III-V 族磁性半導体におけるスピン注入磁化反転の研究 Spin-injection induced magnetization reversal in III-V-based magnetic semiconductors

(応用物理学会推薦)

研究代表者 科学技術振興機構 大岩顕 Japan Science and Technology Agency Akira Oiwa 協同研究者 東京工業大学 宗片比呂夫 Tokyo Institute of Technology Hiroo Munekata,

Spins in solids offer the opportunities to develop novel high performance electrical/optical devices. For future spin-based devices, the magnetization reversal without an applied external magnetic field is one of crucial technologies. We have demonstrated to rotate the magnetization of ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As by hole spin injection with cw circularly polarized light at zero magnetic field. To elucidate the role of hole spins for magnetization rotation, in this research project, we have studied the dynamics of photoinduced magnetization rotation in (Ga,Mn)As by measuring the time-resolved magneto-optical Kerr effect using a femto-second Ti:sapphire laser. Photoinduced magnetization rotation occurs instantaneously within the pulse width (~ 150 fs), whereas relaxation takes place within tens of ps. The observed behavior leads us to infer the new type of excitation involving the spin complex consisting of coupled hole-Mn spins in hole-induced ferromagnetism. Utilizing (Ga,Mn)As-based quantum well structures, in which the hole spin relaxation time would be prolonged, we have accomplished to enhance the photoinduced magnetization rotation. This opens the possibility to manipulate the magnetization rotation by controlling the carrier dimensionality. We have succeeded, for the first time, the partial magnetization reversal by electrical spin injection in small-size pillar-shaped (Ga,Mn)As-based tunnel magnetoresistance devices.

研究目的

将来の高度情報化社会を支える高性能素子を固体中の荷電粒子や原子核が持つスピン自由度を利 用して実現するために、固体中でのスピン物性の基礎研究から新材料探索まで幅広く盛んに行われて いる。こうしたスピントロニクスと呼ばれる分野における重要な性質の一つが強磁性で、強磁性体の 磁化方向は不揮発性やスピン源などの機能を付与できる。現在研究されているスピン素子の多くでは、 固体中にスピン偏極キャリアを注入したり、スピンに依存する磁気伝導や磁気光学を利用するために 強磁性体磁化が用いられている。従来、外部磁場が唯一の強磁性体の磁化反転法であると考えられて いた。しかし外部磁場による操作は集積化や低消費電力化を妨げスピン素子の発展の障害になる。そ こで我々は磁場を使わない光学的/電気的なスピン偏極キャリア注入による強磁性体の磁化反転の実 現を目指してきた。本研究では III-V 族磁性半導体を用いた。この材料はキャリア(正孔)を介して強磁 性が発現するキャリア誘起強磁性が特徴であり、キャリアによる磁性制御が実現されている。我々は 本研究提案直前に、円偏光照射により III-V 族強磁性半導体 (Ga, Mn)As にスピン偏極正孔を注入する と磁化が円偏光の向きに応じて回転することを世界に先駆けて見出した。これは光生成正孔(p)と Mn スピン(d)間に働くいわゆる p-d 交換相互作用を介し正孔スピンが磁化を回転させたとして理解され る。そこで本研究では次の2つの研究課題に取り組んだ。1)p-d 交換相互作用による光誘起磁化回 転のメカニズムを明らかにすることと、2)電気的スピン注入による磁化反転の実現である。まず時 間分解磁気光学効果測定を(Ga,Mn)As に対して行い、円偏光誘起磁化反転ダイナミクスを調べた。広 い波長範囲で実験を行えるようフェムト秒 Ti:Sapphire レーザー用広帯域ミラーセットを援助金によ り購入した。その重要な結果は、(Ga.Mn)As では円偏光照射によって磁化が極めて高速(パルス幅程 度の時間内)に回転していることで、Mn スピンと正孔スピンが一体となって回転し緩和する一種の 複合スピン構造を形成している描像が示唆される。これは正孔スピンの生成と緩和が光誘起磁化回転 に重要であること示している。この知見に基づいて、正孔スピン緩和時間が長いとされる量子井戸構 造を(Ga,Mn)As で作製し、光誘起磁化回転を増大させることに成功した。これはキャリアの次元性を 操作してスピン注入磁化回転を制御できることを示した重要な成果である。こうした一連のスピン注 入実験の他に、光照射による磁化曲線の軟化と保磁力減少効果を見出し、光照射による磁化反転過程 の操作についても述べる。最後に、電気的スピン注入磁化反転の成果について述べる。 (Ga,Mn)As/AlAs/(Ga,Mn)As 微小トンネル磁気抵抗効果素子に電流(~10⁵A/cm²)を流してスピン注入 を行い、部分的ながら電気的スピン注入磁化反転を実現した。 経過と考察

