

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： スピン量子ドットメモリ創製のための要素技術開発

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名

研究代表者

猪俣 浩一郎 ((独)物質・材料研究機構 フェロー)

主たる共同研究者

高梨 弘毅 (東北大学金属材料研究所 教授)

前川 禎通 (東北大学金属材料研究所 教授)

斉藤 好昭 ((株) 東芝研究開発センター 主任研究員)

Yong Jiang (Professor, Department of Materials Physics and

Chemistry, University of Science and Technology Beijing)

3. 研究内容及び成果:

本研究は超大容量のユニバーサルメモリの実現につながるセル選択トランジスタを不要とする不揮発性でもランダムアクセス可能な究極のスピンメモリの創製を目標に据え、それに必須と思われる要素技術の開発を進めたもので、得られた主な成果は以下の通りである。

クーロンブロッケード(CB)を利用したスピン単一電子素子開発に関する研究

スイッチ機能をもたせるための強磁性ナノ粒子の CB 発現、それに伴うトンネル磁気抵抗効果(TMR)の電圧制御、およびそれらの室温動作を目指した。その結果、微小素子試料において Co 磁性ナノ粒子に基づく明瞭な CB とクーロン階段を観測し、それに伴う TMR の振動的振舞いを見出し、CB の ON/OFF により一桁以上の抵抗変化を実現し、当初計画のスイッチ機能を有する TMR 素子が可能であることを 4.2 K で実証した。また Co ナノ粒子中のスピンの緩和時間が著しく増大し、バルクの値の約 1 万倍となることを見出した。併せて 4.2 K において、Au ナノ粒子を用いてスピン蓄積に起因すると考えられる 10 %を越す TMR の観測に成功した。この発見は、非磁性ナノ粒子のスピン蓄積による TMR を利用することで、Co ナノ粒子が超常磁性に変わる問題(室温動作は 1 nm 程度の粒子サイズが必要と見込まれる。Co はその大きさでは強磁性を失い TMR が著しく減少することが予想される)を回避できるテラビット級スピン量子メモリの室温動作可能性を示唆する成果である。

スピン共鳴トンネル効果素子開発に関する研究

スピン共鳴トンネル効果デバイスの創製により、トンネル電流を電圧で制御しかつ TMR の増大を引き出し、スイッチ機能を備えた室温動作の TMR 素子開発を目指した。

材料系としてはエピタキシャル成長多層膜の作製適正化と、s電子が優先的にトンネルできる電子構造である Fe/MgO 系を選択、Fe 超薄膜中にスピン依存量子井戸を発現させることを試みた。

Fe 超薄膜を二つの MgO バリアで挟んだエピタキシャル二重トンネル接合素子と、Cr と MgO バリアで挟んだ一重トンネル接合素子のいずれの系でも明瞭なスピン依存量子井戸の室温観測に成功し、特に、後者の系では MgO(001)基板/Cr/Fe 超薄膜/MgO/Fe エピタキシャルトンネル接合をスパッタ法で作製し、Cr 層のフラット化および MgO バリアの(001)配向の高度化をはかることで、Fe 超薄膜の最適膜厚で多数スピンバンドの量子井戸形成に伴う明瞭な TMR の増大、および電流-電圧曲線の変調を世界で初めて室温で観測し、この接合がスイッチ機能を備えた TMR 素子になり得ることを実証した。

