

2021.9.15
第4回CURIEセミナー



Monsieur et Madame Curie

スピントロニクス 基礎と応用

(2)

佐藤勝昭

東京農工大学名誉教授

JST/CRDS特任フェロー

CONTENTS

0. 前回の復習と補足
1. スピントロニクスとは
2. 巨大磁気抵抗効果がハードディスクを変えた
3. 巨大磁気抵抗の発見
4. トンネル磁気抵抗の発見
5. MgOバリアTMR素子
6. 固体磁気メモリ(MRAM)の登場



7. スピン移行トルクとSTT-MRAMの製品化
8. STTの動的解析とスピントルク発振素子
9. スピン流が開く新しい物理
10. スピンホール効果と逆スピンホール効果
11. スピンゼーベック効果とスピン量子整流
12. スピントロニクス最近の展開

0.1 前回の復習

第1章 こんなところにも磁性体が

クルマと磁性体 モーターと磁性体 モーターの永久磁石 硬い磁性体と軟らかい磁性体
コンピュータと磁性体 変圧器 光ファイバー通信と磁性体

第2章 磁性体をどんどん小さくすると

磁石を切り刻むとどうなる 磁性体を偏光顕微鏡で見ると？ 磁性体の磁束線と磁力線－
反磁場の起源 磁性体の形で異なる反磁場係数 磁区に分かれるわけ さまざまな磁区
磁性のミクロな起源

第3章 鉄はなぜ強磁性になるのか

鉄の磁気モーメントは原子磁石で説明できない 非磁性金属のバンド構造と磁性金属のバ
ンド構造 鉄の磁気モーメントはバンドモデルで説明できる スレーター・ポーリング曲
線 自発磁化が生じるメカニズム：局在電子モデル キュリーワイスの法則

第4章 磁気ヒステリシスのなぞ

磁性体を特徴づける磁気ヒステリシス 磁気記録とヒステリシス 磁性以外にもあるヒス
テリシス 磁気異方性 保磁力のなぞ

0.2 前回の補足

- ▶ 第5章 弱い磁性も使いよう
 - ▶ ほとんどの物質は弱い磁性しか示さない
 - ▶ 弱い磁性が役にたつことがある
 - ▶ 反強磁性はネールが提唱
 - ▶ 反強磁性はなぜ生じるか
 - ▶ 反強磁性体の磁化過程と磁化率
 - ▶ Crのスピン密度波状態
 - ▶ 応用の道はスピンバルブによって拓かれた
 - ▶ 常磁性の応用1 断熱消磁
 - ▶ 常磁性の応用2 常磁性体と光
 - ▶ 常磁性の応用3 磁気共鳴



第5章

弱い磁性も使いよう

▶まぐねの国の探索。この章では通常は非磁性体として扱われる弱い磁性しか示さない材料（反強磁性体、常磁性体）について学びます。弱い磁性もそれ自身、あるいは、強磁性体と組み合わせることによって、大きな働きをします。

ほとんどの物質は弱い磁性しか示さない

- これまでは、遷移金属や希土類を含み、室温で自発磁化を持つ強い磁性体のみを扱ってきました
- 元素のうち、室温付近で強磁性を示すのは、表5.1に示すようにFe, Co, NiとGdのたった4つしかありません。表5.2に示す低温で強磁性になる元素Tb, Dy, Ho, Er, Tmを含めても強磁性元素は10程度です。これ以外の元素は、反強磁性のように全体としての磁化が打ち消しているとか、常磁性、反磁性など磁気秩序をもたない弱い磁性しか示さないのです。遷移金属や希土類を含む化合物や合金についても、ほとんどの物質は、室温では弱い磁性しか示さないのです。

元素名 (記号)	α 鉄 (Fe)	コバルト (Co)	ニッケル (Ni)	ガドリニウム(Gd)
Tc(K)	1043	1388	627	292

元素名(記号)	テルビウム (Tb)	ディスポシウム (Dy)	ホロミウム (Ho)	エルビウム (Er)	ツリウム (Tm)
Tc(K)	224	85	20	19.6	25

弱い磁性が役にたつことがある

- しかし、その弱い磁性が役にたつことがあります。とくに、スピントロニクス・デバイスに反強磁性が重要な位置づけをもつようになり注目をあつめています。また、常磁性体の磁気モーメントの電磁波応答である磁気共鳴は分析技術や医療診断技術としてなくてはならない存在になっています。今回は、反強磁性・常磁性に焦点を当てて述べます。

反強磁性はネールが提唱

- 局所的に磁気モーメントが存在するが、全体としては打ち消して、自発磁化をもたないような磁性体を反強磁性体 (antiferromagnet) といいます。
- 反強磁性の存在を提唱・定式化したのはネールで、1936年のことでした。ネールに因んで、反強磁性磁気秩序を失う温度をネール温度とよび T_N と標記します。MnOでは、 $T_N=116\text{K}$ です。この温度以下では反強磁性ですが、116K以上では磁気秩序は消滅して常磁性になります。

反強磁性体MnOのスピンの構造

- 図5.1に酸化マンガンMnOのスピンの構造 ($T=80\text{K}$)を掲げます。
- Mnは面心立方格子をつくっており、Mnの磁気モーメントは図に示すようにきちんと規則的にならなっていますが、 $[111]$ 面に平行で隣り合う面のスピンは逆向きにならなっています。
- この結果、自発磁化はゼロになります。磁気的単位胞は化学的単位胞の8倍の体積があります。

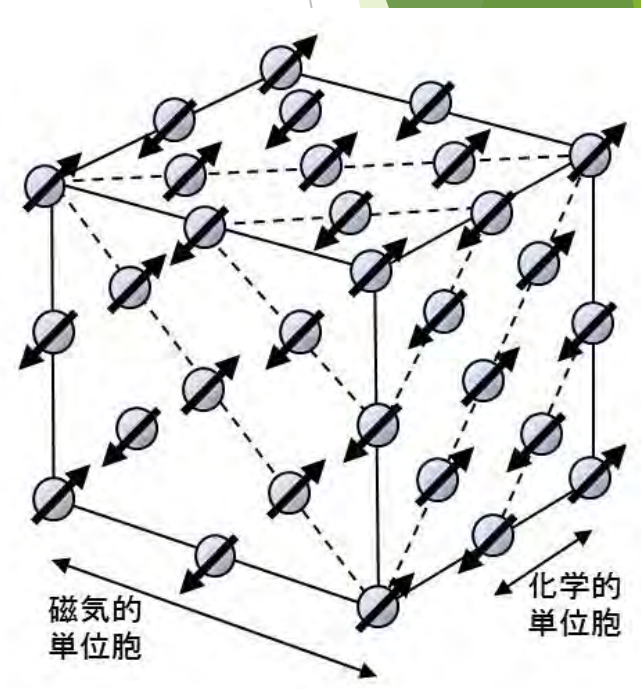


図5.1 中性子回折で決定されたMnOの低温におけるスピンの構造

表5.3 反強磁性体の一覧

	物質	結晶構造	転移温度 T_N (K)	ワイス温度 θ (K)	磁性原子あたり μ_B	導電性
酸化物	Cr ₂ O ₃	三方	318	1070	3.0/Cr	絶縁性
	MnO	面心立方	116	610	5.0/Mn	絶縁性
	Fe ₂ O ₃	面心立方	948	2940	5.0/Fe	絶縁性
	CoO	面心立方	291	270	3.8/Co	絶縁性
	NiO	面心立方	530	2100	2.0/Ni	半導体
硫化物	α MnS	面心立方	165	528	5.0/Mn	半導体
	CuFeS ₂	体心正方	823		3.85/Fe	半導体
フッ化物	MnF ₂	体心立方	67.3	115	5.0/Mn	絶縁性
	FeF ₂	体心立方	394	133	4.0/Fe	絶縁性
金属	Cr	体心立方	311		SDW0.4/Cr	金属
	α Mn	体心立方的	95		1.96,1.78, 0.60,0.25/Mn	金属
合金 金属間化合物	Mn ₃ Sn	六方晶	430		3/Mn	Weyl
	AuMn	単純立方	825		4.2/Mn	金属
	MnPt	面心正方	975		4.3/Mn	金属
	MnPd	面心正方	780	190	4.4/Mn	金属
	γ FeMn	面心立方	550		1.7/average	金属
	γ IrMn	面心立方	600-700		2.5/Mn	金属

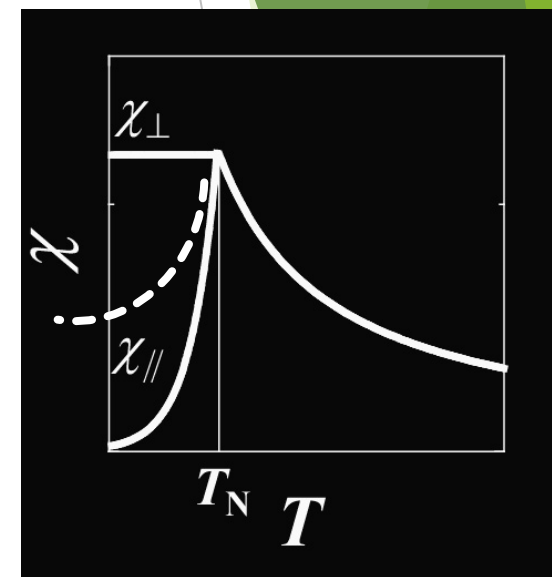
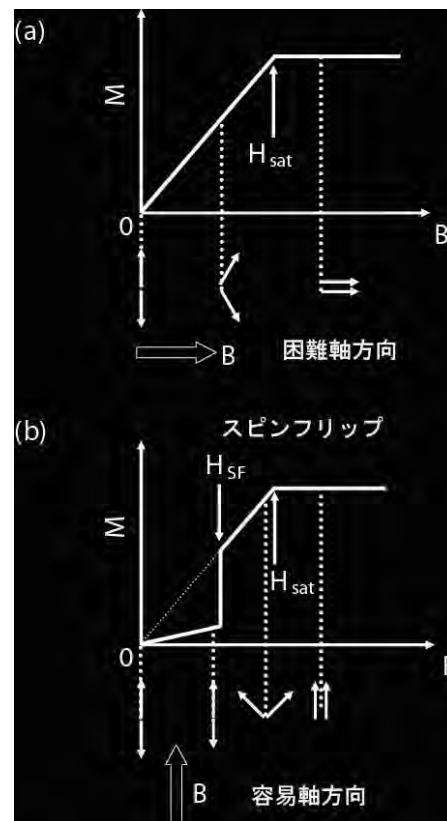
反強磁性はなぜ生じるか

- 絶縁性の反強磁性体と金属伝導性の反強磁性体とではメカニズムが異なります。表5.4の6列目に見られるように、絶縁性の磁性体では、遷移金属1原子あたりの磁気モーメントはほぼ価数から決まる整数値を示すので、局在電子系であると考えられます。一方、金属的導電性磁性体では、原子あたりの磁気モーメントは非整数値をとり、遍歴電子磁性体だと考えられます。
- 局在電子系の反強磁性は、隣接するスピンの逆方向に整列する交換相互作用 J が負であるとして、第3章に述べたのと同様の分子場理論で説明することができます。 J が負になる理由は、超交換相互作用で説明されます。

反強磁性の基礎

反強磁性体の磁化過程と磁化率

- ▶ 反強磁性体においてはスピンは反平行に並び、ネール温度 T_N 以下でも合成されたモーメントはゼロです。磁化率は発散せず、弱い角点を示す。
- ▶ スピンの向きに平行な磁場を加えたとき、はじめは小さな磁化しか示さないが、強磁場のもとでは、スピン系は磁場に平行な配置から垂直な配置にフリップする。



T_N 以下で磁場に垂直な χ_{\perp} は一定、
磁場に平行な χ_{\parallel} は $T \rightarrow 0$ で0に収束する。
 T_N 以上で χ はキュリーワイス則に従う
 $\chi = 1/(T + \theta)$

Crのスピンドensity波状態

- 遍歴電子反強磁性はちょっと複雑です。特にCrの磁性はスピンドensity波(SDW)状態といって、図5.2(a)に示すように電子のスピンの大きさと向きが波状に空間分布している状態です。このため全体としての磁化は打ち消しており一種の反強磁性となっています。スピンドensityの波の周期は、結晶格子の周期と一致しておりません。これをインコメンシュレートといいます。
- Crのフェルミ面には、図5.2(b)に模式的に示すように、電子フェルミ面とホールフェルミ面が存在しており、両者は逆格子空間での波数ベクトル $Q=(\pi,0,0)/a$ （逆格子の1/2）だけシフトすると重なるのです。これによって Q で決まる反強磁性が生じます。
- つまり電子のスピンドensityは Q の逆数の周期で変調された波になっているのです。これがSDW状態です。Crでは Q がわずかに $(\pi,0,0)/a$ からずれており、SDWの周期 λ は格子の周期 a とずれているのです。不純物を添加すると、反強磁性状態が安定化します。

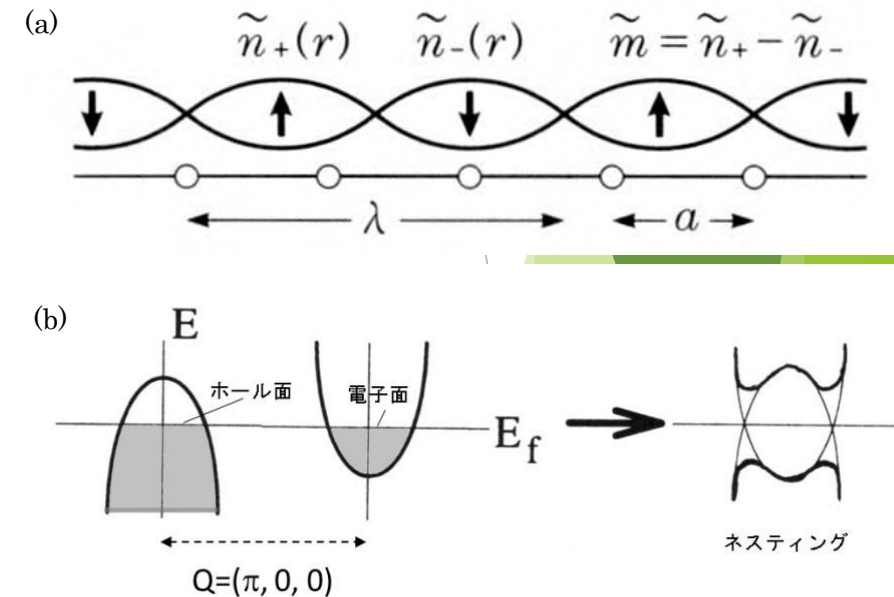
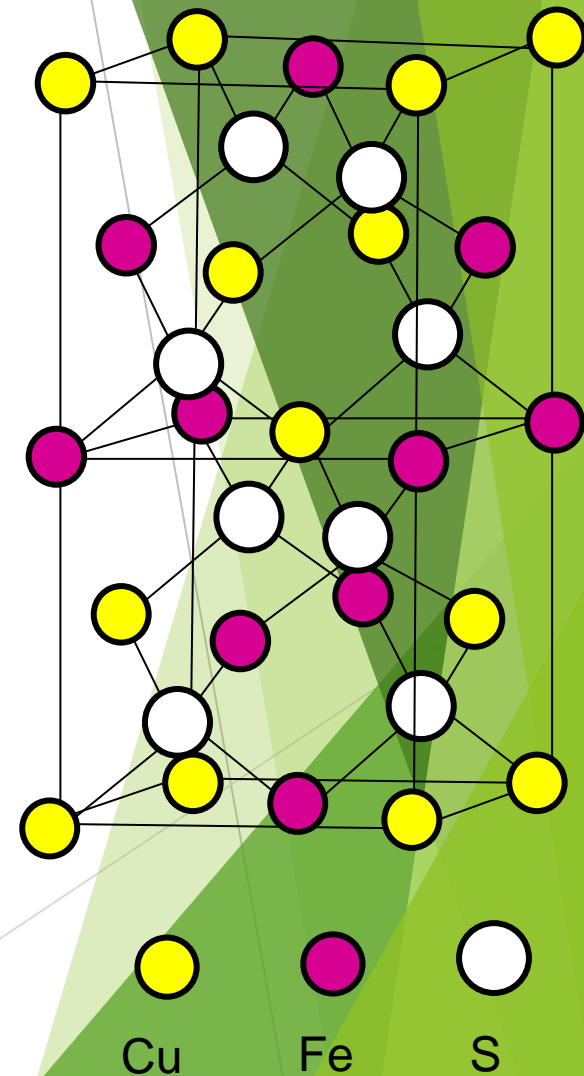


図5.2 (a) Crのスピンドensity波状態
(b) k空間でのネスティング



反強磁性半導体CuFeS₂

- 反強磁性半導体である黄銅鉱CuFeS₂のFe原子あたりの磁気モーメントは組成式Cu⁺Fe³⁺S₂²⁻から期待される5 μ_B よりはるかに小さい3.85 μ_B しかありません。
- CuFeS₂のFeの3d電子状態はSの3p電子と混成して硫化物イオンからFeに電荷移動した状態が基底状態になっており、Feはもはや純粹の3価ではなくなっています。
- バンド計算結果によれば、反強磁性が基底状態となり、Feサイトのモーメントは3.88 μ_B しかないということが導かれました。
- CuFeS₂の反強磁性は遍歴電子磁性の一種として解釈できるのです。



応用の道はスピバルブによって拓かれた(後述)

- 反強磁性体は自発磁化をもたないので、反強磁性を積極的に応用するという発想は20世紀後半になるまでほとんどなく、化合物、金属、合金などのさまざまな物質において、その磁気構造や磁気物性が基礎的な興味から研究されるだけの地味な存在でした。
- ところが、IBMが磁気ヘッド用GMR素子「スピバルブ」を開発したことによって、反強磁性体がにわかに応用技術者の注目を集めることとなりました。

断熱消磁

- 局在電子系の常磁性体では、温度が高いほどスピン磁気モーメントの揺らぎが大きくなります。統計熱力学の言葉を使うと、スピン・エントロピーが大きくなります。それを模式的に表したのが図5.7の $H=0$ の曲線です。
- 温度 T_1 においてこのスピン系の状態はエントロピー曲線上 P_1 にあったとします。
- 温度 T_1 を保ったまま、強い磁界 H を加えると、スピンは H の方向に配向し、揺らぎが減少し、エントロピーが P_2 まで低下します。ここで、断熱的に、すなわち、外部との熱のやりとりを断って磁界をゆっくり 0 にしますと、 $H=0$ のエントロピー曲線の P_3 に移動します。このとき、常磁性体の温度は、 T_1 から T_2 に低下します。
- この操作を繰り返せば、どんどん温度を下げることができ、 mK に到達することもできます。このような操作を断熱消磁といいます。

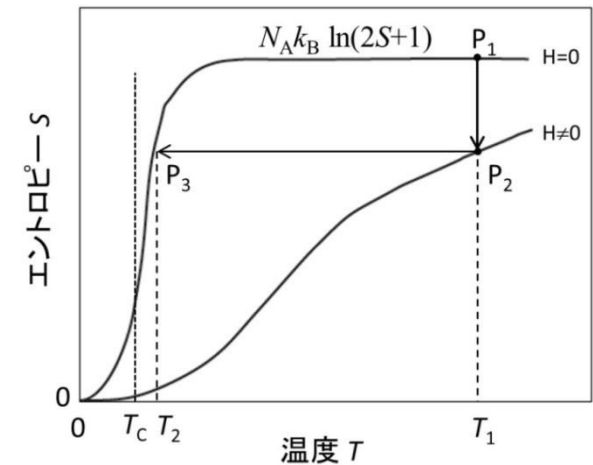


図5.7 常磁性体のエントロピー曲線と断熱消磁

断熱消磁でどこまで温度は下がるか

- 実際の常磁性体では、スピン間になんらかの相互作用が働いたため低温で磁気秩序が発生しますから、磁気転移点 T_c が断熱消磁による冷却の限界を決めます。このため、タットン塩、明礬など結晶水を有し常磁性イオン間の距離が十分離れていて強磁性相互作用の小さな物質が断熱消磁作業物質として用いられます。電子スピン系の断熱消磁による最低到達温度はミリケルビン 10^{-3} Kです。
- ヘリウム希釈冷凍機が普及した現在ではあまり使われなくなりました。核スピン系を用いた核磁気断熱消磁ではマイクロケルビン 10^{-6} Kまで到達可能です。

参考：常磁性体と光

宝石の色と固体レーザー：常磁性体と光

- 遷移金属イオンを含む化合物は色素として古くから知られ、絵の具の名前にも、コバルトブルー、クロムイエロー、マンガニーズブルーなど遷移金属の名前を冠するものがたくさんあります。
- ルビーのピンク色もエメラルドの緑色も酸化アルミニウム結晶に入った不純物のクロムによる着色です。色素や宝石の着色は、遷移金属イオンに起因する光吸収が原因です。

参考：常磁性体と光

ルビーの構造と吸収スペクトル

- 宝石のルビーはコランダム Al_2O_3 の Al^{3+} の一部を Cr^{3+} イオンで置換した組成をもっています。 Al^{3+} イオンは、酸化物イオンの八面体で囲まれています。図5.8(a)に掲げるように3回対称軸をもち、c軸方向に伸びた八面体配位になっています。
- 図5.8 (b)はルビーの光透過スペクトルです。透過率は黄色から緑の波長および紫の波長で極小値をとります。このため、透過光は、赤い光に青緑の光が少し混じって、ピンクに着色するのです。

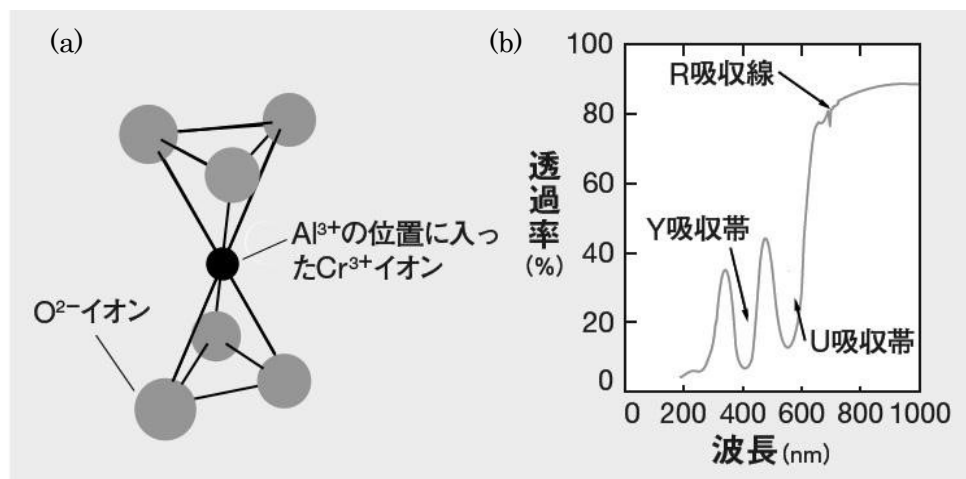


図5.8 (a)ルビーにおける Cr^{3+} イオンを囲む O^{2-} イオンの配位と、(b)ルビーの透過率スペクトル

磁気共鳴

- 磁気共鳴とは、磁場中におかれた磁気モーメントが特定の周波数の電磁波を共鳴的に吸収する現象です。
- スピンとして、電子・原子核・ミュオンのスピが使われ、それに対応して、磁気共鳴にも、表5.4に掲げるように、電子スピン共鳴 (ESR)、核磁気共鳴 (NMR)、ミュオンスピン共鳴 (μ SR) があります。
- ここでは、このうち電子常磁性共鳴 (EPR) と核磁気共鳴 (NMR) にふれます。

表5.4 スピン共鳴の分類

種類	共鳴素子	スピン	g値	1kOeでの共鳴周波数		内容
ESR	電子	1/2	2.0023	2.80247 GHz	EPR CESR FMR AFMR	常磁性共鳴 伝導電子ESR 強磁性共鳴 反強磁性共鳴
NMR	原子核	1/2	2.6752	4.257708 MHz	NMR PQR	核磁気共鳴 核四重極共鳴
μ SR	ミュオン	1/2	2.002	13.554M Hz	μ^+ SR μ^- SR	格子間位置 水素1s状態

磁気共鳴の原理

- 一般に、磁気モーメント M が磁界 H_0 の中に置かれたときの運動方程式は、ラーモアの定理により、 γ を磁気回転比として式 (1) のように表されます。

$$d\mathbf{M}/dt = \gamma[\mathbf{M} \times \mathbf{H}_0] \quad (5.1)$$

$H_0 // z$ とすると、 M の x 成分、 y 成分の式は、

$$d^2M_x/dt^2 = -\gamma^2 H_0^2 M_x, \quad d^2M_y/dt^2 = -\gamma^2 H_0^2 M_y$$

と書き表されます。この式の解は、

$$M_x = M_{0x} \exp(i\gamma H_0 t) \quad (5.2)$$

となり、図5.14のように固有振動数 $\omega = |\gamma| H_0$ をもって歳差運動をします。

- 従って、この周波数の電磁波を印加すれば磁気モーメントの歳差運動は共鳴し、電磁波を吸収します。

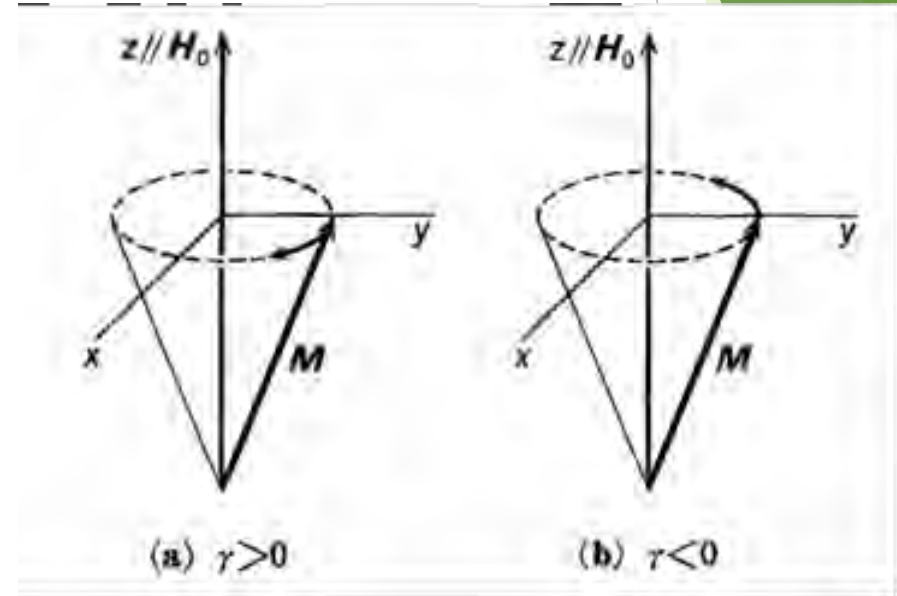


図 5.14 磁界中に置かれた磁気モーメントの運動 (ラーモア歳差運動)

電子常磁性共鳴 (EPR)

電子スピンの磁気回転比は γ_e と書かれ、電子磁気モーメントと電子のスピン角運動量の比、すなわち

$$\gamma_e = -g_e \mu_B S / \hbar S = -g_e e / 2mc \quad (5.3)$$

で与えられます。これを周波数で表すと、

$$\gamma_e / 2\pi = 2.8025 \times 10^{10} [\text{Hz/T}] \quad (5.4)$$

となります。ESR装置では通常Xバンド(9GHz帯)のマイクロ波が用いられますが、これは、鉄心電磁石で容易に得られる磁界 $H_0=321\text{mT}$ の付近で共鳴するからです。エネルギーで表すと、共鳴条件は

$$h\omega = h|\gamma|H_0 = g_e \mu_B H_0 \quad (5.5)$$

となります。量子力学では、電子スピンの基底状態のエネルギーが、**図5.15**のように $\pm g_e \mu_B H_0 / 2$ の2つの状態にゼーマン分裂し、電磁波のエネルギー $h\omega$ が2つの準位間に等しい磁界で共鳴すると考えるのです。

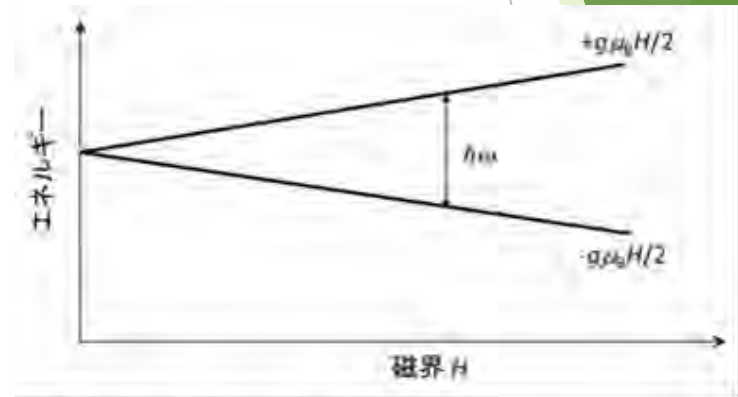
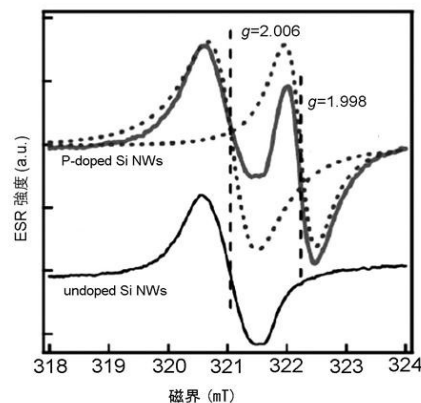
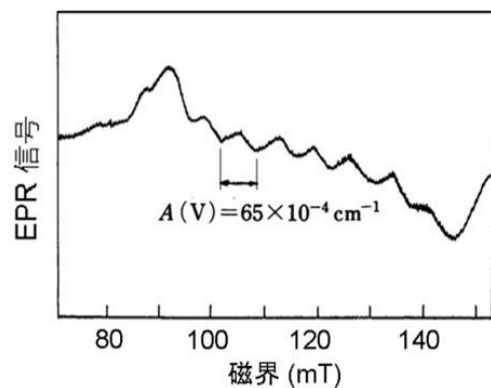
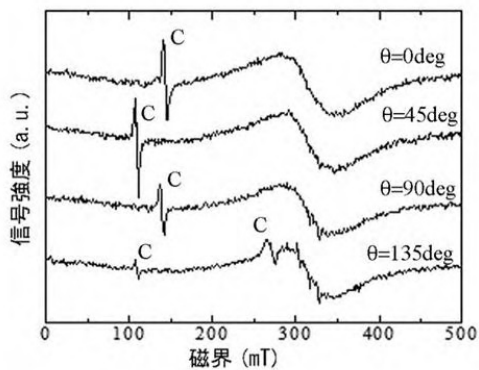
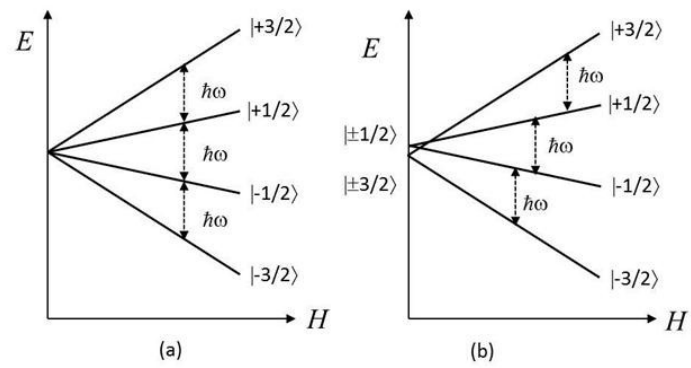


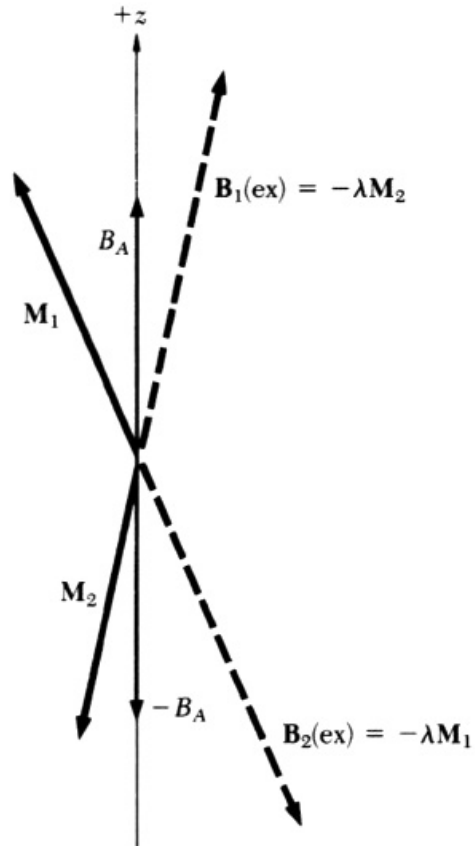
図5.15 ゼーマン分裂とEPR

EPRの応用

- 結晶の低対称性を表す零磁場分裂
- 結晶中の微量の遷移金属不純物の同定
- 超微細超微細構造は元素の指紋
- Siナノワイヤ中の微量ドナーの活性化を知る



反強磁性共鳴



- ▶ 反強磁性共鳴における有効磁場
部分格子の磁化 M_1 は磁場 $-\lambda M_2 + B_A z$ を受ける。磁化 M_2 は $-\lambda M_1 - B_A z$ を受ける
- ▶ M_1 と M_2 の間の交換相互作用を分子場近似で扱うと交換磁場は
 $B_1(\text{ex}) = -\lambda M_2$; $B_2(\text{ex}) = -\lambda M_1$
で与えられる。ここに $\lambda > 0$ である。

- ▶ 運動方程式を立て、解の存在する永年方程式は

$$\begin{vmatrix} \gamma(B_A + B_E) - \omega & \gamma B_E \\ \gamma B_E & \gamma(B_A + B_E) + \omega \end{vmatrix} = 0$$

ここに $B_E \equiv \lambda M$

- ▶ 反強磁性共鳴周波数は

$$\omega_0^2 = \gamma^2 B_A (B_A + 2B_E)$$

結晶 周波数		CoF ₂	NiF ₂	MnF ₂	FeF ₂	MnO	NiO
GHz		855	933	260	1580	828	1090

核磁気共鳴(NMR)

- 前項では、核スピンの電子スピンの共鳴に影響することを述べましたが、核スピンの磁気共鳴(NMR)も、化学やライフサイエンスの分野でよく使われています。
- 核スピンの場合、磁気モーメントの基本単位は核磁子となります。核磁子の大きさ μ_N は $e\hbar/2M$ で表されます。
- ここで M は核子の質量で、電子の質量 m の約1840倍であるため、核磁子はボーア磁子の約 $1/1840$ となります。NMRの磁気回転比 γ_n は、 $\gamma_n/2\pi=4.2578\times 10^7[\text{Hz/T}]$ で与えられます。
- 1- 3[T]の磁界を加えたときの共鳴周波数は、42.6-127.7[MHz]となります。このため、NMRにはVHF帯の電磁波が使われます。

