

研究課題別評価

1 研究課題名:

ナノ強磁性半導体におけるスピン注入磁化反転の研究

2 研究者氏名:

大岩 顕

3 研究のねらい:

III-V族化合物半導体に遷移金属を添加した磁性半導体(III-V族強磁性半導体)は強磁性を発現する。このとき添加された磁性元素のもつ局在磁気モーメント間の強磁性相互作用は、半導体中のキャリアによって媒介されるキャリア誘起強磁性であることが明らかにされている。この性質は、光学的・電気的なキャリア制御により強磁性転移温度や、保磁力などの磁氣的性質が操作可能であるという、従来の強磁性体にはない重要な特徴をもたらしている。本研究課題では、このIII-V族強磁性半導体においてキャリアの「スピン」を光学的・電気的な手法で制御して磁化反転の実現を目指す。強磁性体の磁化方向の制御には従来、外部磁場が用いられてきた。これは現在でも強磁性体の不揮発性を利用した記憶媒体などの動作原理の一つとなっている。しかし近年、MRAM(磁気ランダムアクセスメモリ)の実用化に向けて、高密度・低消費電力化を実現するため、金属強磁性体からなる磁気抵抗素子ではスピン注入磁化反転が注目され、臨界電流を 10^6 A/cm²以下へ低減する研究が世界中の大学や企業で活発になされている。こうした電気的な磁化反転と並行して、本研究では光を使った強磁性体磁化方向制御も目標に掲げてきた。近年、青色レーザの実用化で光ディスクの容量が急速に増加しており、光磁気記録における高速な書き込み法の提案として、光による無磁場磁化反転の研究を位置づけている。本研究提案では、強磁性半導体のナノ構造において電気的スピン注入磁化反転とともに、光、特に円偏光を用いたキャリアスピン制御による磁化反転の実現を目標とした。

4 研究成果:

III-V族強磁性半導体はキャリア誘起強磁性という特徴を有す。代表的な強磁性半導体(Ga,Mn)Asを例にすると、価電子帯の正孔(*p*的)とMn(*d*的)との間には負の*p-d*交換相互作用が働き、キャリアスピンの偏極とMnスピンの偏極との間に密接な相関が生ずる。キャリアスピンの方向を外部刺激で変えたとき、*p-d*交換相互作用を介してMnスピンの方向が操作できると期待できる。そこで本研究課題ではキャリアスピンの制御法として、円偏光を用いた光学的スピン注入法と強磁性体三層構造を用いた電気的スピン注入法を用い、磁場を使わない強磁性体磁化反転と磁化ダイナミクスの研究に取り組んできた。

1 (Ga,Mn)Asにおける円偏光誘起磁化ダイナミクス

本研究課題を開始時に、III-V族強磁性半導体Ga_{0.989}Mn_{0.011}As(200nm)/GaAs薄膜の試料面に垂直に円偏光を照射すると、ホール抵抗が右回り(σ^+)円偏光に対して正の方向に、左回り(σ^-)円偏光では負の方向に変化し、異常ホール効果によって磁化を検出したとすると、 10^{11} – 10^{14} cm⁻³の光生成正孔が 10^{19} cm⁻³ものMnを揃えるという劇的な結果を得ていた[1]。円偏光を使った高効率な磁化反転が実現できると期待し、この現象の解明のために、(Ga,Mn)Asにおける磁化ダイナミクスの測定を行った[2]。試料は先の円偏光照射実験で用いたものと同じである。パルスTi:sapphireレーザ(繰り返し周波数 75MHz、パルス幅 170ps)を使った時間分解磁気光学効果の測定を行った。光エネルギーは 1.58eVに合わせ、ポンプ光の強度は 0.5μJ/cm²とした。ポンプ光は波長板を用いて右・左円偏光または直線偏光のいずれかとした。プローブ光は直線偏光で、試料にほぼ垂直に入射し、反射光の偏光面の回転を測定する。これは極カー効果で、主に円偏光で誘起された試料面に垂直方向の磁化成分が検出できる。

