホール応答を生み出していると理解できる。半導体中におけるキャリアのホッピング伝導を考慮したモデルにおける理論計算でも、スピンカイラリティに比例した巨大な異常ホール効果が現れることが確認でき、**EuAs** の実験結果とよく一致することが明らかになった。

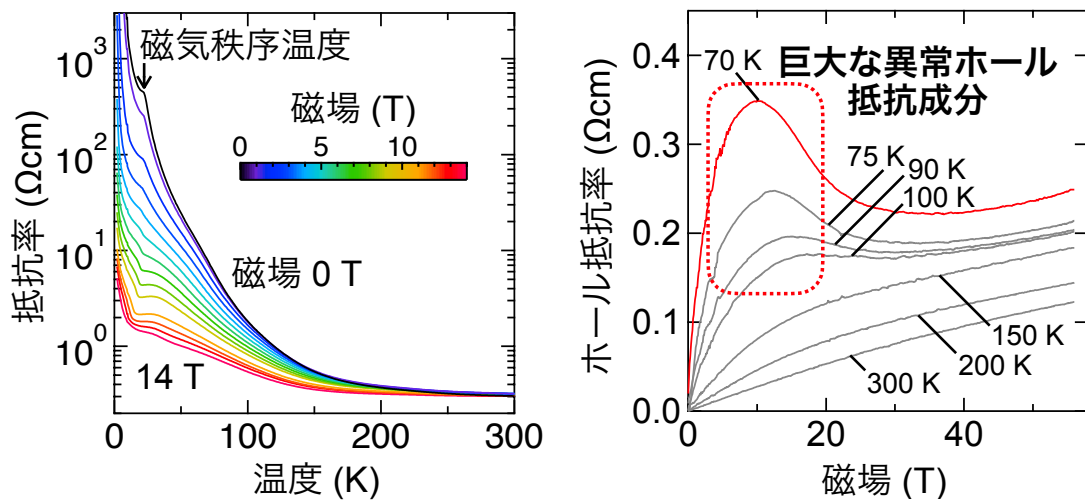


図 2. (左) 磁場をかけながら測定した **EuAs** の抵抗率の温度依存性。(右) 様々な温度におけるホール抵抗率の磁場依存性。磁場及び磁化に比例しない成分の増大が確認できる。

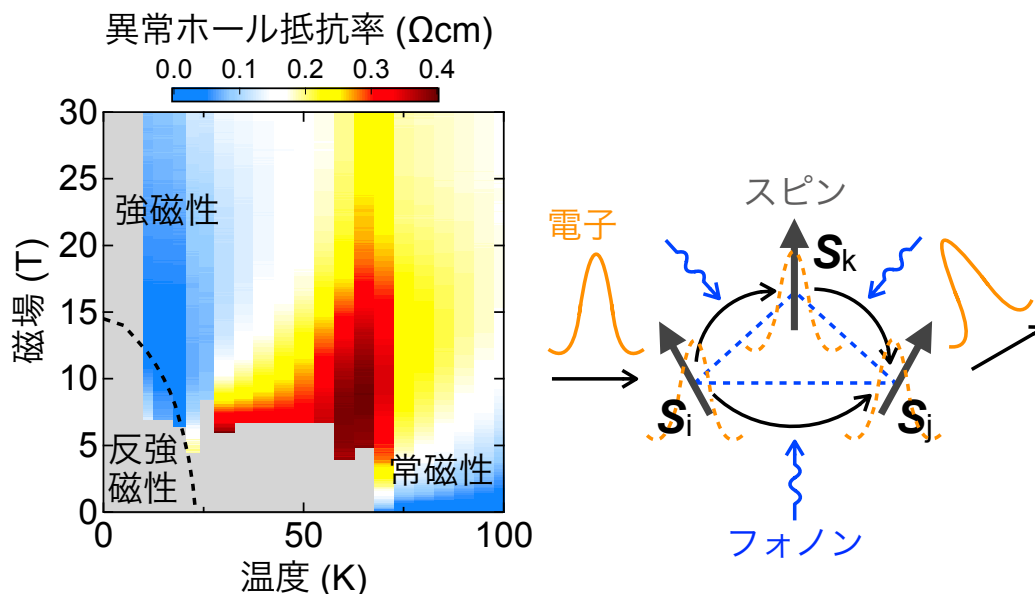


図 3. (左)磁化に比例しない異常ホール抵抗成分の温度磁場相図上の強度。(右)有限のスピнкаイラリティを持つ非共面的なスピン配置におけるホッピング伝導を考慮した異常ホール効果の理論。