NMRスペクトルで化学種を同定する

- ▶ 核スピンの共鳴周波数は、図5.20 に示すように、核種によって異なった値をとるだけでなく、同じ核種においても、置かれた環境に応じて共鳴周波数が異なります。
- ▶ これは化学シフトと呼ばれ、シフト量から化合物に含まれる官能基の種類を推定することができます。化学シフトを表すのに、周波数を用いると外部磁界の強さによって数値が異なるので、通常テトラメチルシラン (TMS) $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$ の共鳴位置を基準にして、それからのずれを周波数で割算してppm単位で表します。

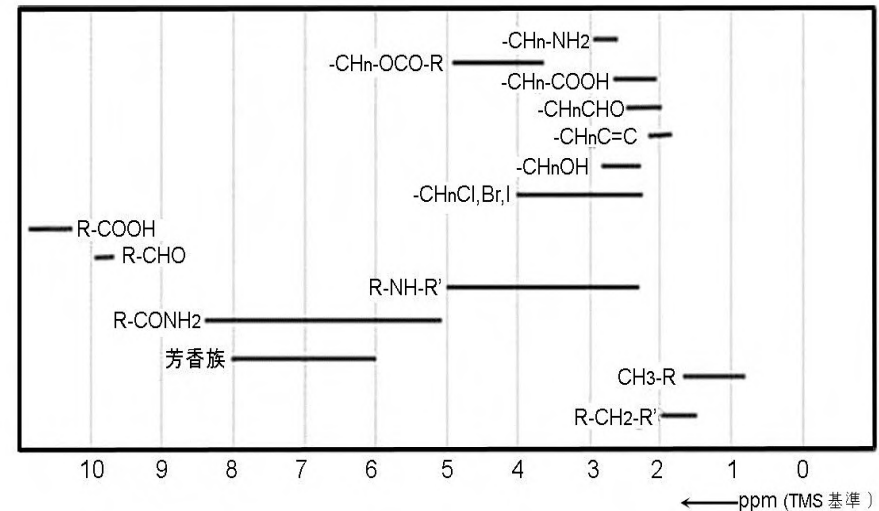


図5.20 さまざまな化学種における ^1H の化学シフト (TMSを基準として、ずれの割合をppm単位で表示)

パルスフーリエ変換法で感度向上

- ▶ 以前のNMR分光装置では、試料を磁場中に入れ核スピンの向きを揃えた分子（核スピンはゼーマン分裂を受けている）に電磁波の周波数を掃引しながら順次共鳴を観測していましたが、測定に時間がかかりました。
- ▶ いまでは、磁場の中に試料を置き、パルス状の電磁波を照射し、核磁気共鳴させた後、分子がもとの安定状態に戻る際に発生するエコー信号を検知して、分子構造などを解析しています。
- ▶ パルス状の電磁波を照射することによって広い周波数帯域を一度に励起します。検出された信号には、個々の共鳴線に対応する周波数成分が含まれていますから、これをフーリエ変換することで一気にNMRスペクトルが得られるのです。
- ▶ パルスフーリエ変換法は、NMRスペクトルの測定時間を短縮し、信号のSN比を大幅に改善しただけでなく、数波数・位相・タイミングなど高周波パルスの操作によって、緩和時間などの情報も得ることも可能となり、NMRの有用性が高まりました。

医療診断になくてはならないMRI装置

- ▶ 生体を構成する分子の60～70%は水、20～30%は脂質ですが、水分子や脂質分子にはH⁺イオンすなわち陽子が含まれます。陽子の核スピンの磁気共鳴を用いて画像化し、病理診断に用いるのが磁気共鳴画像化法(MRI)です。陽子の密度の濃淡がMRIの濃淡になります。脂肪分子は C_nH_{2n} という組成式で表されるように多数の陽子を含み、強い信号が観測されます。
- ▶ MRIにおいても、パルス状の電磁波を使い、電磁波照射後、生体から戻ってくるエコー信号を解析することによって、共鳴信号の強度のほか、核スピンの歳差運動の振幅の緩和（緩和時間 T_1 ）と位相の緩和（緩和時間 T_2 ）を測定しています。観測したい対象の性質に応じて、 T_1 強調画像、 T_2 強調画像などが用いられます。

MRIの画像化には磁界の勾配を用いる

- ▶ MRIでは、画像化のために、傾斜磁場を用いることによって位置情報を得ています。図5.21(a)に示すように均一磁場のもとでは、同じ核種の信号はA、Bと位置が違っていても同じ周波数のところに現れます。
- ▶ これに対し、傾斜磁界を用いると(b)に示すように異なる位置からの信号は異なる周波数のところに現れますから、共鳴磁界から位置情報を得ることができます。
- ▶ 実際は、直交する2方向に傾斜した磁場を使い、観測信号波形をフーリエ変換することによって画像化が行われています。

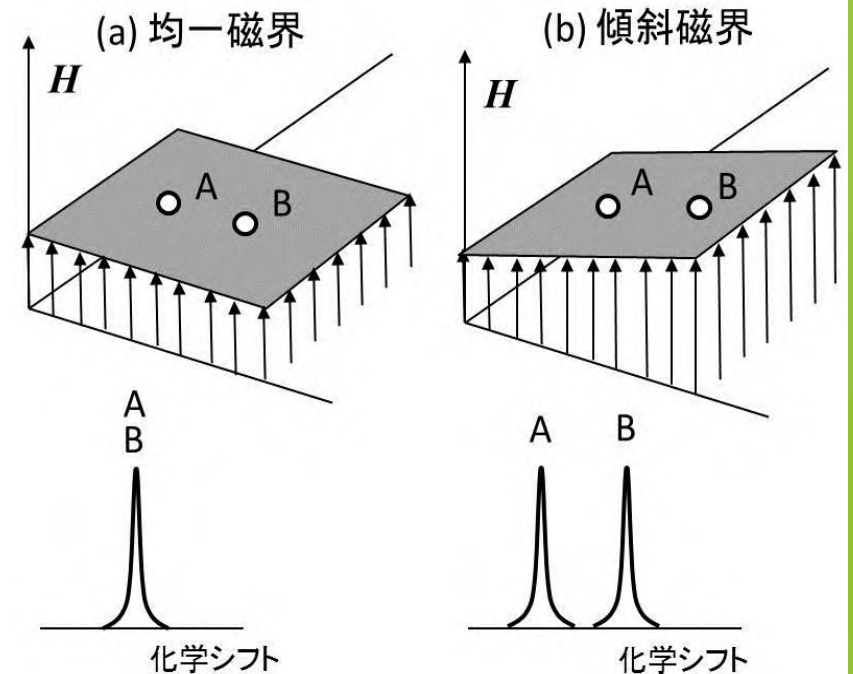
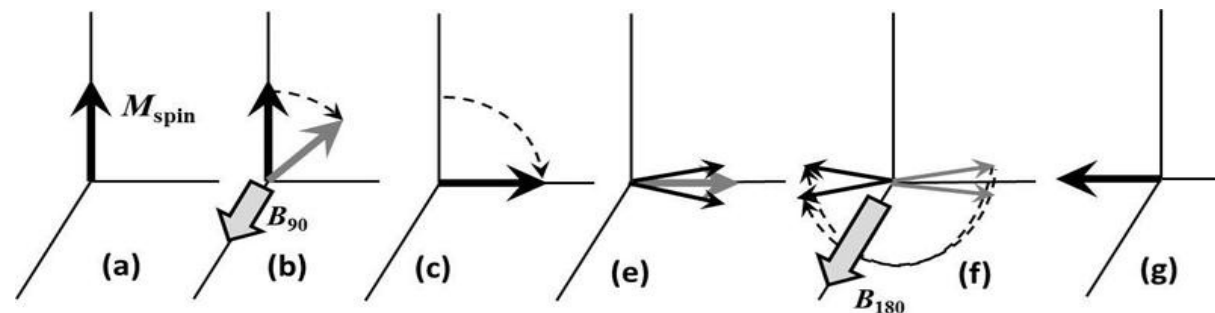


図5.21 傾斜磁界による位置情報への変換

参考：磁気共鳴

NMRスペクトルにもMRIにも、エコー信号を検出するとか解析するとか書かれていましたが、エコーとは何でしょうか、説明してください。

- 正確にはスピン・エコーです。
- いま図5.22(a)のように、はじめ全てのスピン磁気モーメントが静磁場（z軸方向）を向いていたとします。
- 次に(b)のように「90° パルス」と呼ばれるパルス電磁波をスピンと直交する方向（回転系のX'方向）に印加して(d)のようにスピンを静磁場と電磁波の両方に直交する方向（図ではy'方向）に倒し横磁化を生じさせます。
- 核スピンの受ける局所磁場がばらつくため、時間がたつにつれ、スピンの方向は静磁場のまわりに均一に分布してしまい、(e)のように横磁化は消失してしまいます。
- このため τ 時間後に今度は「180° パルス」と呼ばれる強い電磁波を(f)のように加えると、各スピンは180° 回転し、その後は初めの τ 秒間と逆の運動を行うので180° パルスから τ 秒後にはスピンは再び揃い横磁化が回復します。この現象をスピン・エコーとよび、この回復した横磁化をコイルで検出することによって共鳴が観測できます。



合成反強磁性(SAF)

- 強磁性層/金属常磁性層/強磁性層の組み合わせによって、人工的に反強磁性を作ることが、垂直磁気記録材料や磁気抵抗デバイスにおいて行われています。
- 強磁性層に挟まれた金属常磁性体は、RKKY型の間接交換相互作用によって層間を反強磁性的に結合すると考えられます。
- 層間反強磁性結合材料としては、V, Cr, Cu, Nb, Mo, Ru, Rh, Ta, W, Re, Irなどについて研究されました。
- 交換相互作用エネルギーが大きなRuが最もよく使われます。



1. スピントロニクス とは

スピントロニクス

- ▶ スピントロニクスは、spinとelectronicsをあわせた造語で、電子の持つ2つの性質である電荷とスピンの絡み合いを考える科学技術分野です。
- ▶ スピントロニクスの最も重要な成果が、巨大磁気抵抗効果の発見です。これによってハードディスクの面記録密度の飛躍的に向上しました。
- ▶ 今回のセミナーでは、巨大磁気抵抗効果(GMR)からスタートして、急速に発展しつつあるスピントロニクスの世界を垣間見ることにしましょう。

電気伝導と磁気の関係は古くから知られていた

- ▶ Niの T_c 直下の強磁性領域での抵抗の温度係数の増大：スピン2流体モデルとスピン散乱で説明されていました。
 - ▶ A. Fert and I.A. Campbell: Phys. Rev. Lett. 21 (1968) 1190.
- ▶ パーマロイなど強磁性体のAMR(異方性磁気抵抗効果) や磁場でなく磁化に比例する異常ホール効果も1950年代から知られていました。
 - ▶ R. Karplus and J.M. Luttinger: Phys. Rev. 95 (1954) 1154
- ▶ 磁性半導体 $CdCr_2Se_4$ や EuO において T_c 付近ではスピンの揺らぎによる散乱が電気抵抗の増大をもたらすこと、磁界を加えると揺らぎが抑えられて電気抵抗が下がる「負の磁気抵抗効果」が知られていました。
 - ▶ C. Haas: Phys. Rev. 168, 531-538 (1968)
- ▶ しかし、そのころの認識では、これらは「作りつけ」の効果であって、人間が制御できるとは考えもしませんでした。
- ▶ ナノサイエンスと磁性電子の出会いがあって始めて、人工的に制御できるようになりました。

電気と磁気の相互変換

電磁気学

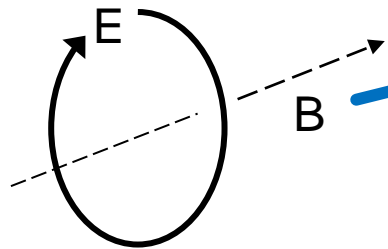
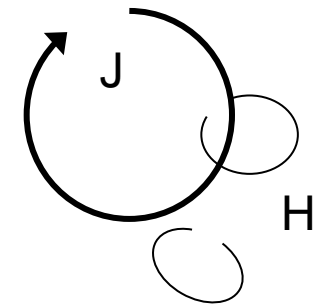
- ▶ これまで、電気→磁気、磁気→電気の変換にはいずれも電磁気学、したがって、**コイル**が使われておりました。

- ▶ 電気→磁気：
アンペールの法則

$$\nabla \times \mathbf{H} = \partial \mathbf{D} / \partial t + \mathbf{J}$$

- ▶ 磁気→電気：
ファラデーの
電磁誘導の法則

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B} / \partial t$$



スピントロニクス

- ▶ スピントロニクスは**電気と磁気の相互変換からコイルを追放**します。

- ▶ 電気→磁気：巨大磁気抵抗効果(GMR, TMR)

- ▶ 磁気→電気：スピントラン
スファートルク, スピン軌
道トルク (STT, SOT)



2. 巨大磁気抵抗効果が ハードディスクを 変えた

HDDの読み出しヘッド

- ▶ 図1はハードディスクのしくみを描いたものです。磁気ヘッドは書き込みヘッドと読み出しヘッドから構成されています。記録ヘッドはコイルを使って発生した磁場によって記録媒体に磁気記録します。記録した情報の読み出しに以前はコイルが使われていましたが、現在の磁気ヘッドには、図1に示すように読み出しヘッドには巨大磁気抵抗素子(GMR or TMR)が使われています。

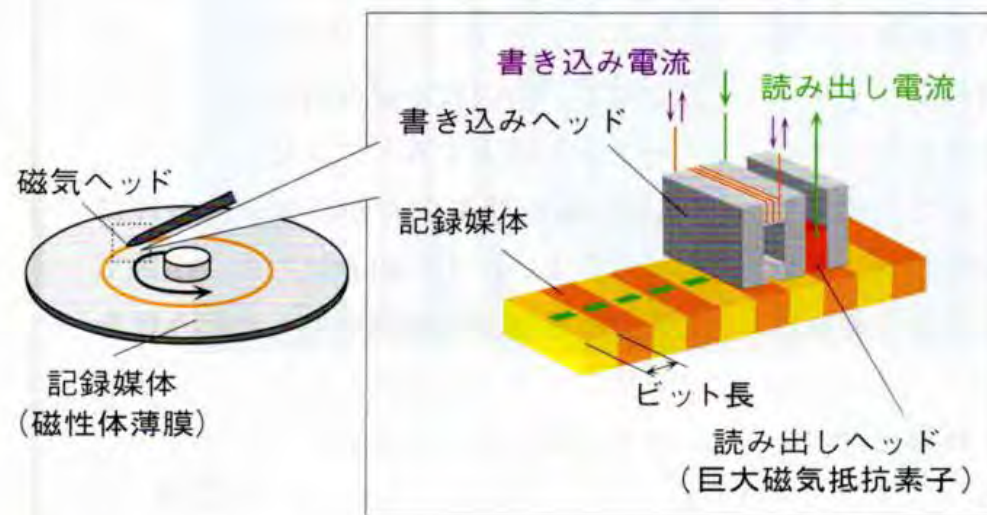
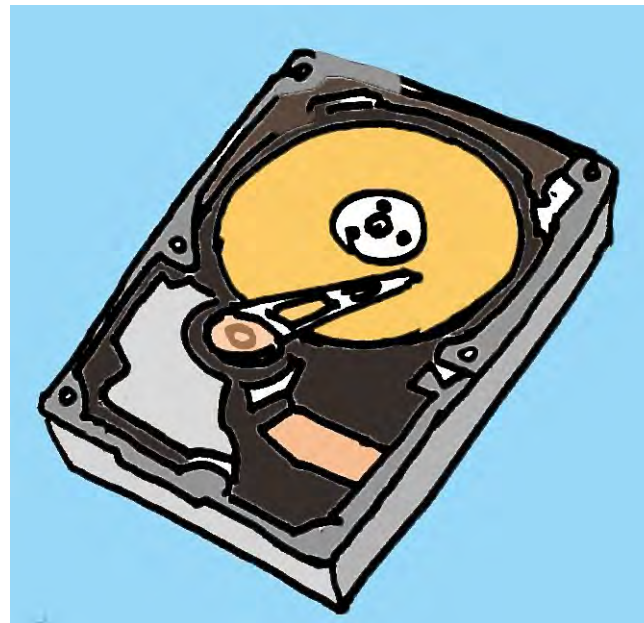


図1 ハードディスク (HDD) と磁気ヘッドの仕組み

GMRヘッドで記録密度が飛躍的向上

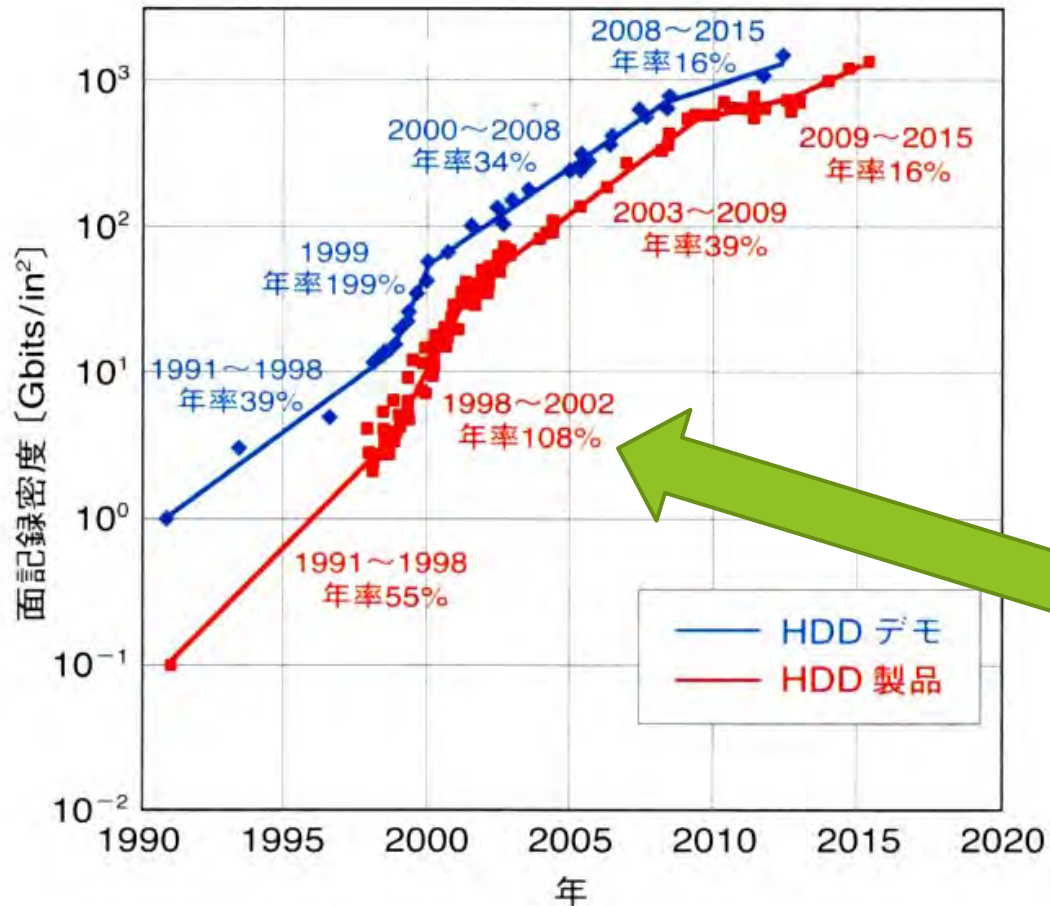
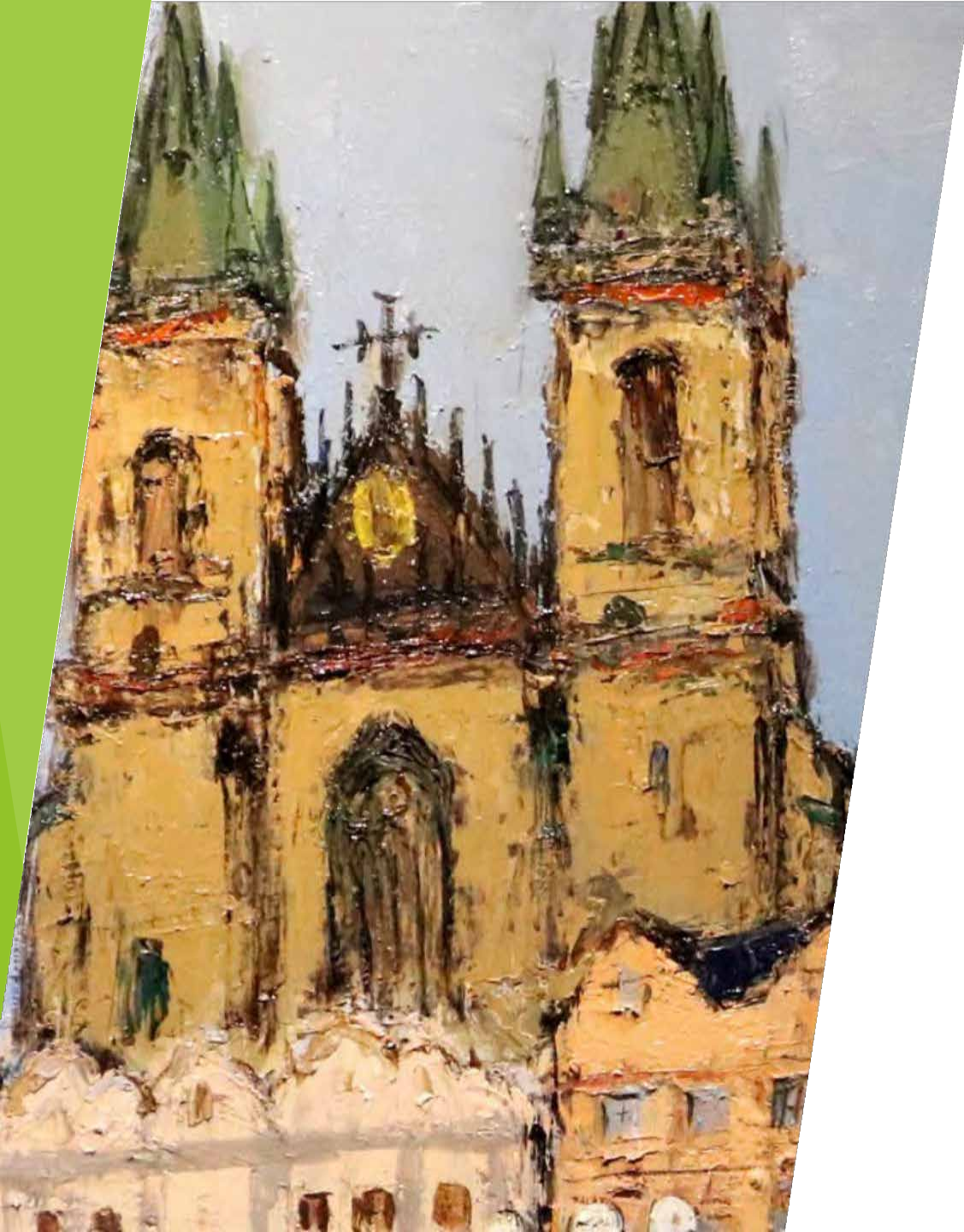


図2 ハードディスクの面記録密度の推移 (H. Li (米国カーネギーメロン大学) の学位論文を参考に作成)

- ▶ 図2は、ハードディスクの面記録密度の推移を表すグラフです。面記録密度を上げるには、記録されたビットの寸法を小さくしなければなりません。媒体からの洩れ磁場が弱いためコイルでは十分な電気信号が取り出せなくなっていたのです。
- ▶ このため1998年までは面密度は年55%程度の伸びしかありませんでした。
- ▶ 巨大磁気抵抗効果(GMR)を用いた読み出しヘッドが搭載された1998年を境に弱い洩れ磁場でも電気信号に変換できるようになり、年率100%を超える面記録密度の急上昇が起きたのです。

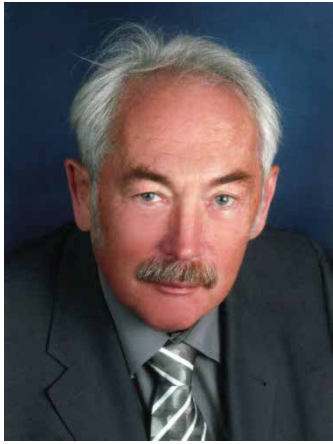
GMRは、2つの強磁性層で数Åの薄い非磁性層を挟んだデバイスの電気抵抗が磁場によって大きく変化する現象です。GMRは微細構造の作製が可能になった20世紀末になって、初めて実現したのです。



3. 巨大磁気 抵抗効果 (GMR)の発見

ナノサイエンスと磁性電子の出会い(1)

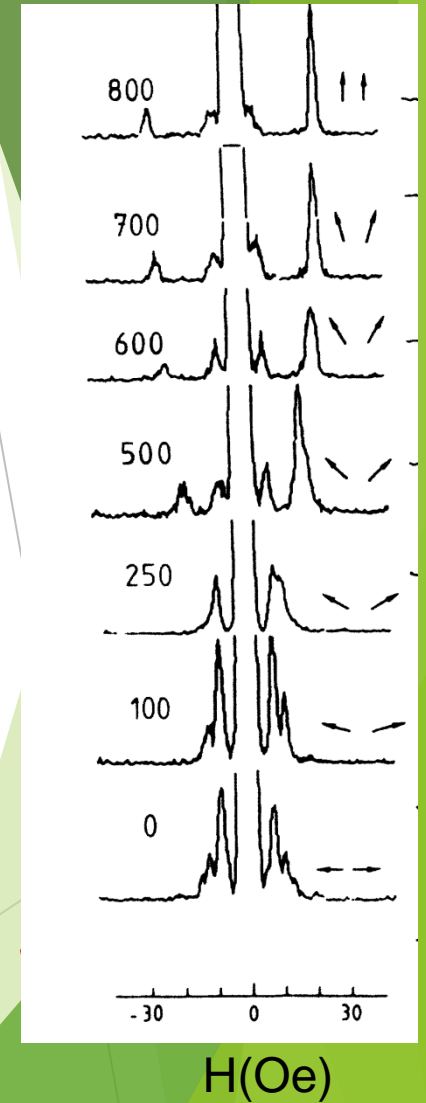
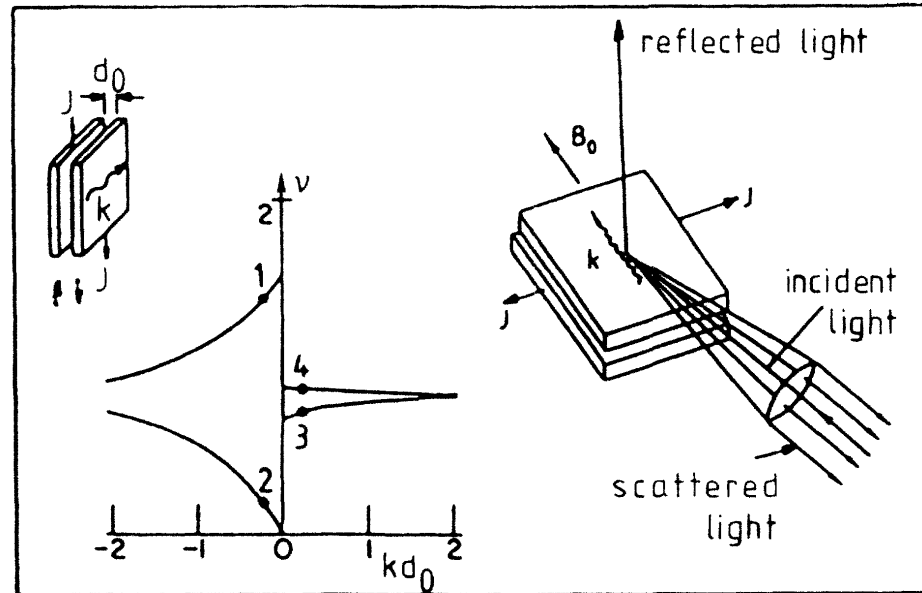
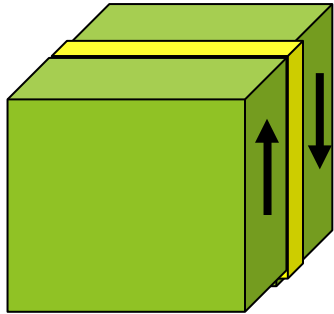
- ▶ 江崎によって拓かれた半導体超格子をはじめとするナノテクノロジーは、半導体における2次元電子ガス、量子閉じこめ、バンド構造の変調など半導体ナノサイエンスを切りひらき、HEMT, MQW レーザなど新しい応用分野を拓きました。
- ▶ 電子のドブロイ波長は半導体においては10nmのオーダーと長いいため、比較的大きなサイズの構造の段階で量子効果が現れましたが、磁性体の3d電子はnm程度の広がりしか持たないため、nm以下の精密な制御が可能になった80年代まで待たねばなりませんでした。



ナノサイエンスと磁性電子の出会い(2)

- ▶ 1986年ドイツのグリュンベルグのグループは、Fe/Cr(8 Å)/Feの構造において、Feの2層の磁化が途中の非磁性金属を通して反強磁性的に結合していることを（ブリルアン散乱法を使って）発見しました¹⁾。

ペーター・グリュンベルク博士



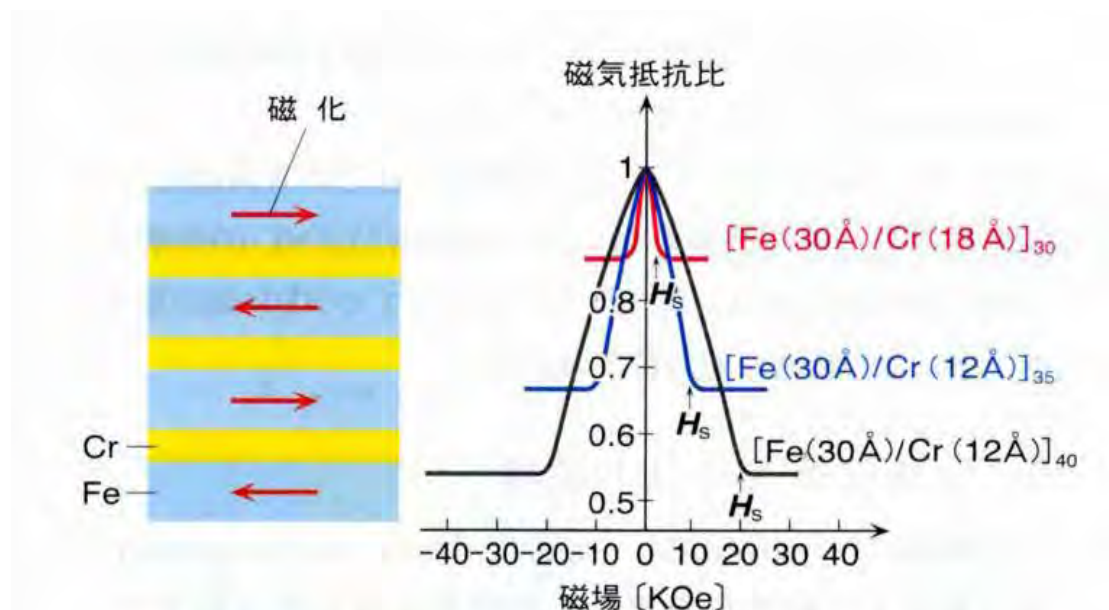
1) P. Grünberg, R. Schreiber and Y. Pang: Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 2442.

巨大磁気抵抗効果(GMR)の発見(1)

- ▶ フランスのフェールは、Fe/Cr/Fe₃層膜での反平行結合の実験結果を受けて、磁界印加で電気抵抗が低下するはずと確信。
- ▶ 1988年、Fe/Cr人工格子において電気抵抗値の50%もの大きな抵抗変化を発見し巨大抵抗効果GMRと名付けました²⁾。



アルベール・フェール博士



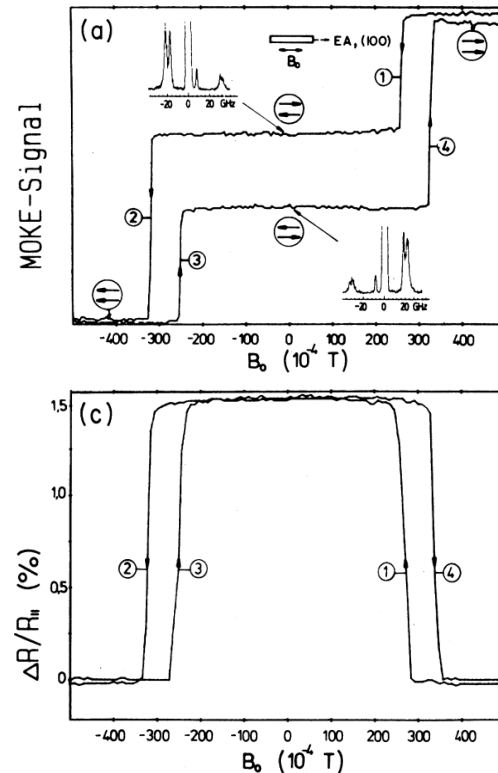
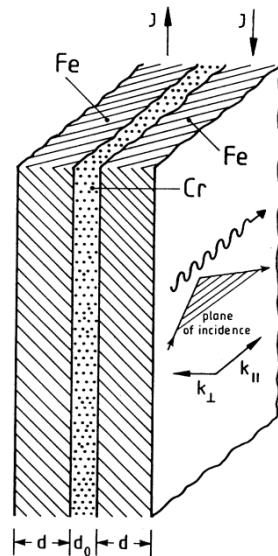
磁気抵抗比は $[R(H) - R(0)]/R(0)$ で定義されます。ここに $R(H)$ は磁場 H における抵抗、 $R(0)$ は磁場0の抵抗です。 H_s は飽和磁場。

図3 Fe/Cr人工格子の巨大磁気抵抗効果

2) M.N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friedrich, J. Chazelas: Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472.

巨大磁気抵抗効果(GMR)の発見(2)

- ▶ 同じ時期、グリュンベルグのグループもFe-Cr-Feの3層膜で磁界印加による電気抵抗の低下を発見しましたが、その大きさは1.5%という小さなものでした³⁾。



3) G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbad, W. Zinn:
Phys. Rev. B 39 (1989) 4828.