1. (Ga, Mn)As 薄膜における光誘起磁化回転のダイナミクス

前述した c w円偏光照射による(Ga, Mn)As の光誘起磁化回転は、飽和磁化の 15%にも及ぶ大きな 磁化変化が 10¹²-10¹³ cm⁻³程度の小さな正孔生成量で起こる劇的な効果であった。そこには p-d 交換 相互作用に基づく共同現象があると考え、このメカニズムと正孔スピンの役割を明らかにするため、 時間分解磁気光学効果測定により光誘起磁化回転のダイナミクスを調べた。

試料は面内磁気異方性を持つ200nm-Ga0.98Mn0.11As である。強磁性転移温度 Tc は 30K であった。 フェムト秒 Ti:Sapphire を光源としてポンプ・プローブ法に基づく時間分解極 Kerr 回転測定を行った。 ポンプ光はスピン偏極キャリアを生成するため円偏光を用いた。プローブ光は直線偏光である。試料 表面で反射された反射光の偏光面の回転を測定することで磁化成分を検出する。しかし Kerr 回転には 円偏光で生成されるスピン偏極キャリア自身による成分と光誘起磁化成分が存在するため、ポンプ・プ ローブ反射率測定を行い Kerr 回転と注意深く比較し光誘起磁化成分を区別した。 Fig. 1 に時間分解極 Kerr 回転を示す。強磁性転移温度以上では、Kerr 回転と反射率の過渡応答 Δ R/R は単一指数関数で緩和する。これは低温成長 GaAs に特有の振舞いで、光生成電子が過剰砒素に 起因するトラップ中心に捕捉されていく過程でのスピン緩和が起きていることを表している。一方、 T_C以下では Kerr 回転にのみ数十 ps で緩和する遅い成分が現れ、強磁性 Mn が面内から垂直方向へ回 転していることが強く示唆される。このときの磁化の回転角はおよそ 0.3°に相当する。Fig. 1 に示す ように T_C以下の Kerr 回転のデータは 2 つの指数関数の和で表されるので、遅い成分つまり強磁性的 な Mn は極めて速く(パルス幅 150fs 程度) で回転することが強く示唆される。これは p-d 交換相互 作用で結合した強磁性 Mn と正孔が一種のスピン複合体を形成し、極めて高速で回転する描像を想起 させる。回転した Mn スピンはやはり正孔スピンとともに比較的ゆっくりと緩和する。このように正 孔誘起強磁性では Mn-正孔スピン複合体が形成され、Mn と正孔が一体となって回転・緩和するとい う光誘起磁化回転の機構を明らかにした。

2. (Ga,Mn)As ベース量子井戸構造における光誘起磁化回転

バルク強磁性半導体(Ga,Mn)As での光誘起磁化回転では、Mn スピンは正孔スピンとともに回転・緩和することが明らかになった。一般に、GaAs では重い正孔(HH)と軽い正孔(LH)状態が縮退しており正孔スピン緩和は極めて早い。しかし量子井戸では量子閉じ込め効果によって HH と LH 状態間の縮退が解けると正孔のスピン緩和が 1ns 程度まで長くなるという報告がある。そこで我々は(Ga,Mn)As 井量子井戸構造を作製し、縮退を解くことで正孔のスピン緩和時間が長くかつ光生成スピン偏極率が高くなれば、光誘起磁化回転が増大すると予測して実験を行った。

