

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：12102

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2012～2013

課題番号：24860014

研究課題名(和文)高キュリー温度を持つ磁性半導体における磁性機構の解明とその制御

研究課題名(英文)Elucidation and control of the mechanism of magnetism in magnetic semiconductors with the high Curie temperature

研究代表者

秋山 了太(Akiyama, Ryota)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：40633962

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円、(間接経費) 690,000円

研究成果の概要(和文)：本テーマでは低消費電力で高速・大容量の情報処理・通信に向けたスピンドバイス開発を目指して、高いキュリー温度を示す磁性半導体におけるゲート電圧印加による磁性制御を目指した。まず磁化曲線の明確なカルコゲナイド強磁性薄膜Cr<sub>1-x</sub>Teにおいて、イオン液体を用いたゲート素子を作製しその磁性を制御することに成功した。その技術を応用し室温強磁性を示す(Zn,Cr)Teにおいて、保磁力の大きさをゲート電圧によって可逆的に変化させることに成功した。またこれによって、(Zn,Cr)Teの強磁性機構の手がかりを得ることができた。

研究成果の概要(英文)：In this theme, we aimed to develop the spin-device showing low consumption of energy and enabling high speed and large capacity information processing using magnetic semiconductors with high Curie temperature. The magnetism in the device can be controlled by applying gate voltages. Before (Zn,Cr)Te, we successfully modulated the magnetism (magnitude of the magnetization) in Cr<sub>1-x</sub>Te whose magnetization shows the distinct curve by making gating devices using an ion liquid. Applying that method to (Zn,Cr)Te, we successfully modulated the magnetism in (Zn,Cr)Te, especially coercivity by gate voltages. These results led the clues of the magnetism in (Zn,Cr)Te.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理一般

キーワード：ゲート素子 スピントロニクス 電界効果 磁性 イオン液体 強磁性

### 1. 研究開始当初の背景

磁性薄膜におけるゲート電圧印加による磁性変調は、磁性半導体(In,Mn)Asにおいて初めて行われた。その後金属超薄膜(Coなど)においても報告され、キュリー温度や磁気異方性の制御といった報告もなされている。この方向の研究の志向としては、ゲート電圧の印加によって磁性薄膜の磁化が制御できれば、磁性薄膜を応用した磁気メモリにおいて、消費電力を伴わずにオンオフスイッチを行う事ができるため、その基礎技術として電界による磁性薄膜の磁化の変調を試みるというものである。

磁性半導体でも多く試みられてきた電界による磁化変調であるが、磁性半導体の多くはキュリー温度が低く、実際のデバイスとして動作させるにはまだ大きな壁があった。本研究で取り上げた(Zn,Cr)Teは室温近い高キュリー温度を持つことから、室温での次世代磁気メモリの開発へ向けて有望な物質系だと考えられた。また加えて、強磁性の機構がほぼ解明された(Ga,Mn)Asなどと比較して、(Zn,Cr)Teはその機構が未解明であり、バンドギャップが大きい磁性半導体の強磁性機構は不明な点が多く解明が待たれた。電界によって磁化を変調することで、強磁性機構の仮説の検証も兼ねることができると考え、(Zn,Cr)Teを用いることとした。

### 2. 研究の目的

最終的な目的は、電界を磁性半導体(Zn,Cr)Teへ印加し、磁化を変調させることで、磁気メモリなどのスピンドバイスへの道筋をつけることと、さらに磁化変調の系統的な調査によって、(Zn,Cr)Teの強磁性の機構の手がかりを得ることである。

### 3. 研究の方法

大まかな流れとしては、電界印加のためのゲート素子を作製し、それを用いてSQUID(超伝導量子干渉計：高感度な磁束計)で磁化変調の評価・解析を行う。

第一に、まず(Zn,Cr)Teに対してゲート電界を印加するための素子作製を行う。一般的にゲート素子はいかに良質なゲート絶縁膜を作るかが鍵となっており、リーク電流を抑え、なおかつ磁化変調させるに十分な電界を加えられるような膜でなければならない。そのため、絶縁膜の選定と実際に(Zn,Cr)Te上へ成膜しての特性評価が必要になる。本研究では、まず固体絶縁膜として、誘電率が高く(比誘電率~8.5)良質な膜ができることからAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を選んだ。成膜には、カヴァー性がよく、ピンホールの少ない製法であるALD(原子層堆積)法を選択した。ALDは専用の装置が必要であるが、大変高価であるため我々は自作することとし、半年かけて作製を行った。

