

磁性元素を配列した強磁性超格子構造の作製と巨大磁気抵抗の実現 ～究極の原子層結晶成長法を駆使したスピントロニクス機能の実現へ新たな道～

1. 発表者

- レ デウック アイン (Le Duc Anh) (東京大学 大学院工学系研究科附属総合研究機構 助教)
早川 奈伊紀 (東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 修士2年:研究当時)
中川 裕治 (東京大学 大学院工学系研究科物理工学専攻 博士3年:研究当時)
新屋 ひかり (東北大学 電気通信研究所 助教)
福島 鉄也 (東京大学 物性研究所附属計算物質科学研究センター 特任准教授)
小林 正起 (東京大学 大学院工学系研究科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)
吉田 博 (東京大学 大学院工学系研究科附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 特任研究員(上席研究員))
岩佐 義宏 (東京大学 大学院工学系研究科物理工学専攻 教授)
田中 雅明 (東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 教授)

2. 発表のポイント

- ◆ 原子レベルで制御可能な結晶成長法を駆使して、鉄 (Fe) -ヒ素 (As) 正四面体からなる FeAs 単原子層をインジウムヒ素 (InAs) 半導体結晶で挟んだ強磁性超格子構造 (注1) の作製に世界で初めて成功しました。
- ◆ FeAs 層間の距離を変化させた一連の超格子構造において、強磁性転移温度の急増、巨大磁気抵抗効果 (～500%) (注2) の実現とその電気的手段による変調、大きな磁気モーメントなど、ユニークかつ有望な物性機能を見いだしました。また、その強磁性が発現するメカニズムも明らかにしました。
- ◆ 本研究により、ナノ構造の原子分布を制御する最先端の結晶成長技術を利用した機能材料とスピントロニクス (注3) デバイスの実現に新たな道を開くことが期待できます。

3. 発表概要

東京大学大学院工学系研究科の Le Duc Anh 助教、小林正起准教授、吉田博特任研究員 (上席研究員)、田中雅明教授のグループは、岩佐義宏教授グループ、東京大学物性研究所の福島鉄也特任准教授、東北大学電気通信研究所の新屋ひかり助教と共同で、インジウムヒ素 (InAs) 半導体結晶中に鉄 (Fe) 原子をほぼ1原子層の平面内に配列した FeAs-InAs 単結晶超格子構造の作製に世界で初めて成功し、様々な新しい物性を観測しました。Fe-As 正四面体結合からなる結晶構造は、その結合の分布 (密度と形状) によって高温超伝導から高温強磁性まで重要な量子物性が確認され注目されています。InAs は高速トランジスタや長波長光デバイスに使われる半導体であり、エレクトロニクスに応用するためには、InAs のような主要な半導体の中に Fe-As 正四面体結合を高密度に配列することが望ましいと考えられますが、Fe の低い固溶度 (注4) のため相分離してしまう等の理由で、その作製は非常に難しいことが知られています。本研究グループは低温分子線エピタキシー結晶成長法 (注5) を用いることより、初めて InAs 中に等間隔で母材の結晶構造 (閃亜鉛鉱型) を保ちながら FeAs 単原子層を埋め込んだ超格子構造を作製することに成功しました (図1)。この構造では Fe-As 結合が非常に高密度に分布されるため、超格子構造全体が強磁性状態となり、すべての Fe 原子が最大に近い5ボーア磁子 ($5 \mu_B$) (注6) の大きな磁気モーメントを持つことを明らかに

しました。また、FeAs 原子層の間隔を短くすると強磁性転移温度（強磁性を示す温度の上限であるキュリー温度 T_c ）が急増すること、超格子構造の電気抵抗が磁場によって 500%も変化する巨大磁気抵抗効果が発現すること、その磁気抵抗効果をゲート電圧で制御できることも示しました。本研究により、半導体ナノ構造中の磁性元素分布を原子レベルで制御し、将来のスピン트로ニクスデバイスのための機能材料を実現できることが分かりました。