井戸幅が 5nm の(Ga,Mn)As/AlAs 単一量子井戸(SQW)構造を分子線エピタキシーで作製した。 Mn 濃度は5%で。Tc=80Kの強磁性を示した。井戸幅の異なる(Ga,Mn)As 量子井戸構造の磁気円二 色性の測定から、強磁性半導体井戸中に量子準位が形成されていることが確認されている。励起光エ ネルギーを量子準位間遷移エネルギーに調節して時間分解極 Kerr 回転の測定を行った。

Fig. 5(a)は(Ga,Mn)As SQW の時間分解極 Kerr 回転測定の結果を示す。Fig. 5(b)に示すように Tc 以下の低温において、Kerr 回転は 2 つの指数関数で表される緩和を示す。この 2 つの指数関数的緩和 成分のうち、緩和が遅い成分はバルクの研究の類推から、強磁性的な Mn スピンの回転であると考え られる。このとき光誘起磁化回転の大きさは、バルクの値では 3×10¹² photons/cm²/pulse に対して約 0.3°であったが SQW では約 4°と数倍大きいことが明らかになった。これは予想したように量子井戸 では光生成正孔スピンの偏極率は高くかつスピン緩和時間は長くなったためではないかと考えられる。 今後、井戸幅の異なる量子井戸構造の系統的な測定から、光誘起磁化回転の大きさと Mn スピン緩和 時間の井戸幅依存性を調べることが今後の課題である。

この結果は、量子井戸構造で光誘起磁化回転が増加したというだけでなく、キャリアの次元性や スピン状態を制御することで、磁化回転の大きさやそのダイナミクスを操作できる可能性を示唆して おり、従来の強磁性金属では報告のない新しい現象である。

3. 垂直磁気異方性(Ga, Mn)Asにおける磁気ヒステリシス曲線の光誘起ソフト化効果

本研究はスピン注入による磁化回転を目指すものであるが、ここでは光照射によるキャリア濃度の増加が強磁性体磁化反転過程に影響を及ぼすことを見出したのでこれについて述べる。試料は格子 歪みが緩和した 1µm-In_{0.15}Ga_{0.85}As 上に成長した 50nm-Ga_{0.972}Mn_{0.028}As を用いた。(In,Ga)As との格 子不整合により(Ga,Mn)As が垂直磁化磁気異方性を持つことが既に知られている。Tc はおよそ 50 K であった。これらの試料の光照射下での磁化過程を極 Kerr 回転測定で調べた。光源は Ti:Sapphire レーザーを用い、強度は最大で 6×10¹³photons/cm²/pulse であった。

Fig. 3 に極 Kerr 回転で測定した光照射下での磁化曲線を示す。光照射しない場合は垂直磁気異方 性を反映して矩形のヒステリシスを示す。これに対して光照射下では照射光強度が増加するにつれて、 保磁力が減少するとともに磁化曲線がソフト化する現象が見出された。この現象は偏光には強く依存 しない。光照射化により試料の温度上昇を示す兆候も観測されているが、光照射しない状態でのヒス テリシスは Tc 近傍まで矩形を保つことから、ソフト化は温度上昇による効果ではない。保磁力の減少 についても詳細な解析により熱効果以上に減少していることが分った。磁化曲線のソフト化と保磁力 の減少に関して、正孔濃度増加に伴う磁化と磁気異方性の変化によって容易軸が垂直方向から傾いた 可能性を検討している。

4. 電気的スピン注入磁化反転の実現

強磁性金属では、直径 100nm 以下に加工した巨大磁気抵抗(GMR)効果素子において膜面に垂直に 大電流を流すと反転層の磁化方向が反転するスピン電流誘起磁化反転が実験的に実現され、現在、大 学・企業で非常に盛んに研究されている。これは伝導電子が磁化に及ぼす一種のトルクによる効果で あると理解されている。しかし反転に要する臨界電流が 10⁶⁻¹⁰⁷A/cm² と極めて大きく、これを 1-2 桁 下げることが重要な課題の一つである。我々はこれまでの光スピン注入の結果から、磁性半導体を使 えば反転電流を大幅に低減できる可能性があると考え、(Ga,Mn)As ベースの磁気抵抗素子で電気的ス ピン注入磁化反転の実現と反転電流の大幅な低減を目指してきた。将来的には磁気ランダムアクセス メモリ (MRAM) へと応用が期待される技術であるため、磁気抵抗効果が大きいトンネル磁気抵(TMR) 抗効果素子を(Ga,Mn)As で作製し、電気的スピン注入実験を行った。