図 1(a)に強磁性転移温度以下で測定した時間分解カー一回転を示す。円偏光を照射した場合にのみ指数関数的に緩和する信号が観測された。この信号は偏光に依存して符号が変わる。図 1(b)に片対数表示したように、速い成分と遅い成分の 2 つの指数関数緩和が存在している。カー一回転の速い成分は、伝導帯に生成されたスピン偏極電子の緩和過程を反映している。一方、図 1(c)に示すように遅いカー一回転成分は強磁性転移温度以下でのみ現れるので、強磁性秩序と関係した成分であることが分かる。このことは円偏光によって試料面に垂直方向に磁化成分が誘起されたことを示唆している。また 2 つの指数関数でよくフィットできるということは、速い成分も遅い成分もパルス幅 170ps 程度の中に急速に立ち上がることを意味する。このような超高速な磁化の立ち上がりは、 p - d 交換相互作用による交換磁場が Mn スピンにトルクを与え歳差運動によって磁化が回転する機構[3]では説明できない。そこで我々は次のようなシナリオを検討した。円偏光パルスによって試料面に垂直方向にスピン軸を持つわずかな正孔が励起される。ここで p - d 交換相互作用の非対角項を介した正孔と局在磁気モーメント間のスピンフリップ過程による動的偏極により、非平衡磁化が試料面垂直方向へ生じ、Mn スピン軸が垂直方向にわずかに傾いたと考えられる。このとき、Mn スピンと正孔スピンは一種の複合体を形成し一体となって緩和する。ごく最近、 p - d 交換相互作用を介したエネルギーと角運動量の受け渡しが 1ps 以下の時間領域で起こることが考察されている[4]。また円偏光誘起磁化の大きさは飽和磁化の約 0.5%で、注入された 1 個の正孔スピンにより 100 個程度の Mn スピンが複合体の形成に寄与していることを示す。しかし先の連続光の実験との間の定量的な違いは解明できていない。

さらに、この結果を元に(Ga,Mn)As/AIAs 量子井戸構造を作製し、光誘起磁化ダイナミクスの測定を行った[5]。強磁性半導体を量子井戸にした構造で量子準位が形成されることを磁気円二色性スペクトルの系統的な測定から明らかにするとともに、時間分解カー一回転の測定では 1 個の正孔が 1000 個程度の Mn スピンを揃えるという結果を得た。これは量子準位が形成されると、重い正孔と軽い正孔の縮退が解けるため、バルク試料に比べて高い偏極度を持つ光生成スピン偏極電子・正孔が生成されたために、円偏光誘起磁化が増大したと説明できる。バルク試料と同様に Mn-正孔スピン複合体が生成・緩和しているようであるが、量子井戸構造を使って、光生成キャリアスピンを操作することで光誘起磁化を増大できることを示した。