ALDの原理としてはトリメチルアルミニウム(TMA)と純水を交互に真空引きした成膜チャンバーへシャッター制御でパルス的に導入することで、おのおのが一層ずつ堆積され、それによって基板表面で化学反応が起こり、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が成膜される。一方で、近年電界効果デバイスにおいて特に注目を集めている方法として、イオン液体を用いた方法がある。イオン液体は電界を印加するとイオンが液体中を移動し、界面に蓄積することで界面付近に強大な電界を生じさせる事ができる簡易で効果的な方法である。本研究でも、イオン液体 liquid(1-ethyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethylsulfonyl)imide ([EMIM][TFSI])) をポリマー(poly(styreneblock-ethylene oxide-block-styrene) (PSPEO-PS))に溶かしてゲル状にし、(Zn,Cr)Te上へ堆積し電界効果デバイスを作製した。

第二には、作製した電界効果デバイスを、SQUIDの中へ導入し、電界を印加したまま磁化を測定する。電界印加のためには、測定チャンバー内へ電線などを導入する必要があり、これも自作を行った。磁化測定は数点の温度において磁場依存性を測定した。印加電圧はリーク電流が生じずに、なおかつ変調が現れる範囲を選んだ。

### 4. 研究成果

(Zn,Cr)Teを試す前に、まず磁化曲線が明瞭に矩形になるCr<sub>1-δ</sub>Teというカルコゲナイド強磁性薄膜を用いて作製したゲート素子において、ゲート素子の動作確認・評価を行った。Cr<sub>1-δ</sub>Teは垂直磁化を示すことが知られており、T<sub>C</sub>は180Kほどである。本研究で作製した素子構造は、Pt/イオンポリマー/Cr<sub>1-δ</sub>Te/CdTe/n-GaAs sub.となっている。

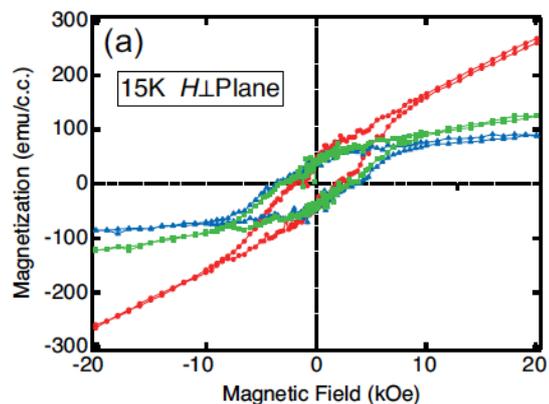


図1 Cr<sub>1-δ</sub>Teにおけるゲート電圧による磁化変調。ゲート電圧は+1(赤), 0(青), -1V(緑).

15Kにおいて印加電圧を+1(赤), 0(青), -1(緑)Vとかけた場合のM-H曲線を図1に示す。プラス・マイナス両バイアス共に磁化の増大を示したが、特に+1Vの場合に0Vの

ときの3倍以上に増大した。Cr<sub>1-δ</sub>TeにおいてはCr欠損層と充填層がc軸方向に交互にスタックし、Cr欠損層は反強磁性的にカップリングしていることが中性子散乱で分かっている。磁化変調の原因として、それらのCr欠損層間において、電圧印加によって反強磁性秩序が崩れることで磁化が増大したものと考えられる。理由としては増大成分が常時的であること、およびT<sub>c</sub>付近で効果が増大しないことなどが挙げられる。なお、M-H曲線の変調にともなって保磁力も変化している。Cr<sub>1-δ</sub>Teにおける電界による磁化変調は初めての報告であり、国際誌 Phys. Status Solidi C において発表した。

この結果を元に、(Zn,Cr)Te についても同様なゲート素子加工を行い、測定を行った。作製した素子構造はヘテロ接合を含んでおり、Pt/イオンポリマー/AlN/(Zn,Cr)Te/p-ZnTe/p-GaAs sub.となっている。測定の結果、図2のようにプロッキング温度以下の5Kにおいて、磁化の大きさには顕著な変化は見られなかったが、印加電圧0Vの時に比べ、+1Vではおよそ30%保磁力が減少した。これは(Zn,Cr)Teの本質的な磁性の変化だと考えられる。保磁力変化の機構としては、電界の印加によって(Zn,Cr)Te/p-ZnTe界面でバンドベンディングが生じ、それによってp-ZnTe層中のホールが(Zn,Cr)Te層へ流れてきて、Cr準位に遷移し、(Zn,Cr)Te層中のCrの価数が変化することでCr間強磁性相互作用の大きさが変化したことによると考えられる。これらの結果から、二重交換相互作用によって発現している強磁性が、外場によって制御可能であることが分かった。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

