

# 科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料 〔令和5（2023）年度 中間評価用〕

令和5年3月31日現在

研究期間	2021～2025
課題番号	21H05000
研究課題名	ナノスケールメモリのための金属・半導体スピントロニクス素子の革新
研究代表者氏名（ローマ字）	水上 成美（MIZUKAMI Shigemi）
所属研究機関・部局・職	東北大学・材料科学高等研究所・教授
研究者番号	00339269

## 研究の概要：

磁性体と絶縁体からなる磁気抵抗素子は不揮発性メモリへと応用され製品化が進んでいる。本研究では、そのようなメモリの高速化・大容量化を可能とする革新的材料・素子の研究を行う。具体的には、次世代半導体と独自のマンガン系磁性材料を融合させた縦型の磁気抵抗素子を研究する。それら異種材料の界面化学や、安定な界面の形成手法を明らかにし、室温で大きな磁気抵抗効果を発現する素子の実現を目指す。

研究分野：電子デバイスおよび電子機器関連

キーワード：スピントロニクス、磁性体、半導体、垂直磁化、磁気抵抗素子

## 1．研究開始当初の背景

磁気抵抗メモリは、トンネル磁気抵抗素子と半導体トランジスタを微細加工によって融合した不揮発性メモリの一種である。現在多くの企業でモバイル機器用のオンチップ少容量・高速型の磁気抵抗メモリの製品化が進んでいる。これまでの磁気抵抗メモリでは、鉄ベース磁性合金と酸化マグネシウム絶縁体バリアからなるトンネル磁気抵抗素子が用いられてきた[図 1(a)]。しかし、磁気抵抗メモリのさらなる大容量化や高速化のためには、従来の素子構造や材料に固有の磁氣的・電氣的な特性を革新する研究が求められる。

## 2．研究の目的

そのような背景のもと、本研究では革新的な磁気抵抗素子の研究を行う。具体的には、代表者がこれまで独自に先導研究を進めてきた次世代メモリ用磁性合金である垂直磁化マンガン合金と、その低温結晶成長ならびに界面制御技術等を発展させ、次世代半導体を融合した縦型ヘテロ接合磁気抵抗素子のコンセプトを実証する[図 1(b)]。最終的に 100% を超える磁気抵抗効果を室温で観測することを目指す。

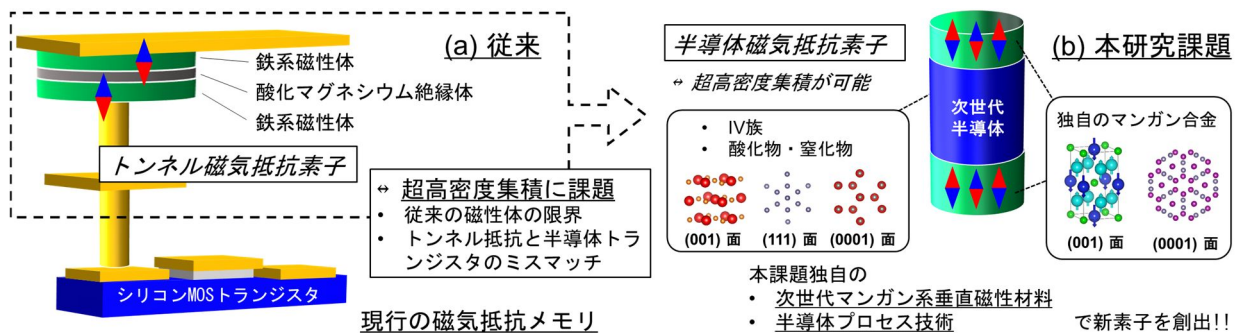


図 1 (a) 本課題の背景となる従来のメモリと素子の概念図、(b) 本課題の目的ならびに手法の概念図。

## 3．研究の方法

幾何学的対称性が異なる結晶面を有する材料・素子[図 1(b)]について、次の項目に沿って研究する。

1. 正方晶マンガン合金(001)面と窒化物・酸化物半導体(001)面を接合した垂直磁化素子（代表者）
2. 新しい六方晶マンガン合金の薄膜結晶成長とその物性制御（代表者）
3. 六方晶マンガン合金(0001)面とIV族半導体(111)面を接合した縦型素子（分担者）
4. 六方晶マンガン合金(0001)面と酸化物・窒化物半導体(0001)面ならびにIV族半導体(111)面を接合した垂直磁化磁気抵抗素子の実証（代表者・分担者）

これらの研究を進めるにあたり、超高真空スパッタリング法（代表者）および分子線エピタキシー法（分担者）を用いた薄膜やヘテロ界面の低温形成手法を明らかにする。また、ヘテロ界面に固有の界面物理/化学を追究しつつ、代表者と分担者が各々作製する多層薄膜構造を高品位な界面を維持しつつインテグレートするプロセスを追究する。その際、放射光分析や計算科学など先端的な研究手法に取り組む協力者と連携しつつ、それら材料や界面の性質とスピンに依存した電気伝導ならびにスピン分極度の関係を明らかにし、材料・界面のデザインを行うことで、目的を達成する。