2 Mn デルタドープ系の光学的スピン注入歳差運動

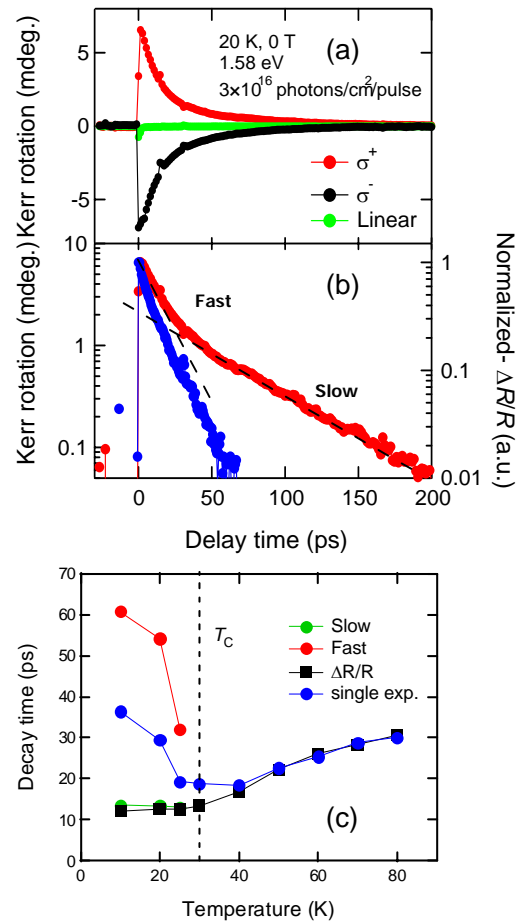


図 1: Ga_{0.999}Mn_{0.011}As(200nm)の時間分解カー一回転。(a)右(σ^+)・左(σ^-)円偏光と直線偏光励起に対する時間分解カー一回転。光エネルギーと励起強度はそれぞれ 1.59eVと $0.5\mu\text{J}/\text{cm}^2$ であった。(b)右(σ^+)円偏光励起のデータの片対数プロット。青丸は反射率の過渡応答。(c)時間分解カー一回転と反射率の緩和時間の温度依存性。T_cより低温ではカー一回転は速い成分と遅い成分の 2 つの緩和時間をプロットした。

上述した低温成長(Ga,Mn)As では、正孔に対する強いスピンフリップ散乱が、Mn-正孔スピン複合体が直ちに形成される理由の一つであると考えられる。そこで、低温成長を回避するため混晶(Ga,Mn)Asを離れ、デルタドープによる Mn 添加を試みた。GaAs(4nm)/AlGaAs量子井戸構造の量子井戸中に Mn を 0.1ML 添加した試料を 400°Cで作製した(図 2(a))。この試料では電子・正孔の最低量子準位間の遷移による発光が観測されている。

図 2(b)に示すように、時間分解カー回転では、円偏光を照射した場合に速い振動と遅い振動が観測された。両方の振動は右左円偏光に応じて位相が変わる。さらに歳差運動周波数の磁場依存性(図 2(c))から、速い振動成分は g 値がほぼ 2 であり、Mn スピンによる歳差運動であることが示唆される [6]。つまり光生成スピン偏極キャリアがトルクを与えて、Mn スピンが歳差運動していると考えられる。これらの結果は III-V 族半導体をベースにした磁性半導体で初めて光学的スピン注入による歳差運動を実現した成果である。また比較的高温で作製して非発光中心を低減したために、円偏光から Mn スピンへ角運動量の移送が効率的に起こったとすれば、円偏光による磁化反転実現にとって重要な結果である。Mn スピンにトルクを与えるのが電子か正孔かを見極めることは重要で今後の課題である。また今回は高品質膜を得るため Mn 濃度は強磁性を示す濃度よりも低くしたが、強磁性を示すデルタドープ量子井戸での光スピン注入誘起歳差運動の実現が次の展開である。

3 光照射によって誘起される Mn スピンの歳差運動

(Ga,Mn)As では円偏光に依存した歳差運動は観測されておらず、光生成スピン偏極キャリアの交換磁場が効果的には働いていないことが明らかになりつつある。光照射で歳差運動が実現できれば、光によって III-V 族強磁性半導体の強磁性的な Mn スピンに有効磁場を与えて回転させることが可能であることを示すことができる。正孔誘起強磁性では強磁性転移温度だけでなく、磁気異方性も正孔濃度に依存するので、パルス光照射により過渡的に正孔濃度を増加させると、磁気異方性が瞬時に変化しパルスの有効磁場を Mn スピンに与えて歳差運動が起こる。この効果を実際に観測した[7]。