4. 発表内容

現代の情報社会は IoT(Internet of Things)の時代を迎え、インターネット接続機器の数やデータ量が爆発的に増大するなかで、情報通信技術 (ICT) を担う半導体集積回路の性能向上を目指した研究がますます重要になってきています。そこで問題となっているのが、情報を操作し記憶するために必要な総電力が急激に増大していることです。既存の情報処理に用いられている「トランジスタ」の技術では、情報は電荷の有無により表現されるので、その保持に大きなエネルギーが必要となります。本研究グループが取り組む「スピン트로ニクス」という分野では、この問題を電子の「スピン」の自由度（注 7）に着目して解決しようとしています。スピンの生活の中で顕著に現れるのは、磁石の磁化（N 極と S 極が生ずること）ですが、この磁化の向きは一度決まればその保持にエネルギーの供給は必要ありません（これは不揮発性とよばれる）。したがって磁化の向きの違いを情報の 0 と 1 に対応させ、それを電氣的に読み出すことができれば、情報の保持に必要な電力を大幅に減らすことができることが期待されます。スピン트로ニクスの研究は、低消費電力のほかに、不揮発性、再構成可能性（注 8）、非相反性（注 9）、量子情報などの新しい有用な機能をもたらす可能性があり、次世代技術として期待が大きい分野です。これまで主に「電荷」を利用してきた半導体デバイスに「スピン」を組み込むためには、半導体中に磁性元素（鉄 (Fe)、マンガン (Mn)、コバルト (Co) など）を大量に添加することが有力な手段と考えられます。しかし、半導体結晶に磁性元素を大量に添加すれば構造が不安定になり、結晶が壊れたり磁性原子が凝集したりするために材料とデバイス特性を維持することが非常に難しいとされてきました。

本研究グループは、高速で動作するトランジスタ、発光ダイオード (LED)、レーザなどを構成する半導体材料に、磁性元素を添加することによって、半導体と磁石の性質も合わせ持つ「強磁性半導体」（注 10）を作製しその新しい物性や機能を開発する研究でトップレベルの実績を挙げており、既存のエレクトロニクスと相性の良い強磁性半導体を用いたスピン트로ニクス分野を開拓しつつあります。今回、本研究グループが目にしたのは Fe-As 正四面体結合を含む材料構造です。Fe-As 正四面体結合が平面内に配列し積層された材料は、Fe 原子同士のスピンの反平行方向に結合して高温で超伝導状態を示すことが知られています（鉄系超伝導体）。一方、本研究グループの最近の研究により、Fe-As 正四面体結合を半導体 (InAs) 結晶中に 3 次元的にランダムに分布させると、電子キャリアとの相互作用により強磁性状態が既存の理論予測以上の高い温度で発現することが示され、注目されています。もし、InAs などの半導体結晶中に Fe-As 正四面体結合を 1 原子層の厚さの平面内に配列させることができれば、どのような量子状態になるかという問題は、基礎的な物性物理研究の観点とともに新規デバイス応用の観点からも非常に興味深い重要なテーマでした。

① 研究内容

本研究グループは、低温分子線エピタキシー結晶成長法を用いて InAs 単結晶中に Fe-As 正四面体結合を 1 原子層の厚さの平面内に閉じ込める添加方法を試みました。その結果、母材 InAs の閃亜鉛鉱型結晶構造を保ちながらすべての Fe 原子が中心位置から 1.5 原子層の幅で分布させることに初めて成功しました。この技術により、FeAs 原子層を InAs 結晶中に等間隔に埋め込む構造を作製し、世

界初の単結晶 FeAs/InAs 超格子構造の作製に成功しました (図 1 参照)。作製した様々な超格子構造において、FeAs 原子層の層間距離 (InAs の膜厚 t_{InAs}) を 20 原子層以下にすれば超格子全体において強磁性秩序が誘起されることを観測しました。興味深いことに、層間距離 t_{InAs} を縮小すると強磁性転移温度 (キュリー温度 T_c) が t_{InAs} の 3 乗に反比例して急激に増大することが分かりました。この結果は FeAs 原子層の間に超格子構造中に存在する電子キャリアを仲介とした Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 型の相互作用 (注 11) によって強磁性秩序が発現することを意味します。さらに、FeAs 原子層内の Fe 原子の一部が格子サイト間の位置や格子の As 原子を置換するアンチサイト位置に存在することも微細構造解析手法によって明らかにしました。第一原理計算によって、これらの格子間位置やアンチサイト位置の Fe が FeAs 原子層のすべてのスピン方向を揃えるうえで重要な役割を果たすことも明らかにしました (図 1)。