●今後の展開

今回の成果は、これまで単純な強磁性・反強磁性状態が研究対象とされてきた磁性半導体において、スピンの非共面的に並んだ磁気秩序構造が異常ホール応答の巨大化に有効であることを示している。今後、元素置換や電界効果によるキャリア制御の研究や、より高い磁気秩序温度を持つ材料の開拓によって、巨大な磁場応答を持つ半導体デバイスの利用が実現すると期待される。

【付記】

本研究は、科学技術振興機構（JST）戦略的創造研究推進事業 さきがけ「薄膜技術を駆使したトポロジカル半金属の非散逸伝導機能の開拓」（No. JPMJPR18L2）、CREST「トポロジカル絶縁体ヘテロ接合による量子技術の基盤創成」（No. JPMJCR16F1）、日本学術振興会科学研究費補助金 基盤研究（B）（No. JP18H01866, No. JP19H01856, No. JP17H02815, and No. JP21H01804）、公益財団法人 稲盛財団の支援を受けて行われた。

【用語説明】

- (1) **磁性半導体**：磁性体と半導体の性質をあわせ持つ材料系。少数の電荷キャリアによる電流の流れ方と局在したスピンの並び方が互いに強く結合してお

り、電場や磁場などの外場によって両者をあわせて制御することが可能である。

- (2) **磁気秩序温度**：スピンがある規則に従って配列する温度のこと。
- (3) **異常ホール効果**：面直磁場下において縦方向に電流を流すと横方向に電圧が生じ、これを一般にホール効果と呼ぶ。磁性体ではホール電圧にスピンとの相互作用による寄与が加わり、これを異常ホール効果と呼ぶ。
- (4) **分子線エピタキシー成長**：主に半導体に用いられてきた結晶成長手法で、高真空中において各元素の供給量を独立に制御することで、非常に高品質の薄膜を作製することができる。
- (5) **キャリア密度**：体積あたりの電荷キャリアの密度。
- (6) **スピнкаイラリティ**：隣り合う3つのスピンのなす立体角(の半分)のこと。
図3右のような非共面的なスピン配置の場合に有限となる。
- (7) **異常ホール角**：異常ホール抵抗率を縦抵抗率で割ったものと定義され、縦方向に流した電流のうちどれだけの成分が異常ホール効果によって横方向に曲げられるかを表している。
- (8) **スキルミオン**：渦状の模様を形成するようにスピンの配列した構造のこと。
- (9) **希土類モノニクタイト**：希土類元素を R ($=\text{Sc, Y, La-Lu}$)、第15族元素を A ($=\text{N, P, As, Sb, Bi}$) として、 RA で表される化合物のこと。
- (10) **電子エネルギー損失分光測定**：電子が試料を透過する際に原子との相互作用により失うエネルギーを測定することで、物質に含まれる元素やその価数を分析することができる。
- (11) **磁気抵抗効果**：物質に磁場をかけた際に電気抵抗が変化する現象のこと。
- (12) **大強度陽子加速器施設 (J-PARC) 物質・生命科学実験施設 (MLF)**：大強度陽子ビームを炭素標的及び水銀標的に衝突させることで発生する大強度パルスミュオン及び中性子を用いて、物質科学、生命科学、素粒子物理学等の最先端の学術及び産業利用研究を行う施設。

【論文情報】

掲載誌：*Science Advances*

論文タイトル：Above-ordering-temperature large anomalous Hall effect in a triangular-lattice magnetic semiconductor

著者：M. Uchida*, S. Sato, H. Ishizuka, R. Kurihara, T. Nakajima, Y. Nakazawa, M. Ohno, M. Kriener, A. Miyake, K. Ohishi, T. Morikawa, M. S. Bahramy, T. Arima, M. Tokunaga, N. Nagaosa, M. Kawasaki

DOI：10.1126/sciadv.abl5381

【問い合わせ先】

東京工業大学 理学院 物理学系 准教授
打田正輝

【取材申し込み先】

東京工業大学 総務部 広報課

科学技術振興機構 広報課

東京大学大学院工学系研究科 広報室

理化学研究所 広報室 報道担当

東京大学物性研究所 広報室

東京大学大学院新領域創成科学研究科 広報室

一般財団法人総合科学研究機構 中性子科学センター 利用推進部 広報担当

J-PARC センター広報セクション

【JST の事業に関すること】

科学技術振興機構 戦略研究推進部 グリーンイノベーショングループ
嶋林ゆう子