図 3(a)は時間分解カー回転の信号である。800ps の時間領域にわたって振動する信号が

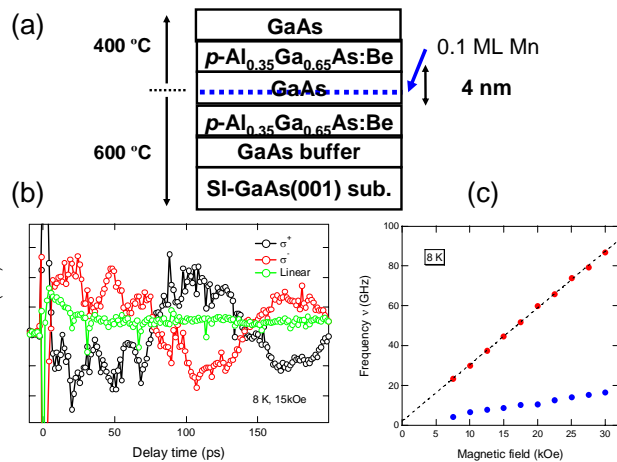


図 2: (a)MnデルタドープGaAs/AlGaAs量子井戸構造。 (b)Mnデルタドープ量子井戸の時間分解カー回転プロファイル。光エネルギーと励起強度はそれぞれ 1.66eVと $2\mu\text{J}/\text{cm}^2$ であった。 (c)歳差運動周波数の磁場依存性。

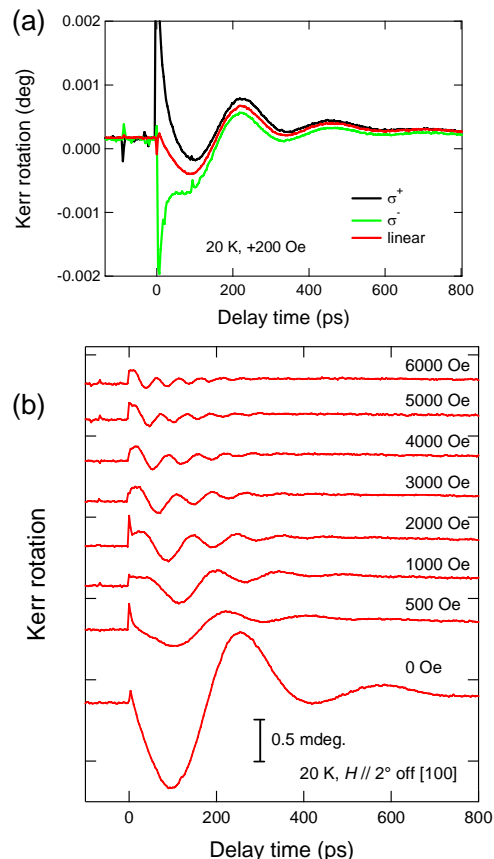


図 3: (a) $\text{Ga}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{As}(100\text{nm})$ の円偏光と直線偏光励起による時間分解カー回転。励起光強度と光エネルギーは $3.7\mu\text{J}/\text{cm}^2$ と 1.59eV。 (b) 異なる磁場で測定した時間分解カー回転プロファイル。磁場は [100:方向より 2° だけ [110] 方向に傾けている。

観測された。図1で議論した円偏光誘起磁化と異なる点は、カー回転の変化が円偏光に依存しないことと、一度外部磁場をかけて試料を磁化した後に観測されることである。外部磁場を強くしてゆくと振動が速くなる様子が見て取れる。別途行ったXバンド(9.47 GHz)の強磁性共鳴測定で得られた共鳴条件(共鳴磁場 1670 Oe)と、光で観測した歳差運動周波数と良く一致することから、観測された振動は強磁性 Mn スピンの歳差運動である。

この振動の起源が Mn スピン系の温度上昇ではなく、期待したように正孔濃度に依存する異方性磁場が光パルスによって変化したことによる効果であることは、試料の異方性の詳細な解析と外部磁場の配置を注意深く選んで実験することで確認した。磁気異方性の変化によって 10–20 Oe 程度の有効磁場が働くという結果が得られた。この光誘起歳差運動は直接的なキャリア生成による強磁性半導体の磁化の歳差運動を世界で初めて実現するとともに、強磁性半導体 (Ga,Mn)As の磁気異方性がキャリア濃度に依存するという性質を実験的に示した結果である。