巨大磁気抵抗効果GMRの原理

- ▶ フェールはGMRについて次のように説明しました。
- ▶ 強磁性体(F)/非磁性金属(N)/強磁性(F)/・・・の構造を考えます。
- ▶ F層同士の磁化が平行なら多数スピン電子は散乱を受けず、少数スピン電子のみ散乱されますから低抵抗です。
- ▶ 隣り合うF層の磁化が反平行だとどちらのスピンを持つ電子も散乱を受けるので高抵抗です。

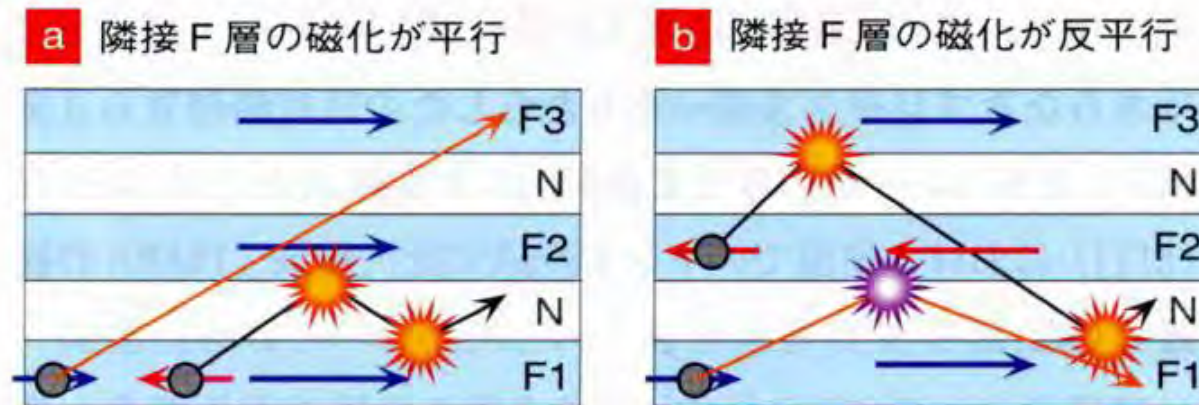


図4 巨大磁気抵抗効果の説明図



Stuart Parkin

弱い磁場で磁化反転するよう 反強磁性体を使ってピン止め

▶ しかし、強磁性体/非磁性体/強磁性体の人工格子では、2Tもの強い磁場を印加しないと大きな抵抗変化を得られず、センサーとしては使えません。

▶ この問題を解決したのがIBMのParkinらです。彼らは、図5(a)のようなNiFe/Cu/NiFe/FeMnの非結合型サンドイッチ構造を作り、スピンバルブと名付けました⁴⁾。このデバイスには、外部磁場で磁化が変化するフリー層と外部磁場で磁化が変化しないピン層の二つの磁性層で、非磁性層のCuを挟む構造となっています。

▶ 2つの磁性層は同じパーマロイ (NiFe) ですが、一方の層に反強磁性体を堆積することで、反強磁性体と強磁性体の界面に働く交換結合により、図5(b)に示すように、わずかな磁界でフリー層が反転するのです。これを交換バイアスと呼びます。高感度なセンサーが実現し、GMRヘッドとしてハードディスクの面記録密度の飛躍的向上に寄与しました。

▶ 4) B. Dieny, et al.: J. Appl. Phys. 69, 4774 (1991)

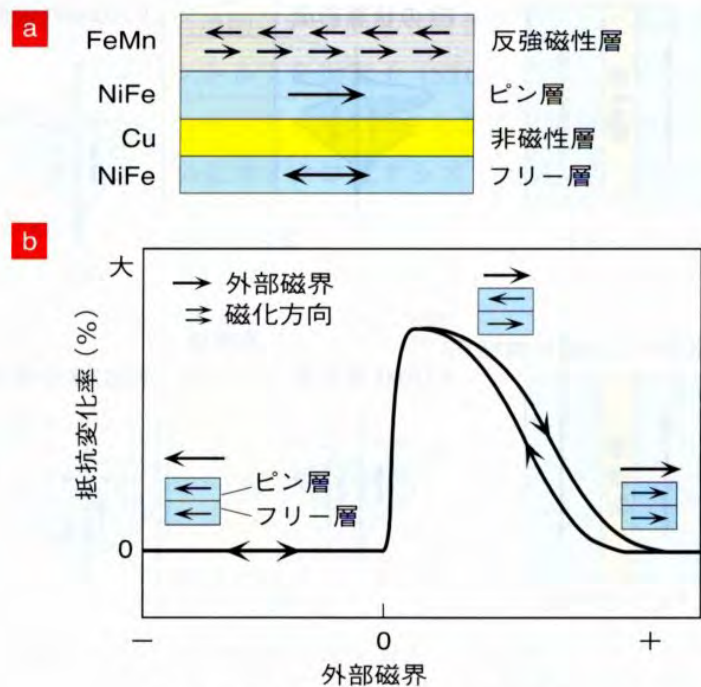
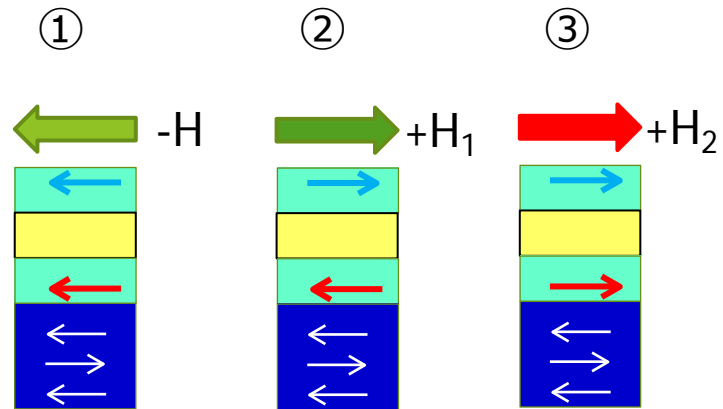
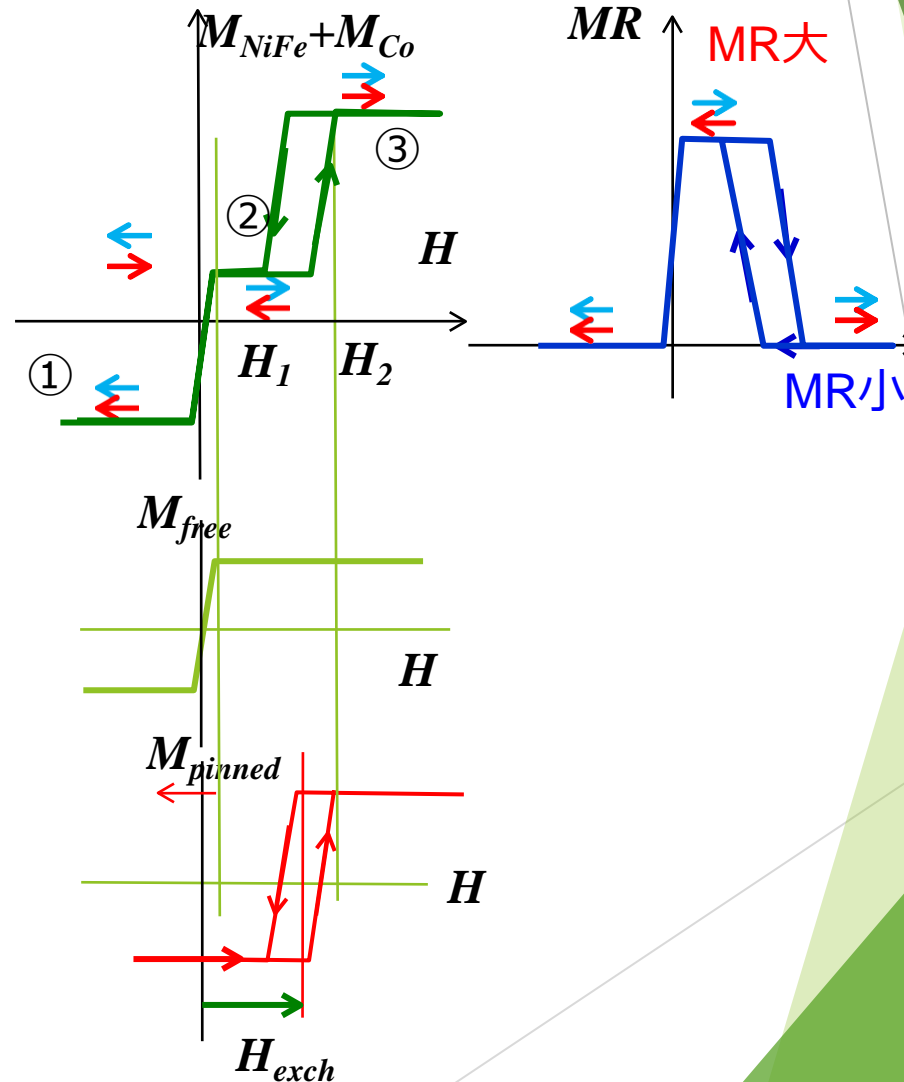


図5 スピンバルブの原理と動作

スピンバルブのキモは交換バイアス



交換バイアスとは、強磁性体が反強磁性体と界面で交換結合しているために見かけ上働く磁界のこと。



応用の道はスピバルブによって拓かれた

- 反強磁性体は自発磁化をもたないので、反強磁性を積極的に応用するという発想は20世紀後半になるまでほとんどなく、化合物、金属、合金などのさまざまな物質において、その磁気構造や磁気物性が基礎的な興味から研究されるだけの地味な存在でした。
- ところが、IBMが磁気ヘッド用GMR素子「スピバルブ」を開発したことによって、反強磁性体がにわかに応用技術者の注目を集めることとなりました。

交換バイアスは古くから知られていた

- 「強磁性体の物理」を通読された方は、下巻の第5章 § 13 (d) の中に表面酸化したCo微粒子においてCoと反強磁性体CoOの交換結合によって、図5.4に示すように、ヒステリシスループが全体として左側にずれるという Meiklejohnらの実験が紹介されていることをご存知のことでしょう。
- その中に「もしこのように+-の向きに対して非対称な磁性が室温で実現されるようになれば、磁化を常に一方向に向けることができ、応用上にも重要な意味をもつであろう。」と予言されており、今更ながら近角先生の慧眼に感心させられます。また、このような古い実験結果をデバイスに適用したIBMの底力にも敬意を表します。

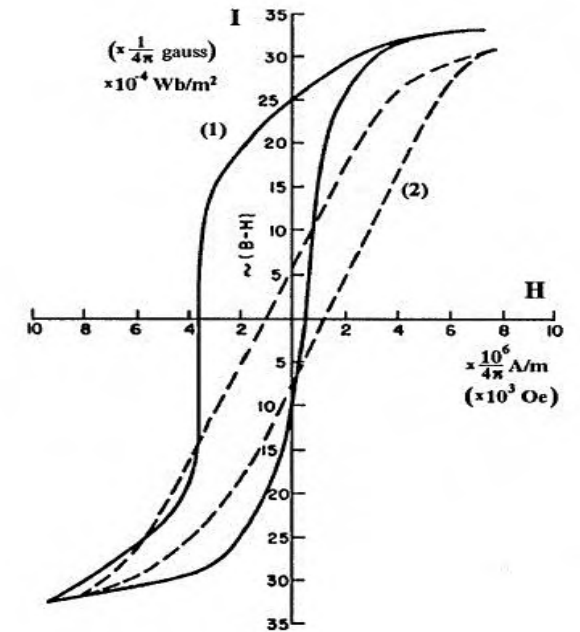


図5.4 部分的に酸化されたCo微粒子(10-100 nm)の77Kにおけるヒステリシスループ。曲線(1)は10kOeの磁界中で冷却後測定したもの、点線(2)は磁界を印加せずに冷却したもの⁷⁾

交換バイアスの仕組み

- 図5.5は交換バイアス構造における理想界面です。反強磁性側の界面のスピンは補償されることなく強磁性層側のスピんと強磁性的に並びます。この構造で計算した界面のエネルギーは実際に観測されるものより2桁も大きいのです。言い換えれば、実際の界面では何らかの理由で結合が弱くなっているのです。
- この原因として、実際の界面では、図5.6に示すように界面の乱れ、結晶粒界、転位など結晶性の乱れが存在し、界面エネルギーが低下しているものと考えられています。
- 交換バイアスを定量的に説明するモデルはまだ得られていません。今後の研究課題です。

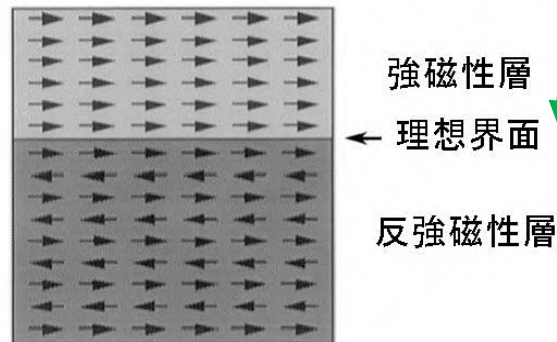


図5.5強磁性/反強磁性接合の理想的な界面

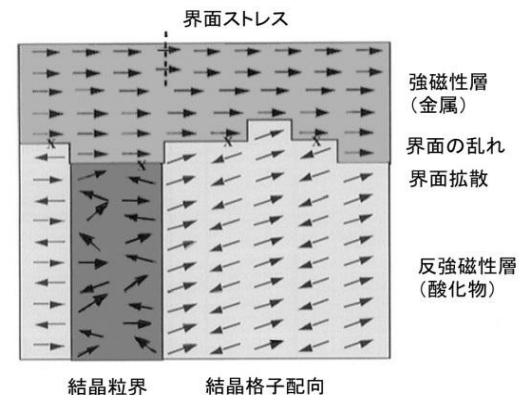
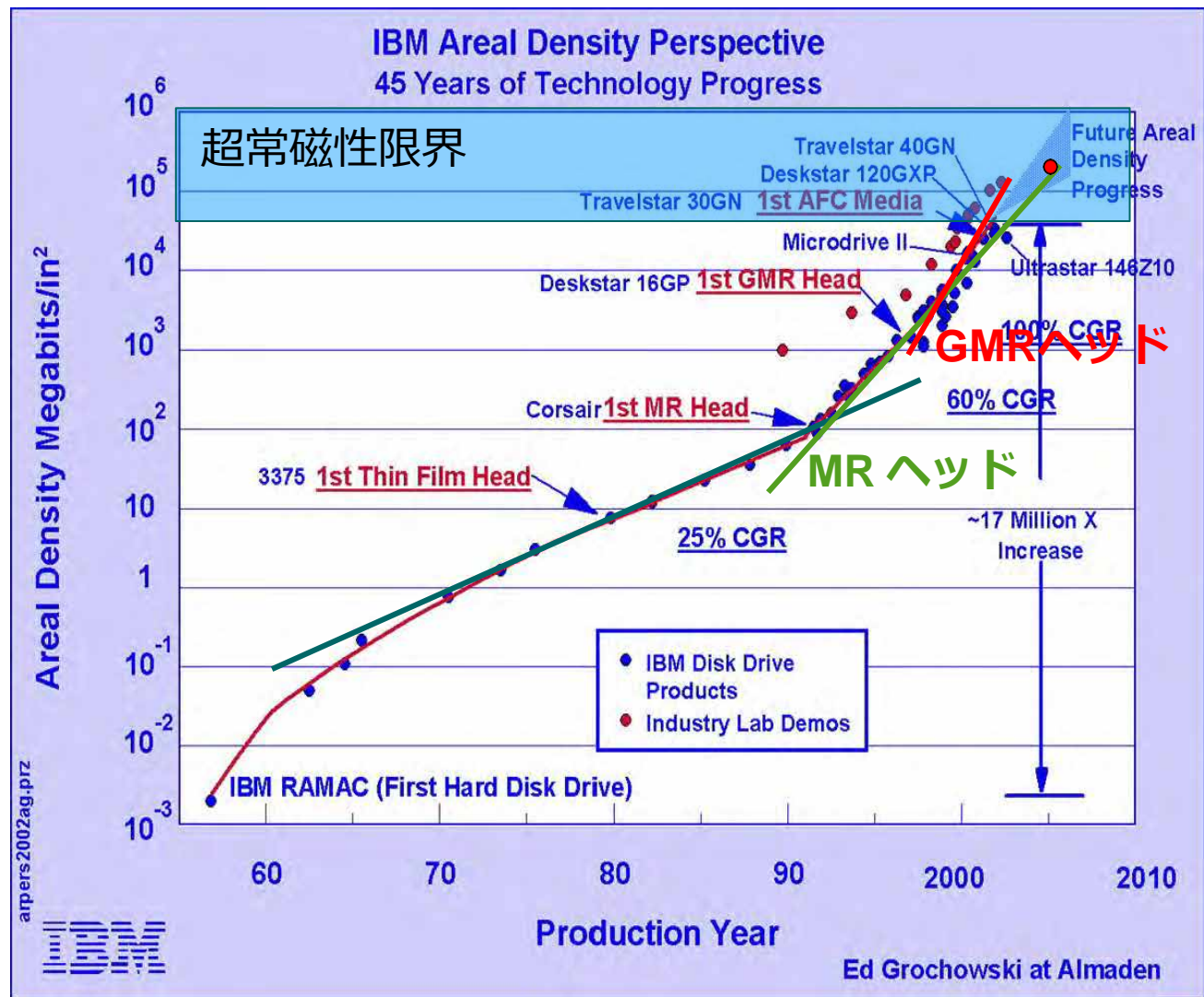


図5.6強磁性/反強磁性界面の実際

スピバルブがハードディスクを変えた



▶ Spin Valveの導入によって、微細な磁区から生じるわずかな磁束の検出が可能になり、HDDの高密度化が非常に加速されたのです。

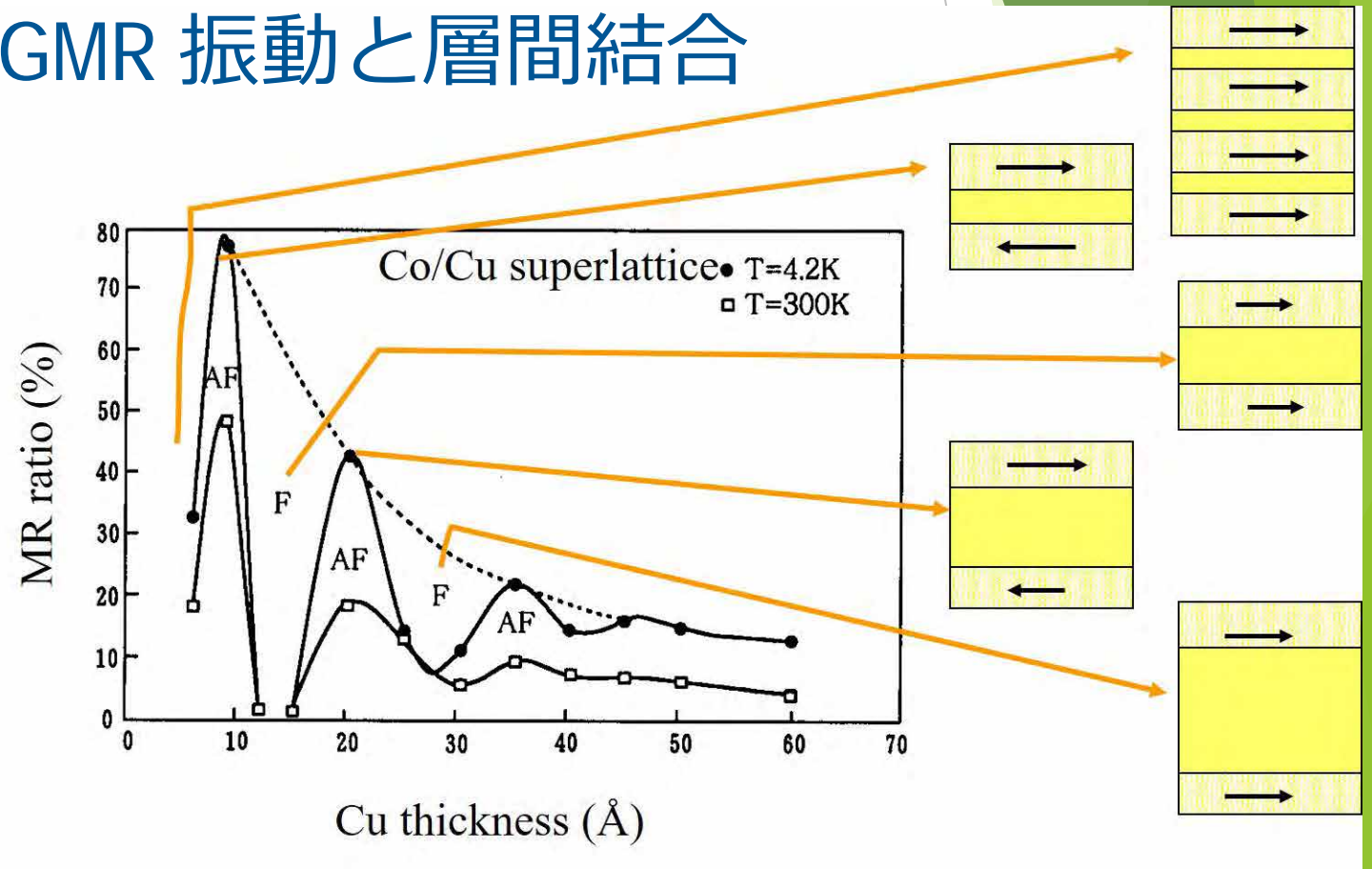
ちょっと寄り道

交換相互作用さえも人工的に制御

- ▶ 同じ時期に、磁性／非磁性の人工格子において、磁性層間に働く交換相互作用が非磁性層の層厚に対して数ナノメートルの周期で、強磁性→反強磁性→強磁性→・・・と振動的に変化することが発見されました^[i]。
- ▶ ナノテクノロジーの確立によって、人類は、ついに交換相互作用さえも人工的に制御する手段を手にしたのです。

- ▶ ^[i] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche: Phys. Rev. Lett. 64 (1990) 2304.

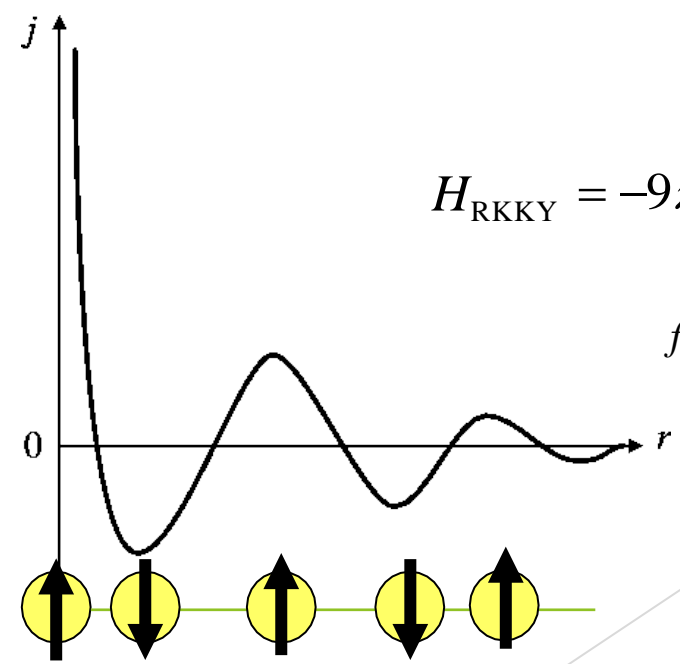
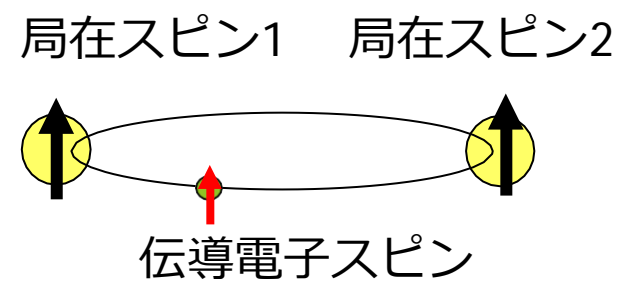
GMR 振動と層間結合



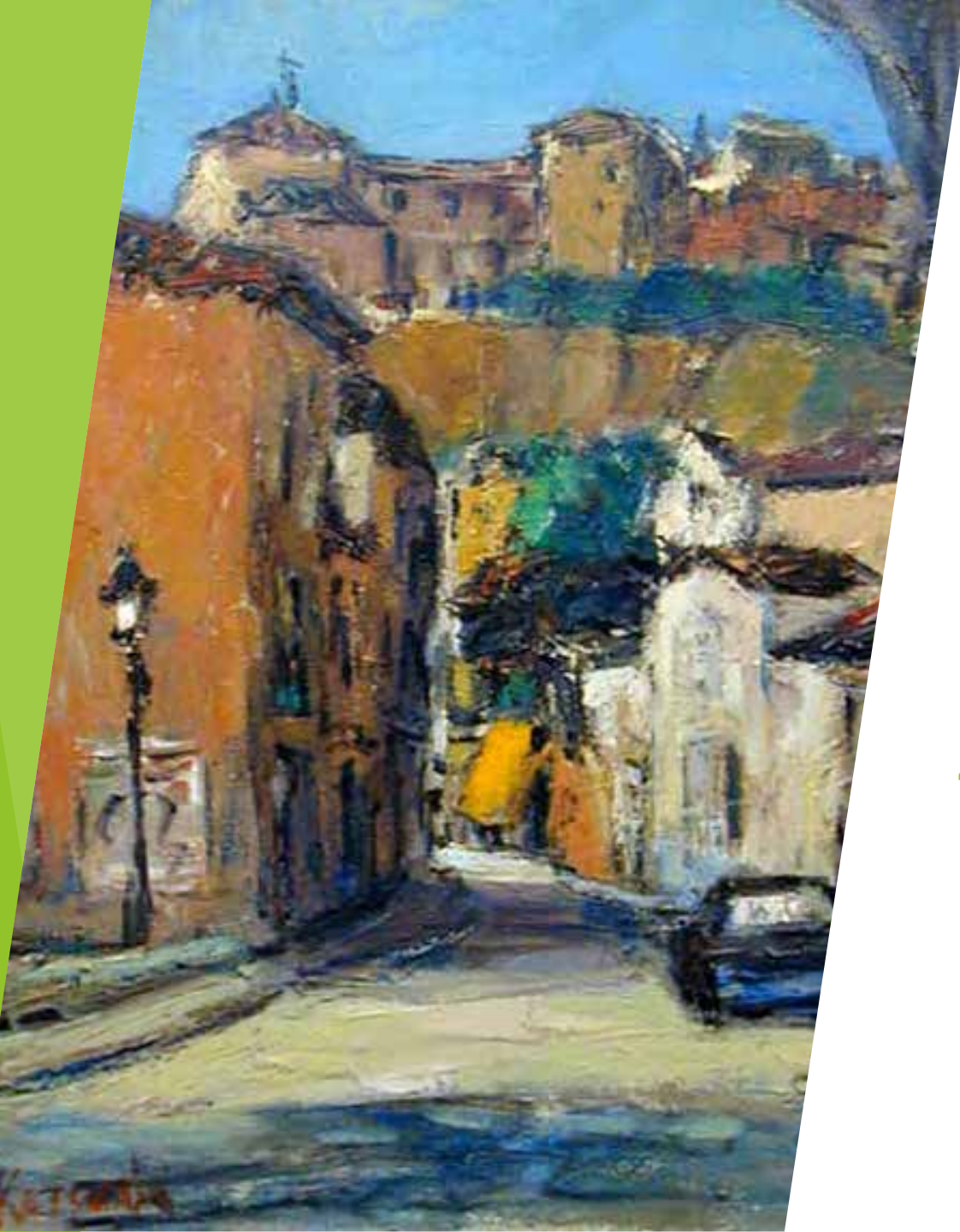
Mosca et al.: JMMM 94 (1991) L1

間接交換(RKKY)相互作用

- ▶ 伝導電子を介した局在スピンの磁氣的相互作用は、距離に対して余弦関数的に振動し、その周期は伝導電子のフェルミ波数で決まります。これをRKKY (Rudermann, Kittel, Kasuya, Yoshida)相互作用といいます。



$$H_{\text{RKKY}} = -9\pi \frac{J^2}{\epsilon_F} \left(\frac{N_e}{N} \right)^2 f(2k_F R) \mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$$
$$f(x) = \frac{-x \cos x + \sin x}{x^4}$$



4. 室温での トンネル磁気抵抗 (TMR)の観測

トンネル磁気抵抗

▶ MTJとは、図に示すような2枚の強磁性電極で極めて薄い絶縁層を挟んだトンネル接合です。TMRとは、層に垂直方向の電気伝導が、両強磁性層の磁化が平行か反平行かで大きく異なる現象です。

▶ この現象（スピン偏極トンネリング）は、1980年代から知られており、先駆的な研究も行われていました⁷⁾。しかし当時の技術では、トンネル障壁層の制御が難しく、再現性のよいデータが得られていなかったのです

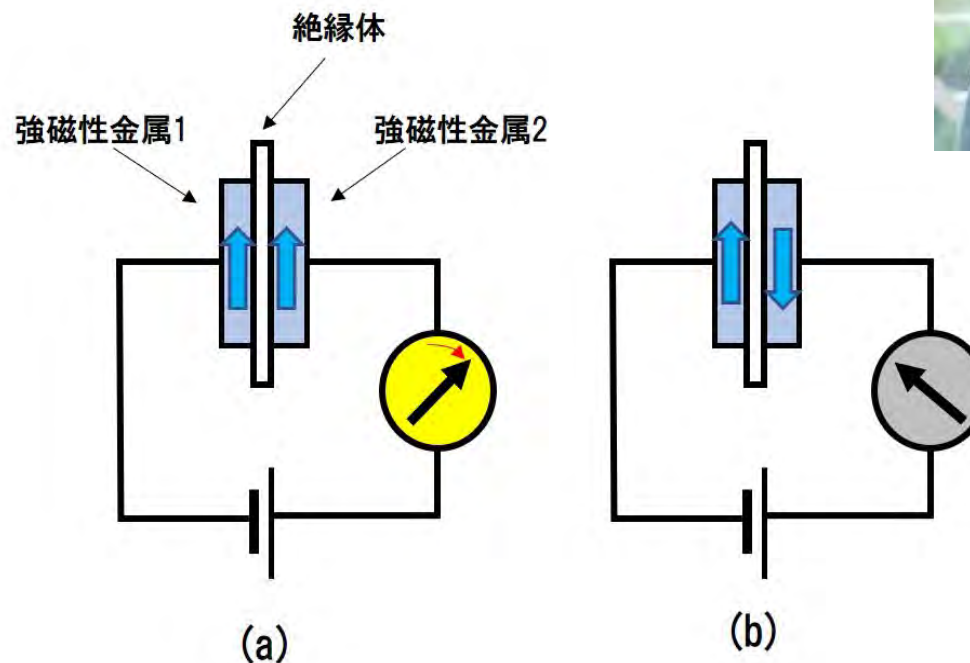
▶ 宮崎らは成膜技術を改良して、平坦でピンホールが少ない良質のAl-O絶縁層の作製に成功し室温での大きなTMRの観測につながったのです。

▶ この発見を機にTMRは、世界の注目するところとなり、直ちに固体磁気メモリ(MRAM)および高感度磁気ヘッドの実用化をめざす研究開発が進められたのです

さらなるブレークスルーをもたらしたのは宮崎ら⁵⁾、ムーデラら⁶⁾による磁気トンネル接合(MTJ)における室温でのトンネル磁気抵抗効果(TMR)の観測でした

5) T. Miyazaki and N. Tezuka: J. Magn. Magn. Mater. 139, L231 (1995).

