

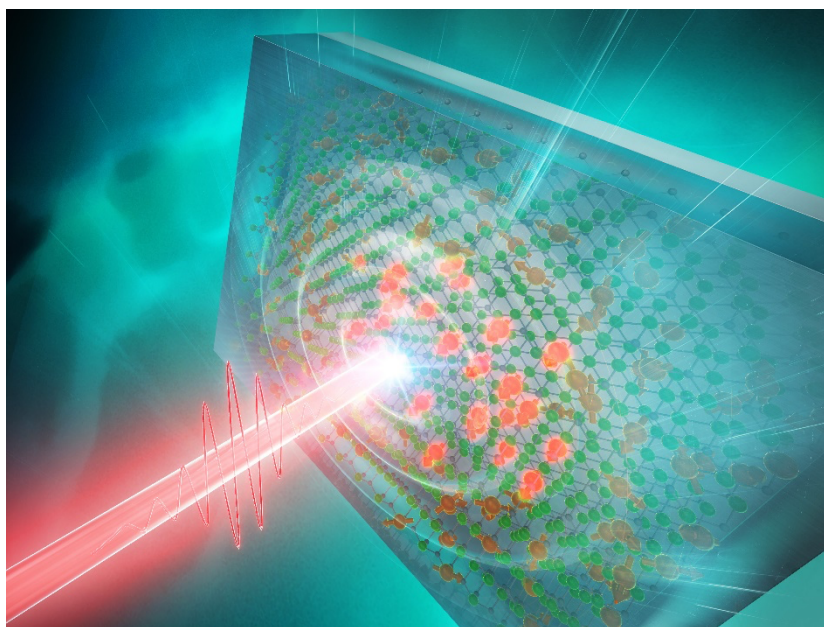
東京大学
理化学研究所
高輝度光科学研究センター

電子の波動関数操作により ピコ秒以下の超高速で磁化制御を実現

——テラヘルツ周波数帯で動作する低消費電力スピントロニクスに向けて新機能を実証——

発表のポイント

- ◆ 強磁性の半導体量子井戸構造に非常に短いパルスレーザー光を照射し、600 フェムト秒というピコ秒以下の超高速で瞬時に磁化を増大させることに初めて成功しました。
- ◆ パルスレーザー光の照射によって半導体量子井戸で閉じ込められた2次元電子の波動関数が超高速で移動し量子井戸内の電子キャリアの分布が変化したことにより、磁化が増大したことを明らかにしました。波動関数を操作することによって超高速で磁化を制御することに成功したのは世界初です。
- ◆ 本研究で実現した超高速磁化制御法は、キャリア濃度の変化を必要としないため、従来の磁性金属材料を用いてキャリア濃度を変化させる方法に比べて、トランジスタ技術と整合性が良く、テラヘルツ周波数帯という現在の半導体集積回路より10倍から100倍の高い周波数で動作可能な低消費電力のスピントロニクスや量子デバイスの実現に向けて新たな道筋を示したといえます。



強磁性半導体 (In, Fe)As を含む半導体量子井戸において、パルスレーザー光を照射した瞬間に超高速で電子キャリアの波動関数が動き、それに伴い1ピコ秒以下で瞬時にFe原子のスピンの揃う（赤丸はFe原子、矢印はそのスピンを表す）

発表概要

東京大学大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センターの Le Duc Anh 准教授、小林正起准教授、武田崇仁特任助教および田中雅明教授の研究グループは、同大学大学院理学系研究科の鷲見寿秀大学院生、同大学物性研究所の堀尾眞史助教、松田巖教授の研究グループ、分子科学研究所の山本航平助教、理化学研究所放射光科学研究センターの久保田雄也研究員、矢橋牧名グループディレクター、高輝度光科学研究センターの大和田成起主幹研究員の研究グループと共同で、強磁性半導体 (In, Fe)As (注 1) を含む半導体量子井戸構造に 30 フェムト秒 (fs) (注 2) の長さを持つパルスレーザー光を照射し、量子井戸 (注 3) の 磁化 (注 4) を 600 fs という非常に短い時間で増大させることに初めて成功しました (図 1)。実験結果の解析と理論計算によるシミュレーションによると、fs パルスレーザー光で生成された キャリア (電子と正孔) (注 5) は強磁性半導体層内の Fe の磁気モーメントと直接には相互作用しません。しかし、それらの空間電荷で作られる表面ポテンシャルにより量子井戸内に閉じ込めた 2 次元電子の 波動関数 (注 3) およびそれに従う電子密度分布が非常に速く変化した結果、Fe 磁気モーメント同士の磁氣的相互作用が超高速で増強され、磁化 (Fe の磁気モーメントの総和による巨視的な磁気秩序) が増大することを明らかにしました (図 2)。従来の強磁性体では磁化を増大させるために材料の d 軌道または f 軌道の電子濃度を大きく変化させる必要があり、電界効果トランジスタ (注 6) のゲート電圧など電気的手段で材料の電子濃度を超高速かつ大量に変調することは非常に困難でした。これに対し、本研究で実現した波動関数による超高速磁化制御方法は、従来のキャリア濃度の変化ではなく、半導体中の波動関数を制御するという点で画期的でありトランジスタ技術に高い整合性を持つため、テラヘルツ (THz) 周波数帯で超高速かつ低消費電力で動作可能な スピントロニクス (注 7) デバイスや量子デバイスの実現に向けて新たな道筋を示したと考えられます。