4 電流誘起磁化反転

本研究では強磁性半導体三層構造 (Ga,Mn)As/AlAs/(Ga,Mn)As を電子線描画装置で直径 $1\mu\text{m}$ の円柱状に加工したトンネル磁気抵抗(TMR)素子を作製し(図 4(a))、電流誘起磁化反転の実験を行った[8]。その結果、電流方向に依存した磁気抵抗変化が観測された。これは電流注入による温度上昇や電流が作る磁場の効果とは区別できている。磁気抵抗の変化は飽和磁化の約 26% 程度であった。また反転を観測した電流から算出した電流密度として $1\times 10^5\text{ A/cm}^2$ が得られた。これは発表した 2004 年 4 月では強磁性金属 GMR 素子で報告されていた値よりも 1~2 桁小さいものであった。

磁化変化が飽和磁化の約 26% であるのは、直径 $1\mu\text{m}$ の円形ドットは単磁区ではなく多磁区構造になりやすいため、部分的な磁区の反転にとどまっているためであると考えられる。低い反転電流密度は主に (Ga,Mn)As の磁化が小さいことに起因するが、反転電流の表式[9]による検討から、反転層へのスピン注入効率が低いことが分かった。これはトンネル過程においてマグノン散乱などにより正孔のスピン分極が低下していることが原因であると考えられる。障壁層の調節によりスピン注入効率を上げることで反転電流を低減できる余地がありそうである。

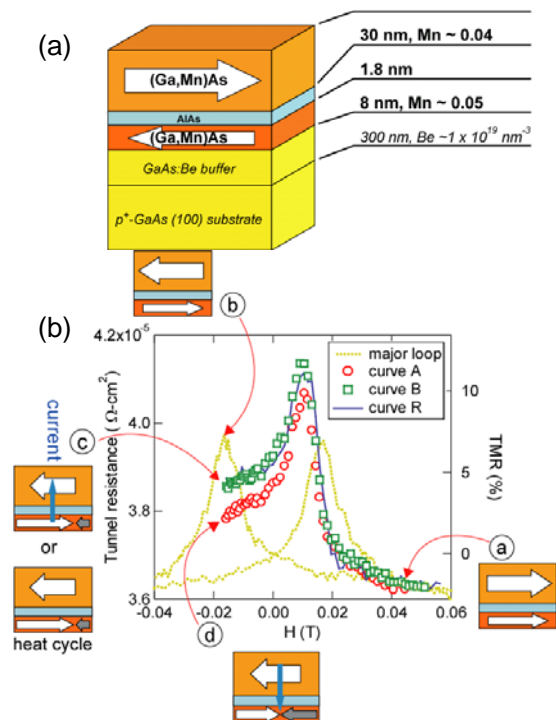


図 4: (a) (Ga,Mn)As 3 層構造. (b) 電流注入磁化反転の実験. (a) (b) (c) (d) はそれぞれの磁場における固定層と反転層の磁化配置. 実験は 10K で行った.

参考文献

- [1] A. Oiwa et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 137202 (2002).
- [2] Y. Mistumori et al., Phys. Rev. B **69**, 033203 (2004).
- [3] S. A. Crooker et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 2814 (1996); S. A. Crooker et al., Phys. Rev. B **56**, 7574 (1997); R. Akimoto et al., Phys. Rev. B **57**, 7208 (1998).
- [4] J. Wang et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 167401 (2005).
- [5] A. Oiwa et al., J. Mag. Mag. Mater., **272–276**, 2016 (2004); Y. Kashimura et al., Physica E, **21**, 987 (2004).
- [6] 大岩他、応用物理学会 第 52 回応用物理学関係連合講演会
- [7] A. Oiwa, H. Takechi, and H. Munekata, J. Supercond. Nov. Magn. **18**, 9 (2005).

- [8] R. Moriya et al., Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L825 (2004).
 [9] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. **159**, L1 (1996).