6) J.S Moodera, et al.: Phys. Rev. Lett. 24, 3273 (1995)



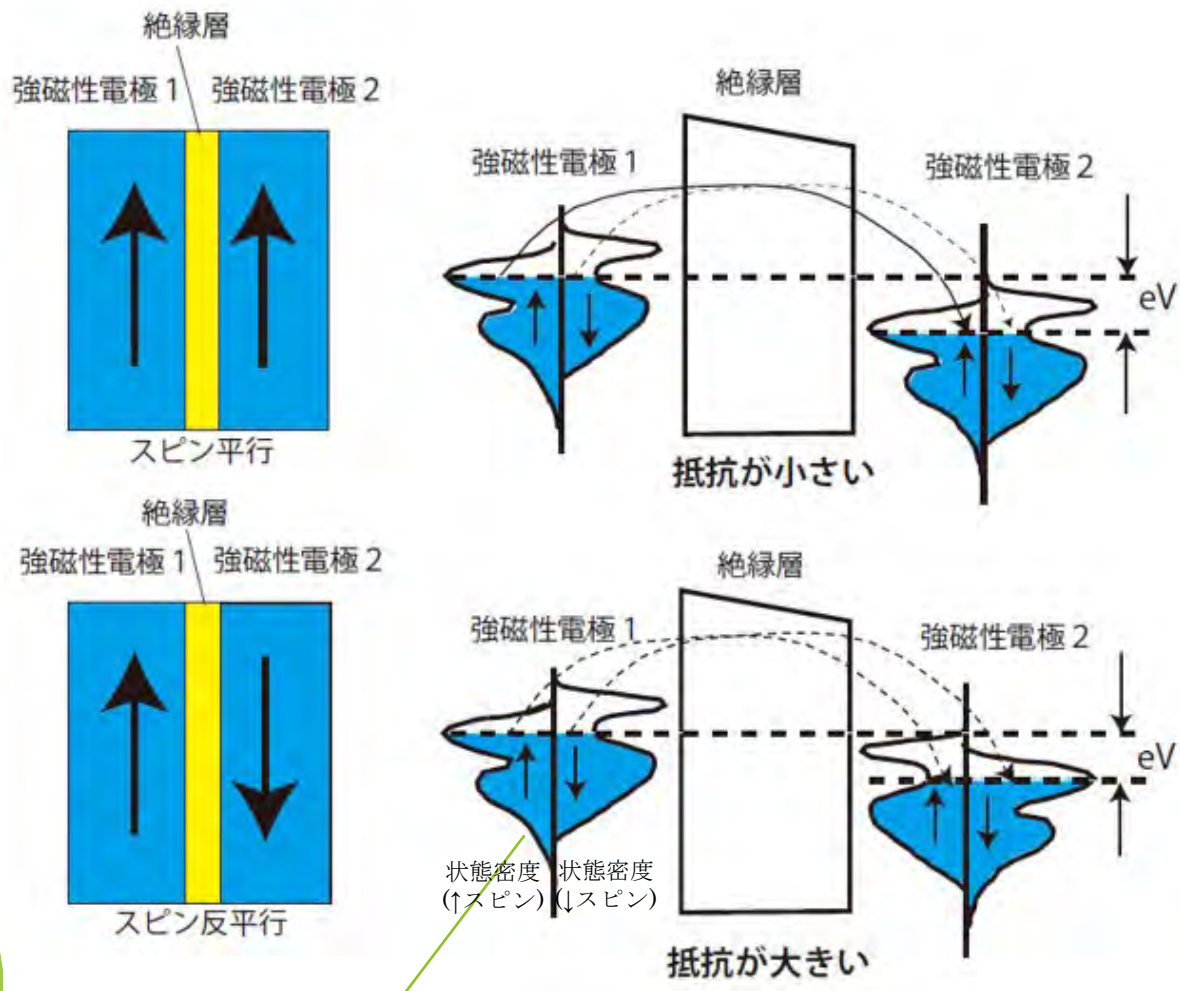
TMR比は、向かい合う2つの磁性層の磁化の向きが磁化の向きが(a)平行のときの抵抗 $R_{\uparrow\uparrow}$ と(b)反平行のときの抵抗 $R_{\uparrow\downarrow}$ との差を平行の抵抗で割った百分比で表されます。

$$\text{TMR}(\%) = (R_{\uparrow\uparrow} - R_{\uparrow\downarrow}) / R_{\uparrow\uparrow} \times 100$$



宮崎照宣

TMRの原理



スピン偏極バンドの状態密度曲線

- ▶ TMRは磁性体のスピン偏極バンドの状態密度曲線を使って説明されます。
- ▶ フェルミ面における状態密度が上向きスピンと下向きスピンとで異なります。
- ▶ 両電極のスピンが平行だと、状態密度の大きな状態間の電子移動により低抵抗になります。
- ▶ 反平行だと、大きな状態と小さな状態の間の移動なので高抵抗になります。

バンド磁性の基礎

強磁性金属のスピンの偏極バンド構造

↑スピンバンドと↓スピンバンドの占有状態密度の差によって磁気モーメントが決まる

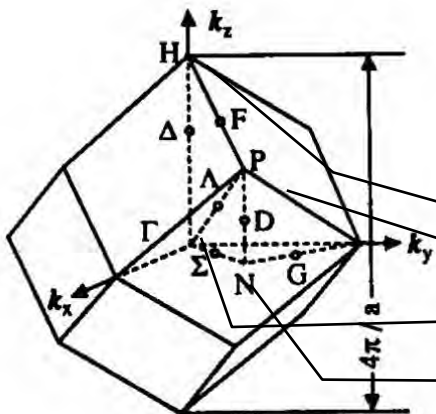
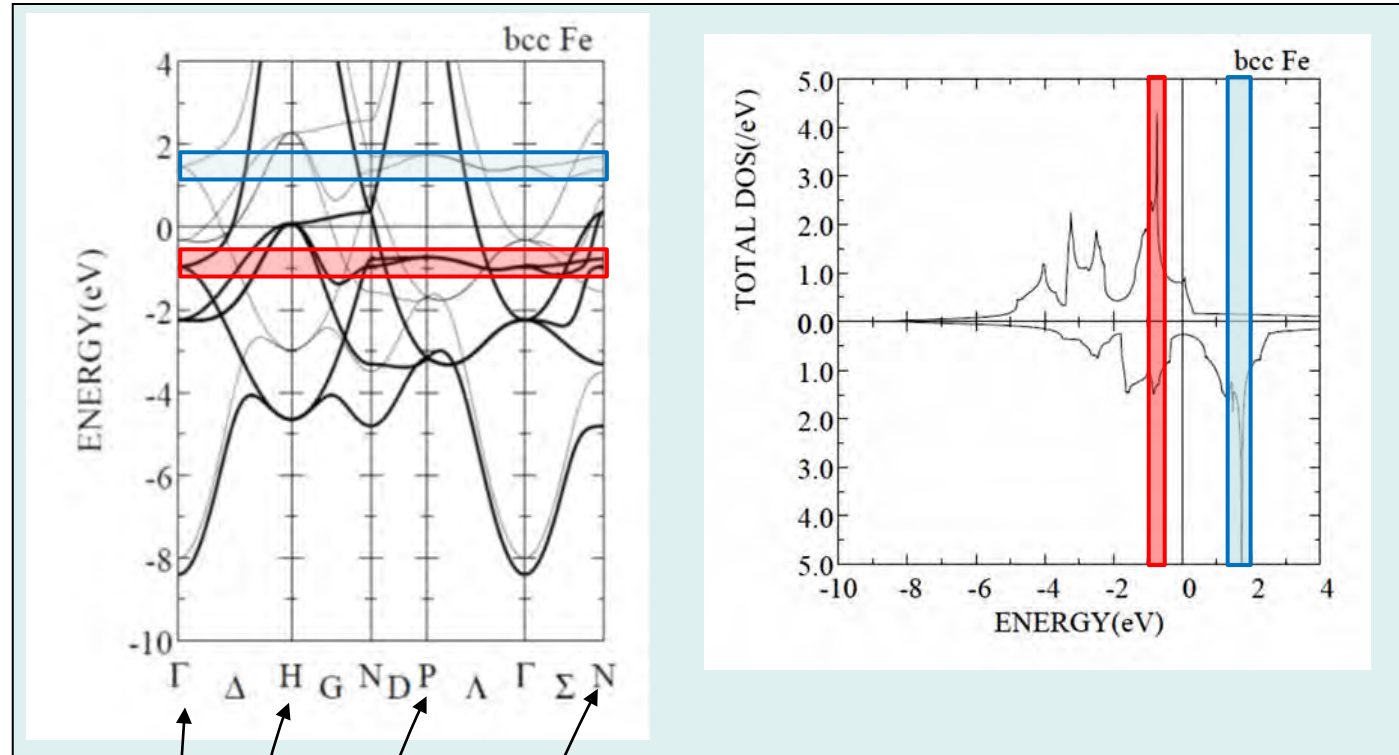
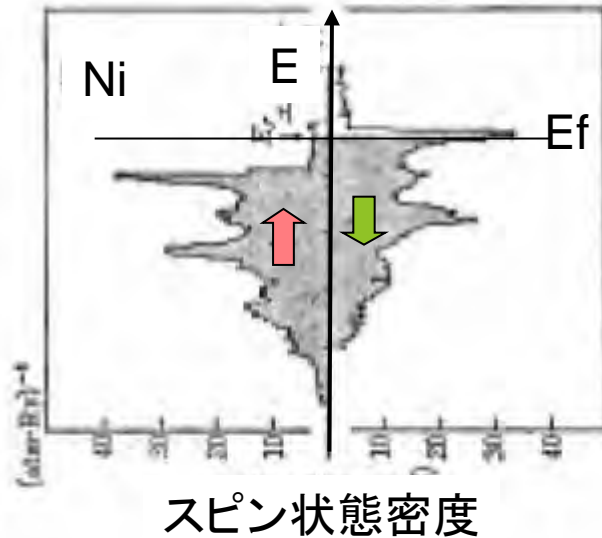
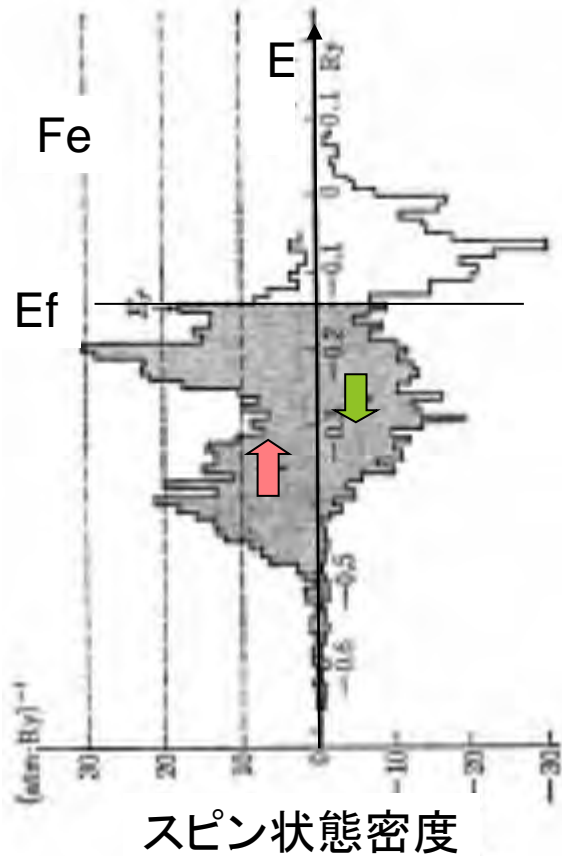


図 3.5 (a) Fe のスピンの偏極バンドの分散曲線。太線: 上向きスピン、細線: 下向きスピン。(b) スピンの偏極状態密度曲線 (小口多美夫氏のご厚意による)

FeとNiのバンド状態密度

▶ Feは↑スピンバンドに比し↓バンドの状態密度がかなり小さい。 $n_{\uparrow}-n_{\downarrow}=2.2$

● Niは↑スピンバンドは満ち、↓バンドにはわずかな正孔しかない。 $n_{\uparrow}-n_{\downarrow}=0.6$



↓バンドに0.6個の空孔があると、Cuからs電子が流れこみ、Cuが40%合金したときモーメントを失う。



5. TMRに革命的な ブレイクスルー

MgOバリアTMR素子の登場

MgOバリアTMR素子の登場

- ▶ 2004年、湯浅らはトンネル障壁として、宮崎らのアモルファス Al_2O_3 に代えてMgO単結晶層を用いることで、200%におよぶ大きなTMR比を実現したのです^{8,9)}。その後もTMRは図7のように伸び続け、2010年には600%に達しています。
- ▶ Fe/MgO/Fe構造において1000%におよぶTMRが理論的に予測され、これを受けて多くの研究機関が挑戦していましたが、検証できませんでした。
- ▶ 湯浅らは、Fe(001)/MgO(001)/Fe(001)のエピタキシャル成長に取り組み、トンネル層の乱れがほとんどなく、界面でのFe酸化層も見られない結晶性のよいMgOの成膜技術を確立しました。
- ▶ ほぼ同時期にIBMのパーキンらもMgOバリアMTJによる大きなTMRを報告しています¹⁰⁾。
- ▶ その後、湯浅らは、キャノンアネルバとの共同研究で、量産型のスパッタ装置を用いて、CoFeB/MgO/CoFeB構造のMTJの作製に成功、現在ほとんどすべてのHDD読み取りヘッドにこの技術が使われています。

8) S. Yuasa, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. 43 L558 (2004).

9) S Yuasa, et al.: Nature Mat.3, 868 (2004)

10) S.S. P. Parkin, et al.: Nature Mater. 3, 862 (2004).



湯浅新治

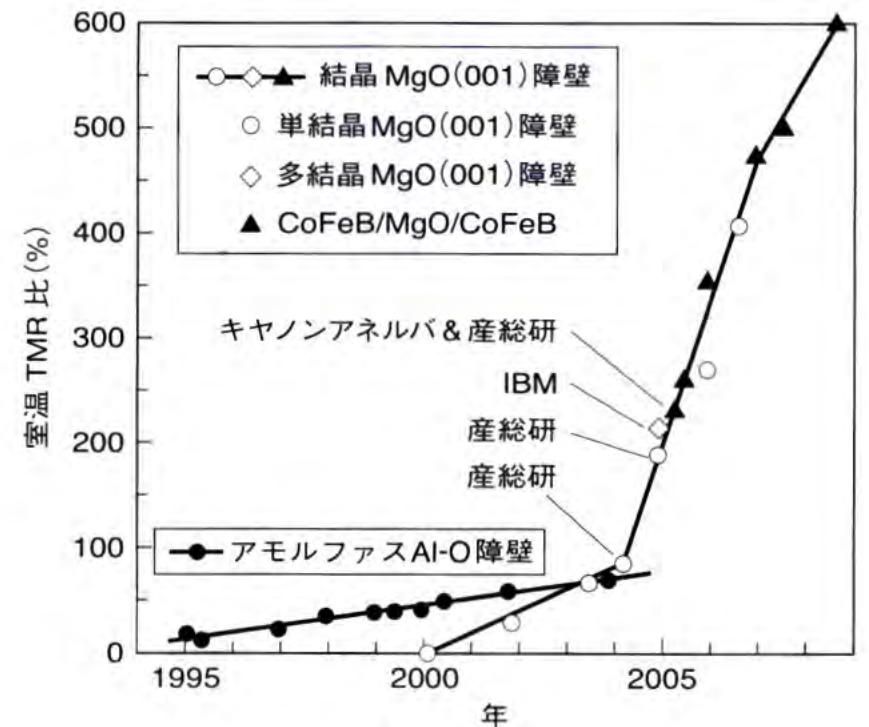
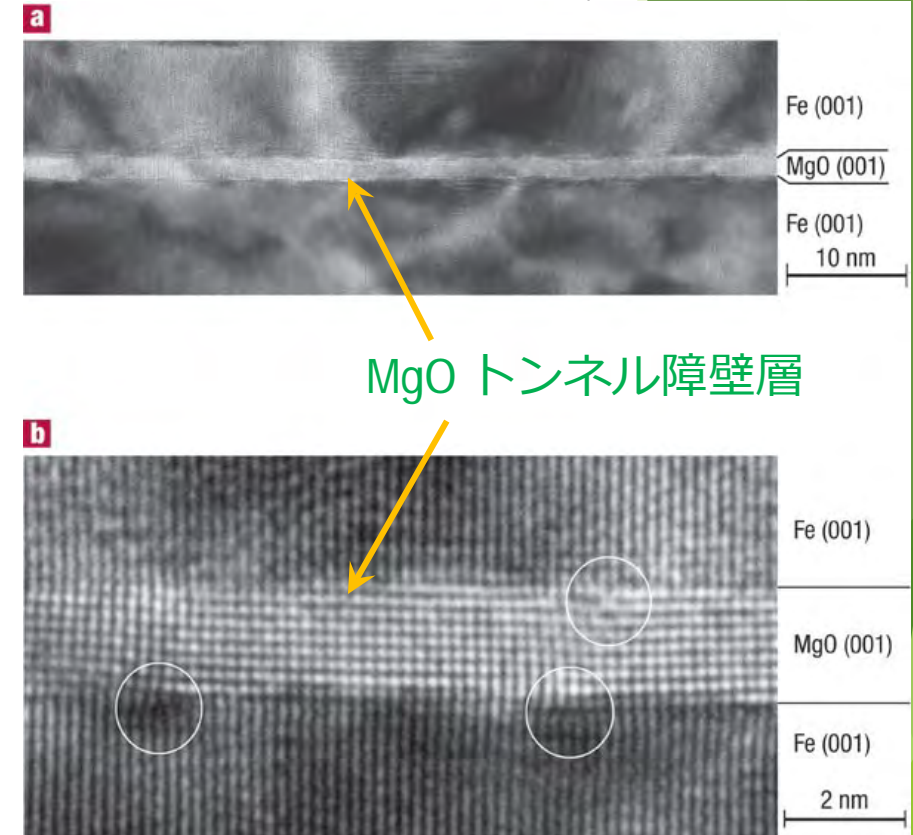


図7 トンネル磁気抵抗比の経緯

Fe/MgO/Fe構造のTEM像

- ▶ 理論の予測を受けて多くの研究機関が挑戦しましたが、成功しませんでした。
- ▶ YuasaらはFe(001)/MgO(001)/Fe(001)のエピタキシャル成長に成功し、トンネル層の乱れがほとんどない構造を得ています。また、界面でのFe酸化層も見られていません。
- ▶ 結晶性のよいMgOの成膜技術の確立があって初めてブレークスルーが得られたのです。まさに結晶工学の成果と言えるでしょう。



Nature Materials **3**, 868–871 (2004)

Yuasaのこの結果は、JSTさきがけ神谷領域（ナノと物性）の第2期（2002-2005）における課題「超Gbit-MRAMのための単結晶TMR素子の開発」の成果です。

CoFeB/MgO/CoFeBスパッタにより産業化

- ▶ MgO-MTJ素子の産業応用は、下部強磁性電極にアモルファスCoFeB合金を用いると、その上に高品質の配向性多結晶MgO (001) トンネル障壁層を室温で成長できることを発見したことで大きく進展しました。
- ▶ この成長様式を用いたCoFeB/MgO/CoFeB構造のMTJ素子は任意の下地層の上に室温成膜で作製でき、巨大TMR効果を示し、大面積ウエハ上の均一性や歩留まり、量産プロセス適合性、生産効率などもよいことが明らかになりました。
- ▶ なお、CoFeB/MgO/CoFeB構造のMTJ素子で巨大TMR効果が出現する機構として、アモルファスCoFeB層がポスト・アニールの過程でMgO(001)層と格子整合の良いbcc(001)構造に結晶化する“固相エピタキシー”の結晶化機構が関係していることが明らかにされました
- ▶ 現在、このCoFeB/MgO/CoFeB構造のMTJ素子は、スピントロニクス基礎と応用の両面で主流技術となっています。

散漫散乱トンネルとコヒーレント・トンネル

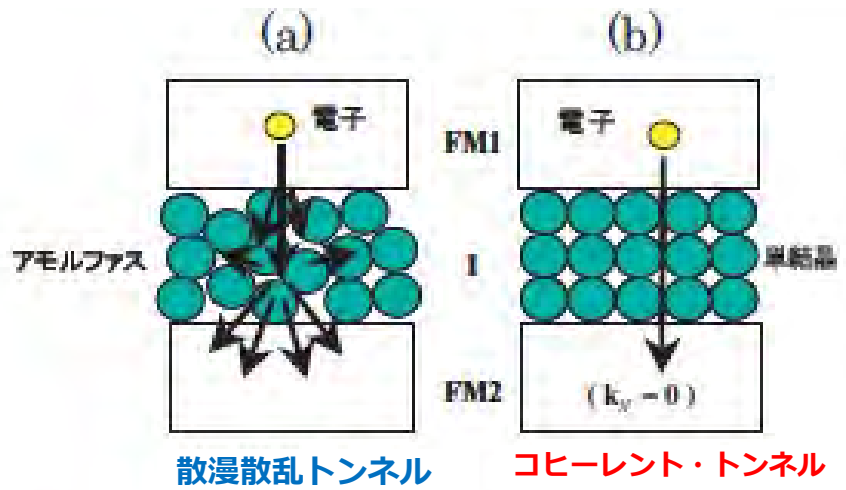
▶ 通常、トンネルする際スピンは保存され、散漫トンネルの場合TMRは一般に強磁性電極のスピン分極率 $P_i(i=1,2)$ を用いて次のようなJullierの式^[i]で表されます。

$$TMR = 2P_1P_2 / (1 - P_1P_2)$$

▶ MTJにおけるスピン分極率は磁性体固有のものではなく界面電子状態と関係し、バリア材料や界面性状に依存します。

▶ コヒーレントトンネルではエネルギーのほかに運動量が保存されるため、MRは電極のバンド構造を反映し、磁化が平行のときはトンネルできるが反平行のときはトンネルできません。そのため、1000%という巨大TMRが理論的^[ii]に予測されました。

i. M. Jullier, Phys. Lett. 54A, 225 (1975).
ii. W. H. Butler et al., Phys. Rev. B 63 (2001) 054416, J. Mathon and A. Umeski, Phys. Rev. B 63 (2001) 220403R





6. 固体磁気 メモリ(MRAM) の登場

MRAMとは

- ▶ MRAM (magnetic random-access memory)は記憶素子に磁性体を用いた不揮発メモリの一種です。図8に示すように、MTJと半導体のCMOSが組み合わされた構造となっています。直交する2つの書き込み線に電流を流し、得られた磁場が反転磁場HKを超えると、磁気状態を書き換えることができます。
- ▶ MRAMはアドレスアクセスタイムが10 ns台で、サイクルタイムが20 ns台と、DRAMの5倍程度なのでSRAM並み高速な読み書きが可能です。また、フラッシュメモリの10分の1程度の低消費電力、高集積性が可能などの長所があり、SRAMの高速アクセス性、DRAMの高集積性、フラッシュメモリの不揮発性の機能を合わせ持つ「ユニバーサルメモリ」としての応用が期待されています。

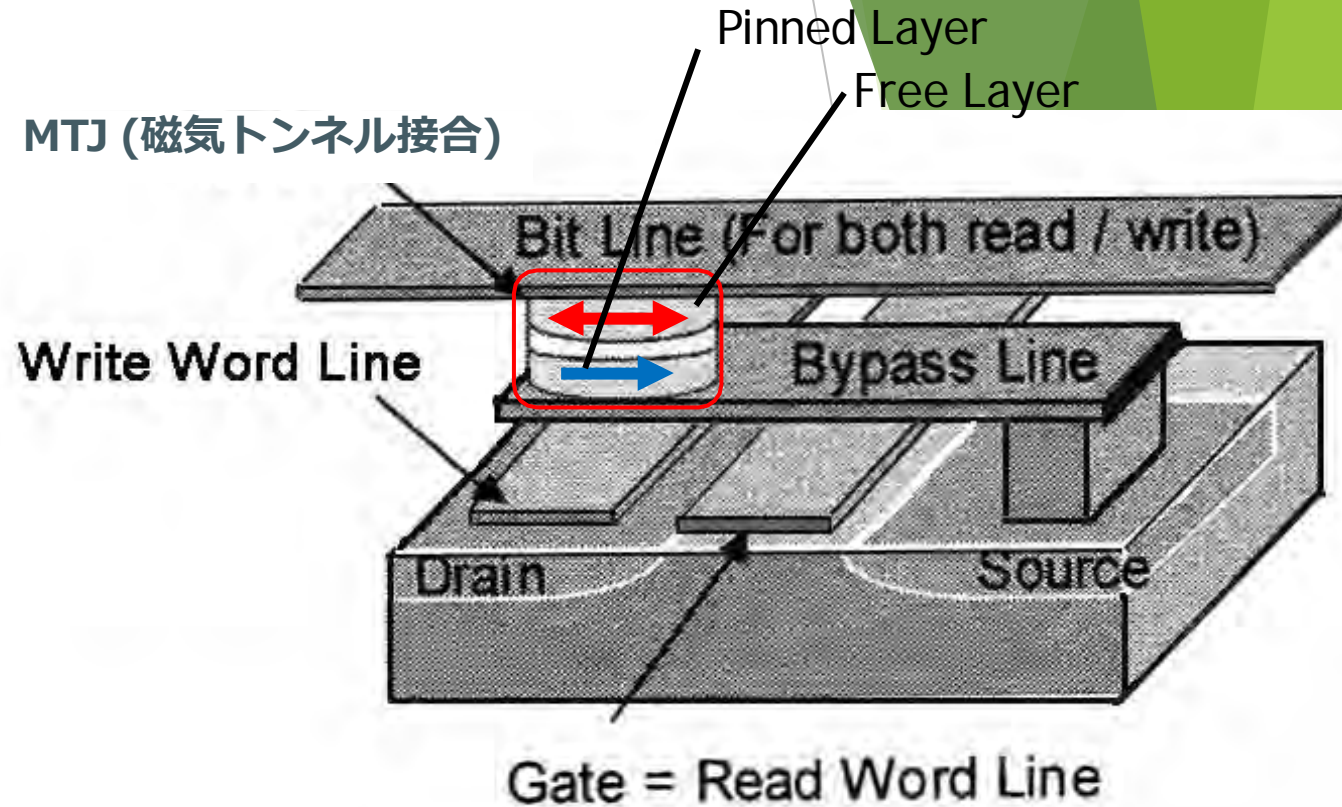
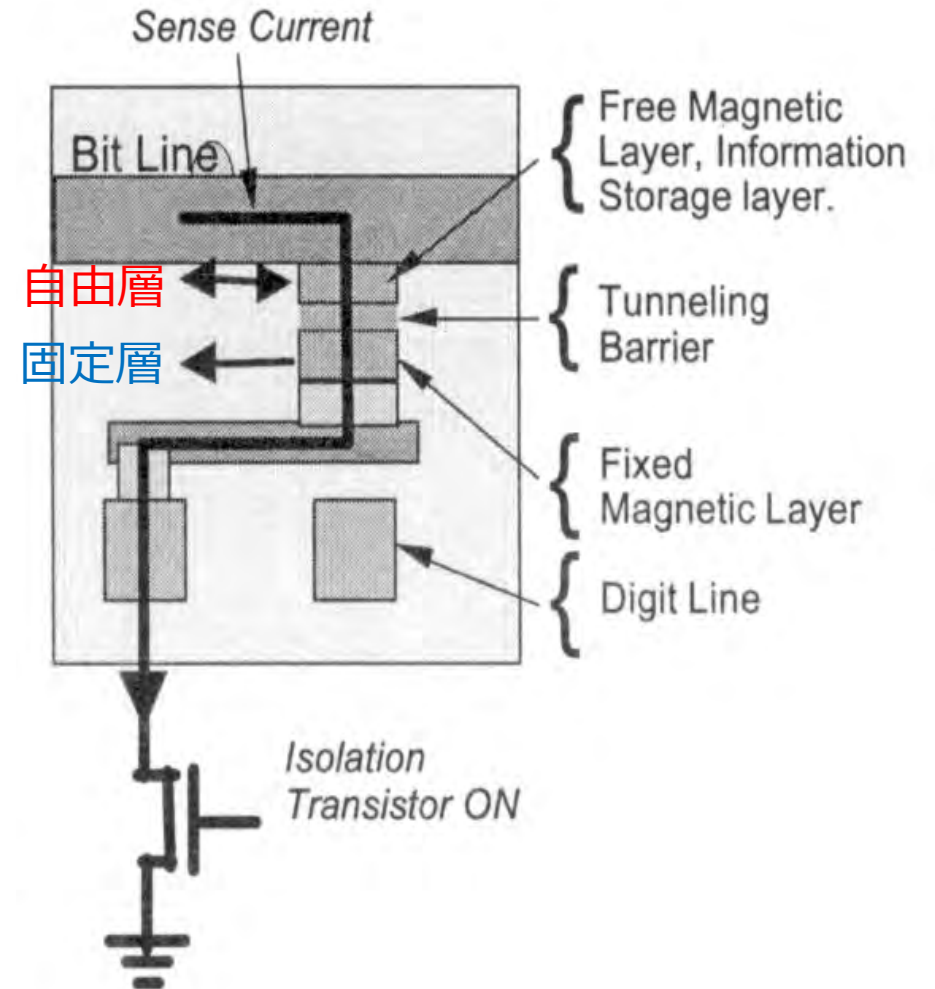


図8 MRAMの構成を表す図

しかし、電流で磁界を発生する方法では高集積化が難しいという欠点があります。この問題を解決したのが次項のスピン移行トルク(STT)でした。

MRAM(磁気ランダムアクセスメモリ)

- ▶ 記憶素子に磁性体を用いた不揮発性メモリの一種です。
- ▶ MTJとCMOSが組み合わされた構造となっています。
- ▶ 直交する2つの書き込み線に電流を流し、得られた磁界が反転磁界 H_K を超えると、磁気状態を書き換えることができます。しかし、電流で磁界を発生している限りは高集積化が難しいという欠点があります。



磁化反転の臨界磁場はどうやって導くことができるのですか

- ▶ 磁気異方性エネルギーと磁場中の磁化のエネルギーの和が不安定になるときの磁場の値を計算します。
- ▶ 図4.19に示すように、x軸が磁化容易方向であるような磁性体を考え、磁化容易軸から α だけ傾いた方向に磁場を印加します。このとき、磁化 M_s は磁化容易軸から β だけ傾いているとします。磁性体の持つエネルギー E_u は次式で表されます。

$$\begin{aligned} E_u &= K_u \sin^2 \theta + M_s H \cos(\alpha - \theta) \\ &= K_u \sin^2 \theta + M_s H_{\parallel} \cos \theta - M_s H_{\perp} \sin \theta \end{aligned} \quad (4.6)$$

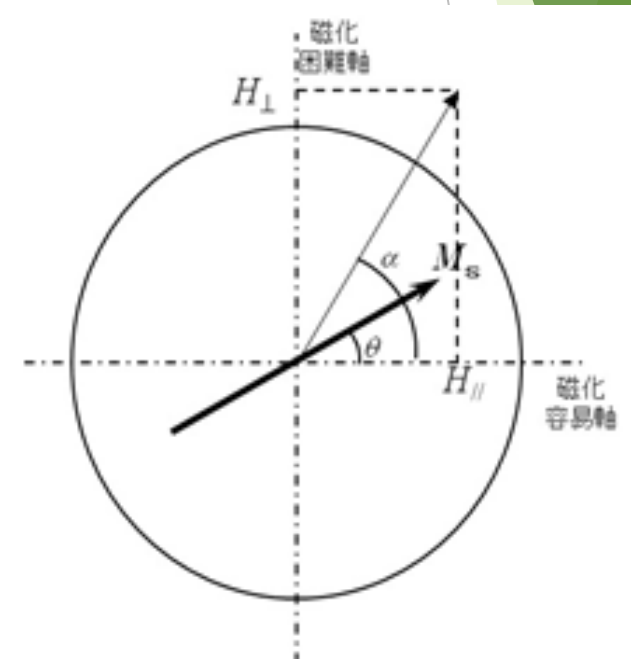


図 4.19 単磁区磁性体の磁化回転メカニズムを理解するための模式図

アステロイド曲線

(4.6)が極小になる条件および不安定になる条件は

$$\frac{\partial Eu}{\partial \theta} = 0, \quad \frac{\partial^2 Eu}{\partial \theta^2} = 0$$

これより $(2K_u/Ms)\sin\theta\cos\theta - H_{\parallel}\sin\theta - H_{\perp}\cos\theta = 0$

および $(2K_u/Ms)(-\sin^2\theta + \cos^2\theta) - H_{\parallel}\cos\theta + H_{\perp}\sin\theta = 0$ を得ます。

ここで $H_K = 2K_u/Ms$ と置き、連立して解くことによって

$$H_{\parallel} = -H_K \cos^3\theta, \quad H_{\perp} = H_K \sin^3\theta \quad (4.7)$$

が得られます。 $\sin^2\theta + \cos^2\theta = 1$ を用いると、式(4.5)が導かれました。これをプロットしたのが図4.17です。

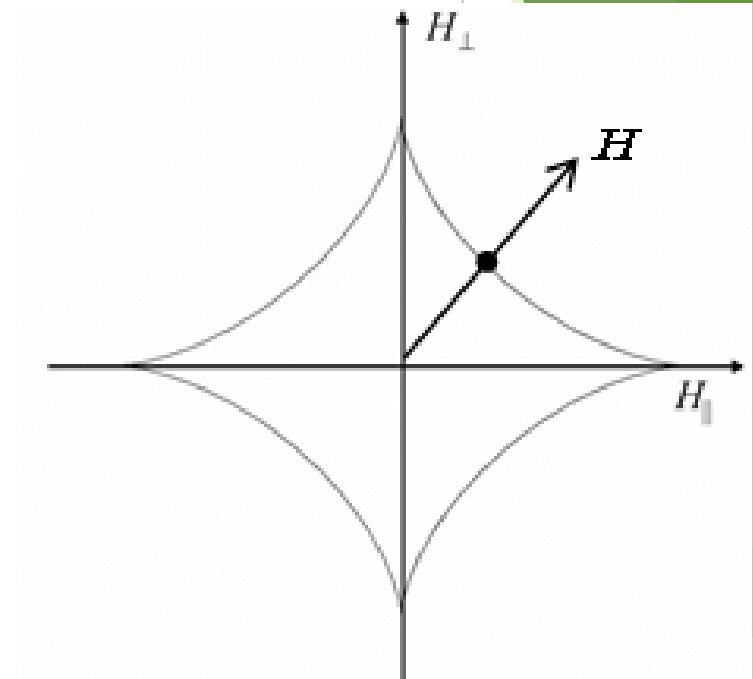


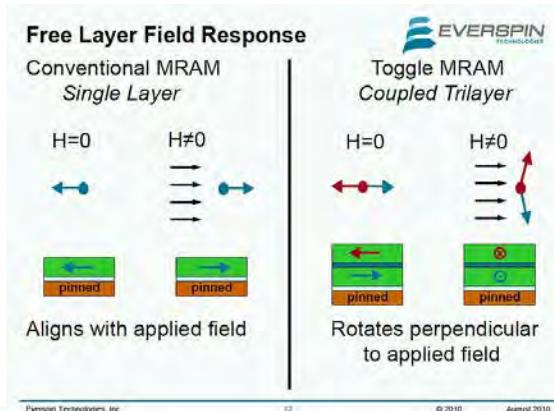
図 4.17 磁化反転の臨界磁界曲線

MRAM と他のメモリとの比較

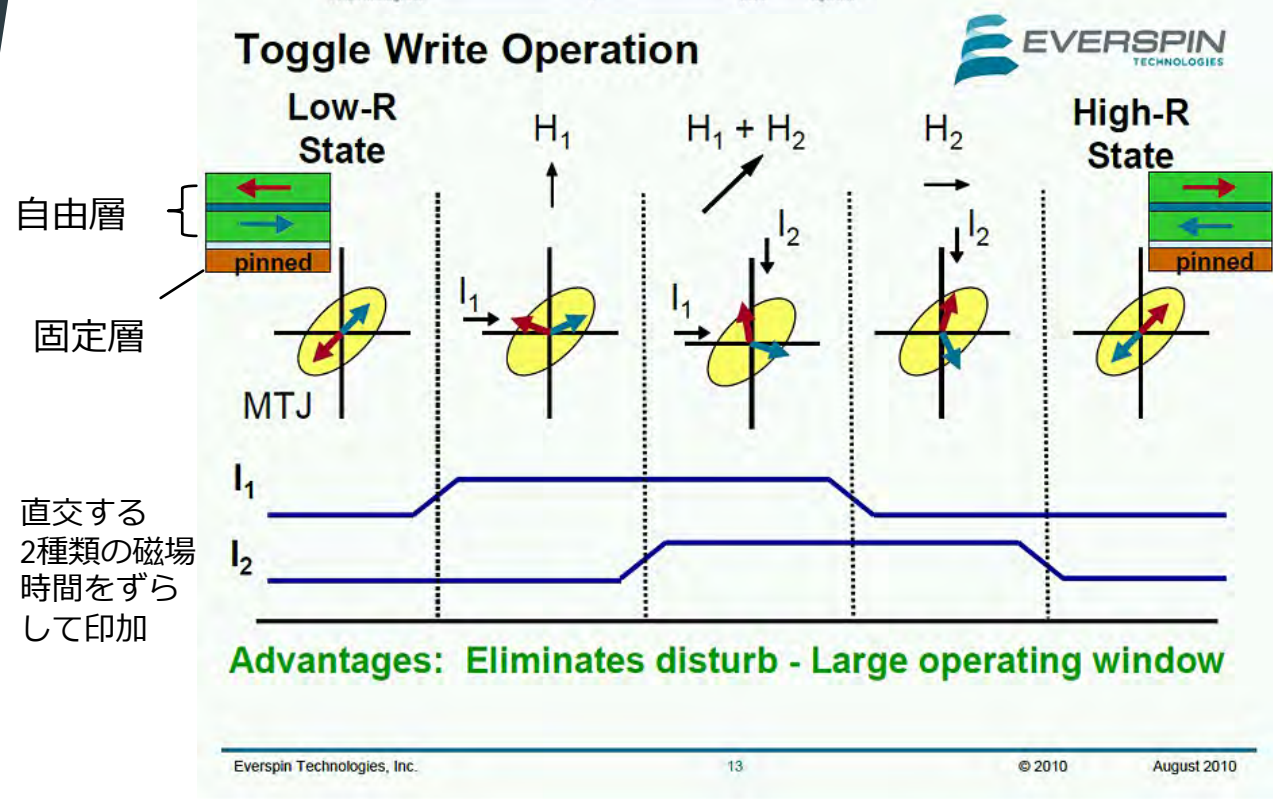
	SRAM	DRAM	Flash	FRAM	MRAM
読出速度	高速	中速	中速	中速	中高速
書込速度	高速	中速	低速	中速	中高速
不揮発性	なし	なし	あり	あり	あり
リフレッシュ	不要	要	不要	不要	不要
セルサイズ	大	小	小	中	小
低電圧化	可	限	不可	限	可