詳細な測定により、本研究で開発した FeAs/InAs 超格子構造では Fe-As 正四面体結合が非常に高密度に分布されるため、超格子構造全体の強磁性秩序が強くすべての Fe 原子が最大に近い $5 \mu_B$ の大きな磁気モーメントを持つことを確認しました。また、超格子構造の電気抵抗が外部磁場によって 500% も変化する巨大磁気抵抗効果を初めて観測しました。さらに、本超格子構造をチャンネルとする電界効果トランジスタデバイス構造 (注 12) を作製し、ゲート電界を印加することによってこの巨大磁気抵抗効果を変調できることを示しました。本研究により作製した超格子構造は、新規機能材料としてスピン自由度を用いた電子デバイスに応用できる可能性があることを明瞭に示しました。

② 社会的意義・今後の予定

本研究で作製した FeAs/InAs 強磁性超格子構造は、構造パラメータや外部電界により諸特性を幅広く制御できるため、室温での実用的なスピントロニクスデバイスのための機能材料として有望です。より広い観点で見れば、本研究はナノ構造の原子分布を制御する結晶成長技術を極めた代表的な例です。このような最先端の結晶成長法を駆使することによって、様々な新規材料の作製が可能になり、予想せぬ新規物性を多く発見できる可能性があることから、高感度磁気センサ、低消費電力のトランジスタなど次世代電子デバイスの機能材料の実現に新たな道を開くことが期待できます。

本研究への支援：本研究は、科学研究費補助金、科学技術振興機構 (JST) 戦略的創造研究推進事業 さきがけ「強磁性半導体を用いたトポロジカル超伝導状態の実現」(JPMJPR19LB) および CREST 「強磁性量子ヘテロ構造による物性機能の創出と不揮発・低消費電力スピンドバイスへの応用」(JPMJCR1777)、スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク (Spin-RNJ) の支援を受けて行われました。

5. 発表論文誌：

雑誌名：Nature Communications

論文タイトル：Ferromagnetism and giant magnetoresistance in zinc-blende FeAs monolayers embedded in semiconductor structures

著者：Le Duc Anh, Taiki Hayakawa, Yuji Nakagawa, Hikari Shinya, Tetsuya Fukushima, Masaki Kobayashi, Hiroshi Katayama-Yoshida, Yoshihiro Iwasa, and Masaaki Tanaka

DOI 番号：10.1038/s41467-021-24190-w

6. 注意事項：

日本時間 7月7日（水）午後6時（英国夏時間：7月7日（水）午前10時）以前の公表は禁じられています。

7. 問い合わせ先：

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 助教
レ デュック アイン (Le Duc Anh)
Tel: 03-5841-6729 Email: anh@cryst.t.u-tokyo.ac.jp
(日本語、英語、ベトナム語で対応可能)

東京大学 大学院工学系研究科
附属スピントロニクス学術連携研究教育センター センター長
電気系工学専攻 教授
田中 雅明 (たなか まさあき)
Tel: 070-1460-7213 Email: masaaki@ee.t.u-tokyo.ac.jp
(日本語、英語で対応可能)

東北大学電気通信研究所
助教 新屋ひかり (しんや ひかり)
Tel: 022-217-5075 Email: hikari.shinya.b5@tohoku.ac.jp

科学技術振興機構 広報課
Tel: 03-5214-8404 Email: jstkoho@jst.go.jp

< J S T 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 (しまばやし ゆうこ)
Tel: 03-3512-3526 Email: presto@jst.go.jp