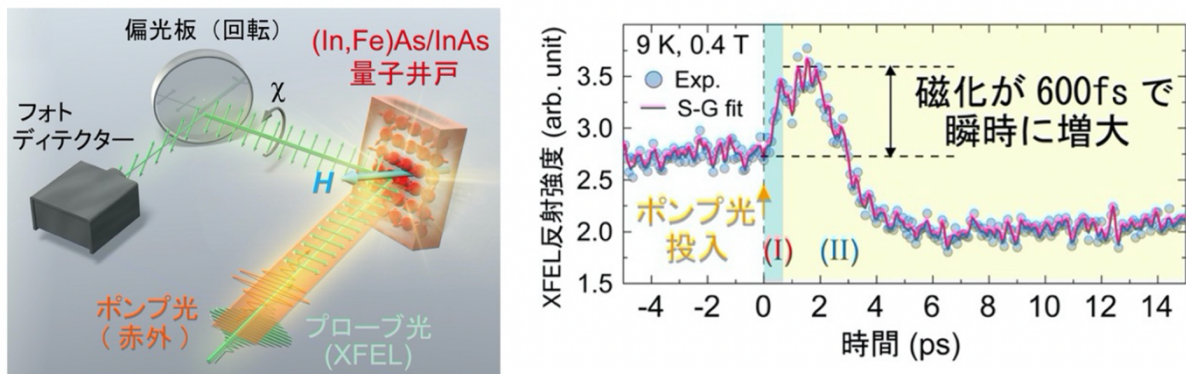


図 1 : (左図) 本研究で用いた測定系。強磁性半導体 (In, Fe)As/非磁性半導体 InAs からなる量子井戸構造にポンプ光 (赤外光) の超短パルスを照射し、それと同期したプローブ光 (XFEL) で量子井戸内の Fe 磁気モーメントの時間変化を観測する。強磁性量子井戸の磁化によって、反射する XFEL の偏光面が回転し (カー回転)、それを回転偏光板とフォトディテクターで検出する。(右図) フォトディテクターで検出する XFEL の反射強度は、強磁性量子井戸の磁化を反映する。ポンプ光が入射された後、600 fs という非常に短い時間 (領域 I) に磁化が増大する。これは波動関数を制御することによって超高速で磁化制御を行った世界初の実証例である。

2次元波動関数と強磁性層との重なりが磁化特性を支配

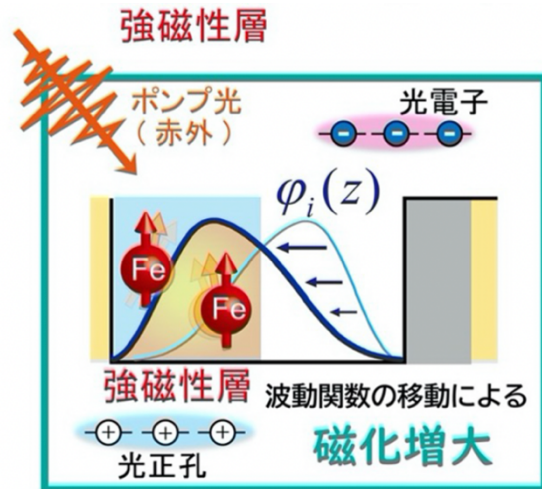
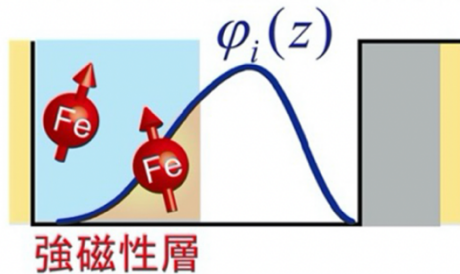