トグルMRAMの登場

- ▶ MRAMセルの記憶素子として研究開発コミュニティで当初考えられていた構造は、磁化層(固定層)、トンネル障壁層、磁化層(自由層)の3層構造である。この3層構造を貫通するように電圧を加え、電流の大きさをデータとして読み出す。自由層の磁化の方向が、データの論理値に対応する。固定層の磁化の向きと自由層の磁化の向きが同じであるときは貫通電流は多く流れ、磁化の向きが逆であるときは貫通電流は少なく流れる。
- ▶ これに対してEverspin社の開発したトグル技術では、自由層を2層構造にした。自由層の各層で磁化の向きは180度、逆である。そして自由層の2層とも磁化の向きを反転させることで、データを書き込んだ。このとき重要なのは、直交する2種類の磁界によって自由層の磁化の向きを回転させることにある。2種類の磁界が加わるのは選択セルだけで、ワード線あるいはビット線を共有するセルには、1種類の磁界しか加わらず、磁化反転が起こらない。したがって余裕(マージン)を持ってデータを書き込める。この余裕が、高い信頼性を支えている。



自由層は2層構造、各層で磁化の向きは180度逆である。





7. スピン移行トルクと STT-MRAMの 製品化

コイルなしに電気で磁気を変える

スピン注入磁化反転

強磁性電極F1の
磁化

伝導電子のスピン

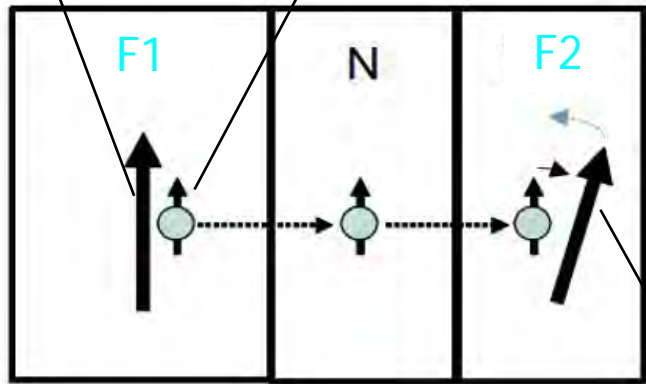


図9スピン移行トルクの説明図

強磁性電極F2の
磁化

- ▶ 1996年、新たなスピントロニクス分野としてスピン移行トルクによるスピン注入磁化反転のアイデアがSlonczewski¹¹⁾およびBergerら¹²⁾によって提案され、実験的に検証されました。図9に示すように、強磁性電極F1からスピン偏極した電流を、非磁性層Nを通して傾いた磁化をもつ対極強磁性電極F2に注入すると、注入された電子のスピンがF2の向きに傾けられますが、その反作用として電子が持っていた**スピントルク**が**F2の磁化に移行**して、それがきっかけで磁化反転をもたらすとされています。

- ▶ 開発当初は 10^8A/cm^2 という大電流密度を必要としたので、実用は無理であろうと言われましたが、現在ではCoFeB/MgO/CoFeB**垂直磁化**のTMR素子を用いて実用可能な 10^6A/cm^2 台の電流密度にまで低減することができるようになりました¹³⁾。

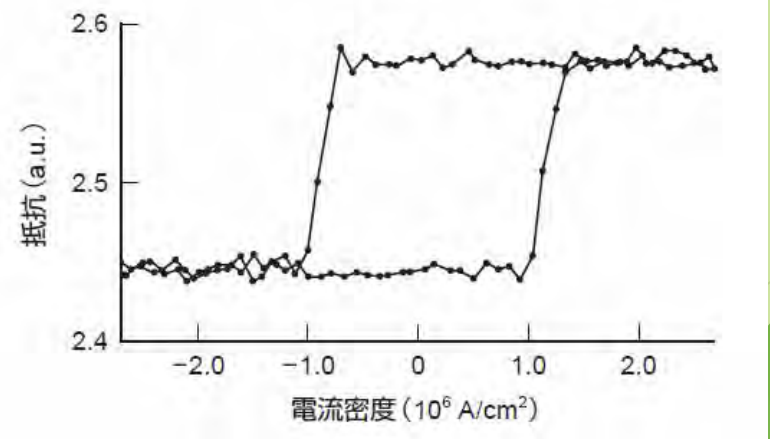
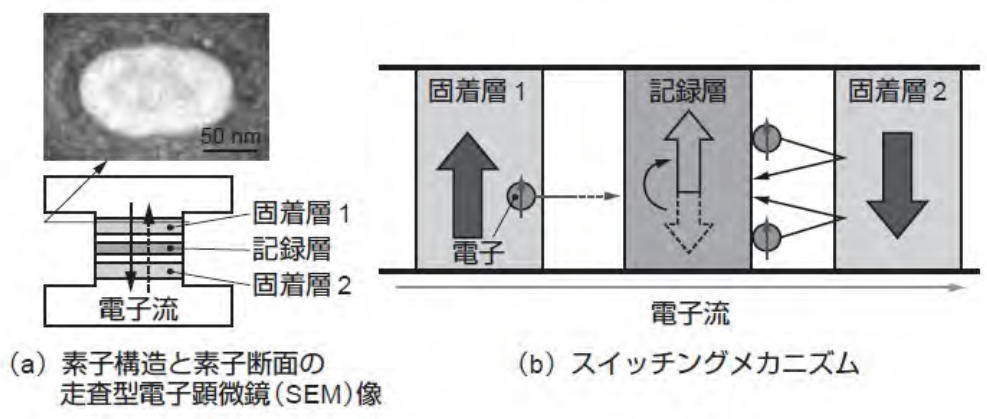
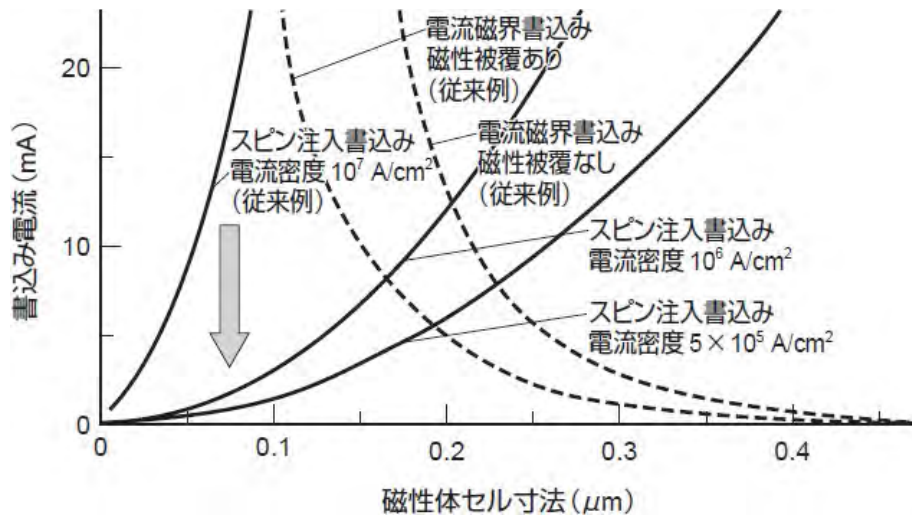
11) J. Slonczewski: J. Magn. Magn. Mater. 159, L1 (1996)

12) L. Berger: Phys. Rev. B 54 (1996) 9353.

13) S. Ikeda et al.: Nature Mater. 9, 721 (2010).

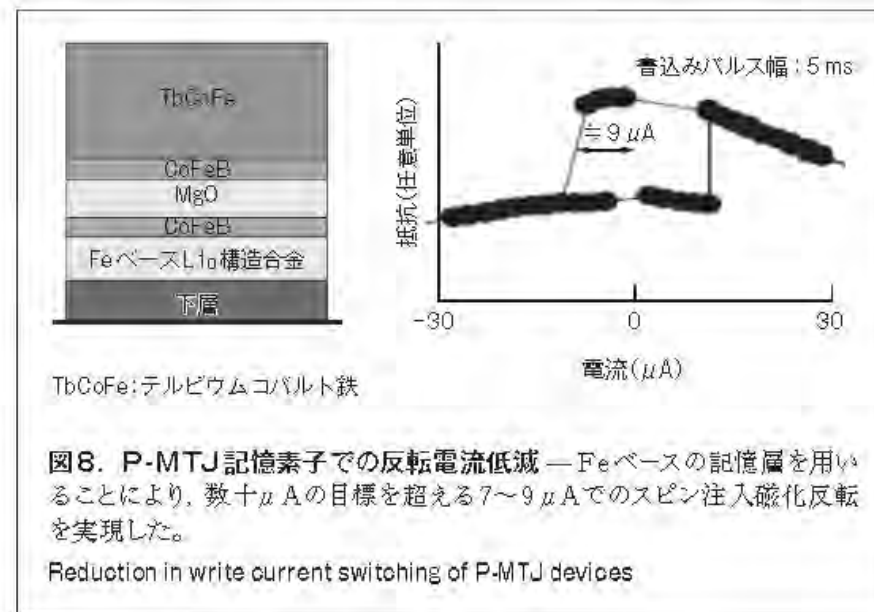
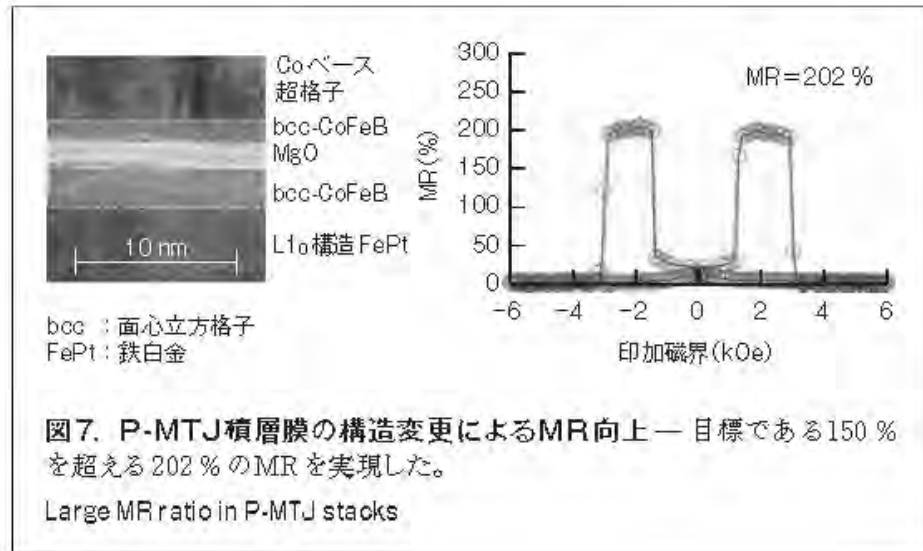
スピン注入磁化反転のメリット

- ▶ スピン注入磁化反転は、反転電流は素子面積に比例し、素子面積が小さいほど低電力化が可能になる。
- ▶ 素子寸法が $0.2\mu\text{m}$ 以下になると、電流磁界書き込みよりも書き込み電流が小さくなる。



中村他：東芝レビュー-Vol.61 No.2 (2006)

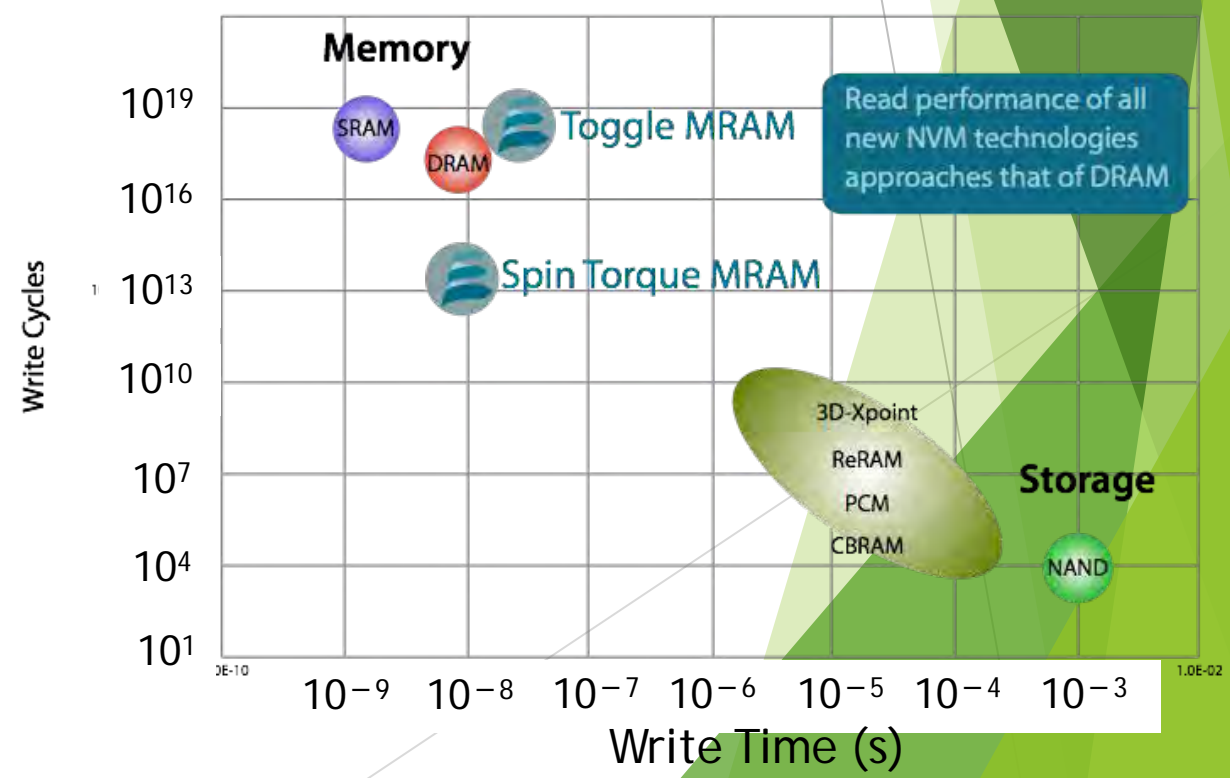
垂直磁化方式のMTJ記憶素子のブレークスルー



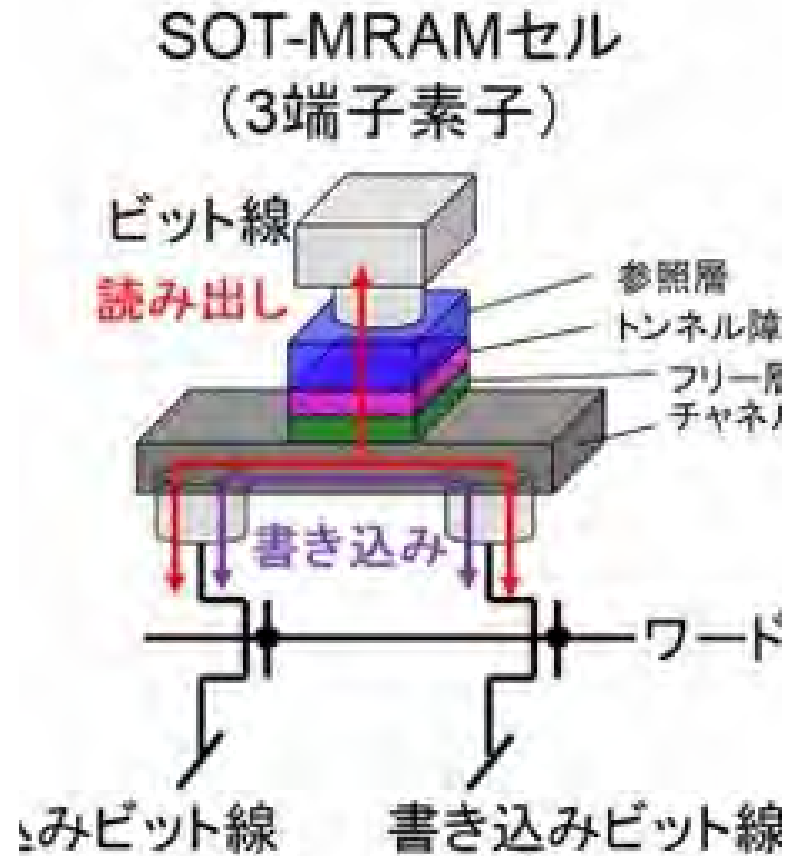
- ▶ 與田博明（東芝）：垂直磁化方式のMTJ記憶素子を用いたスピン注入書き込みMRAM；東芝レビュー2011/09による

STT-MRAM市販

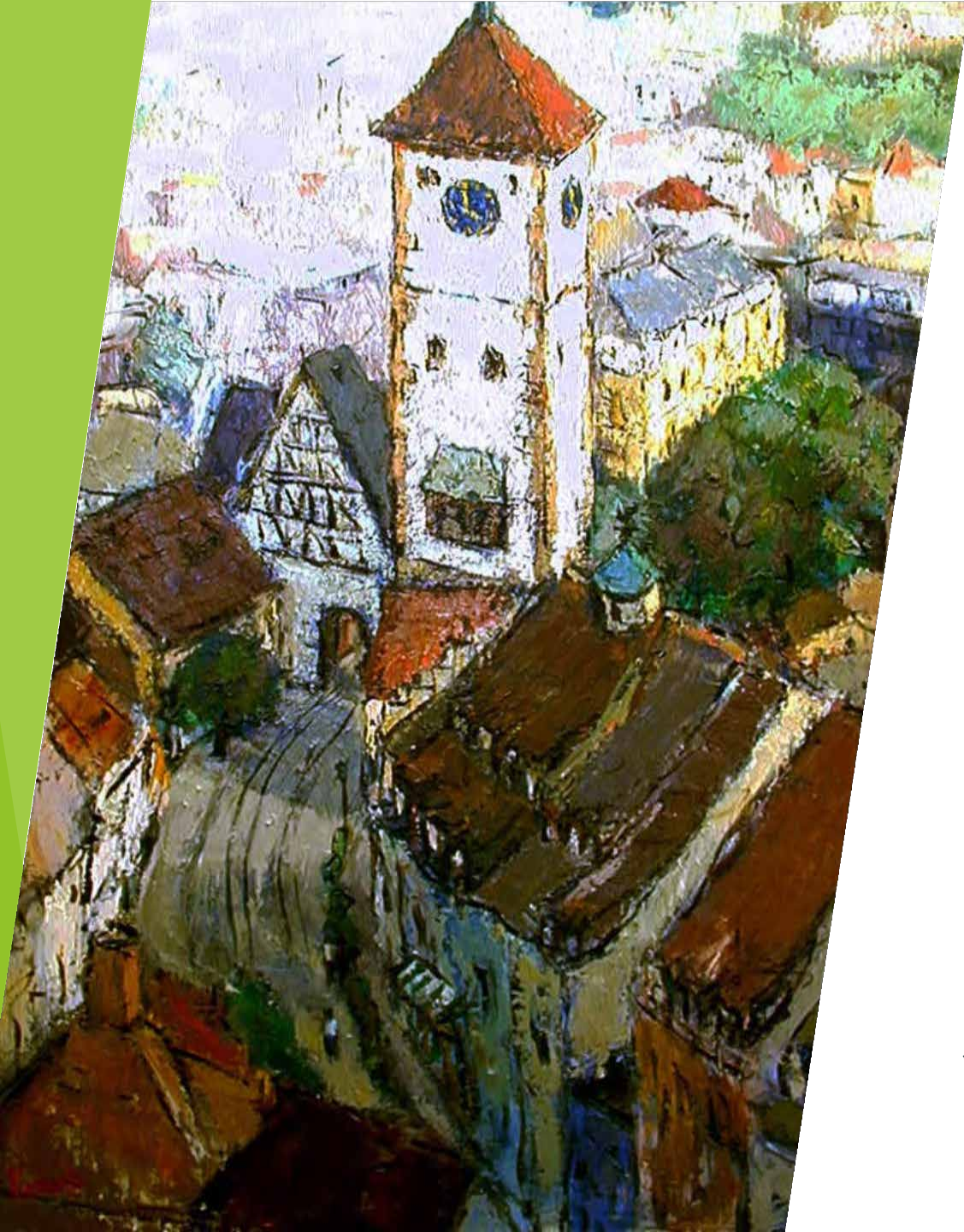
- ▶ STTを使うと、MTJ素子に電流を流すことによって磁化反転でき、微細化すれば電流密度も小さくできるので、高集積化することが可能になりました。
- ▶ STTを用いたMRAMはSTT-MRAMと呼ばれます。米国エバースピンテクノロジー社は256 Mbitおよび1MbitのSTT-MRAMを市販しています¹⁴⁾。
- ▶ 最近になり、スピン流を用いたスピン軌道トルク(SOT)磁化反転を用いたMRAMの開発が進められ、注目を集めています¹⁵⁾。



スピン軌道トルクMRAM SOT-MRAM



- ▶ スピンホール効果あるいはスピン軌道相互作用によるラシュバトルクを用いることで、現在実用化が進むSTT-MRAMに比べて高効率のMRAMが作れることが期待されている。
- ▶ 原理的に3端子であるため書き込みラインと読み出しラインを分離できるという回路上の利点もある一方で、素子サイズが大きくなるという問題も抱えている。
- ▶ 近年、その高速性、高信頼性を生かしたSRAM置き換えの研究開発が進んでいる。
- ▶ MRAMによりキャッシュを不揮発にすることで携帯端末などの省エネルギー化も期待されている。



8.STTの動的解析と スピントルク発振子

スピントルクで磁気モーメントを反転できるわけ

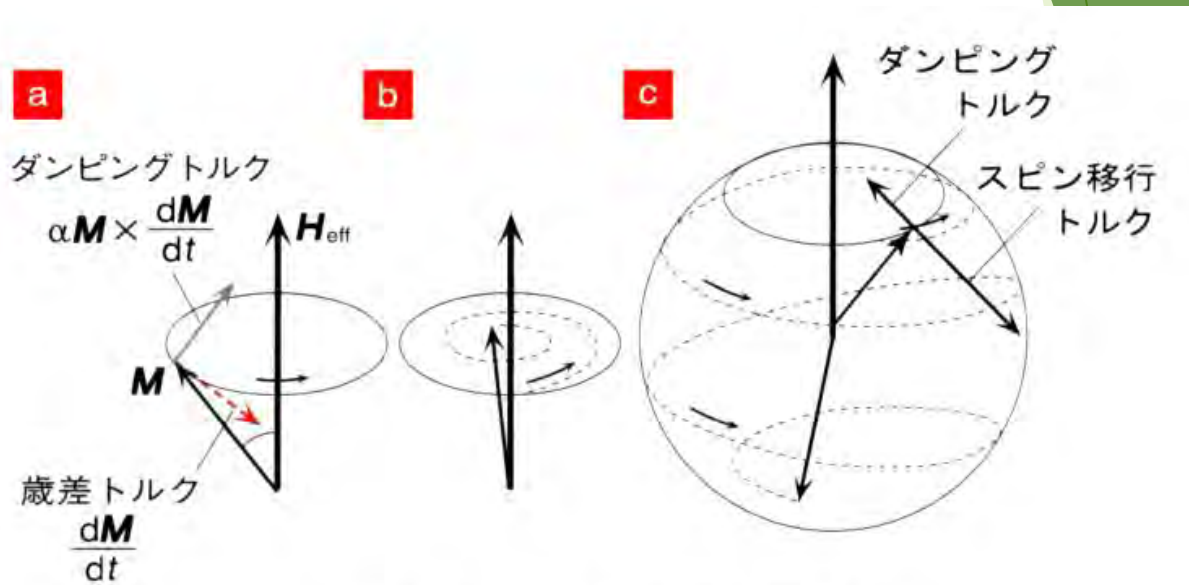


図10 スピン移行トルクと歳差運動

▶ 伝導電子のもつわずかなスピントルクだけで、なぜ相手の磁性体の磁気モーメントを反転できるのでしょうか。それは、磁気モーメントが歳差運動をする力を使うからできるのです。

▶ 図10に示すように、磁性体の磁気モーメント M は、外部磁場 H_{eff} を加えるとその外積 $M \times H$ で表されるトルクを受けて歳差運動を始めます。

▶ そして、 $M \times dM/dt$ に比例するダンピングトルクを受けて回転しながら次第に磁界方向に傾いていきます。

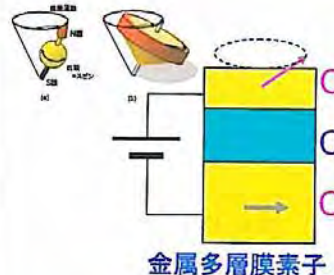
▶ スピン移行トルクがダンピングトルクより大きくなると歳差運動が増幅され、ついには反転してしまいます。このように歳差運動の助けを借りて反転するので少ない電流での磁化反転が可能なのです。

STO(スピントルク発振子)

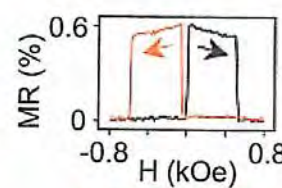
- ▶ もし、この磁気モーメントが、ダンピングトルクを丁度打ち消すような方向のスピントルクを伝導電子スピから受け取ると、歳差運動はいつまでも続きます。これがスピントルク発振素子(STO)です。
- ▶ スピン注入磁化反転を起こす素子において外部磁界で磁化反転を阻止すると、歳差運動が一定振幅で起きます。
- ▶ 素子の抵抗はGMR効果を通じて、歳差運動の振動数で振動するので一定電流を流すと、素子の電圧がこの振動数で変化します。これが、スピントルク発振素子(STO)です。
- ▶ S.I.Kiselev et al., Nature 425 (2003) 380.

スピントルク発振器：最初の報告

2003年 Cornell大学



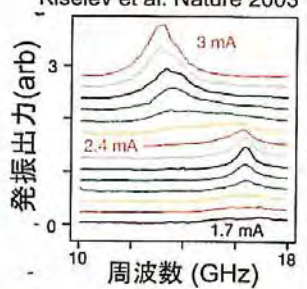
金属多層膜素子



MR (%)

H (kOe)

磁気抵抗(MR)比が小さい



発振出力(arb)

周波数 (GHz)

Kiselev et al. Nature 2003

特徴

- ・ マイクロ波の自励発振
共振器, フィルター回路不要
- ・ サブミクロン, 基板を選ばない
小型, 低コスト
- ・ 周波数可変 (電流, 磁界)
1素子で複数の帯域をカバー

課題

- ・ 出力の増大: pW→μW
金属多層膜素子
磁気抵抗比 < 1%
- ・ 半値幅制御→Q値の増大

MgOトンネル接合(MTJ)素子



CoFeB
MgO
CoFeB

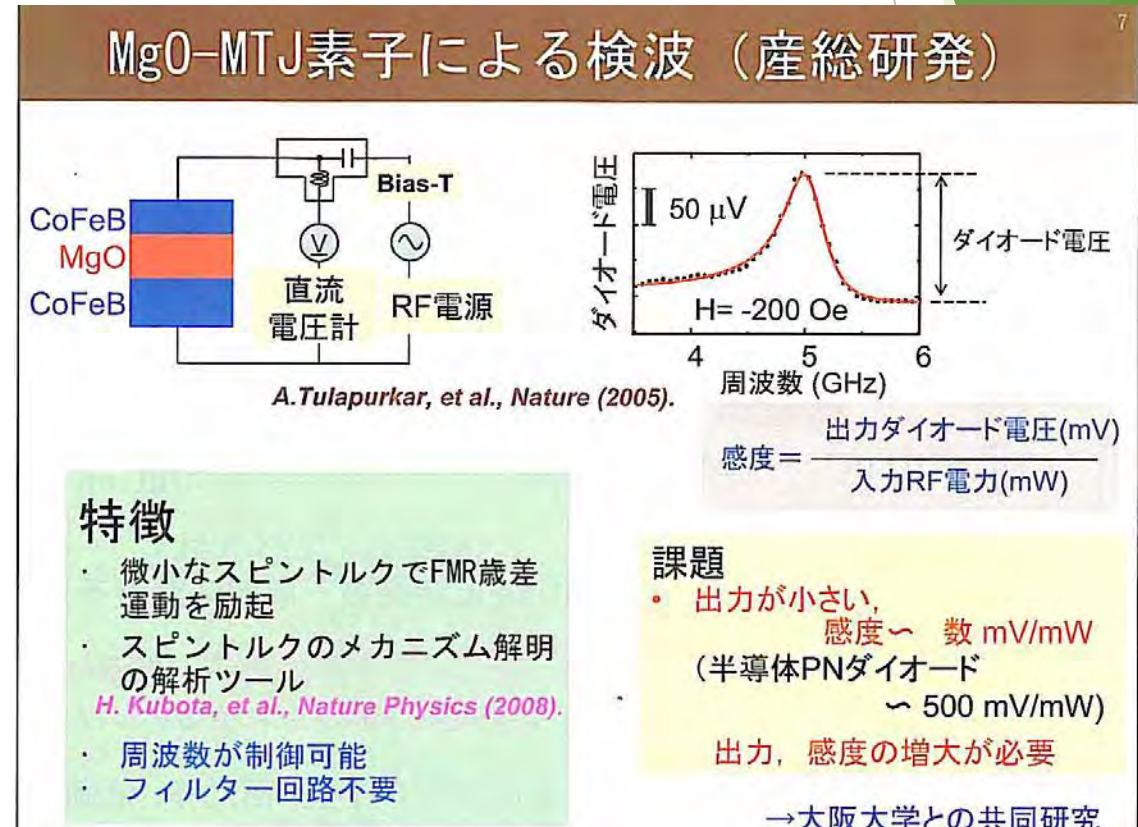
100 nm

素子サイズが小さい
GHzを直接発振→周波数通倍不要

産総研の開発動向 →

STD(スピントルクダイオード)

- ▶ 産総研グループは、スピン注入磁化反転を起こす素子に高周波電流を流すと、抵抗がその周波数で変化し、素子電圧には、直流成分が現れることを発見。
- ▶ この整流作用をスピントルクダイオード効果と名付けました。単純な素子でマイクロ波の検波ができるので応用上注目されます。
- ▶ A.A. Tulapurkar et al., Nature 438 (2005) 339.