8. 用語解説：

- (注1) **超格子構造**：複数の種類の結晶格子から成る超薄膜（厚さ数 nm 程度）を周期的に積層した多層構造。超格子構造により、それぞれ単一の結晶格子や単一の材料にはない新しい物性を設計し創出できる。1969年に江崎玲於奈博士が提案して以来、半導体超格子は新材料やデバイスの開発手法として大きく発展した。近年では金属系や磁性体でも超格子が作製され、物質開発に応用されつつある。
- (注2) **巨大磁気抵抗効果**：強磁性層/常磁性層からなる多層膜構造に磁場を印加して、各強磁性層の磁化方向を反平行磁化状態から平行磁化状態に変えたときに、多層膜の電気抵抗が大きく変化する現象。この抵抗の変化率（磁気抵抗比）が大きいほど利用価値が高く、センサに応用する場合には感度が高く、メモリに応用する場合には読み出しの効率が良くなる。1980年後半にこの現象を発見した Albert Fert 博士と Peter Grünberg 博士はノーベル物理学賞を受賞した。

- (注3) **スピントロニクス**：電子は「電荷」とともに自転の角運動量に相当する「スピン」を持っている。スピントロニクス (Spintronics)とは、「電荷」と「スピン」の両方を活用して、新しい機能をもつ物質や材料の設計、デバイス、エレクトロニクス、情報処理技術などに応用しようとする分野である。
- (注4) **固溶度**：ある結晶構造の中に他の原子を添加したとき、元の結晶構造の形を保ったまま固体状態で混じり合っている状態を実現できる添加原子の濃度の限界。
- (注5) **低温分子線エピタキシー結晶成長法**：半導体の結晶成長に使われている手法の一つである。超高真空状態では、各原料を加熱することにより放たれた分子が他の気体分子にぶつかることなく直進できる。超高真空中でこれらの分子線を一定の温度に加熱した基板に到達させて結晶成長（エピタキシャル成長）を行う方法である。基板の温度、原料の元素種類と組成の高い制御性かつ高品質の結晶性が得られることが特長であるため、半導体産業や研究開発に良く用いられる手法である。本研究では、基板温度を通常の 500°Cから 200°C程度に下げて結晶成長を行うという特別な低温分子線エピタキシー結晶成長法を採用した。
- (注6) **ボーア磁子**：物理学において、磁気モーメントの単位となる物理定数。通常は記号 μ_B で表される。国際単位系では、電荷素量 e 、換算プランク定数 \hbar 、真空中の電子の質量 m_e を用いて $\mu_B = e\hbar/2m_e$ で表される。
- (注7) **スピン自由度**：電子がもつスピンの性質、あるいはそれを用いた自由度。スピンは古典的には電子の自転に相当する角運動量である。電子はスピンを持つことによって磁気モーメントを持ち、物質中でこの磁気モーメントが1つの向きに揃った状態が強磁性であり、磁気モーメントの合計が磁化である。これが磁石の磁化や磁力の主な起源となっている。
- (注8) **再構成可能性**：一度作られたデバイスや回路の機能を、後から入力信号を加えることで変えることが可能なハードウェア（やわらかいハードウェア）のことである。スピンを利用したデバイスはスピンの向きを制御することによってデバイスの機能を制御できると期待されている。
- (注9) **非相反性**：ある方向に伝搬する流れ（電流、光、スピン流など）と 180 度逆の方向に伝搬する流れが異なる性質を持つことである。ダイオードや光アイソレーターなど、半導体技術で広く用いられる性質である。
- (注10) **強磁性半導体**：半導体と強磁性体の両方の性質を併せ持つ物質であり、現在は、主に半導体（II-VI 族、III-V 族など）の結晶成長中に磁性元素（Mn, Fe, Co など）を添加した混晶半導体が主流である。既存の半導体材料や技術との整合性が良いので、将来のスピントロニクスデバイスに使われる材料として期待されている。最近、本研究グループでは、キュリー温度（強磁性を示す温度の上限）が室温を超える n 型強磁性半導体(In, Fe)Sb および p 型強磁性半導体(Ga, Fe)Sb を開発した。
- (注11) **RKKY相互作用**：金属中の伝導電子のスピンを介して発生する局在スピン同士の相互作用である。この相互作用を導出した4人の物理学者（M. A. Ruderman, C. Kittel, T. Kasuya, K. Yosida）の頭文字から、RKKY 相互作用と命名された。
- (注12) **電界効果トランジスタデバイス**：半導体チャネル/絶縁膜/金属ゲート電極からなる構造で、ゲート電界による半導体中の伝導特性（キャリア濃度、伝導度）を制御できるデバイスである。ゲート電圧で半導体の抵抗を「高」と「低」に制御することより情報処理が行われる。ほとんどの半導体の集積回路やデバイスで用いられる主要なデバイス構造である。