ハーフメタルの開発に関する研究

高速読み出しのための大きな信号電圧の確保に向け、巨大 TMR が期待されるハーフメタルの開発を行った。

材料は構造が安定でありかつキュリー点の高い Co 基フルホイスラー合金 ($L2_1$ 構造)に着目し、 Co_2MnGe 、 Co_2MnSi 、 $Co_2(Fe_xCr_{1-x})Al$ (CCFA)および $Co_2Fe(Al_xSi_{1-x})$ (CFAS)について研究した。薄膜作製は超高真空スパッタ装置を用い、イオンミリングとリソグラフィを用いて微細加工し TMR 素子を作製した。基板加熱温度および薄膜作製後の熱処理温度を変えて薄膜の構造、磁性および TMR 特性を調べた。フルホイスラー合金には $L2_1$ 規則相のほかに $B2$ (CsCl 型)、および $A2$ (完全不規則な bcc 構造)が存在し規則-不規則変態を起こすこと、 $A2$ が存在すると TMR が大きく低下すること、基板加熱よりも成膜後熱処理の方が表面ラフネスの小さい膜が得られることなどを明らかにした。その中で、CCFA においてホイスラー合金を用いて世界で初めて TMR を観測するとともに、不規則構造の $B2$ でも巨大 TMR が得られる可能性を見出した。これはハーフメタル特性をフルホイスラー合金で得る可能性が高いことを示唆する重要な発見である。研究する中で CCFA では $A2$ の存在を避け難いことも判明した。特に CFAS では熱処理条件によって X 線的には $A2$ のない $B2$ または $L2_1$ を得ることができることを見出すとともに、 MgO バリア上に $B2$ または $L2_1$ 構造を作製することに成功した。その結果、CFAS/ MgO /CFAS エピタキシャルトンネル接合素子を作製し、室温で 220%の巨大 TMR を得た。この値はハーフメタル材料としては世界最高値であり、低温での TMR から求めたスピン分極率は 80%を超えている。

反平行結合素子に関する研究

二つの強磁性層が非磁性層を介して反平行に結合した反平行結合 (SyAF) フリー層は、磁束が外部に漏れにくく、ビット間の磁氣的干渉が解消されるので大容量メモリ素子要素として有望である。研究の結果、SyAF は単磁区を形成しやすく、アスペクト比 $k=1$ でも単磁区になることを発見した。また SyAF をフリー層とする $k=1$ の TMR 素子において、磁化反転磁場は素子サイズに依存せず、その傾向は反平行結合が強い程強いことを見出し、従来の単層フリー層に比べて熱揺らぎ耐性に優れることも明らかにした。さらに、SyAF に対してもスピン注入磁化反転が可能であること、その磁化反転電流密度は単層膜よりも実質的に小さくなることも発見した。一方、 Ru スペーサを用いることで従来より一桁以上小さな 1×10^6 A/cm² の電流密度での磁化反転にも成功した。

自己差動読出し・スピン注入書き込み技術の開発に関する研究

原理的に出力を倍増できるとともに、ノイズに強いという特徴をもつ自己差動読出し・スピン注入書き込み型メモリ素子およびその検出法の開発を行った。研究結果は、CMP プロセスの採用による自己差動素子の作製技術確立および自己差動読出しに成功するとともに、SyAF フリー層の熱揺らぎ耐性が高いことを検証し、その大容量メモリ素子としての有効性を確認した。さらに、スピン注入書き込みを実現するため、メモリ素子の困難軸方向にアシスト磁界を印加する方法を考案し、電流密度を 2×10^6 A/cm² に一桁低減することに成功した。この成果を受けて、 MgO バリアを用いた低抵抗自己差動増幅素子およびスピン注入書き込み・自己差動読出し用素子を試作した結果、目標のスピン注入書き込み・自己差動読み出しを実証できた。また、TMR 素子に対してスピン注入による繰り返し書き込み実験を行い、 10^4 回以上の読み出し/書き込み特性を確認し、スピン注入磁化反転が高い実用性を有することを検証した。

非局所スピン注入に関する理論的研究

非局所スピン注入による磁化反転とスピンホール効果の理論的研究を行った。強磁性体 (F1) と非磁性体からなる系に非局所的スピン注入を行うと、非磁性体中に電荷流の伴わない純粋のスピン流とスピン蓄積を生成できる。本研究ではこの非磁性体にパーマロイなどの微小な強磁性体 (F2) を接触させると、F2 がスピンの吸収体として働き大きな純粋スピン流が F2 に流出し、この非局所スピン流により 10^6 A/cm² の電流密度で F2 の磁化反転が可能なることを理論的に示した。特に、非磁性体が半導体や超伝導体の場合、その効果は顕著で、この純粋スピン流はホール電圧を誘起し、非局所スピンホール効果が観測可能であることを予測するとともに CREST「電子内部自由度制御型ナノデバイス創製原理の構築」(研究代表者、前川禎通)において実験的に検証された。