図2：磁化増大のメカニズム

本研究で作製した量子井戸構造のポテンシャルを示す。量子井戸は強磁性層 (In, Fe)As と非磁性層 InAs からなる。赤外超短パルスレーザーによって生成された電子と正孔（光電子、光正孔）は強磁性半導体層の Fe 磁気モーメントと直接に相互作用しないが、それらの空間電荷で作られるポテンシャルを非常に速く変化させ、量子井戸内に閉じ込められた2次元電子の波動関数 ($\varphi_i(z)$, 青い曲線) をシフトさせる。強磁性半導体 (In, Fe)As の Fe 磁気モーメント間の磁気相互作用はこれらの2次元電子波動関数によって仲介されるため、ポンプ光照射直後に2次元電子の波動関数が動き (In, Fe)As 層との重なりが増えることで、強磁性量子井戸全体の磁化が超高速で増大する。

本研究成果は、2023年7月28日（英国夏時間）に科学誌「Advanced Materials」のオンライン版に掲載されました。

発表内容

〈研究の背景〉

今日の情報化社会では生成 AI や IoT（もののインターネット化）機器などが使われ、データ量が爆発的に増大する時代を迎えており、その莫大な情報の記録と処理を担う電子デバイスは「高速化」、「高密度化」、「低消費電力化」が強く要求されています。既存の電子デバイスは、ハードディスクに代表される強磁性体（磁石）における電子の「スピン」（注8）の秩序（磁化）を利用する不揮発性記録デバイスと、集積回路に代表される半導体中の電子の「電荷」の高速制御を利用する情報処理デバイスに大別されます。現在の情報システムは、この2種類のデバイスを相補的に利用して「高速度演算」と「不揮発性の記憶、記録」を両立していますが、両者をつなぐ配線によるデータ通信速度が非常に遅く、消費電力も大きくなっています。

この問題を解決する次世代の電子デバイスとして、半導体と磁性体を持つ異なる特長と機能を融合し高速かつ低消費電力で動作するスピン機能を持つ半導体デバイスを作ることが望ましく、その実現に向けて半導体スピントロニクスという分野が世界的に盛んに研究されています。スピン機能を持つ半導体デバイスの出力は強磁性体の磁化（スピンの向き）で制御されますが、スピンドYNAMICS（注9）を支配する各種の磁氣的相互作用機構は100フェムト秒（fs）から10ピコ秒（ps）（注2）程度と非常に速いため、スピン半導体デバイスをpsオーダーで動作させることは原理的には可能と期待されます。しかし、磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM）を代表とする最も研究が進み実用化されているスピデバイスでも、磁化制御は速くても数ナ

ノ秒 (1 ns = 1000 ps) 程度であり、従来の半導体トランジスタ (MOSFET) より一桁程度も遅いという状態です。また、磁化を反転させ書き込みを行うために電流駆動による磁化制御法 (注 10) が採用されていますが、 $10^6 \sim 10^7$ A/cm² という極めて高い電流密度を必要とするため、大量の電力を消費します。スピンドバイスを用いた次世代の情報システムでは、上記の問題点を解決し、高速かつ低消費電力で磁化を制御する方法を確立する必要があります。

磁化制御に必要な消費電力を大幅に低減するためには、現在用いられている電流駆動による磁化制御から動作電流がゼロに近い電圧による磁化制御 (注 11) に切り替える必要があります。最も一般的な電圧駆動磁化制御法は、金属ゲート/絶縁膜/強磁性体という MOS (Metal-Oxide-Semiconductor) 構造において金属ゲートに電圧を印加することにより強磁性体中のキャリア濃度を変調する方法です。この手法により磁気異方性、キュリー温度 (注 4)、磁化方向などの磁気特性を変化させることができるという論文が多く報告されてきました。しかし、この手法では強磁性体中に大きなキャリア濃度と電荷量の変化 (キャリア濃度の変化 $\Delta n = 10^{13} \sim 10^{14}$ cm⁻²、電荷量の変化 $\Delta Q = e\Delta n$ 、 e は電荷素量) を引き起こす必要があるため、大きな消費電力 ($E = \Delta Q^2/2C$ 、 C は静電容量) を必要とし、動作速度が遅い (~ns) ということがデバイス応用上の問題点でした。キャリア濃度の変調はスピンドダイナミクスより遥かに遅いため、真性のスピンドダイナミクス過程を解明することができないという問題も抱えていました。