9. 添付資料：

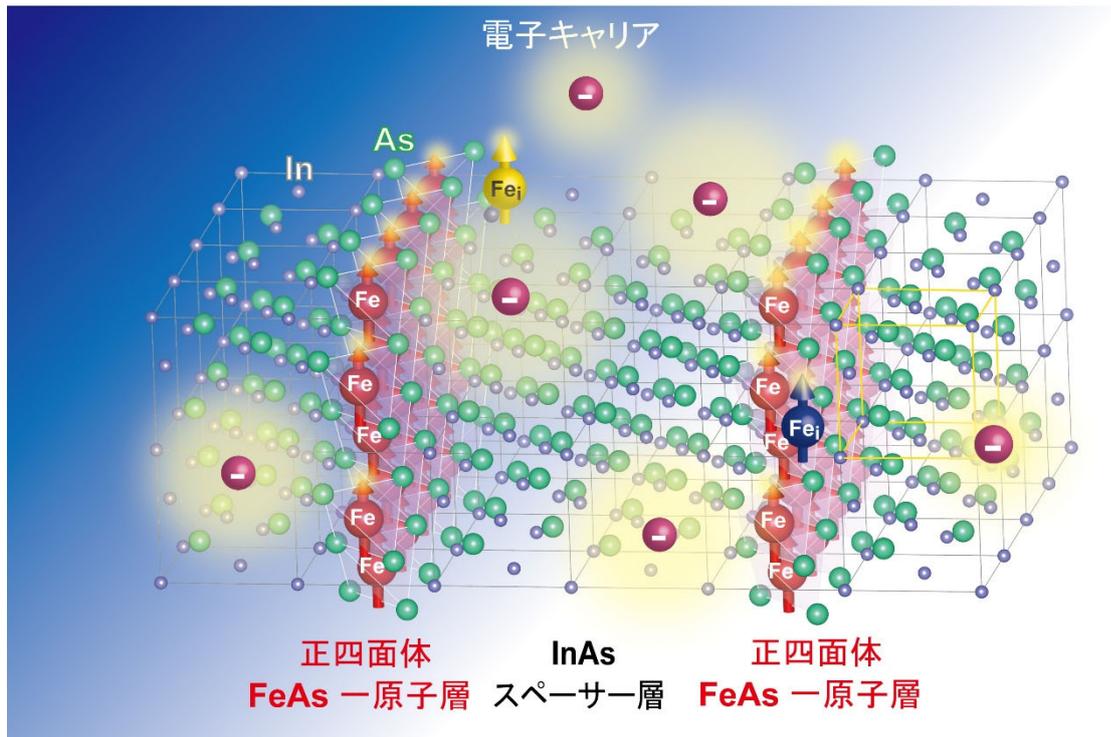


図1 本研究グループが作製した試料の構造：低温分子線エピタキシー結晶成長法による結晶成長を用いて InAs の閃亜鉛型結晶構造（図中右上の黄色い枠で表した単位セルが繰り返した構造）を保ちながら Fe-As 正四面体結合を 1 原子層の平面内（ピンク色）に閉じ込めることに初めて成功した。この技術により、FeAs 原子層を InAs 結晶中に等間隔に埋め込む構造を作製し、世界初の単結晶 FeAs/InAs 超格子構造の作製に成功した。FeAs 原子層の間に超格子構造中に存在する電子キャリア（赤玉と黄色い雲＝電子の波動関数）を介した Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 型の相互作用が働き強磁性秩序を成立させると考えられる。さらに、FeAs 原子層内の一部の Fe が格子間位置（黄色い Fe 原子）とアンチサイト位置（青い Fe 原子）にも存在し、FeAs 原子層のすべてのスピン方向を揃え強磁性を得るために重要な役割を果たすことを明らかにした。（図面の一部は VESTA より作製された）。