4. 事後評価結果

4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

セル選択トランジスタを不要とする不揮発性でしかもランダムアクセス可能な究極のスピメモリへの応用を見据え、それに必要な要素技術の研究開発を行い、TMR 発現において究極の材料系であるハーフメタル材料の開拓や、材料科学初め、デバイス物理に対しても、多くの知見、成果を得た。科学的な知見や、スピ量子ドットメモリに限らず進化を続ける磁気デバイスへも展開可能な基盤技術的データは論文発表 108 件(和文 18、英文 90)招待講演 80 件(国内 23/国際 57)、口頭(ポスター含)発表 279 件(国内 153/国際 126)を通じて公開され、国際的に評価の高い学会誌や国際会議で注目された成果を多く含んでいると言える。特許は国内 23 件、海外 10 件が出願され、ハーフメタルの基本材料特許、クーロンブロックードを利用した単一スピ素子、スピ共鳴トンネル効果素子、反平行結合素子、自己差動読み出し・スピ注入書き込み技術、非局所スピ注入などそれぞれ先行研究から生まれた独自技術となる重要特許出願がなされている点は大いに評価できる。

とりわけスピ偏極率が1(この時 TMR は無限大になる)の夢の材料であるハーフメタルを現実にハンドリングできる世界にもってきた功績はきわめて大きい。低い TMR 値の期間が長く続いたが、リーダーの卓見と情熱が大きなブレークスルーをもたらし、5 年の研究期間内に研究の新たな潮流が生まれたことはスピトロンクス全体に対しても波及する期待が大きい。

また、SyAF フリー層は従来の単層フリー層に比べて熱揺らぎ耐性に強く、この素子サイズに依存しない磁化反転磁場は従来の常識を覆す画期的な結果であり、SyAF は大容量メモリ素子のキー材料になることを明らかにしたものである。メモリとしての基本動作である、記録と読み出しにかかわる要素技術として金ナノ粒子によるスピ蓄積効果の発見によって、磁性ナノ粒子が持つ超常磁性の回避やスピ共鳴トンネル効果における TMR の室温での大幅増進効果の実証は今後のメモリ技術の重要な要素技術とした発展が期待される。非局所スピ注入の理論とその検証はスピ注入磁化反転の低エネルギー化に有用な方向性を与える成果として高く評価できる。

スピ量子ドットメモリの実証は、研究期間内には達成できなかったものの、超大容量メモリ化の基本課題を想定しての2つの TMR 素子にスピ注入を分流して行い、電流密度を下げてスピ注入磁化反転を繰り返し行うことができた自己差動読み出し・スピ注入書き込み技術はスピ注入磁化反転の実用性を明らかにしたもので、その功績は大きい。

4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

これまでのエレクトロニクスの発展は、複数のデバイスによる役割分担で支えられてきたが、デバイスの動作原理や加工技術から来る限界突破の方向性として複数の競合技術が鋭意研究されている。本研究は高度化するネット社会に不可欠のデジタル機器の高機能化にとって極めて重要な、大容量、高速性、低消費電力、不揮発性の全てを兼ね備えたユニバーサルメモリにも貢献できる要素技術に取り組んだものである。本研究から得られた、基本材料や、その材料を応用しての素子構造提案は、出口のひとつとしての MRAM のロードマップを支えていくのみならず、学術的にも価値の高い研究としてスピトロンクス分野の拡がりを創る礎となるなど MRAM 以外への波及も大いに期待される。

4-3. その他の特記事項(受賞歴など)

本研究は独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構の委託事業「ナノテク・先端部材実用化研究開発」において「高スピ偏極材料を用いたスピ MOSFET の研究開発」として新しい研究開発フェーズに移行する礎ともなった。本研究が独創的な技術を提案してきたように、具体的なロジック素子を想定した新課題への取り組みが、基礎研究成果を社会貢献へつなげていく一つの成功事例になることを期待したい。