試料は(Ga,Mn)As(30nm)/AlAs/(Ga,Mn)As(8nm)からなる TMR 素子である。この試料を電子線描画 装置により直径 1µm の円柱構造に加工し、膜面垂直に大電流を流したときに起こる磁気抵抗の変化を 測定した。磁気抵抗は 2 つの磁性層の相対的な磁化方向の変化を反映する。Fig. 4 の破線は、低バイ アスで測定した磁気抵抗(MR)曲線である。-0.018T 付近に観測される抵抗のピークは 2 つの磁性層が 反平行状態であることに対応する。この状態においてパルス電流 (パルス幅 1 s) を試料に流した。curve A は+15mA(10⁵A/cm²)パルス電流を流した後の MR 曲線である。その形状は、システムの温度をいっ たん 25K まで上昇させた後測定した MR 曲線(curve R) とほぼ一致しており、curve A では大電流に よる試料温度の上昇が支配的であることがわかる。これに対して正孔注入に相当する-15mA を流し た場合、初期の抵抗値が+15 mA の場合よりも下がることが確認された。この抵抗変化は磁気抵抗全 体の 26%であることから、素子は多磁区構造でありその一部の磁区が反転したと考えている。III-V 族 磁性半導体を用いた電気的スピン注入磁化反転を達成した世界で最初の成果である。今後は素子をさ らに微小化し単磁区構造を実現し完全な反転の達成を目指す。また観測された臨界電流値は強磁性金 属多層膜での値よりも 1 桁程度小さいが、スピン注入磁化反転のメカニズムとともに慎重に実験と考 察を行う必要がある。

まとめ

光誘起磁化回転のダイナミクスの研究では、光で生成されたスピン偏極正孔と磁性スピンとが交換相互作用でスピン複合体を形成し、極めて高速に回転し、その後比較的ゆっくりと緩和する光誘起 磁化回転機構を明らかにした。この知見を基にして強磁性量子井戸構造において光誘起磁化回転を増 大させることに成功した。磁性半導体トンネル磁気抵抗素子においては、部分的な電気的スピン注入 磁化反転を達成した。こうした本研究の成果は、スピン注入磁化反転技術だけでなく広くスピントロ ニクスの発展に貢献するものと期待する。

研究発表

口頭発表

[1] 樫村之哉、三森康義、大岩顕、守谷頼、T.Słupinski、南不二雄、宗片比呂夫;「強磁性半導体(Ga,Mn)As 系薄膜における光誘起スピンダイナミクス」、第63回応用物理学会学術講演会 (新潟、2002)

[2] 大岩顕、樫村之哉、守谷頼、宗片比呂夫;「(Ga,Mn)As ベース量子井戸構造の磁性・伝導・磁気光 学効果特性」、日本物理学会 第58回年会(仙台、2003)

[3] 樫村之哉、守谷頼、大岩顕、宗片比呂夫;「強磁性半導体(Ga,Mn)As ヘテロ構造における量子準位の形成と光誘起スピンダイナミクス」、第50回応用物理学関係連合講演会 (神奈川、2003)

[4] 大岩顕、守谷頼、遠藤誉幸、三森康義、宗片比呂夫;「(Ga,Mn)As 薄膜とその量子構造における光 誘起スピンダイナミクス」、日本物理学会 2003 年秋季大会(岡山、2003)

[5] 遠藤誉幸、大岩顕、宗片比呂夫;「垂直磁気異方性(Ga,Mn)As における光誘起スピンダイナミクス」、 第 64 回応用物理学会学術講演会 (福岡、2003)