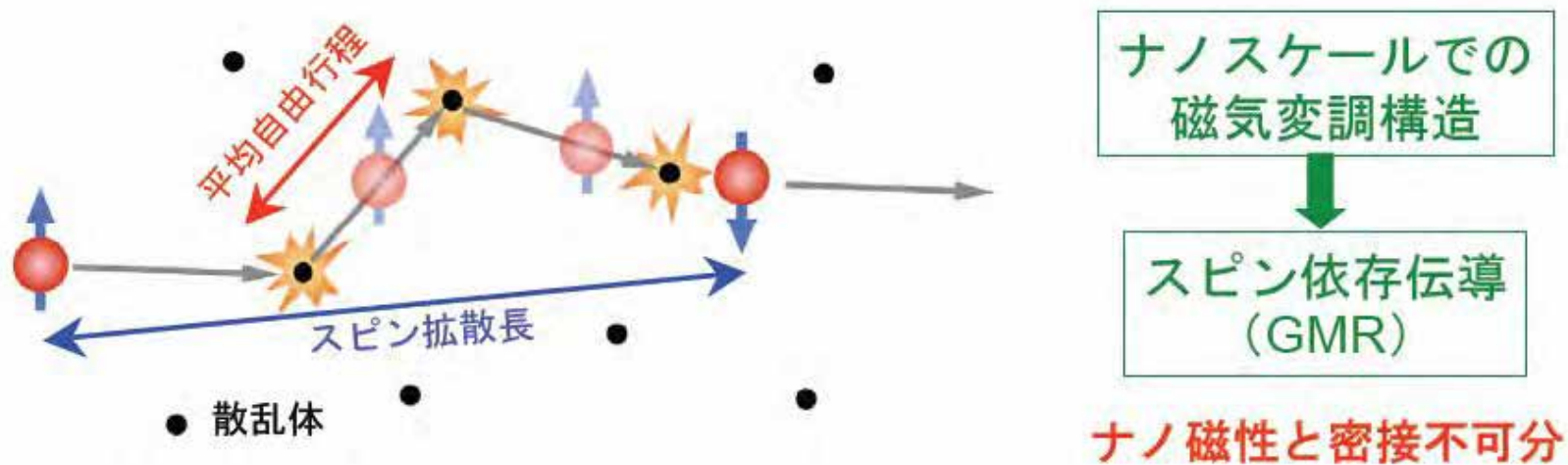
トンネル接合に高周波を加えると直流電圧が出る



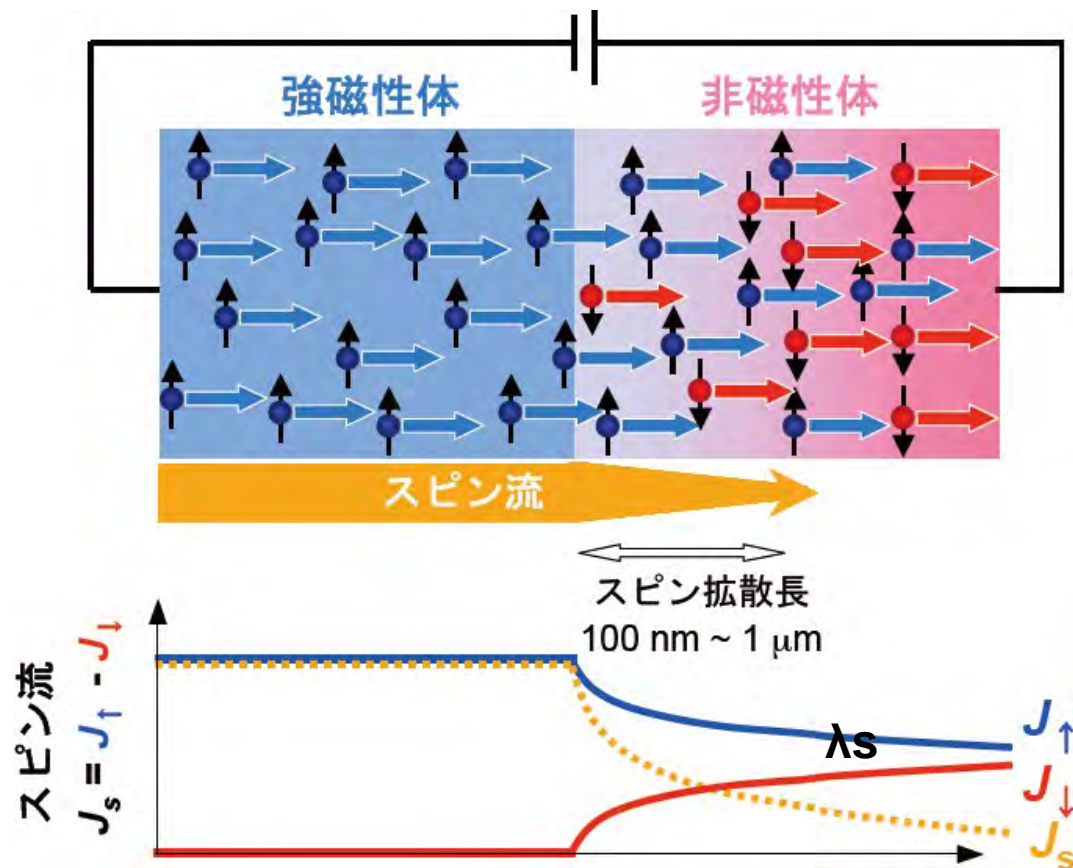
9. スピン流が 拓く新しい物理

大きなトピックス：「スピン流」

- ▶ 電荷の流れとしての電流は、平均自由行程（1-10nm）で表される散乱を受けるのですが、スピンの流れは電子の不純物やフォノンとの衝突の際にあまり散乱を受けないためスピン拡散長は平均自由行程よりかなり長く、強磁性金属で5-10nm、非磁性金属では100nm-1 μ mもあります。



(1) 電流を伴うスピン流



- ▶ 非磁性体の中では本来↑スピンと↓スピンの電子の数は等しいのです。
- ▶ 強磁性体から↑スピンをもつ電子が非磁性体への移動すると、界面からスピン拡散長 λ_s 離れたところまでは↑スピンの数と↓スピンの数がアンバランスな状態が生じます。
- ▶ このことをスピン注入が起きているといいます。

図11 強磁性体と非磁性体の界面に存在するスピン流

(2) 電流を伴わないスピンの流：純スピン流

- ▶ ↑スピンの電荷の流生しませ
- ▶ ここで、
- ▶ ↑スピンの流れ
- ▶ 純粋スピン

$J_e = J_{\uparrow} + J_{\downarrow} = 0$

J_s

非局所スピン注入
スピンホール効果

ピンの電子が左方向に進むとすれば、この場合ジュール熱による損失は発生しませ
 ますから、 $J_{\uparrow} - J_{\downarrow}$ で定義されて流れるのです。
 なしに情報が伝送でき

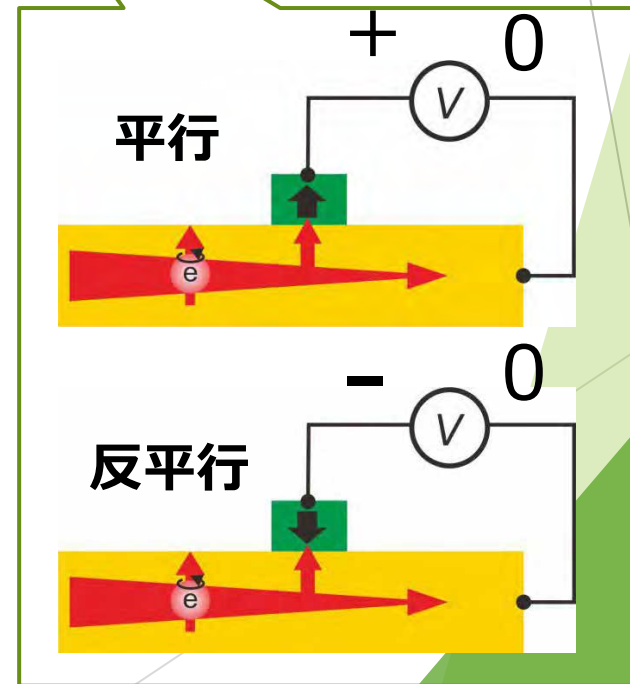
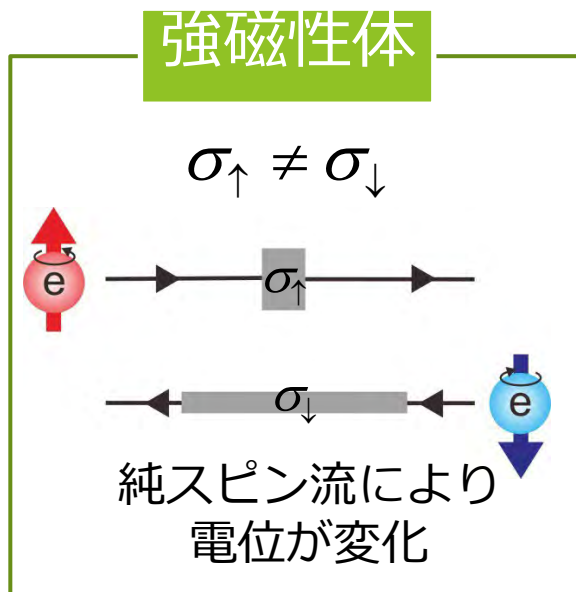
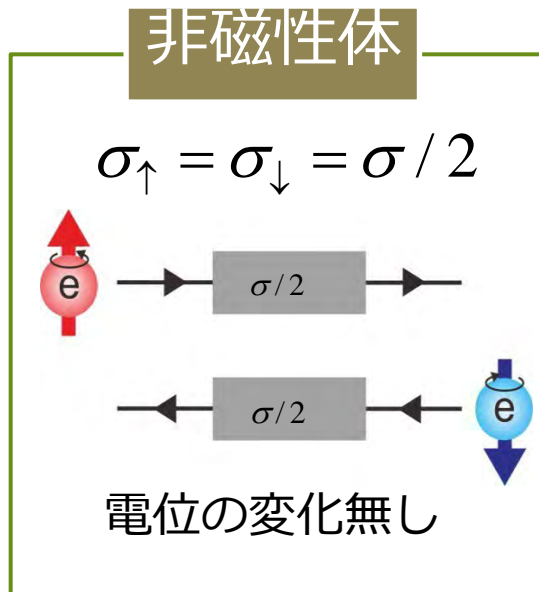
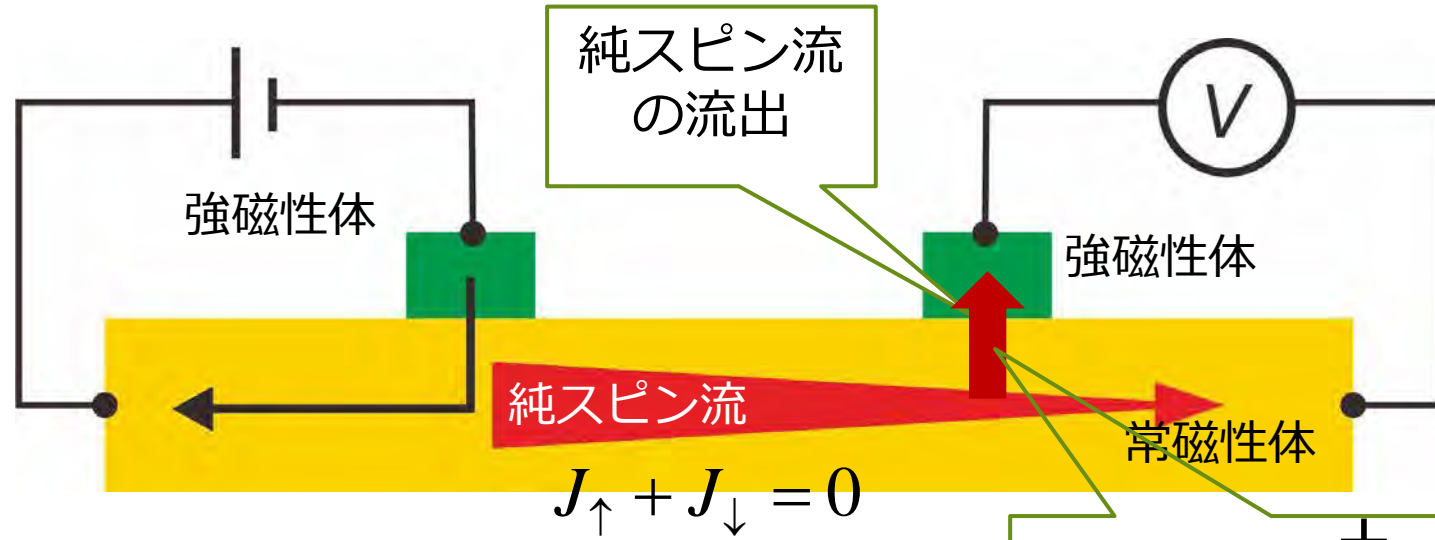
図12 電流を伴わないスピン流

ます。

スピン流の特徴と応用

- ▶ ふつうの電流は保存量です。回路をつくると必ず戻ってきます。
- ▶ 一方、スピン流は、上向きスピンの流れと下向きスピンの流れの差なので、スピンを注入してもいつかは緩和してしまいます。
- ▶ スピン緩和長は数10nmからサブ μm 程度なので、ずっと前の電磁気学においては、考慮する必要のない量として無視されていました。
- ▶ 最近になってスピン緩和長と同程度かそれ以下のサイズのデバイスが当たり前になってくると、スピン流を無視できなくなりました。
- ▶ それどころか、スピン流を積極的に利用しようというのが、スピントロニクス of 新しい流れなのです。
- ▶ 前のスライドで述べたように純粹スピン流を用いれば、電流によるジュール熱の損失なしに情報伝送ができるはずだからです。

純スピン流の発生と電気的検出



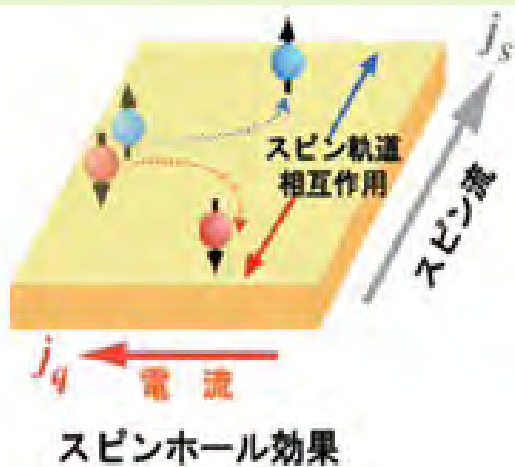


10. スピンホール効果と 逆スピンホール効果

スピン流と電流の変換

- ▶ 図(a)に示すようにPtなどスピン軌道相互作用の大きな金属に電子を流すと上向きスピンの電子と下向きスピンの電子の流れがスピン軌道相互作用で逆に曲げられ、電流と垂直の方向にスピン流が生じます。これをスピンホール効果と呼びます¹⁷⁾。

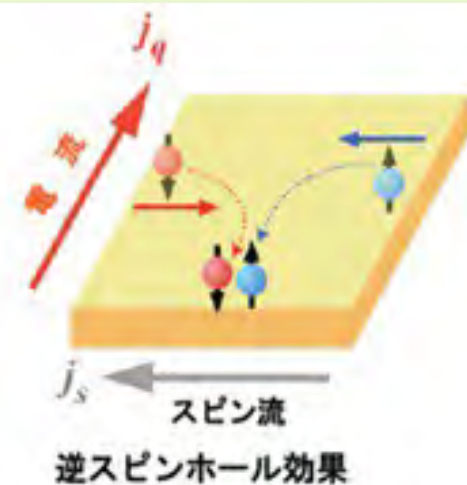
17) M.I. Dyakonov et al.: JETP Lett..13 467 (1971)



図(a)

- ▶ 図(b)のように何らかの形でスピン流がPtなどに流れ込むと、スピン流と垂直方向に電場を生じます。この現象を見出した齋藤は、逆スピンホール効果と名付けました¹⁸⁾。逆スピンホール効果を使うことによって、さまざまなスピン流を電圧に変換して観測できるようになりました。

18) E. Saitoh et al.: Appl. Phys. Lett..88, 182509 (2006).



図(b)

非局所配置を用いた逆スピンホール効果 実験の模式図

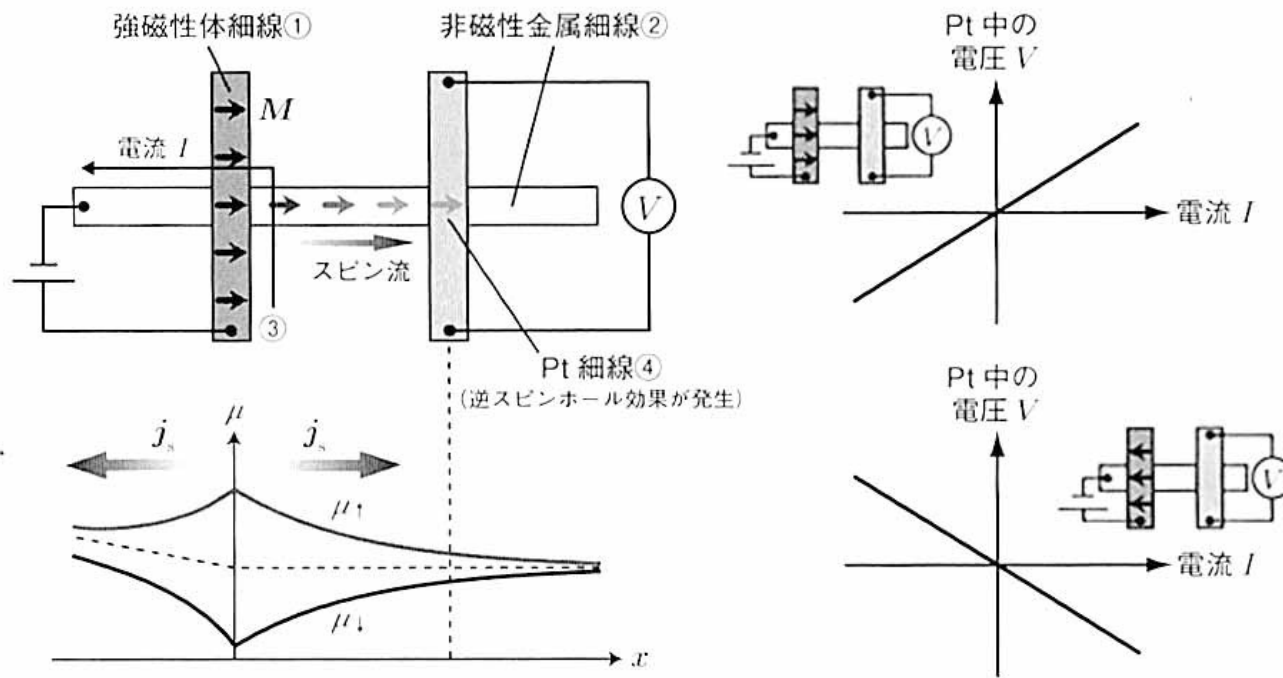
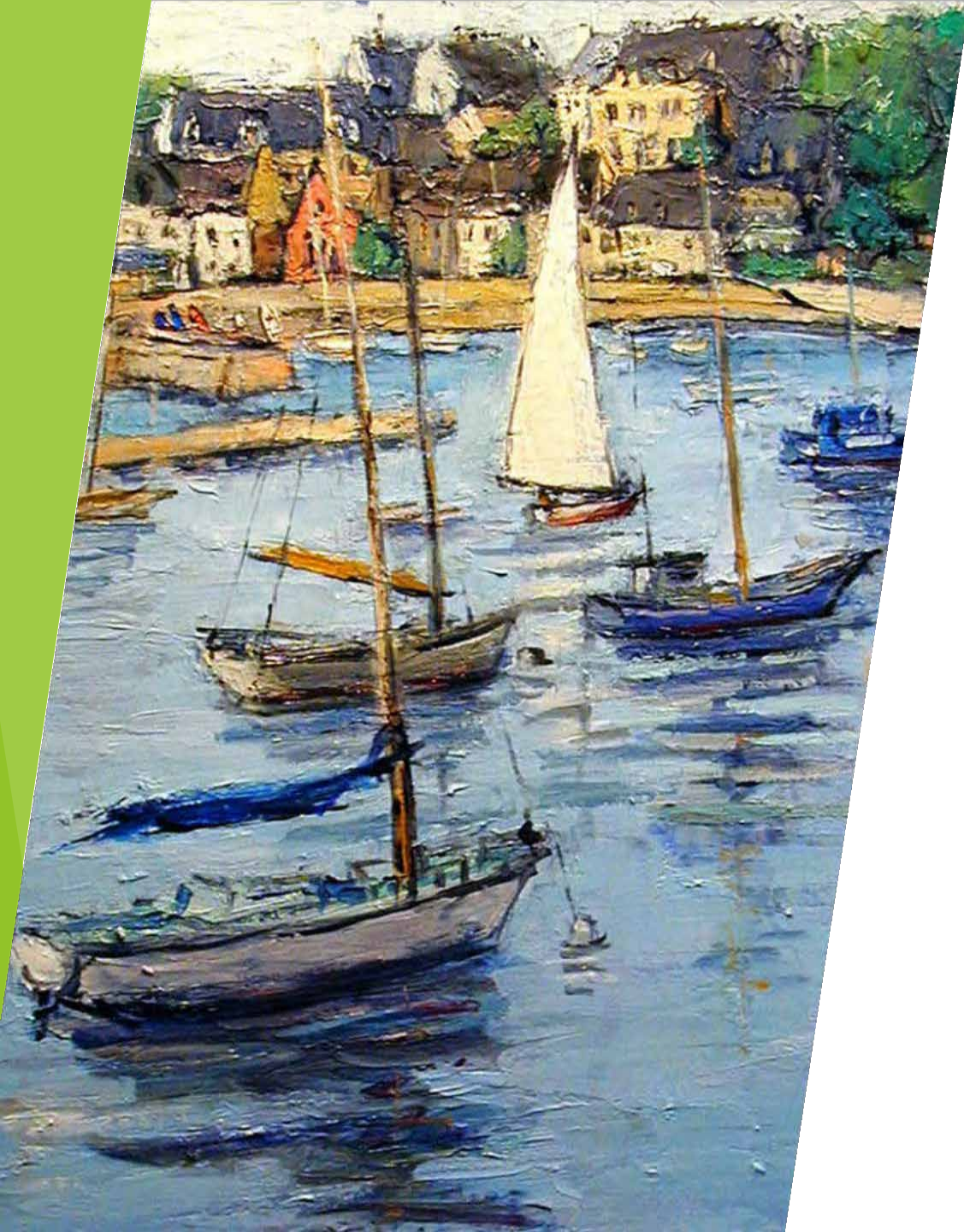


図 4.4 非局所配置を用いた逆スピンホール効果実験の模式図。右図はそれぞれ強磁性金属 ① の磁化が右向きおよび左向きの条件で、電流 I を ③ に沿って流したときに右側の白金 (Pt) 細線 ④ の両端に生じる電圧信号 V である。電流は ③ に沿って流れるが、スピン拡散長は十分に長いため、スピン蓄積が非磁性金属 ② 中を拡散し Pt 細線 ④ まで到達し、スピン流を注入する。このスピン流による逆スピンホール効果電圧が検出された。



11. スピン ゼーベック効果 と スピン量子整流

スピンゼーベック効果

- ▶ 強磁性体に温度勾配をつけると熱流によるスピンの流が生じます。このスピン流をスピン軌道相互作用の大きな金属に注入すると、逆スピンホール効果によって電圧に変換することができます。これをスピンゼーベック効果と呼びます。内田らは、図15の上図に示すように、温度勾配をつけたパーマロイにPt電極を付けることによって、この効果の観測に成功しました¹⁹⁾。
- ▶ 図15の下図右に示すように、温度勾配の低温側と高温側でスピンゼーベックの符号が反転しています。

19) K. Uchida et al.: Nature 455, 778 (2008).

強磁性体としては、パーマロイなどの金属だけでなく、磁性ガーネットのような絶縁性の磁性体でも観測されます²⁰⁾。この場合のスピン流に電子の流れは関与せず、磁性原子の局在スピンの振動が波として伝播するスピン波スピン流と考えられています。

20) K. Uchida et al.: Appl. Phys. Lett. 97 172505 (2010).

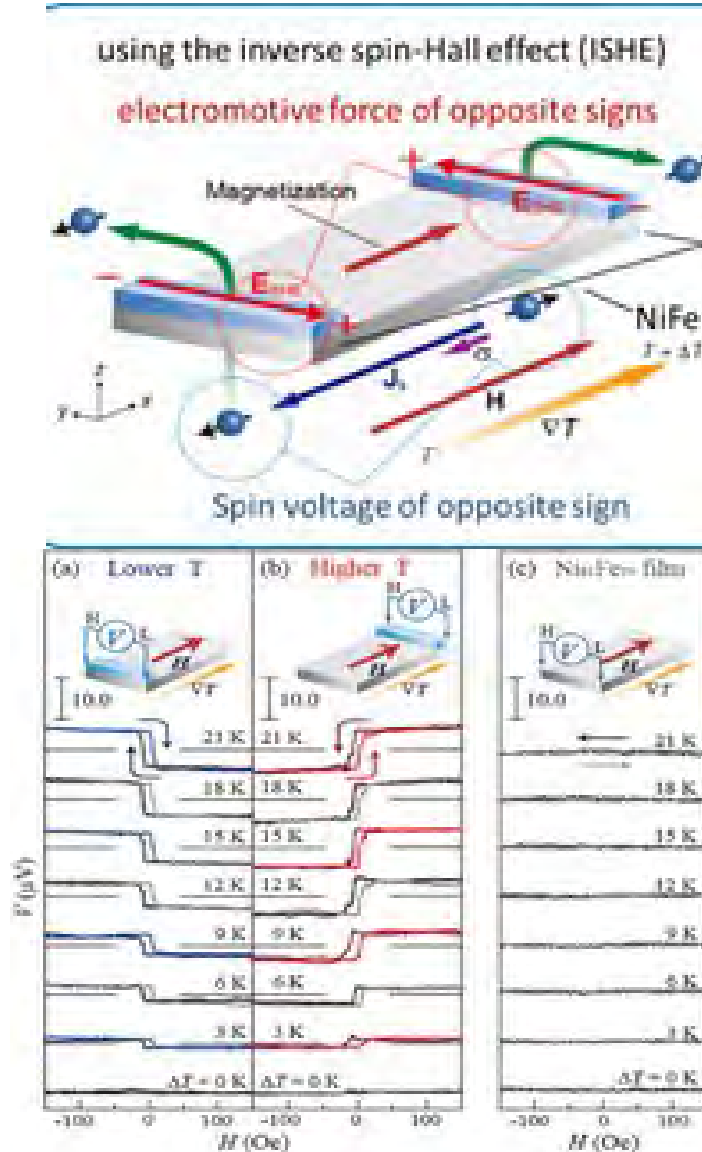
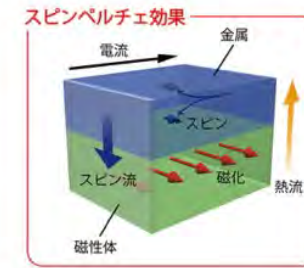
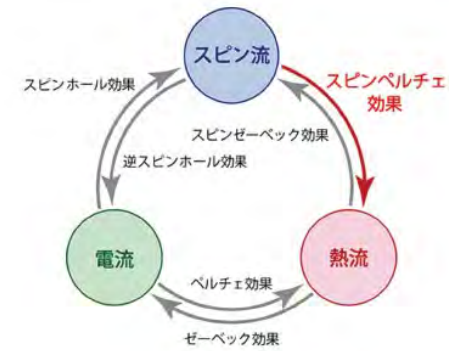


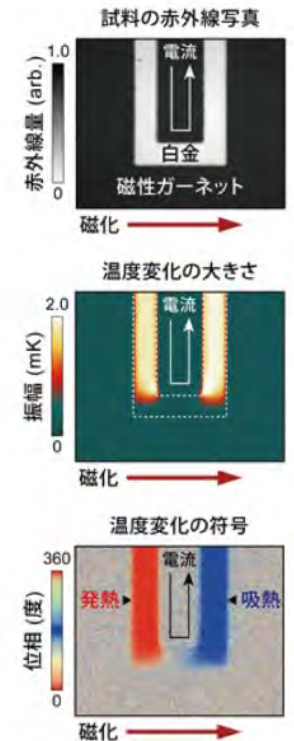
図15 Pt電極をつけたパーマロイにおけるスピンゼーベック効果

スピネルチエ効果

- ▶ スピネルチエ効果による物質中の温度変化を可視化することに世界で初めて成功しました。熱は物質中を伝播し拡散していく、というのが従来の熱現象ですが、今回スピネルチエ効果によって生じる温度変化は周囲には広がらず、局所的に生じるということが明らかにしました。
- ▶ 物質中には様々な流れが存在します。電気の流れが電流、熱の流れが熱流、そして磁気の流れがスピン流です。これらの流れは相互に作用し、変換することができます。(図1) スピネルチエ効果とは、スピン流^{注1)}によって温度変化を引き起こす現象であり、磁性体と金属の接合構造に電流を流すことによって発現します。しかし、これまで試料中に流れる電流に由来するジュール熱による温度変化との分離が難しいため、どのような温度分布が生じているのかは明らかにされていませんでした。
- ▶ 今回、スピネルチエ効果を測定するため、金属薄膜と磁性ガーネットの接合構造を用いた試料を作成しました。金属薄膜に電流を流すと、電流と垂直方向にスピン流が生成されるスピンホール効果が発現し、接合界面にスピン流が生じます。これによりスピネルチエ効果が生じて界面に流れるスピン方向に依存して加熱、もしくは冷却が起こります。この時に生じる温度変化をロックイン・サーモグラフィ法とよばれる手法を用いて観測をおこないました。



実験の結果、金属と磁性ガーネットの接合界面上に明瞭な温度変化が観測されました(図2)。スピネルチエ効果による温度変化は金属薄膜の部分のみに生じており、その周囲には広がっていないことがわかります。この振る舞いはジュール熱などの通常の熱源による温度変化が熱流に伴って広がっていくことは対照的です。



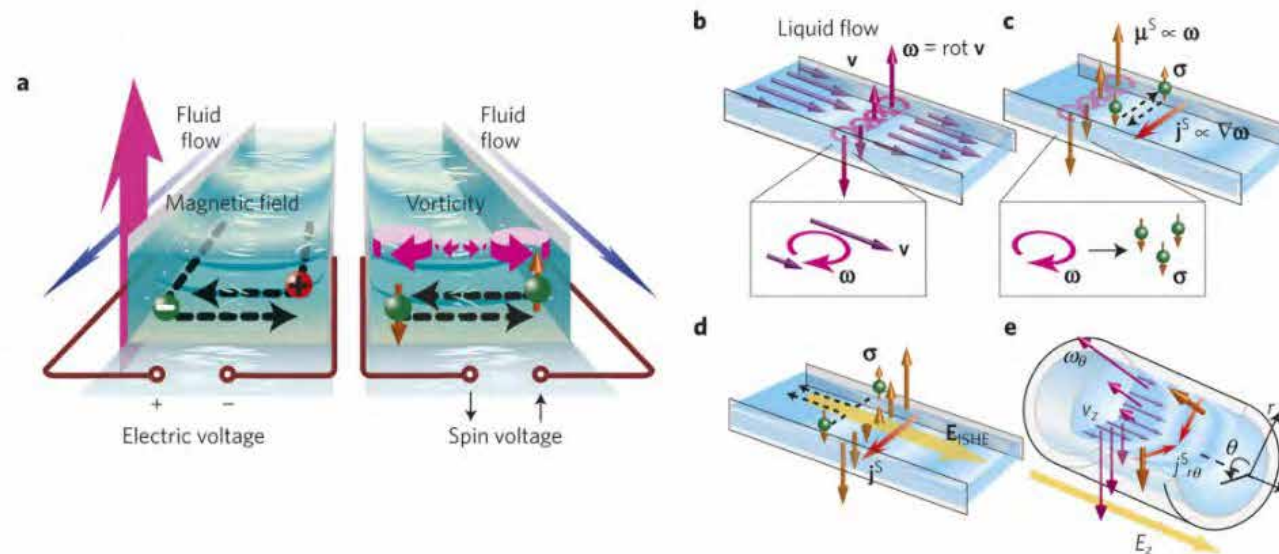
スピン量子整流

- ▶ 電流は時間を反転すると逆方向に流れますが、スピン流は時間反転対称性がないので変わりません。物質のランダムな運動をスピン流として一方向に整えれば、外部から大きなエネルギーを加えることなく、別のエネルギーに変換したり情報処理したりできるようになります。
- ▶ 管に液体金属を流すだけで、管の壁付近で液体金属中に渦運動ができ、電気エネルギーを取り出せるという、驚くべき現象も発見されています²¹⁾

21) R. Takahashi et al.: Nature Phys. 12, 52 (2016)

Figure 1: Concept of spin hydrodynamic generation.

From: Spin hydrodynamic generation





スピントロ ニクス最近 の展開

スピン軌道トルクMRAM

電圧駆動MRAM

電圧駆動スピントロニクスメモリ

高感度磁場センサ

スピンMOSFET

シリコンスピントロニクス

トポロジカルスピントロニクス

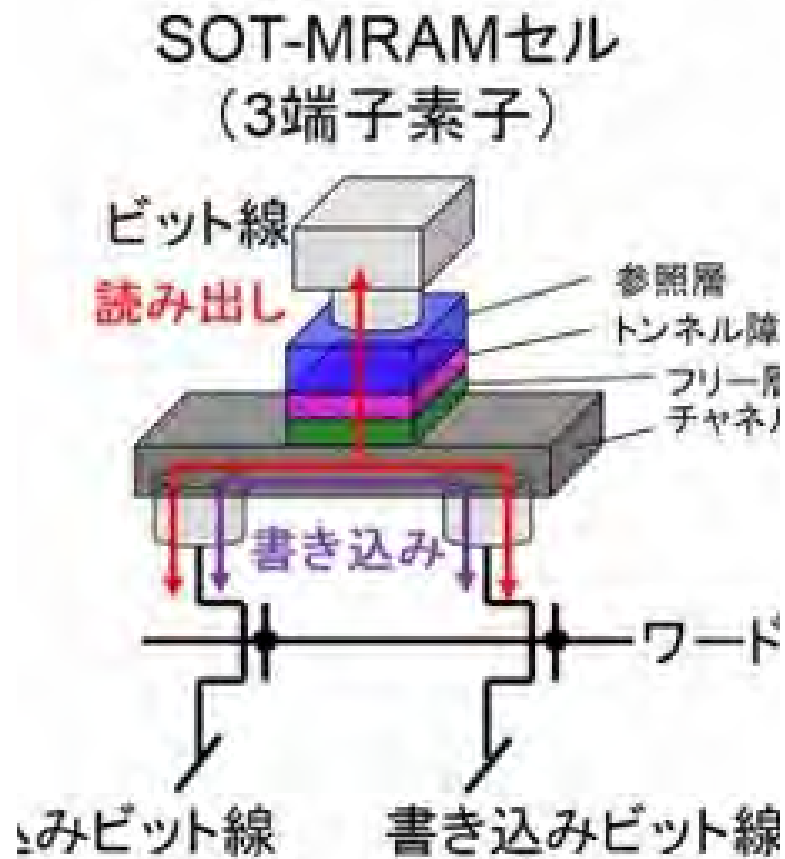
ニューロモルフィックスピントロニクス

垂直熱電相互変換

超伝導トポロジカル量子整流

フレキシブルスピントロニクス

スピン軌道トルクMRAM SOT-MRAM

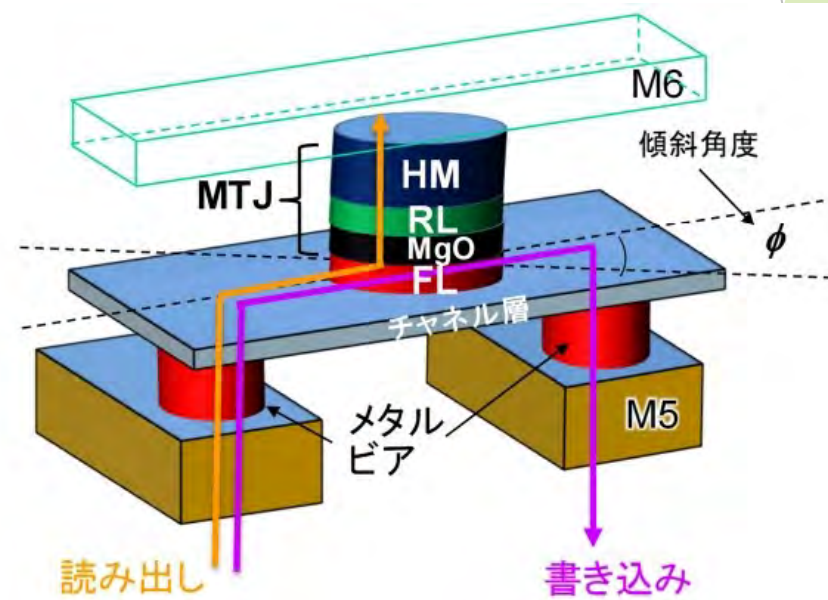


- ▶ スピンホール効果あるいはスピン軌道相互作用によるラシュバトルクを用いることで、現在実用化が進むSTT-MRAMに比べて高効率のMRAMが作れることが期待されている。
- ▶ 原理的に3端子であるため書き込みラインと読み出しラインを分離できるという回路上の利点もある一方で、素子サイズが大きくなるという問題も抱えている。
- ▶ 近年、その高速性、高信頼性を生かしたSRAM置き換えの研究開発が進んでいる。
- ▶ MRAMによりキャッシュを不揮発にすることで携帯端末などの省エネルギー化も期待されている。

東北大学、SOT-MRAMセルの動作実証に成功 (EE Times Japan 2019年12月12日)

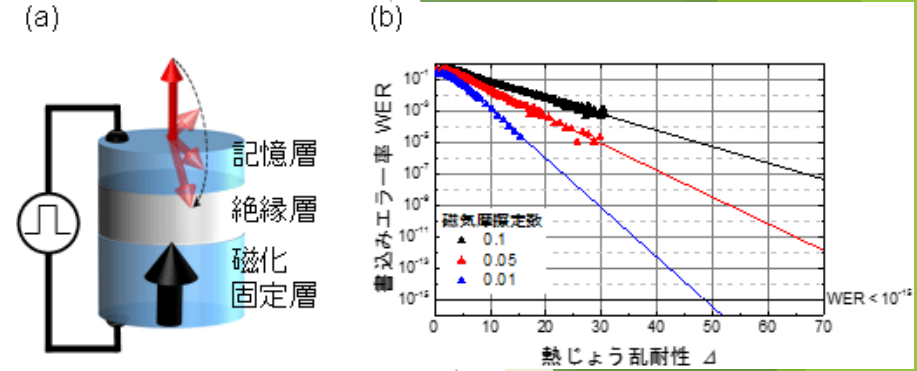
- ▶ 東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター (CIES) の遠藤哲郎センター長と同電気通信研究所の大野英男教授 (現総長) らの研究グループは2019年12月、400°Cの熱処理耐性と無磁場で350ピコ秒の高速動作、10年間データ保持を可能とする熱安定性を実現した。
- ▶ この素子はSOTを用いたMRAMである。MTJの下部に設けたチャンネル層に電流を流し、チャンネル層に隣接する強磁性体のみ磁石方向を反転させる方式。書き込み速度が速く、SRAMを代替する技術として注目されている。

- ▶ チャンネル層のタングステン (W) に電流を流すとスピン軌道トルクが生じ、隣接した強磁性体のCoFeB層の磁化方向を反転させることで情報を記録する。チャンネル層に対してMTJを傾けると無磁場での書き込みが可能になるという。