本研究グループでは、高速トランジスタ、LED、半導体レーザーなどに用いられる III-V 族化合物半導体に、鉄 (Fe) やマンガン (Mn) など磁性元素を添加することによって、半導体と強磁性体の性質を合わせ持つ「強磁性半導体」を作製し、その不揮発性やスピン関連物性による新しい物理現象と機能を開発する研究を長年行っており、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トロニクスを開拓しつつあります。特に Fe を添加した III-V 族強磁性半導体は、高品質の強磁性材料を超薄膜化およびそのヘテロ構造を作製することによって、キャリアの高いコヒーレンス性 (注 3) を持つため種々の量子効果が期待できるユニークな材料系です。最近、研究グループが作製した Fe 添加インジウムヒ素 (In, Fe)As の薄膜構造において、明瞭な量子サイズ効果 (注 3) の観測に成功しました [Appl. Phys. Lett. **104**, 042404 (2014)]。このような量子井戸で、キャリアの波動関数と強磁性層の重なりを電圧で変調することにより、キャリア濃度がほとんど変化しないまま磁気特性を制御できることを世界で初めて示しました [Phys. Rev. **B92**, 161201 (R) (2015)]。この波動関数による磁化制御法は、i) キャリアの総数の変化を要しないこと、ii) キャリアの移動距離が量子井戸内の数ナノメートル (nm) 程度と非常に短いことから、従来のキャリア濃度変調による磁化制御法では実現できない ps オーダーの超高速かつ超低消費電力の磁化制御が期待されますが、先行研究ではその実証には至っていませんでした。

〈研究の内容〉

研究グループは、分子線エピタキシー法 (注 12) を用いた結晶成長により、強磁性半導体 (In, Fe)As/非磁性半導体 InAs からなる半導体の二層構造を作製し、この構造において電子キャリアが長いコヒーレンス長を持つために単一の量子井戸として振る舞うことを確認しました。この強磁性量子井戸構造において、キュリー温度 (15 K) より低い温度 (9 K) で、赤外波長 (793 nm) の超短パルスレーザー光 (パルス幅は 30 fs) を試料へ照射し、それと同時に Fe 原子特有の内殻準位間の遷移 (M 吸収端、52 eV) に共鳴するエネルギーを持つ X 線自由電子レーザー (X-ray Free-Electron Laser, XFEL) (注 13) を用いて量子井戸内の Fe 磁気モーメントの総和である磁化の時間変化を観測するという、ポンプアンドプローブ法 (注 14) を用いて、赤外超短パルスレーザー光照射による磁化の変化を測定しました。赤外レーザーパルスが入射

されると量子井戸の磁化が 600 fs という非常に短い時間で瞬時に増大することを発見しました（図 1）。実験結果の解析と理論計算によって、赤外超短パルスレーザーによって生成された電子と正孔は強磁性半導体層の Fe 磁気モーメントと直接には相互作用しないものの、それらの空間電荷で作られるポテンシャルを非常に速く変化させ量子井戸内に閉じ込められた 2 次元電子の波動関数が量子井戸内でシフトすることが分かりました。強磁性半導体 (In, Fe)As の Fe 磁気モーメント間の磁気相互作用はこれらの 2 次元電子によって仲介されるため、赤外超短パルスレーザー照射後に 2 次元電子の波動関数が量子井戸内でシフトし (In, Fe)As 層との重なりが増えることで、強磁性量子井戸全体の磁化が超高速で増大される、という機構を解明しました（図 2）。本研究の成果は、波動関数を操作することによって超高速で磁化を制御した世界初の実証になります。

〈今後の展望〉

本研究は、キャリア濃度の変化を必要としない新しい超高速磁化制御法を提供するという点で非常に大きなインパクトがあるといえます。この新しい磁化制御法は半導体トランジスタ技術に応用しやすいため、半導体と磁性体の異なる特長と機能を融合する半導体スピントロニクスにおいて入出力を超高速かつ低消費電力で制御する新たな道を開いたこととなります。本研究を発展させることで、テラヘルツ周波数帯で超高速で動作できる低消費電力のスピントロニクスや量子デバイスの実現が期待されます。

発表者

東京大学

大学院工学系研究科 電気系工学専攻

レ デウック アイン (Le Duc Anh) (准教授)