5 自己評価:

さきがけ研究申請書では1)III-V 族磁性半導体の磁区構造制御、2)光学的・電氣的スピン注入による磁化反転の実現、3)微小磁性体における磁化反転ダイナミクス、4)光学的時間分解強磁性共鳴の4つの副課題を挙げ、大きな変更はなく各課題に沿って本研究課題を遂行してきた。以下に、各副課題について評価(○:計画通り達成、△:部分的に達成、×:未達成)とコメントを記す。

副課題	評価	コメント
磁区構造制御	△	本研究課題のみの研究ではなく、共同研究として取り組み磁気異方性とともにより解明することができた。 1 μ m 以下でも結晶磁気異方性が支配的で、形状に大きな異方性をつけることで形状異方性も付与できることが分かった。現在では磁区構造や磁化過程をおおよそ想定して微細加工できる。
光学的・電氣的スピン注入磁化反転の実現	光スピン注入: ×	(Ga,Mn)Asにおける円偏光誘起磁化のダイナミクスを中心に、磁化反転の実現を目指したが達成できなかった。(Ga,Mn)As における円偏光誘起磁化が光生成キャリアによるトルクの効果ではないことがほぼ解明され、低温成長に由来する欠陥などを改善する必要があることが分かってきた。ただし光キャリアのトルクを利用して磁化を回転できることを Mn デルタドープ量子井戸で見出し、今後の展開の足がかりをつかんだ。
	電氣スピン注入: △	(Ga,Mn)As トンネル磁気抵抗素子を作製し、電流による部分的な磁化反転を低い反転電流で実現できた。しかし磁区構造を制御した素子での完全な磁化反転や電流方向による可逆反転の実証など、現時点で実現できていない項目も残されている。
微小磁性体の磁化ダイナミクス	×	2 年次に微細加工を施したナノドットアレイについて時間分解カー回転測定を行った。しかしさまざまな試料について系統的に実験を継続して行うことができず、この課題について更なる成果を得ることができなかった。しかし特に光スピン注入磁化反転は試料の微細化は必要な事柄であるため、今後は優先して取り組むべき課題である。
光学的強磁性共鳴	△	当初の計画では光スピンで誘起される歳差運動とその共鳴現象を期待していた。しかし(Ga,Mn)As ではこの実現が困難であることが明らかになりつつある。しかし本研究では異方性の変化を利用した(Ga,Mn)As の歳差運動を時間分解測定で初めて観測することができた。

本研究課題は、分子線エピタキシーによる試料の作製から、電子線描画装置による微細加工とデバイスの作製、磁気光学効果測定、伝導測定、磁化測定まで多岐に渡るため、個人研究の提案としてはやや課題が多かったと思われる。しかし多くの方々との共同研究などにより、この両面からほぼ遂行することができたことは何よりも感謝と満足していることである。現時点では光と電氣の両面の展開を持ち続けているという点は、現在の強磁性半導体の研究としては重要である。電氣的スピン注入では今後の展開で述べたように、金属強磁性体で電流誘起磁化反転の進展が目覚しく、室温強磁性半導体の確立が必要不可欠な段階になると考える。最近、逆ファラデー

一効果を利用した歳差運動がフェライトの一種で報告されるなど[Kimel et al., Nature (2005)], 光による磁化操作は強磁性体では依然、注目される課題である。一方で、広く光学的性質は主に低温成長ゆえに強磁性半導体ではこれまで欠けていた半導体としての基本的性質で、試料の改善により物理的に光学物性が研究されそれとともに光スピン注入磁化反転へと結びついてゆくことが、強磁性半導体の今後の展開として望ましいと考える。

6 研究総括の見解:

近年注目を集めているスピンを用いた情報処理技術、いわゆるスピントロニクスの可能性を広げるものとして磁場を用いない信号入出力法の探求がある。本研究では対象として磁性半導体材料を取り上げ、光ないし電流によるスピン状態の観察および制御を試みている。