#### 4. これまでの成果

【研究項目 1】目的とする 100%以上の磁気抵抗比を狙うためには、まず、酸化マグネシウムスペーサーで巨大な磁気抵抗比を発現できる素子を得る必要がある。そこで、計画通り、すでに実績のある正方晶マンガリウム(001)面を電極とする垂直磁化素子において、研究協力者と連携することで放射光分析等最先端計測手法も駆使し、界面層の構造を明らかにしつつ(成果論文 2) 界面層構造の最適化を進めた。その結果、最終的に室温で 120%の磁気抵抗比を示す垂直磁化素子の開発を達成した(成果論文 1)。まだ酸化マグネシウムスペーサーを用いた素子ではあるが、これまで報告されたマンガン系垂直磁化素子では過去最大の大きさである(図 2)。当該素子は低温で 300%に迫る磁気抵抗比を示しており、さらなる特性増大を見込める。加えて、計画通り窒化物半導体スペーサーを用いた素子作製を進め、当初予想していなかったメモリ応用上重要となる結晶成長手法を発見した(特許出願中)。

【研究項目 2】計画通り、材料として既知の六方晶マンガピスマスの薄膜作製を進めた。また、異なるアプローチとして六方晶フェリ磁性マンガ合金の研究を進めた。

【研究項目 3】面内磁化ホイスラー合金(111)面とゲルマニウム(111)面を接合した磁気抵抗素子を研究し論文報告した(成果論文 4)。また、素子界面における伝導特性と原子構造について研究し磁気抵抗効果増大の指針を得た(成果論文 3)。

【研究項目 4】当初計画では R5 年度後半からの開始であったが、その準備を進める過程で、正方晶マンガリウム(001)面上にゲルマニウム(001)面をエピタキシャル成長する手法を発見し、当初予想していなかった磁気抵抗素子構造の作製まで達成した(学会発表済)。

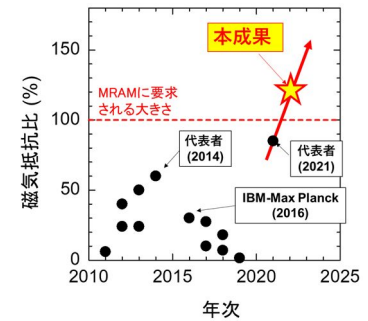


図 2 酸化マグネシウムをスペーサーとして有するマンガン系垂直磁化材料素子の室温磁気抵抗比の報告値。各年次に報告された代表値を示す。☆は本成果(成果論文 1)。

#### 5. 今後の計画

計画は順調に進んでおり、各項目について次のように研究を推進する。【研究項目 1】正方晶マンガリウム(001)面と酸化マグネシウムスペーサーを用いた垂直磁化素子のさらなる構造最適化により室温 200%程度の磁気抵抗比を目指す。並行して、酸化マグネシウムスペーサーの元素置換や窒化物半導体素子の研究開発を進める。協力者と連携して第一原理計算による理解も進めつつ、半導体スペーサー垂直磁化素子で 100%の磁気抵抗比の達成を目指す。【研究項目 2】六方晶マンガピスマスの元素置換や新規六方晶フェリ磁性マンガ系材料薄膜の垂直磁気異方性やダンピング定数の評価を進める。第一原理計算からの理解も併用することで、メモリ応用に適した薄膜材料創成を実現する。【研究項目 3】ホイスラー合金(111)面とゲルマニウム(111)面を接合した素子の成果をもとに、ゲルマニウム薄膜への元素ドーピング技術を利用することで素子特性最適化を図りつつ、マンガ系材料とゲルマニウムの安定な界面形成の知見を得る。【研究項目 4】当初想定していなかった正方晶マンガリウム(001)面とゲルマニウム(001)面を接合した素子の研究が進んでいる。そのため当初計画を拡大・前倒して実施し、当該素子の研究を迅速に進める。また、上述の六方晶マンガ系垂直磁化材料と窒化物・窒化物半導体(0001)面やゲルマニウム(111)面をスペーサーとして組み合わせた素子の研究を推進する。

#### 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

主な論文として、

1. Tunnel magnetoresistance exceeding 100% in magnetic tunnel junctions using Mn-based tetragonal alloy electrodes with perpendicular magnetic anisotropy, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, AIP Advances 13, 035225.1-7 (2023) (査読有) .
2. Tracing magnetic atom diffusion with annealing at the interface between CoMn alloy and MnGa layer by X-ray magnetic circular dichroism, J. Okabayashi, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 564, 170163-1-5 (2022) (査読有) .
3. Significant effect of interfacial spin moments in the ferromagnet-semiconductor heterojunctions on spin transport in a semiconductor, T. Naito, R. Nishimura, M. Yamada, A. Masago, Y. Shiratsuchi, Y. Wagatsuma, K. Sawano, R. Nakatani, T. Oguchi, K. Hamaya, Physical Review B 105, 195308.1-7 (2022) (査読有) .
4. Magnetoresistance ratio of more than 1 % at room temperature in germanium vertical spin-valve devices with Co<sub>2</sub>FeSi, A. Yamada, M. Yamada, M. Honda, S. Yamada, K. Sawano, K. Hamaya, Applied Physics Letters 119, 192404.1-6 (2021) (査読有) .

他、論文 5 件、学会発表 32 件(うち招待講演 4 件)、著書 3 件、産業財産権(特許出願) 1 件。

#### 7. ホームページ等

[https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami\\_lab/](https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami_lab/) (研究代表者)

<http://www.semi.ee.es.osaka-u.ac.jp/hamayalab/> (研究分担者)