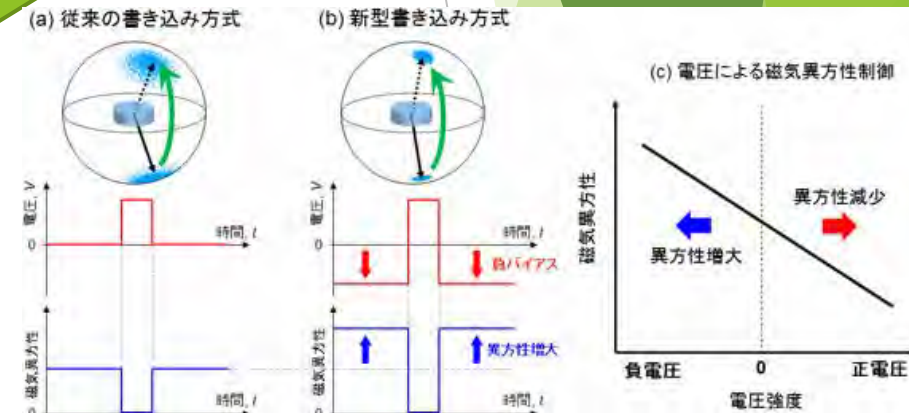


2.2 電圧駆動MRAM 電圧トルク書き込み

- ▶ 現在、実用化が進んでいるSTT-MRAMやスピン軌道トルクを用いるSOT-MRAMは電流が作る磁界を書き込みに使う場合に比べて非常に低消費電力となるものの、電流を用いてスピン流を発生するためにジュール熱によるエネルギー散逸を伴う。
- ▶ 一方、電圧電界誘起磁気異方性変化によるトルク（電圧トルク）を書き込みに用いる新しい不揮発性メモリ「電圧駆動MRAM」は、電流をほとんど流さずに電圧のみで書き込むため、理論的にはさらに2桁程度小さなエネルギーでの書き込みが可能となる。
- ▶ 近年、電圧パルスによる高速双方向磁気書き込みが実験的に示されたこと、 10^{-7} 台のエラーレートが実証されたことで、実用化の可能性が高まっている。



産総研プレスリリース2015.12



産総研プレスリリース2016.12

Rashba効果

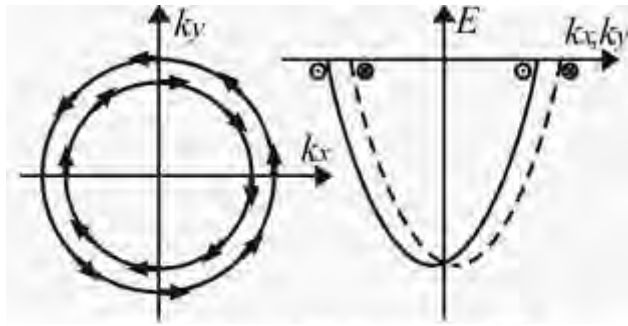
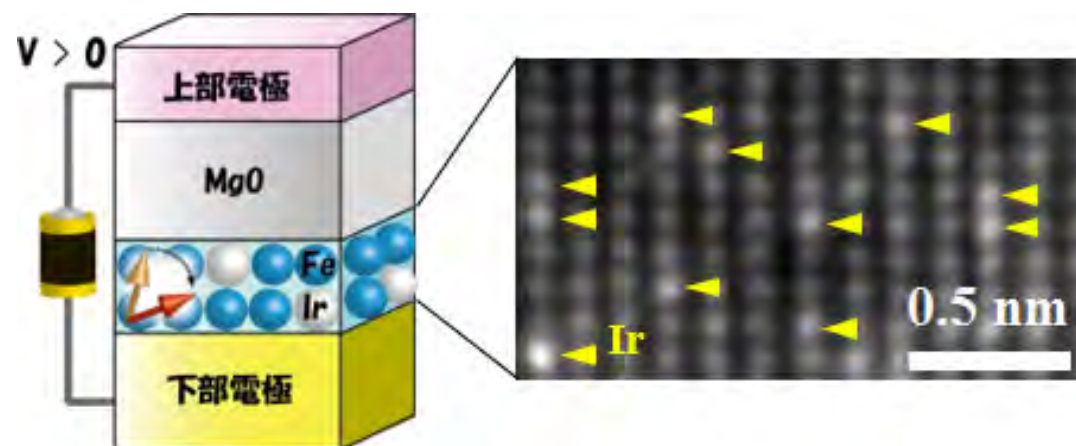


図1 2次元自由電子におけるラッシュバ効果

- ▶ 1960年にE. Rashbaによって提唱された効果。界面や表面などの系は、面の法線に垂直な方向に2次元系を形成している。この2次元電子系において、面直方向（面に垂直な方向）に電位差を与えることによって非磁性体であってもスピン偏極電子が生じ、電子スピンについて縮退していた電子状態にスピン分裂が現れる現象で、分裂した電子バンドが観測される（図1）。
- ▶ 電子の波数ベクトルは表面平行方向であり、スピン偏極ベクトルは二次元面内のみを向いている。面直方向の対称性が破れていることによってその方向に電位差が生じ、スピン偏極電子が生じる。
- ▶ この効果においては、表面での「空間反転対称性の破れ」と「表面電場の効果」が重要となる。
- ▶ 界面においてもこの効果は観測されており、スピン偏極ベクトルの方向が2次元面内に制約する効果をもつ。
- ▶ この効果は、電子が光の速度に近い高速で運動することにより現れる相対論効果の一つであり、スピン軌道相互作用を起源とするものである。
- ▶ これまでマクロな現象においては大きな関心を集めていなかったが、近年、電子デバイスなどの微細化が動機付けとなり、微細加工技術の進歩および観測実験技術の進歩とが相まって、このような効果を積極的に解明し、電子デバイスに応用する必要性が求められている。

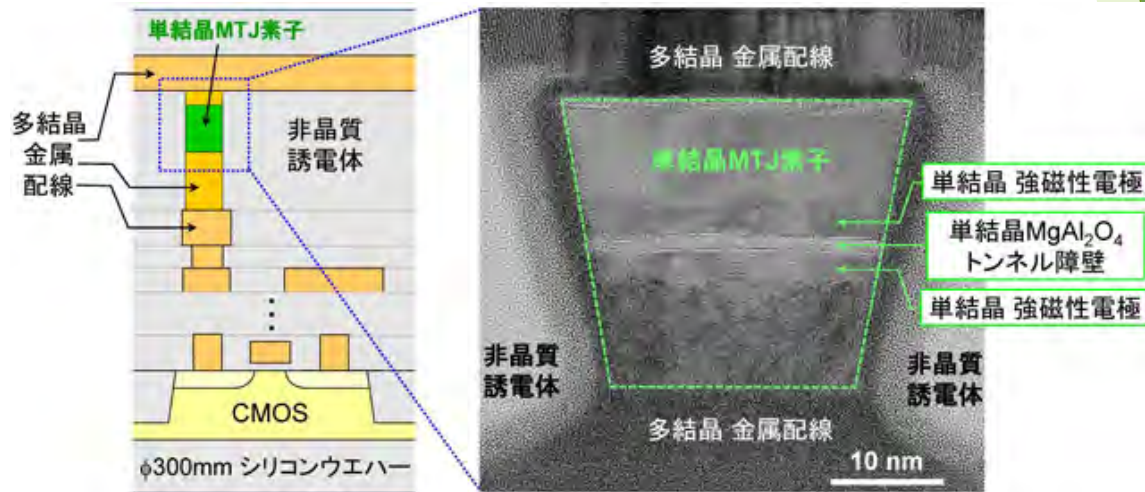
電圧駆動MRAM 新材料 FeIr

- ▶ 電圧による磁気異方性変化自体を大きくする必要はあるが、最近、FeIr系などで従来の10倍以上の電圧効果が見出され実用化に着実に近づいている。
- ▶ 図(左)に素子構造の模式図を示す。上部電極と下部電極との間に電圧をかけることにより、酸化マグネシウム (MgO) 層の下の超薄膜磁石の磁気異方性が変化する。これまでは典型的な磁石材料である鉄コバルト (FeCo) 系合金を用いていたが、今回Feの中に5~10%程度の低濃度でイリジウム (Ir) が分散したFeIr合金の超薄膜磁石を開発した。膜厚は1ナノメートル程度である。
- ▶ 図(右)はFeIr超薄膜磁石の電子顕微鏡の例であり、Ir (黄色矢印) がFe内にランダムに分散していることが確認できる。このFeIr超薄膜磁石は、Fe内に適度に分散したIrが持つ磁気異方性により、純粋なFe/MgO接合と比較して約1.8倍の**垂直磁気異方性**を示した。



300cmウェーハにMRAMを集積化

- ▶ 不揮発性メモリーMRAMは、記憶素子である磁気トンネル接合 (MTJ素子) からなる記録ビット、ビット選択に用いる半導体トランジスタ (CMOS)、それらを繋ぐ金属配線などで構成される。このメモリーは、酸化マグネシウム (MgO) トンネル障壁 を用いた多結晶MTJ素子を多結晶の金属配線上に直接堆積することにより作製される。しかし、この従来からの技術では、多結晶MTJ素子の性能の不揃いや材料特性に起因して、MRAMの微細化が限界に達すると予想されるため、その解決策として新材料を用いた単結晶MTJ素子およびその集積化技術が注目されている。



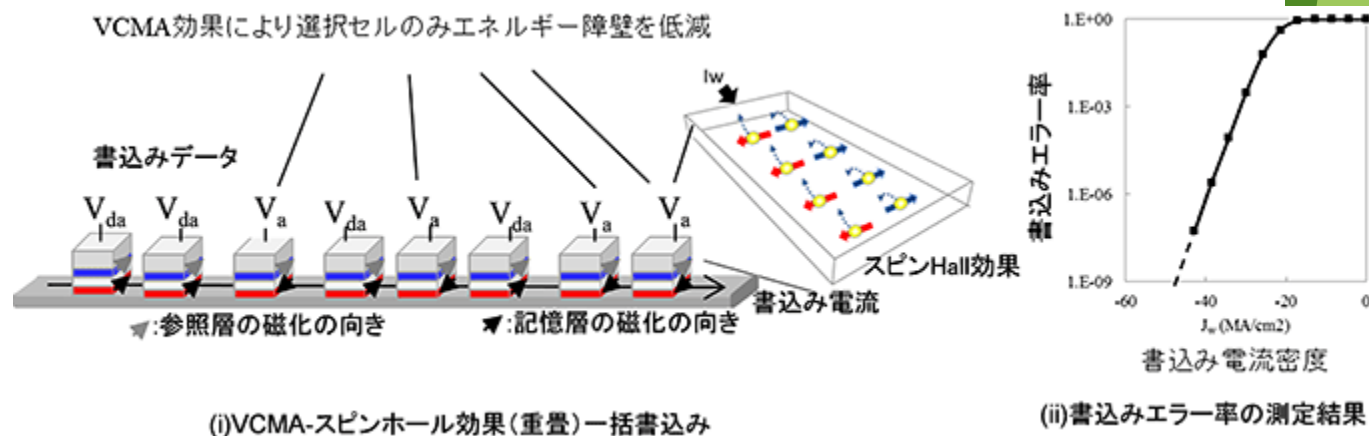
トンネルバリア層にスピネルを採用

▶ 今回、MgOに代わる新材料としてスピネル酸化物 MgAl_2O_4 を用いた単結晶MTJ薄膜を、直径300 mmのシリコンウェーハ上に作製することに初めて成功した。また、ウェーハ直接ボンディングを用いた3次元積層技術により、単結晶MTJ素子をMRAM用のシリコンLSIに集積化することにも初めて成功した。この技術は、現在主流の不揮発性メモリーSTT-MRAMの超微細化だけでなく、さらに省電力な電圧駆動MRAMや量子コンピューターの中核技術である超伝導量子ビットの高性能化などにも貢献する。

2.3 電圧駆動スピントロニクスメモリ(VoCSM) 電圧制御磁化反転を使った不揮発性磁気メモリに新たな書込み方を提案

- ▶ 2016年に提案されたスピン軌道トルクと電圧による磁気異方性変化を同時に利用することにより低電力化と高集積度を同時に満たすことをめざしたMRAMの新しいアーキテクチャである。**1つの重金属ワイヤの上に複数の磁気トンネル接合を作る**ことが特徴で、このうち電圧をかけたもののみを低消費電力で書き換えることが可能になる。
- ▶ 電流駆動のSTT-MRAMでは、2端子構造ゆえに書込み時と読出し時の電流経路が同じであるため、いずれの際にもトンネル障壁に電流が流れ、**読出し時に誤って書込みを行ってしまう誤書込みが発生する可能性がある**。したがって、読出し時には誤書込みを起こさないように留意し、また書込み時にはトンネル障壁の寿命に留意した設計が必要。
- ▶ それに対してVoCSMアーキテクチャでは、**印加する読出し電圧の極性を選択することで、原理上読出し時の誤書込みを無くすることができる**。また、トンネル障壁に書込み電流を流す必要がないため、トンネル障壁の寿命に留意した設計をする必要がなくなる（原理上無限大の書き換え耐性を有す）。
- ▶ また、CMOS同様電圧駆動となるため、メモリセル選択用のトランジスタサイズを小面積にすることが可能になる。

(ImPACT 2016)



高感度磁場センサー



トンネル磁気抵抗素子(MTJ)およびマグネトインピーダンスセンサ (MIセンサ) を用いた心磁計、脳磁計の研究が進んでいる。すでに、心磁・脳磁の信号測定に成功しており今後の実用化が期待される。

JST S-イノベの成果を受けて、東北大学発ベンチャー「スピンセンシングファクトリー株式会社」が設立され、世界初の小型・軽量で超高感度な磁気センサーを開発、提供する。高度医療診断からインフラの監視までに貢献

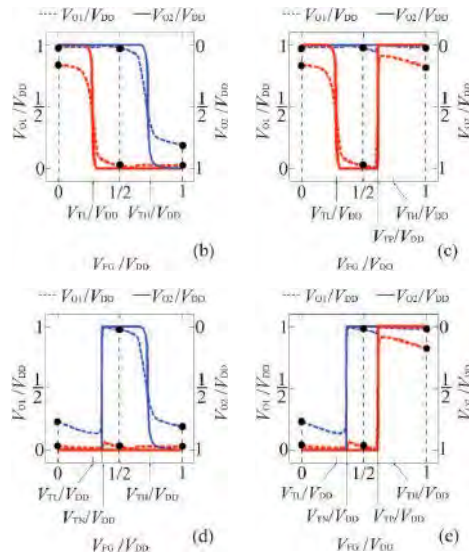
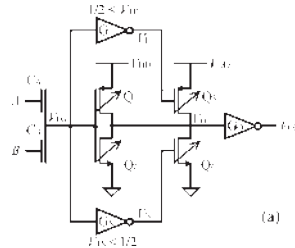
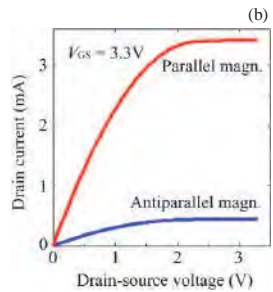
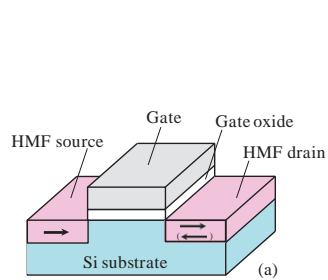
スピンMOSFET

- ▶ スピンMOSFETは、電力増幅作用を持ち、出力電流やトランスコンダクタンスを磁化状態によって操作でき、不揮発で、既存のSi集積回路で蓄積された微細加工技術や回路設計技術などの資産を使うことができるという特徴を持つ。原理的にはCMOS回路構成も可能である。
- ▶ スピンMOSFETからなる論理回路は、素子数の少なさと不揮発性により低消費電力動作が期待できる。まだ理想的な出力特性を得るにはいたっていないものの、これまでいくつかの試作と原理的な動作実証の研究が行われている。
- ▶ このような再構成可能な論理回路や不揮発性論理回路の実現は、今後のスピントロニクスにおける重要な目標になると考えられている。

シリコンスピントロニクス

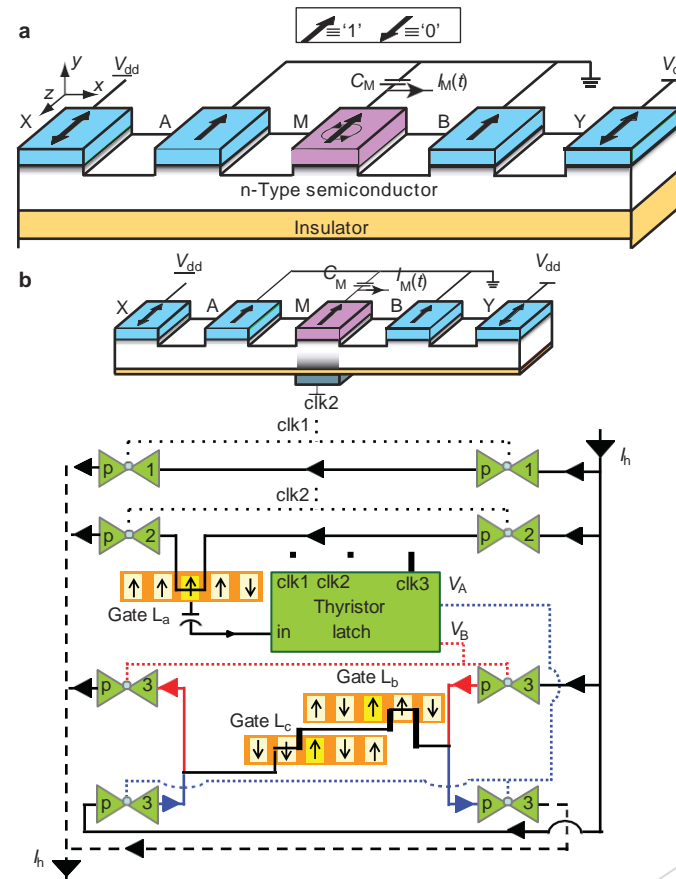
- ▶ 大阪大学-TDKグループは、スピンMOSFETの作製とその動作実証を試み室温でスピンMOSFETを動作させたと報告した。ゲート電圧によるドレイン電流の変調はある程度できているが、スピン注入と検出による磁気抵抗比は0.01~0.04 %程度と非常に小さいものであった。
- ▶ 京都大学白石誠司 同教授らのグループは TDK 株式会社、大阪大学と共同で、産業のコメとも言えるシリコンにおける、従来の物性理解を超越する新奇なスピン物性の発見に成功した。
- ▶ 最近、東京大学グループは、GaMnAs/GaAs/GaMnAsからなる強磁性半導体ヘテロ接合を用いた縦型FETにサイドゲートを付けた独特のトランジスタ構造を作製し、低温ではあるがスピンMOSFETの動作と大きな磁気抵抗比60 %の達成に成功した。
- ▶ また、東工大-NIMS-東大グループは、既存のTMR素子とMOSFETを組み合わせるという手法により、擬似スピンMOSFETの作製と良好な特性の室温動作を示した。

スピンMOSトランジスタ (再構成可能論理回路)



「菅原 = 田中型スピントランジスタ」
(APL 2004) ※ Das-Datta型と異なる

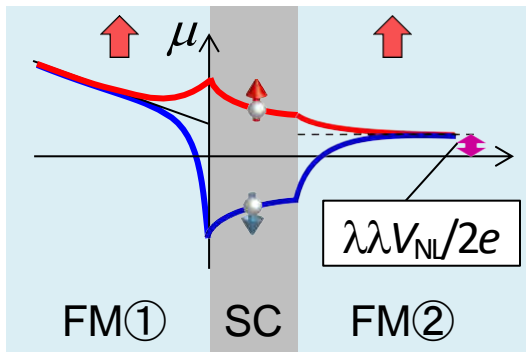
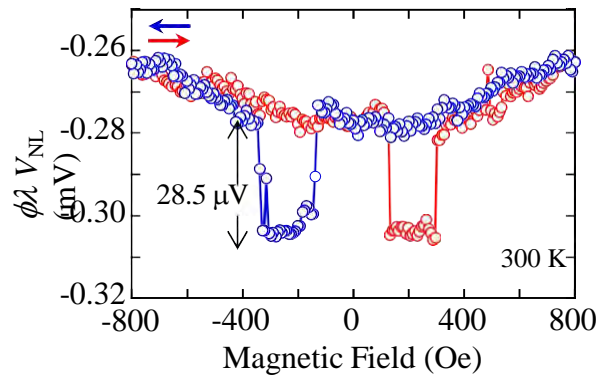
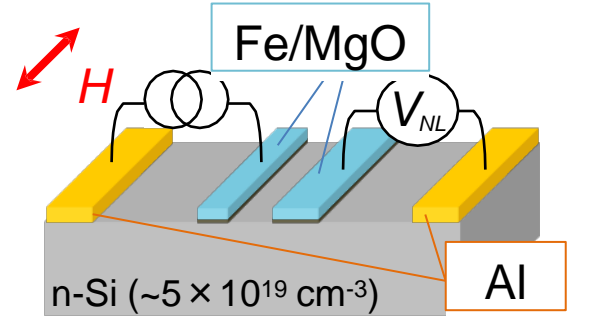
スピン流ロジックゲート



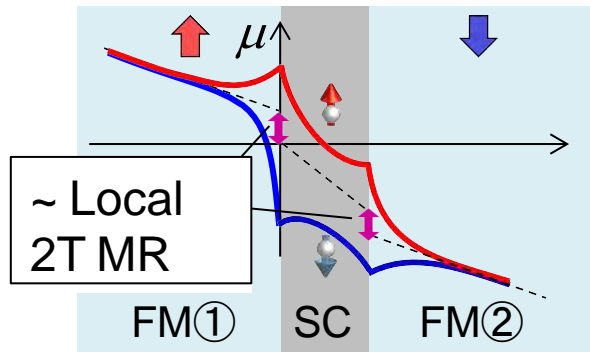
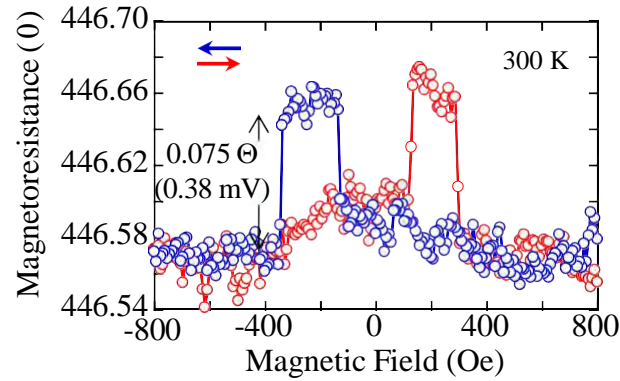
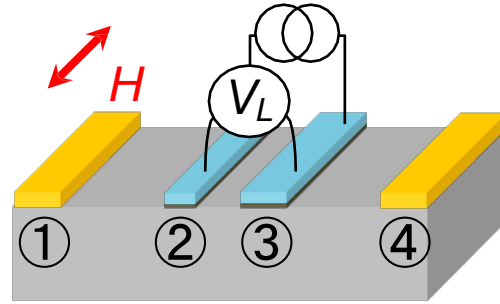
Dery-Sham型ロジックゲート
(Nature 2007) ※ スピンMOSFETが基盤技術

Siスピントランジスタにおける磁気抵抗効果 (測定手法別)

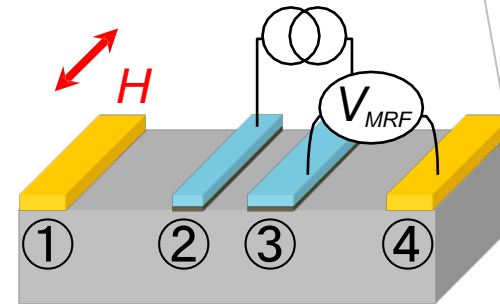
Nonlocal



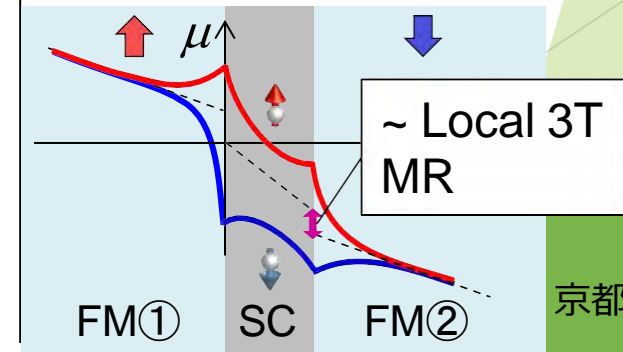
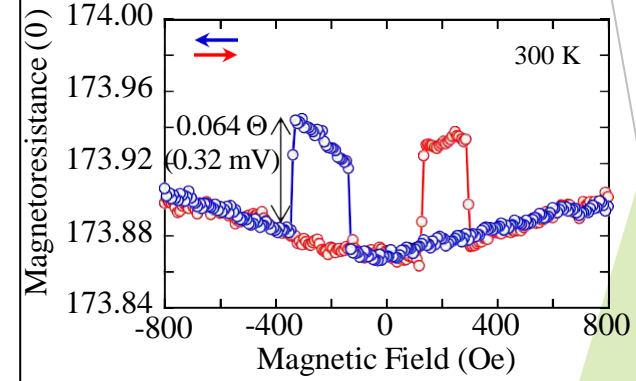
Local 2T MR



Local 3T MR

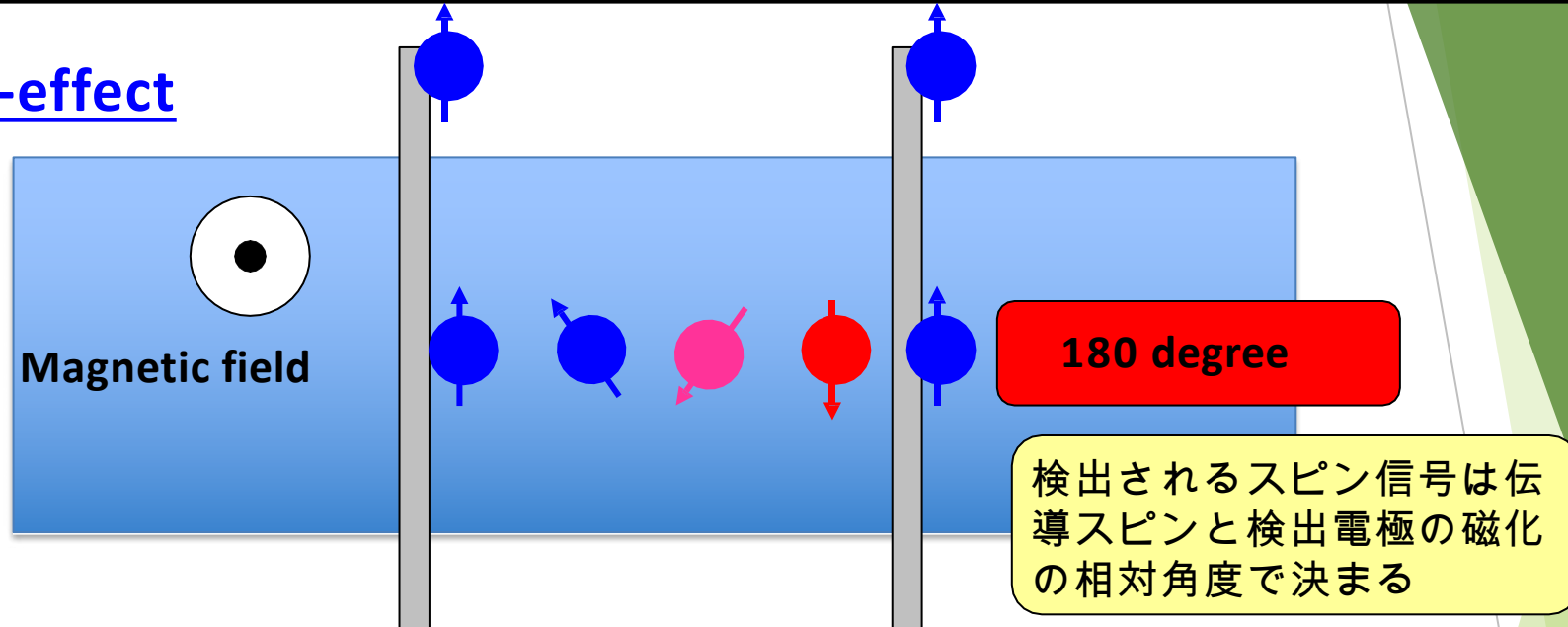


Sasaki, Ando, M.S. APL 2014.

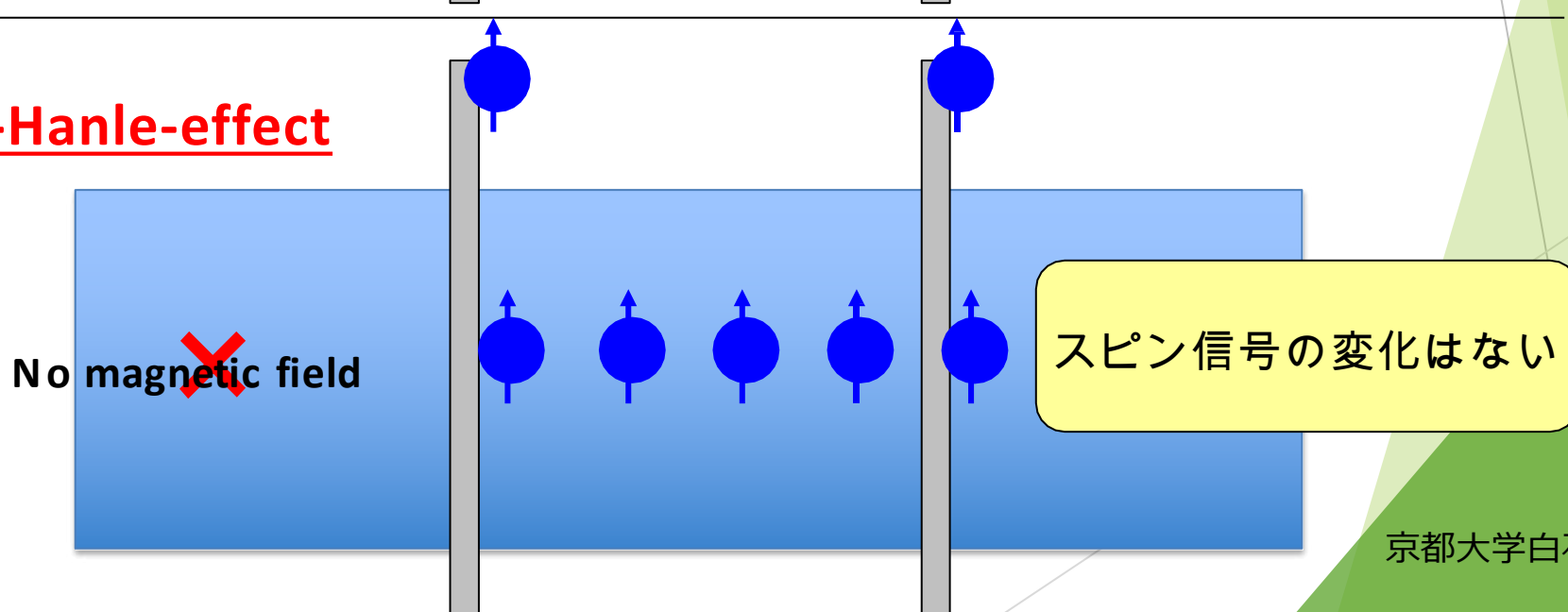


Hanle型スピン歳差測定 (スピン輸送の証拠)

Hanle-effect

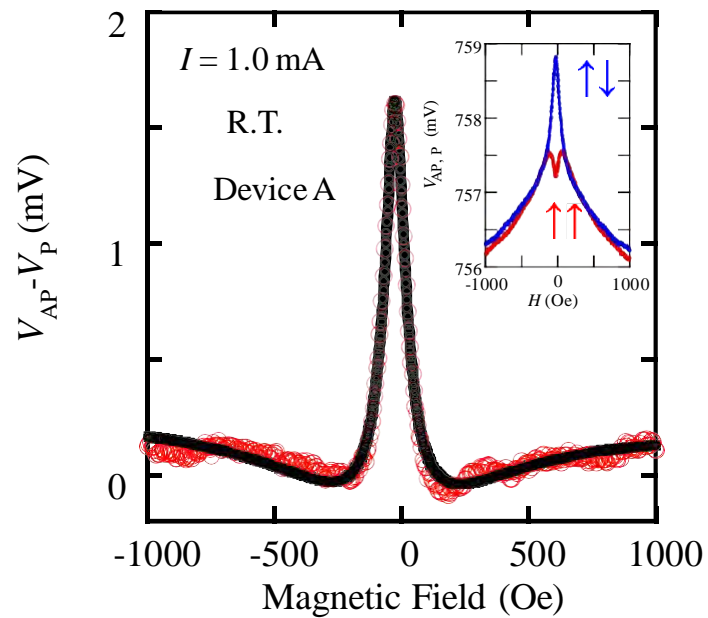
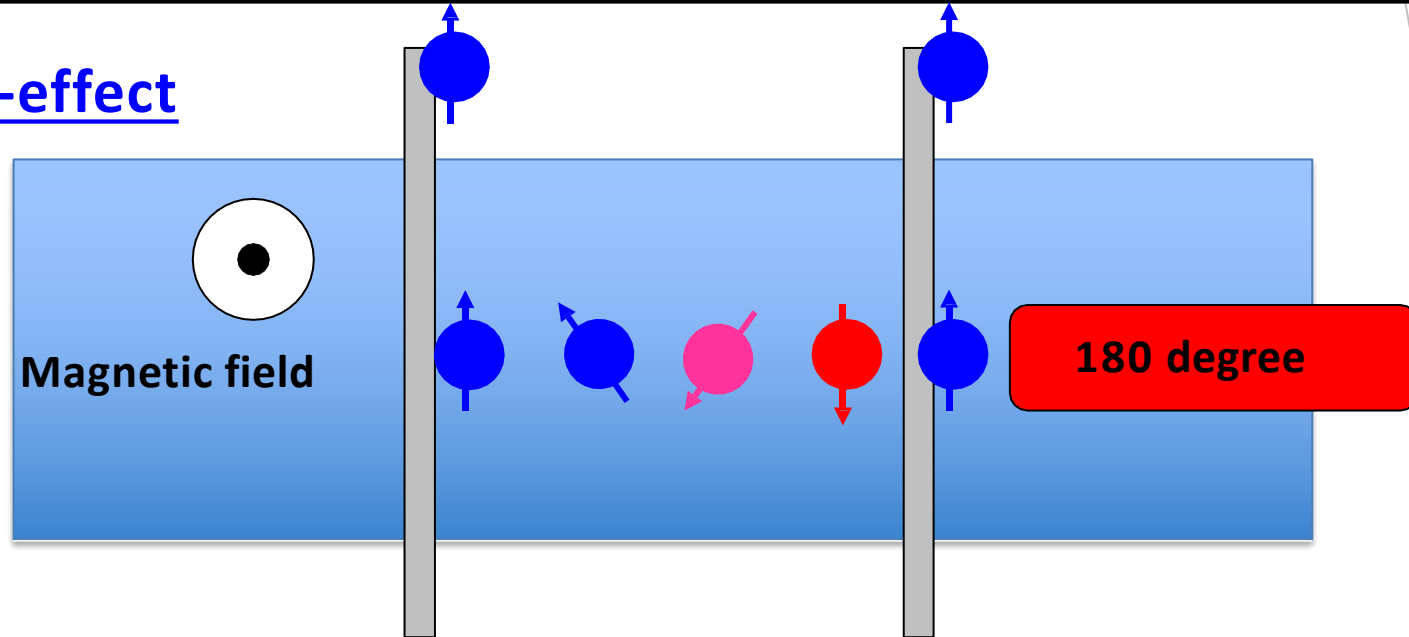