〈附属スピントロニクス学術連携研究教育センター〉

小林 正起 (准教授) 〈附属スピントロニクス学術連携研究教育センター〉

武田 崇仁 (特任助教) 〈附属スピントロニクス学術連携研究教育センター〉

田中 雅明 (教授)

〈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)〉

大学院理学系研究科 化学専攻

鷲見 寿秀 (博士課程)

物性研究所 附属極限コヒーレント光科学研究センター

堀尾 真史 (助教)

松田 巖 (教授)

分子化学研究所

山本 航平 (助教)

理化学研究所 放射光科学研究センター

久保田 雄也 (研究員)

矢橋 牧名 (グループディレクター)

〈高輝度光科学研究センターXFEL 利用研究推進室 (室長)〉

高輝度光科学研究センター

XFEL 利用研究推進室 先端光源利用研究グループ 実験技術開発チーム
大和田 成起（主幹研究員）

論文情報

〈雑誌〉 Advanced Materials

〈題名〉 Ultrafast subpicosecond magnetisation of a two-dimensional ferromagnet

〈著者〉 Le Duc Anh, Masaki Kobayashi, Takahito Takeda, Kohsei Araki, Ryo Okano, Toshihide Sumi, Masafumi Horio, Kohei Yamamoto, Yuya Kubota, Shigeki Owada, Makina Yabashi, Iwao Matsuda, Masaaki Tanaka

〈DOI〉 10.1002/adma.202301347

〈URL〉 <https://doi.org/10.1002/adma.202301347>

研究助成

本研究は、科学技術振興機構（JST）さきがけ「トポロジカル材料科学と革新的機能創出（研究総括：村上 修一）」研究領域における「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）」、CREST「量子状態の高度な制御に基づく革新的量子技術基盤の創出（研究総括：荒川 泰彦）」研究領域における「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）」、科学研究費補助金（Nos. 19K21961、20H05650）、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*）、UTEC-UTokyo FSI、村田学術振興財団の支援を受けて実施されました。XFEL 実験は、高輝度光科学研究センター（JASRI）の承認を得て、SACLA の BL1 で実施されました（課題番号：2018A8064、2018B8022、2019A8001、2019B8060、2020A8063）。

用語解説

（注 1）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）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半導体デバイス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 2）ピコ秒、フェムト秒：1 ピコ秒（ps）は 10^{-12} 秒（10 のマイナス 12 乗秒）、1 フェムト秒（fs）は 10^{-15} 秒（10 のマイナス 15 乗秒）。600 fs は周波数がテラヘルツ（THz = 10^{12} Hz）領域の電磁波の振動のほぼ 1 周期の時間に相当する。光は秒速 30 万 km の速度で 1 秒間に地球を 7 周半周回するが、600 fs の間に 0.18mm ~~48—cm~~（2023/8/28 修正）しか進まない。

（注 3）量子井戸、量子サイズ効果、波動関数、コヒーレンス性：量子力学において電子の振る舞いは波動関数と呼ばれる波で表され、その存在確率は波動関数の絶対値の 2 乗で記述される。その電子の波動関数の位相が揃うことは電子のコヒーレンス性と呼ばれ、波動関数の位相が変わらない距離はコヒーレンス長と呼ばれる。電子のコヒーレンス

長より狭いポテンシャル中に電子を閉じ込めると、電子のエネルギーは離散化した値をとる（電子状態が量子化されるという）。この現象を量子サイズ効果と称し、閉じ込めるポテンシャルが一方向で電子の運動が2次元面内に限られる場合に量子井戸と呼ぶ。量子井戸内の電子は量子化されたエネルギー状態ごとに定在波で表される波動関数を持つ。通常、禁制帯が異なる半導体超薄膜（厚さ数 nm～数十 nm）のヘテロ構造を作製することによって量子井戸を形成することが多い。