主要な成果として次の4点が挙げられる。第1に(Ga,Mn)Asへの円偏光励起パルスによって強いKerr回転が生じ、数ピコ秒および数十ピコ秒の緩和時間で復元することを見出したこと;第2にMnをデルタドーピングしたGaAs結晶においてMnスピンの円偏光誘起歳差運動を観測したこと;第3に(Ga,Mn)Asへの円偏光励起パルスによって過度的な歳差運動を観測したこと;第4に(Ga,Mn)Asトンネル磁気抵抗効果素子において電流誘起磁化反転を観測したこと、である。円偏光励起による強いKerr回転は誘起された正孔のスピン一つあたり約100個のMnスピンの作用を及ぼす複合体形成として説明できる。

研究成果は9篇の英文原著論文、4件の招待講演等で公表している。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

7 主な論文等:

(1)論文(原著論文)発表 9件

- 1) Photoinduced magnetization rotation and precessional motion of magnetization in ferromagnetic (Ga,Mn)As, A. Oiwa, H. Takechi, and H. Munekata, J. Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism **18**, 9 (2005).
- 2) Current-Induced Magnetization Reversal in a (Ga,Mn)As-Based Magnetic Tunnel Junction, R. Moriya, K. Hamaya, A. Oiwa, and H. Munekata, Jpn. J. Appl. Phys., **43**, L825 (2004).
- 3) Formation of quantized states and spin dynamics in III-V-based ferromagnetic quantum wells, A. Oiwa, R. Moriya, Y. Kashimura, and H. Munekata, J. Mag. Mag. Mater., **272-276**, 2016 (2004).
- 4) Photo-induced magnetization rotation in III-V ferromagnetic alloy semiconductor quantum wells, Y. Kashimura, R. Moriya, A. Oiwa, and H. Munekata, Physica E, **21**, 987 (2004).
- 5) Dynamics of photoinduced magnetization rotation in ferromagnetic semiconductor p-(Ga,Mn)As, Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Slupinski, H. Maruki, Y. Kashimura, F. Minami, and H. Munekata, Phys. Rev. B **69**, 033203 (2004).

(2)特許出願

研究期間累積件数:2件

発明者: 大岩顕、宗片比呂夫、守谷頼、樫村之哉

発明の名称: 量子サイズ効果を用いたスピン注入磁化反転磁気抵抗素子

出願人:JST

出願番号(出願日):特願 2003-172473(平成 15 年 6 月 17 日)

公開番号(公開日):特開 2005-011907(平成 17 年 1 月 13 日)

発明者: 大岩顕、宗片比呂夫、黒澤良太

発明の名称: キャリア誘起強磁性体を用いた強磁性共鳴周波数の制御方法及びそれを用いた周波数フィルタ素子

出願人:JST

出願番号(出願日):特願 2004-100417(平成 16 年 3 月 30 日)

公開番号(公開日):特開 2005-286867(平成 17 年 10 月 13 日)

(3)その他の成果

受賞 なし

招待講演等 4 件

- 1) Optical charge and spin injection in (Ga,Mn)As, A. Oiwa, CIMTEC 2006 (Sicily, Italy) June 4-9, 2006.
- 2) III-V族強磁性半導体における光誘起スピンドYNAMICS, 大岩顕, 三森康義, 宗片比呂夫, 2004年日本物理学会秋季大会 領域3・4・5合同シンポジウム,(青森大学, 青森)平成16年9月12日-15日, 2004年.
- 3) Photo-induced magnetization rotation and its dynamics in ferromagnetic alloy semiconductor heterostructures, A. Oiwa, and H. Munekata, International workshop on nano-scale magnetoelectronics, (Nagoya, Japan) Nov., 25-27, 2003.
- 4) Optical manipulation of magnetization orientation in ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As and related heterostructures, A. Oiwa, Y. Mitsumori, and H. Munekata, International Symposium on Photonics and Spintronics in Semiconductor Nanostructures, November 2-3, Apical Inn Kyoto,Kyoto, Japan.