丸文研究奨励賞受賞者

Le Duc Anh（レ デゥック アイン）
東京大学 工学系研究科 准教授

鉄系III-V族強磁性半導体とその異種材料との複合化による機能開拓

次世代量子エレクトロニクスに向けた半導体融合材料プラットフォームの創成

研究の背景

情報化社会の持続的発展のために、既存の電子情報機器を飛躍的に高機能化、低消費電力化、高集積化、さらに量子演算のような新方式を実現することが常に求められている。このような変革を成し遂げるには、従来の半導体材料にはない「強磁性体の不揮発性」、「超伝導体の無散逸性」、「トポロジカル物質の誤り耐性」のような「新しい機能」を創出し、半導体の有用な特長と融合する「量子材料変革」が重要かつ挑戦的な課題となっている。1990年代から、半導体中に強磁性秩序と磁性関連機能を融合する材料として、強磁性半導体（Ferromagnetic semiconductor, FMS）が研究され多くの関心を集めてきた。しかし、既存のFMSでは、①N型が欠けている、②強磁性転移温度は室温より遥かに低いなど、デバイス応用を阻む問題点を抱えていた。さらに、FMSでは母体の非磁性半導体に大量（1～20%）の磁性不純物を添加する必要があるため、結晶性、キャリアのコヒーレンス性、バンド構造の劣化が避けられない。その状況では「強磁性」に加えて「超伝導」や「トポロジカル物性」など複数の量子状態を同時に半導体材料に融合し制御することは非常に困難であり、実現するために材料科学技術のブレークスルーが必要である。

研究の成果

1. 半導体を強磁性にする:FeドープIII-V族狭ギャップ強磁性半導体の開発

我々は従来のFMSの問題点を解決するために、低温分子線エピタキシー（Molecular beam epitaxy, MBE）成長法を用いて新しいFeドープIII-V族強磁性半導体を開発してきた。FeはIII-V族半導体中の中性不純物となるため、従来不可能であったN型のFMS；(In,Fe)As[1]と(In,Fe)Sb[2]の作製に初めて成功し、これらは電子キャリアによって強磁性が誘起される半導体であることを示した。一方、P型FMS(Ga,Fe)Sb[3]と(Al,Fe)Sb[4]の作製にも成功した。さらに、我々はFeドープ狭ギャップFMSは理論予測を覆すほど強い交換相互作用を有することを見出し、P型FMS(Ga,Fe)SbではFe濃度が23%以上、N型FMS(In,Fe)SbではFe濃度が16%以上で、III-V族では初めてキュリー温度Tcが室温（300K）を超える半導体材料を実現した（図1）。

FMSの強磁性は磁性不純物（Fe）と伝導を担うキャリア（電子、正孔）とのs,p-d交換相互作用によって誘起される。これにより、FMSでは半導体の伝導帯や価電子帯が大きくスピン分裂することが期待されるが、これまでFMSではスピン分裂が明瞭に観測された例はなかった。我々はトンネル分光法を用いてN型FMS(In,Fe)Asの伝導帯で巨大な自発的スピン分裂（30-50meV）をFMSでは初めて明瞭に観測した[5]。さらに、(In,Fe)Asを含む量子井戸構造において、二次元電子キャリアの波動関数を電界で制御することにより、初めて1ピコ秒以下の超高速な磁化制御を実現した。また、本手法では従来のキャリア濃度変調による磁化制御法に比べて10^{-6}倍も低い消費電力で磁性変調できることを実証した[6]。この新しい磁化制御法はCMOS技術にも整合しているため、今後の超高速情報処理に繋がると期待される。

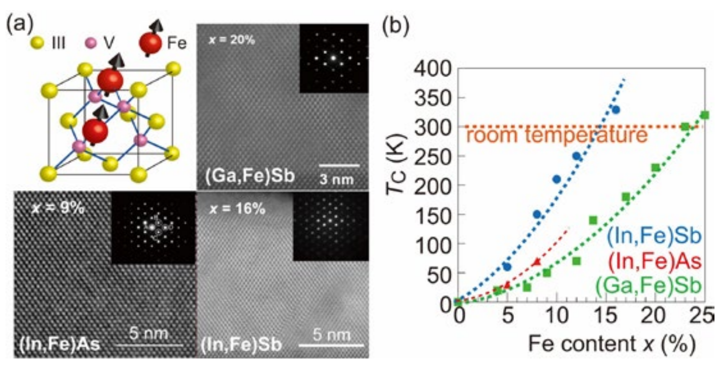

図1 新規FeドープIII-V強磁性半導体（FMS）の創製

（a）我々がMBEで成長した（Ga,Fe）Sb（P型）、（In,Fe）As、（In,Fe）Sb（N型）の透過型電子顕微鏡による結晶格子像。III-V族半導体の閃亜鉛鉱型結晶構造がきれいに維持される。（b）FeドープFMSのキュリー温度はFe濃度の増加と共に上昇し、（In,Fe）Sbと（Ga,Fe）Sbでは室温で強磁性を示す。