{ 雑誌論文 } (計 3 件)

[1] Ryota Akiyama, Haruyoshi Oikawa, Kazuma Yamawaki, and Shinji Kuroda, Electric-field modulation of ferromagnetism in hexagonal chromium telluride thin film, *physica status solidi (c)*, 査読あり, DOI: 10.1002/pssc.201300751 (2014).

[2] Satoshi Ishitsuka, Takeru Domon, Ryota Akiyama, Ken Kanazawa, Shinji Kuroda and Hironori Ofuchi, Structural and magnetic characterization of (Zn,Fe)Te thin films grown by MBE, *physica status solidi (c)*, 査読あり, DOI: 10.1002/pssc.201300649 (2014).

[3] Ke Zhang, Ryota Akiyama, Ken Kanazawa, Shinji Kuroda and Hironori Ofuchi, Effect of acceptor co-doping on magnetism and electronic states in ferromagnetic semiconductor (Zn,Cr)Te,

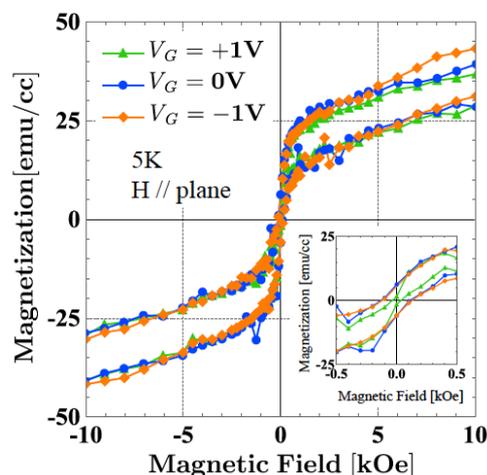


図2 (Zn,Cr)Te ヘテロ構造におけるゲート電圧による磁化変調。ゲート電圧は+1(緑), 0(青), -1V(橙)。

*physica status solidi (c)*, 査読あり, DOI: 10.1002/pssc.201300755 (2014).

{ 学会発表 } (計 4 件)

[1] 及川晴義, 秋山了太, 百瀬峻, 黒田眞司, 強磁性半導体(Zn,Cr)Teにおける外部電場による磁性変調, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 19p-E7-15, 青山学院大学(2014年3月19日)

[2] Ke Zhang, Ryota Akiyama, Ken Kanazawa, Shinji Kuroda, and Hironori Ofuchi, "Effect of Acceptor Co-doping on Magnetism and Electronic States in Ferromagnetic Semiconductor (Zn,Cr)Te", II-VI 2013, Nagahama Royal Hotel, Shiga, We-P20 (11 Sept. 2013).

[3] Ryota Akiyama, Haruyoshi Oikawa, Kazuma Yamawaki, and Shinji Kuroda, "Modulation of Ferromagnetism by Applied Electric Fields in the Hexagonal CrTe", II-VI 2013, Nagahama Royal Hotel, Shiga, Tu-P38 (10 Sept. 2013).

[4] Haruyoshi Oikawa, Ryota Akiyama, and Shinji Kuroda, "Effect of an Electric Field on Magnetism of Ferromagnetic Semiconductor (Zn,Cr)Te", II-VI 2013, Nagahama Royal Hotel, Shiga, Tu-P37 (10 Sept. 2013).

{ 産業財産権 }

出願状況 (計 1 件)

名称: 磁気トンネル接合素子及び磁気メモリ  
 発明者: 秋山了太  
 権利者: 筑波大学  
 種類: 特許出願  
 番号: 特願 2013-107321  
 出願年月日: 2013年5月21日

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kuroda\\_lab/index.html](http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kuroda_lab/index.html)

## 6．研究組織

### (1)研究代表者

秋山 了太 (Ryota Akiyama)

筑波大学 数理物質系・助教

研究者番号：40633962