[6] 守谷頼、濱屋宏平、宗片比呂夫、大岩顕;「(Ga,Mn)As/AlAs/(Ga,Mn)As 3 層構造における磁気抵 抗効果の電流方向に関する依存性」、第 64 回応用物理学会学術講演会 (福岡、2003)

[7] A. Oiwa, Y. Mitsumoti, and H. Munekata, "Optical manipulation of magnetization orientation in ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As and related heterostructures", International Symposium on Photonics and Spintronics in Semiconductor nanostructures (Kyoto, 2003)

[8] A. Oiwa and H. Munekata;" Photo-induced magnetization rotation and its dynamics in ferromagnetic alloy semiconductor heterostructures", International Workshop on Nano-Scale Magnetoelectronics (Nagoya, 2003)

[9] R. Moriya, K. Hamaya, A. Oiwa, and H. Munekata;" Effect of electrical spin injection on Effect of electrical spin injection on magnetization reversal magnetization reversal in (Ga,Mn)As/AlAs/(Ga,Mn)As trilayer structures", International Workshop on Nano-Scale Magnetoelectronics (Nagoya, 2003)

[10] 大岩顕、遠藤誉幸、武智宏人、宗片比呂夫;「垂直磁気異方性を持つ強磁性半導体(Ga,Mn)As の 磁化過程に対する光照射効果」、日本物理学会 第59回年次大会(福岡、2004)

[11] 三森康義、大岩顕、南不二雄、宗片比呂夫;「(Ga,Mn)As における光誘起時間分解カー回転」、 日本物理学会 第59回年次大会(福岡、2004)

[12] 守谷 頼、濱屋宏平、大岩顕、北本仁孝、宗片比呂夫;「強磁性半導体(Ga,Mn)As における電気的 スピン注入磁化反転」、第51回応用物理学関係連合講演会 (八王子、2004)

誌上発表

[13] Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Słupinski, H. Maruki, Y. Kashimura, F. Minami, and H. Munekata[,] Dynamics of photoinduced magnetization rotation in ferromagnetic semiconductor p-(Ga,Mn)As[,] Phys. Rev. B 69, 033203 (2004)

[14] A. Oiwa, Y. Mitsumoti, and H. Munekata, "Optical manipulation of magnetization orientation in ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As and related heterostructures", Extended Abstracts of International Symposium on Photonics and Spintronics in Semiconductor nanostructures p. 83 (Kyoto, 2003)

[15] Y. Kashimura, R. Moriya, A. Oiwa, and H. Munekata;" Photo-induced Spin Dynamics in III-V Ferromagnetic Alloy Semiconductor Quantum Wells", In the Proc. of International Conference on Modulated Semiconductor Structures (Nara, 2003), to be published in Physica E [16] A. Oiwa, R. Moriya, Y. Kashimura, and H. Munekata,"Formation of quantized states and spin dynamics in III-V-based ferromagnetic quantum wells", In the Proc. of International Conference on Magnetism 2003 (Roma, 2003), to be published in J.Magn. Magn. Mat.



Fig. 1. Normalized TAR and TRKR profiles with σ^+ pump at (a) 50 K and (b) 20 K. Excitation photon energy and power were 1.58 eV and 3×10^{12} photons/cm²pulse, respectively.



Fig. 2. (a) TRKR profiles with σ^+/σ^- polarized light excitations for 5 nm (Ga,Mn)As SQW at 30 K and zero magnetic field. (b) Semi-logarithmic plot of the same TRKR profile as above excited by σ^+ polarized light. Excitation photon energy and power were 1.61 eV and 2×10^{13} photons/cm²/pulse, respectively.



Fig. 3. Magnetization curves measured by polar Kerr rotation for $Ga_{0.976}Mn_{0.024}As$ with perpendicular magnetic anisotropy under linearly polarized light excitation. Excitation photon energy was 1.58 eV.



Fig. 4. Magnetoresistance (MR) curves of (Ga,Mn)As/AlAs/(Ga,Mn)As tunnel MR device at 10 K. Curves A and B indicate the MR curve after applying + and -15 mA current pulse, respectively, at -0.018 T. Curve R represent the MR curve at 10 K after cycling up to 25 K under applied magnetic field of -0.018 T.