2. 「近接効果」を用いてFeドープ強磁性半導体上に超伝導・強磁性・トポロジーを融合

一方、同一半導体中に「超伝導」「強磁性」「トポロジー」の複数の量子状態を融合するために、我々は磁性元素添加を必要としない強磁性半導体の新しい実現方法を考案・実証した。図2aに示す(Ga,Fe)Sb/InAsからなる二層ヘテロ構造において、FMS(Ga,Fe)Sbからの磁気近接効果を用いて非磁性半導体InAsに18meVという大きなスピン分裂を無磁場で引き起こし、その大きさをゲート電圧で変調することに成功した[7]。この構造中の非磁性InAs層は、「強磁性」と「トポロジー」を融合するために非常に有望である。図2aの二層ヘテロ構造では、外部磁場によってInAsの抵抗が80%も変化する巨大近接磁気抵抗効果および磁場の向きによって抵抗が大きく変わる奇関数磁気抵抗効果という2つの新しい磁気抵抗現象を発見した（図2b、c）[7]。これらの磁気抵抗効果は高感度磁気センサや新型スピントランジスタへの応用が期待される。

さらに、2018年からFeドープFMSにおける超伝導近接効果の研究をはじめ、N型FMS(In,Fe)Asを超伝導金属（Nb）と接合させることより、FMS中に1μmもの長い距離でスピン三重項超伝導電流を流せることを実証し、初めて半導体の中に「強磁性」と「超伝導」を同時に融合することに成功した[8]。この結果は、超低消費電力のスピン電子デバイスや量子情報演算への応用が期待される。

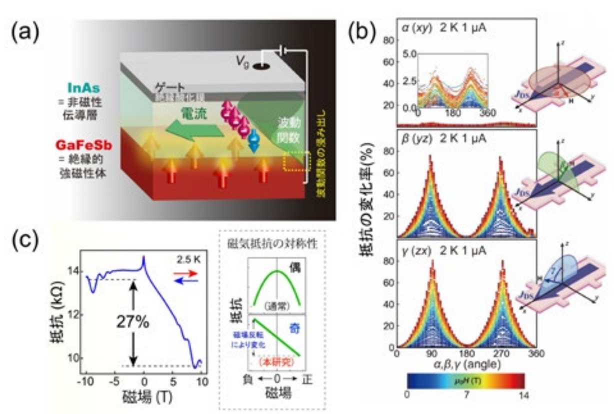

図2 FeドープIII-V FMSを含むヘテロ構造における磁気近接効果

（a）非磁性半導体InAs層中の電子キャリアの波動関数は隣接するFMS（Ga,Fe）Sb層に空間的に浸み出す（四角い破線部分）。これによってInAs量子井戸全体に（Ga,Fe）Sbからの磁気近接効果が発生する。（b）外部磁場の印加方向を回転して巨大磁気近接効果を観測した。β回転およびγ回転では80%にも達する。（c）電気抵抗は外部磁場（z方向）の向きを反転させると27%も変化し、巨大な奇関数磁気抵抗効果が発生。

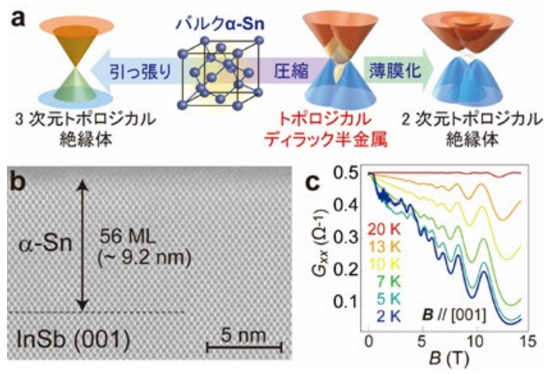

図3 世界最高品質をもつトポロジカル・ディラック半金属α-Snの実現

（a）α-Sn薄膜に歪を加えると、トポロジカル絶縁体あるいはトポロジカル・ディラック半金属（バンド構造に3次元のディラック・コーンが存在する）となる。また、厚さ数十nm以下に薄膜化された試料ではα-Sn薄膜は2次元トポロジカル絶縁体になる。（b）作製したα-Sn薄膜には完璧なダイアモンド型単結晶構造が得られた。（c）α-Sn薄膜において明瞭なシュブニコフ・ド・ハース振動が観測された。量子移動度は先行研究に比べて約10倍も高い（この材料では最高値）。