- (注4) 磁化、磁気異方性、キュリー温度：強磁性体の重要な磁気特性である。磁化は材料内部の原子レベルの磁気モーメント（電子スピン）の総和として巨視的な磁気モーメントで現れる物理量である。強磁性材料の性質によって、磁化がある特定の方向に向きたがることが多いが、これは磁気異方性と呼ばれる。また、強磁性体の磁化がゼロでない温度領域の上限はキュリー温度と呼ばれる。
- (注5) 光キャリア：物質原子などに光をあてた時に電子が放出されるという光電効果は1905年にEinsteinが発見した現象である。光のエネルギーを吸収し、物質表面から外部に放出された自由電子と、固体の内部に留まるが励起されて伝導（光伝導）に寄与するようになったキャリア（電子、正孔）の総称である。本研究では光キャリアは後者（内部に溜まるキャリア）を意味する。
- (注6) 電界効果トランジスタ（Field Effect Transistor, FET）：集積回路の90%以上を構成する最も主要な半導体素子である。FETはある半導体チャネルに対して、横方向に「ソース(S)」と「ドレイン(D)」という2つの電極で挟んでおり、半導体表面の縦方向に非常に薄い絶縁膜で隔てられる「ゲート(G)」電極があるという3端子で構成される。ゲートに電圧を印加し半導体表面に縦方向の電界をかけることで半導体チャネル内部のキャリア濃度を変化させることによって、ソース・ドレイン間に流れる電流をコントロールするトランジスタである。強磁性体をチャネルにするFET構造を用いて、ゲート電圧の電界効果によって強磁性体の磁化を制御する試みが多いが、非常に大きなキャリア濃度の変化を実現しなければならず効率的な制御がまだできていない。
- (注7) 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、新しい機能を持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8) スピン自由度：電子がスピンを持つことによる自由度。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9) スピンダイナミクス：電子のスピンや核スピンの励起（光、電磁波、熱など）との相互作用により磁場の軸の周りに回転する歳差運動、その減衰過程や向きの反転など、スピンの非常に高速に応答する現象をスピンドイナミクスと総称する。光学現象または輸送現象による磁気共鳴の検出が可能になる場合が多い。

- (注10) 電流駆動による磁化制御：強磁性体の磁化方向を制御する1つの方法。アップスピン電子あるいはダウンスピン電子のうち片方が多い電流（スピン偏極電流）を強磁性体に流すことによってトルクが発生し磁化の向きを反転することが起こる（スピントランスファートルクと呼ぶ）。近年ではスピン偏極のない電流を非磁性の重金属薄膜に流して、スピン軌道相互作用により純スピン流を発生させ重金属に隣接する強磁性体へスピン流が注入されることでトルクが発生し磁化が反転するタイプの磁化反転が注目されている（スピン軌道トルクによる磁化反転）。これらの電流駆動の方法では磁化反転のために大電流を流す必要があることが現状の問題点である。
- (注11) 電圧による磁化制御：強磁性体の磁化方向を制御する1つの方法。金属ゲート/絶縁膜/強磁性体というMOS（Metal-Oxide-Semiconductor）構造でゲート電圧を印加して強磁性体中のキャリア濃度を変化させることで強磁性体の磁化方向を反転する方法である。電流を流さないため消費電力が非常に小さいことにより注目されているが、まだ物性制御と動作実証の段階であり実用化されていない。
- (注12) 分子線エピタキシー法：結晶成長に使われている方法の1つ。超高真空チェンバーにおいて各原料を加熱して発出される分子線を、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。原料組成と膜厚を原子層単位で制御でき、純度が高く結晶性が優れていること、電子線回折を用いて成長中の表面、膜厚、品質をリアルタイムで観測できることなど、さまざまな利点を持つため、新材料やヘテロ構造の形成をはじめとする研究開発から産業応用まで広く使われる手法である。
- (注13) X線自由電子レーザー（X-ray Free-Electron Laser, XFEL）：X線領域におけるレーザーのひとつ。従来の半導体や気体を発振媒体とするレーザーとは異なり、真空中を高速で移動する電子ビームを媒体とするため、原理的な波長の制限はない。また、数フェムト秒（1フェムト秒は1,000兆分の1秒）の超短パルスを出力するため、原子や分子の瞬間的な動きを観察することが可能となる。なお今回は、理化学研究所と高輝度光科学研究センターが共同で建設した、世界最短波長クラスのレーザー発振能力を持つXFEL施設SACLA（SPring-8 Angstrom Compact free electron LAser）で測定した。
- (注14) ポンプアンドプローブ法：2つの光（または粒子線）を用い、その中の1つの光（ポンプ光）を物質に照射することで物質に変化を起こし、もう1つの光（プローブ光）でその変化を測定する手法の総称である。ポンプアンドプローブ法の多くは光パルスを用いている。

問合せ先

〈研究に関する問合せ〉

東京大学大学院工学系研究科

電気系工学専攻 准教授

レ デウック アイン (Le Duc Anh)

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 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)

東京大学物性研究所

附属極限コヒーレント光科学研究センター 教授

松田 巖 (まつだ いわお)

〈報道に関する問合せ〉

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

〈SPring-8/SACLAに関すること〉

高輝度光科学研究センター 利用推進部 普及情報課