3. 「半導体上のトポロジカルプラットフォームとなるα-Sn」の開発に成功

ダイアモンド型結晶構造をもつα-SnはIII-V族半導体InSbやFMS(In,Fe)Sbに整合し、トポロジカル絶縁体、トポロジカルDirac半金属、トポロジカル超伝導など、多くのトポロジカル相へ転移できる材料として注目される（図3）。我々は半導体InSb基板上およびFMS(In,Fe)Sb上に世界最高品質と移動度（～30000cm^2/Vs）を持つエピタキシャルα-Sn薄膜をMBE成長し、そのトポロジカル物性を明らかにした[9]。さらに、α-Sn薄膜面内の任意の位置に集束ビームを照射することにより超伝導を示すβ-Snへの相転移を起こし、トポロジカル物質/超伝導体からなる面内ヘテロ構造の作製に成功、これによってナノ寸法の超伝導細線やJosephson接合構造を自在に作製する画期的な新方法を発明した。この手法で作製したSnベース超伝導細線において電流方向によって超伝導臨界電流が69%も変化する巨大な超伝導ダイオード効果を観測した。このようにFMS上に「超伝導」「トポロジー」の物性機能を融合することにより、量子情報回路への応用が期待される[9]。

将来の展望

室温で強磁性を示すN型およびP型のFeドープFMS材料を実現し、さらにFMS層と様々な異種材料（超伝導体、トポロジカル物質）とのヘテロ構造を作製することにより、非常に豊かな新しい物性機能を創成できることを示した。今後、これらを用いた高感度の量子計測や電力を消費せず情報処理が可能な新しいデバイスへの応用が期待される。「超伝導」「強磁性」「トポロジー」を同時に半導体に融合できれば、非可換統計性を持つマヨラナフェルミオン（Majorana fermion）状態が生成され、強い誤り耐性を持つトポロジカル量子計算の実現にも期待が高まる。このように、本研究は、将来の半導体産業の活性化および量子情報科学の発展に大きく寄与する可能性を秘めている。

謝辞

本研究は東京大学・田中雅明教授および田中研究室のメンバー、同大学スピントロニクス学術連携研究教育センター・吉田博上席研究員、小林正起准教授、同大学物性研究所・勝本信吾教授研究室、松田巌教授研究室、東京工業大学・ファムナムハイ准教授、東北大学・千葉貴裕助教、福島高専・小田洋平准教授をはじめ、数多くの研究グループ・研究者のご協力を得て行われました。共同研究者の皆様のご支援に深く御礼を申し上げます。

References（参考文献）

【1】P. N. Hai, L. D. Anh et al., Appl. Phys. Lett. 101, 182403(2012); P. N. Hai, L. D. Anh and M Tanaka, Appl. Phys. Lett. 101, 252410(2012). 【2】N. T. Tu, P. N. Hai, L. D. Anh, M. Tanaka, Appl. Phys. Express 11(6), 063005(2018); Appl. Phys. Lett. 112, 122409(2018). 【3】N. T. Tu, L. D. Anh et al., Appl. Phys. Lett. 108, 192401(2016). 【4】L. D. Anh, D. Kaneko, P. N. Hai, M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. 107, 232405(2015). 【5】L. D. Anh, P. N. Hai and M. Tanaka, Nature Commun. 7, 13810(2016). 【6】L. D. Anh et al., Adv. Mater., 35 2301347(2023). L. D. Anh et al., Phys. Rev B 92, 161201(2015). 【7】K. Takiguchi+, L. D. Anh+ et al., Nature Phys. 15, 1134(2019)(+:co-first author); K. Takiguchi, L. D. Anh et al., Nature Commun. 13, 6538(2022). 【8】T. Nakamura, L. D. Anh, et al., Phys. Rev. Lett. 122, 107001(2019). 【9】Le Duc Anh, et al. Adv. Mater., 33, 2104645(2021); K. Ishihara, L. D. Anh et al., arXiv:2308.00893.