No-Hanle-effect

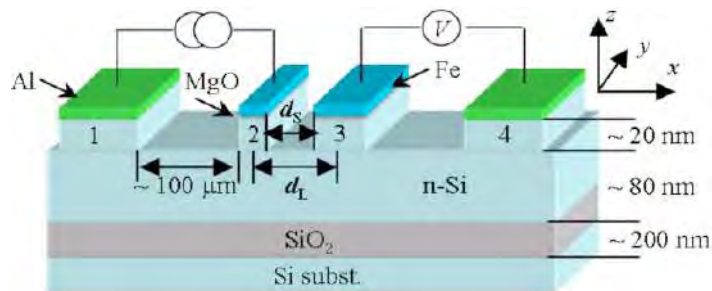


Hanle型スピン歳差測定 (スピン輸送の証拠)

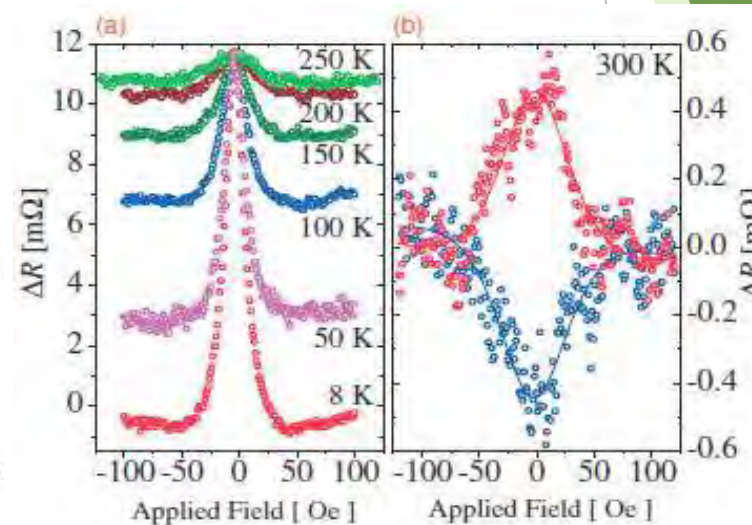
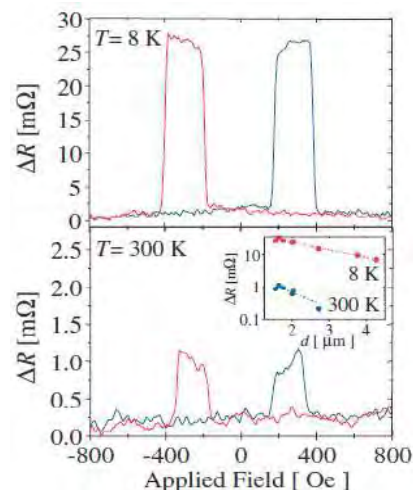
Hanle-effect



磁気抵抗 & Hanle型スピン歳差
 同じ素子で300Kまで観測できた



Spin channel : $\sim 5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$

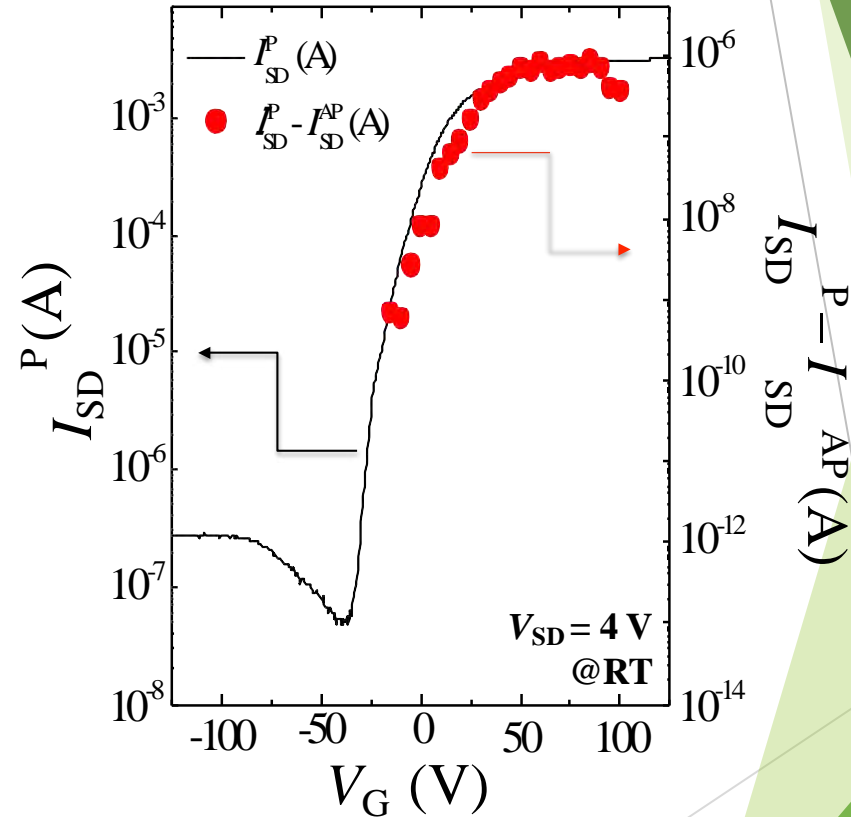
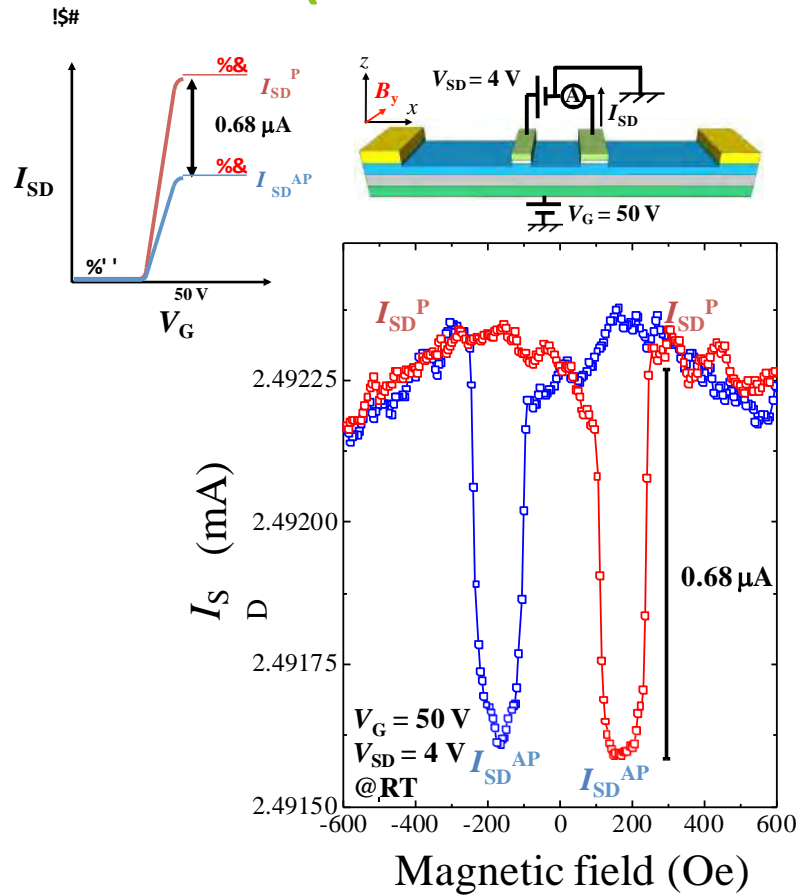


TDK株式会社・秋田県産業技術センター・大阪大学

T. Suzuki, M. Shiraishi et al., Appl. Phys. Express 4, 023003 (2011).



Si スピンMOSFETの室温動作の観測(世界初: 2015年)

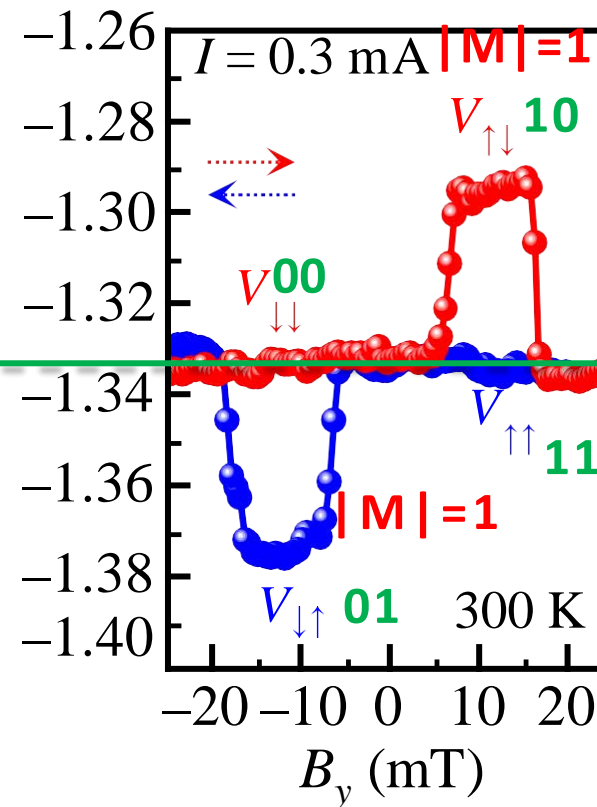
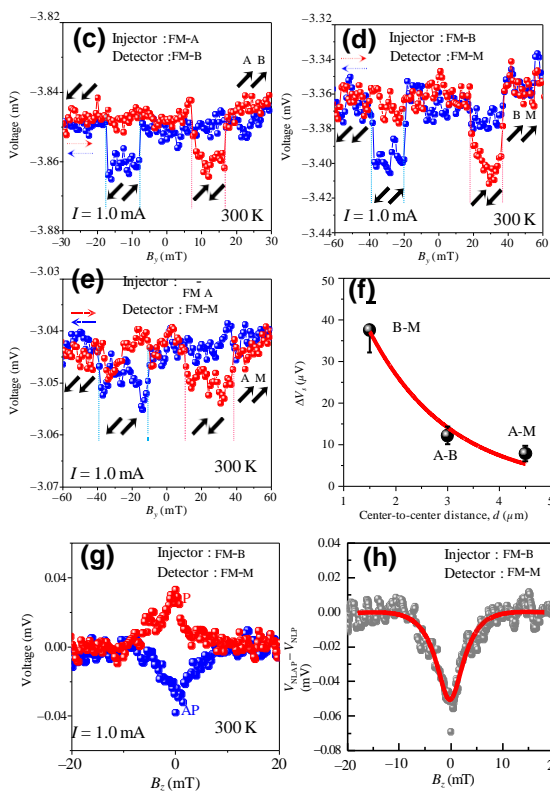
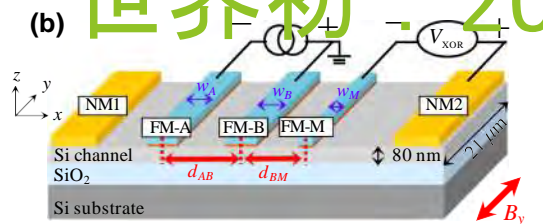


T. Tahara, M.S. et al., Appl. Phys. Express 8, 113004 (2015) [selected as Spotlight Paper]

京都大学白石誠司 教授による



Dery=Sham型ロジック演算の実現(世界初: 2020年)



真理値表

AB	M
00	0
11	0
10	1
01	1

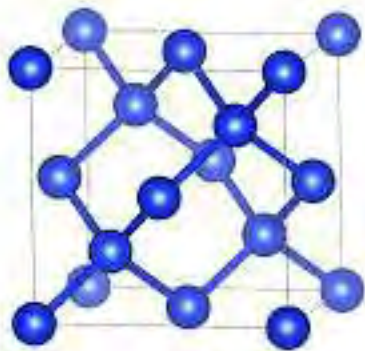
M=0

XOR演算の実現
(XORができれば他の全ての演算は可能)

SiスピンMOSFET機能の拡張

京都大学白石誠司 教授による

Siを伝導するスピンを「磁場を用いず」操作する



Silicon

/ 軽元素である($Z=14$)

/ 結晶の空間反転対称性がある

→ **本質的にスピン軌道相互作用が小さい**

※磁場を使わずにスピンを操作できる源、みたいなもの



ゲート絶縁膜 (SiO_2)

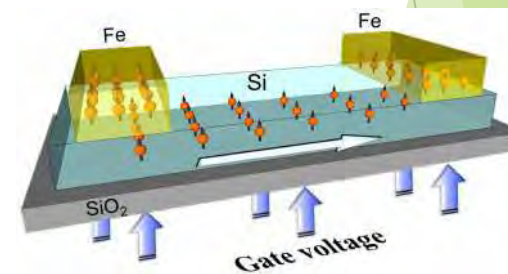
しかしながら . . .

SiスピンMOSFETではゲート絶縁膜がある

⇒そこに着目すれば対称性は破れている

⇒人工的に磁場を生む

(しかもゲート電圧で「磁場」強度変調可能)



Si/SiO₂界面は「人工的に」スピン軌道相互作用を生成する!!



人工的な磁場？

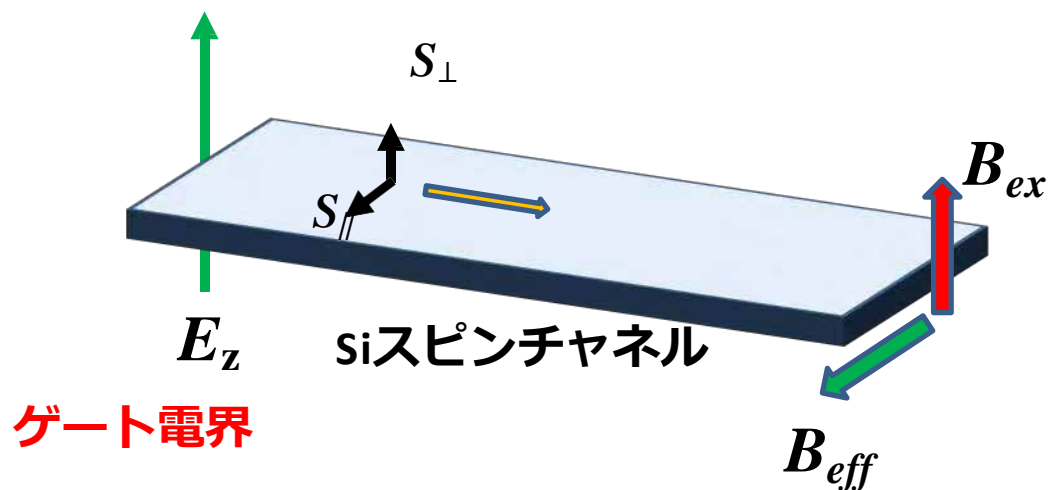
ポイント) スピン軌道相互作用 = 相対性理論(+)に基づく効果

- 1) 対称性が破れる \Rightarrow スピン軌道相互作用が生まれる \Rightarrow (+) **有効磁場(B_{eff})**が生まれる
- 2) (+) 更にスピン軌道相互作用は電場 (**ゲート電界**) を磁場に変換する(電磁双対性)
- 3) ゲート絶縁膜とゲート電圧のおかげで外部磁場をかけなくても有効磁場はある

～何が起こるか？～

Siを伝導する**スピンの寿命が面内($s_{||}$)と面直(s_{\perp})で異なる**

(有効磁場のせいで面内寿命のほうが長くなる)



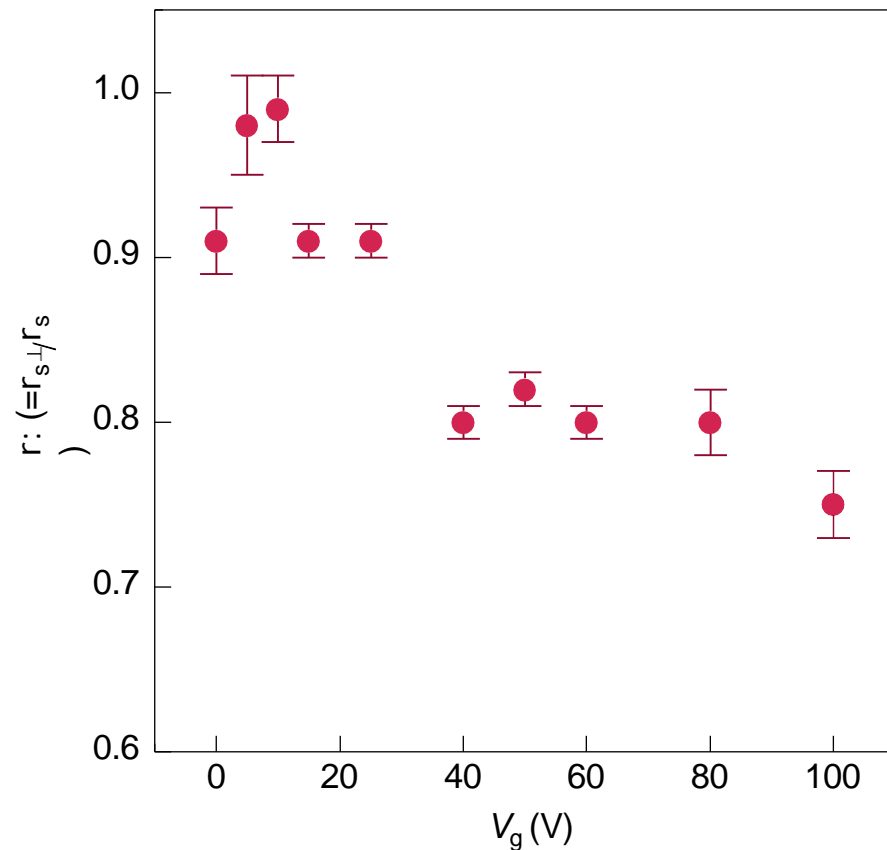
有効磁場 (人工的な磁場) 京都大学白石誠司 教授による



磁場を用いないスピン操作の実現(世界初、2021年)

スピン寿命 $s_{||}$ と s_{\perp} の比 r ($=1$ なら両者は同じ) のゲート電圧依存性

- $s_{||} > s_{\perp}$ が B_{eff} によって実現されている
- ゲート電圧をかけるほど有効磁場が強くなって r が 1 から離れる

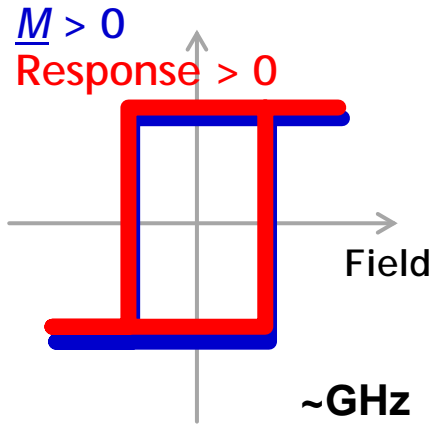


トポロジカル・スピントロニクス

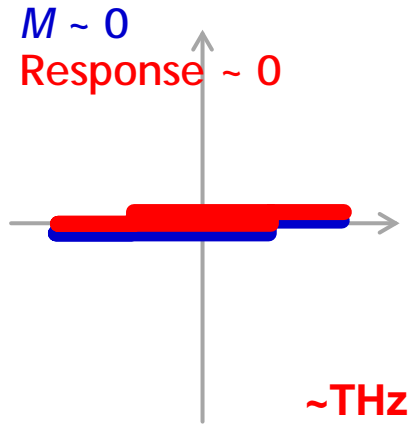
- ▶ トポロジカル絶縁体表面のスピンの流やトポロジカル反強磁性体の仮想磁場などのトポロジーに起因する特性を利用することにより、素子の高密度化や高速動作、高効率なスピン流・電流変換もしくは熱電変換の実現など、新材料・新デバイス開発をめざした新しいスピントロニクス技術**ワイル反強磁性体**である Mn_3Sn や Mn_3Ge などにおいて、反強磁性体では発現しないと考えられてきた異常ホール効果、異常ネルンスト効果、磁気光学効果などが、電子構造のトポロジーを起源として出現することが東大物性研グループにより報告され、反強磁性体を用いたスピントロニクスに新しい方向性を切り拓きつつある。として期待されている。
- ▶ 特に近年、また、実空間でトポロジーに保護された磁気構造である**スキルミオン**に関する研究が進められている。

反強磁性体スピントロニクスに対する要請

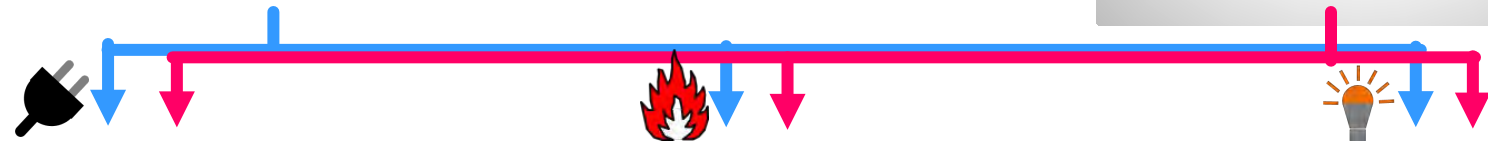
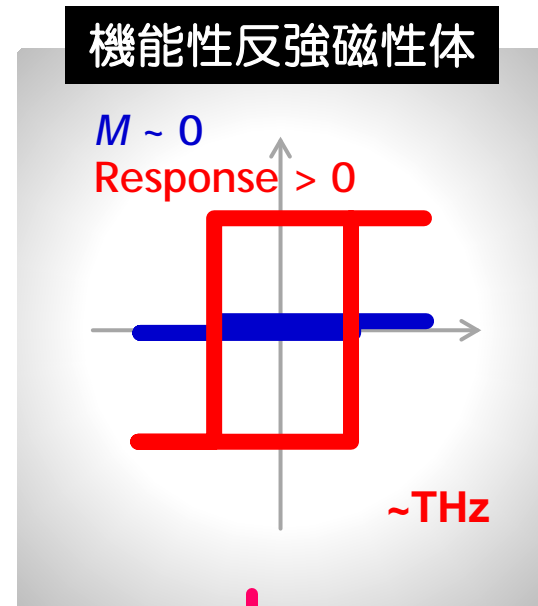
強磁性体 (FMs)



反強磁性体 (AFMs)



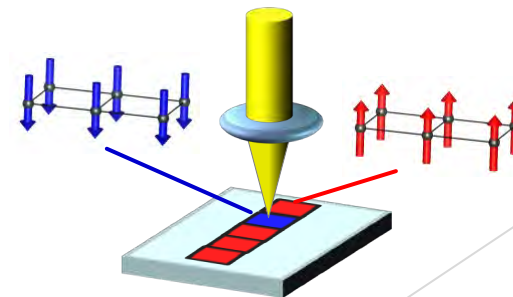
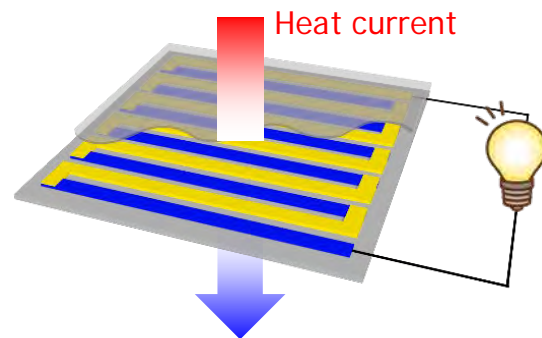
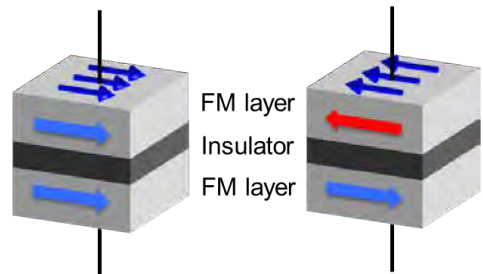
機能性反強磁性体



① Nonvolatile memory

② Thermoelectric device

③ MO device, imaging



反強磁性体への書き込みと読み出し

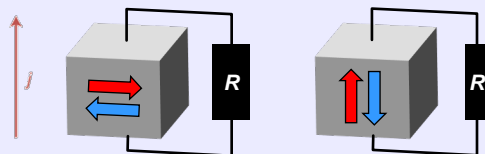
書き込み

- 磁場
- 電場
- スピン流
- 光
- 電場

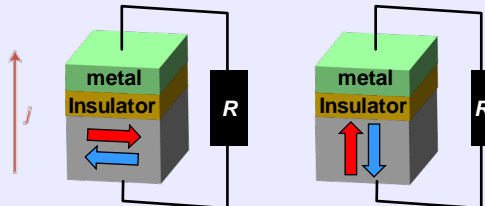
Železný et al., Nat. Phys. (2018).

読み出し

- 異方性磁気抵抗AMR
Marti et al., Nat. Mater. (2014).

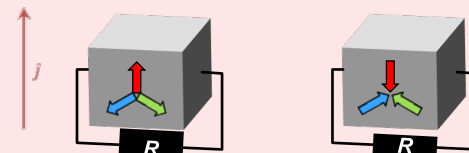


- トンネルAMR
Park et al., Nat. Mater. (2011).

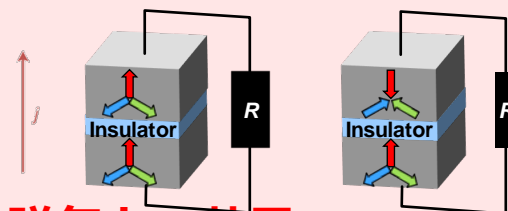


- フォークト効果
Saidl et al., Nat. Photon. (2017).
- SMR
Hou et al., PRL; Lin et al., PRL (2017).

- 異常ホール効果
Nakatsuji, Kiyohara, Higo, Nature (2015).

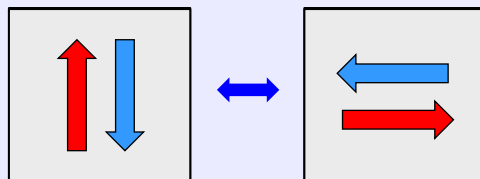


- トンネル磁気抵抗TMR
[Theory] Železný et al., PRL (2017).

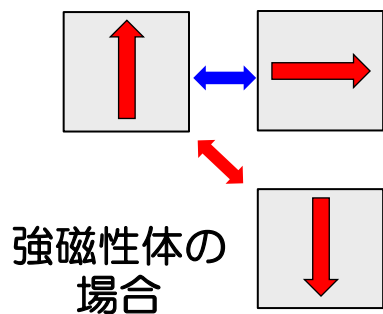
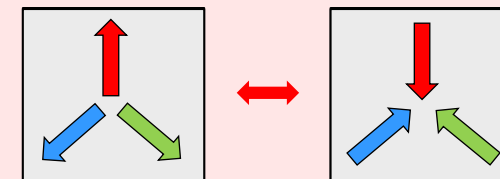


- 磁気カー効果
Higo et al., Nat. Photon. (2018).
- 異常ネルンスト効果
Ikhlās+, Tomita+ et al., Nat. Phys. (2017); Li et al., PRL (2017).

時間反転：偶 (90° 回転)



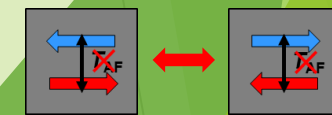
時間反転：奇 (180° 回転)



[Theory] Chen et al., PRL (2014).



[Theory] Šmejkal et al., Sci. Adv. (2020).

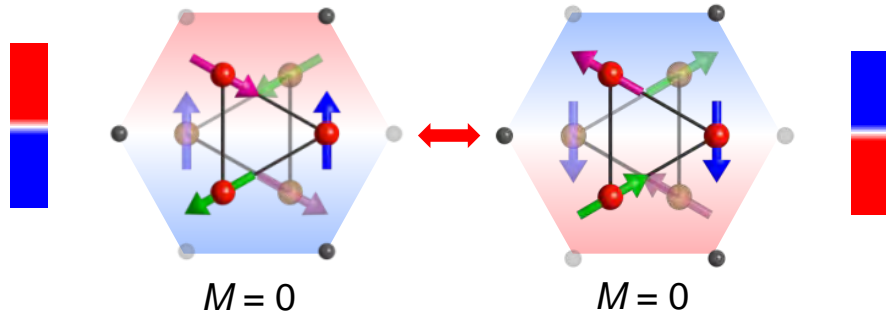


肥後 友也氏 (東京大学) 提供

書き込みと読み出し[反強磁性体]

① 巨視的時間反転対称性の破れ

e.g. 非共線スピントクスチャ
with 磁気八重極子のフェロイック秩序

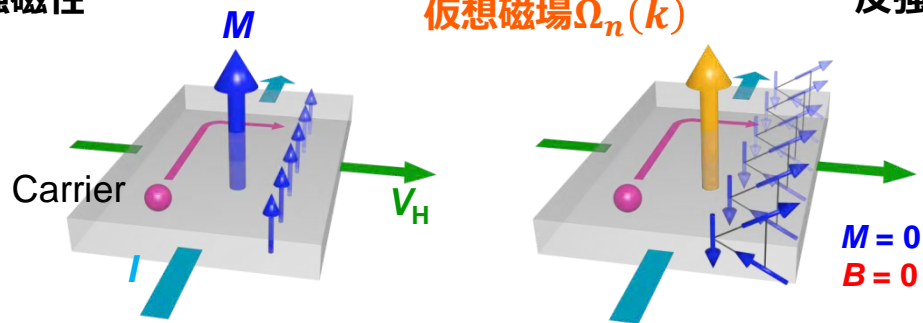


② 大きなベリー曲率

ホール伝導率 $\sigma_{xy} = -\frac{e^2}{\hbar} \sum_n \int_{BZ} \frac{dk}{(2\pi)^3} f(\epsilon_n(k)) \Omega_n(k)$

ベリー曲率 $\Omega_n(k) = \nabla_k \times A_n(k) = -i (\nabla_k \times \langle nk | \nabla_k | nk \rangle)$

強磁性 仮想磁場 $\Omega_n(k)$ 反強磁性

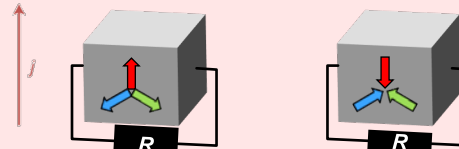


Ye et al., PRL **83**, 3737 (1999); Nagaosa et al., RMP **82**, 1539 (2010).

read

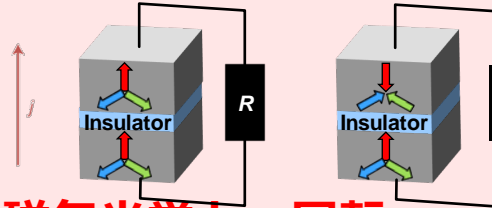
異常ホール効果

Nakatsuji, Kiyohara, Higo, Nature (2015).



トンネル磁気抵抗

[Theory] Železný et al., PRL (2017).



磁気光学カー回転

Higo et al., Nat. Photon. (2018).

異常ネルンスト効果

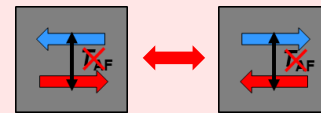
Ikhlasi⁺, Tomita⁺ et al., Nat. Phys. (2017);
Li et al., PRL (2017).

時間反転：奇 (180°回転)

[Theory] Chen et al., PRL (2014).

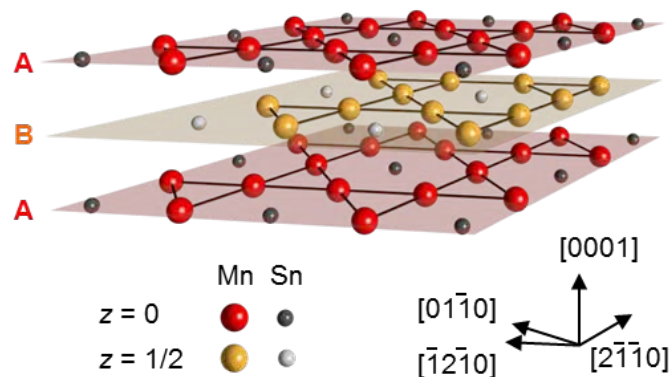


[Theory] Šmejkal et al., Sci. Adv. (2020).



非共線反強磁性体 Mn_3Sn

[結晶構造]

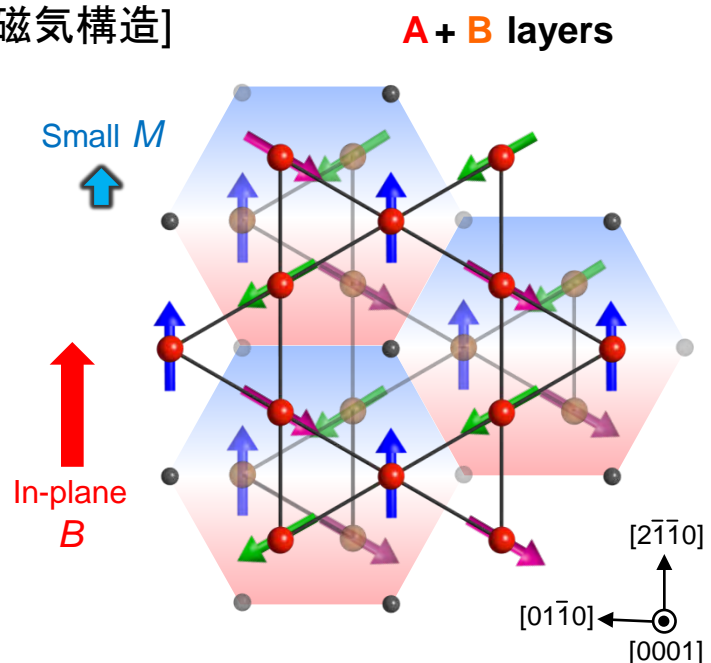


Tomiyoshi *et al.*, JPSJ **51**, 2478 (1982).
 Krén *et al.*, Physica B+C **80**, 226 (1975).
 Nagamiya *et al.*, Solid State Commun. **42**, 385 (1982).

	Mn_3Sn
空間群	$P6_3/mmc$
格子定数	$a = 5.67 \text{ \AA}, c = 4.53 \text{ \AA}$
磁性イオン	Mn ($\sim 3 \mu_B$)
ネール温度	$T_N \sim 430 \text{ K}$

Fig. from Higo *et al.*, Adv. Funct. Mater. **31**, 2008971 (2021).

[磁気構造]



Figs from Higo *et al.*, Nature Photon. **12**, 73 (2018).

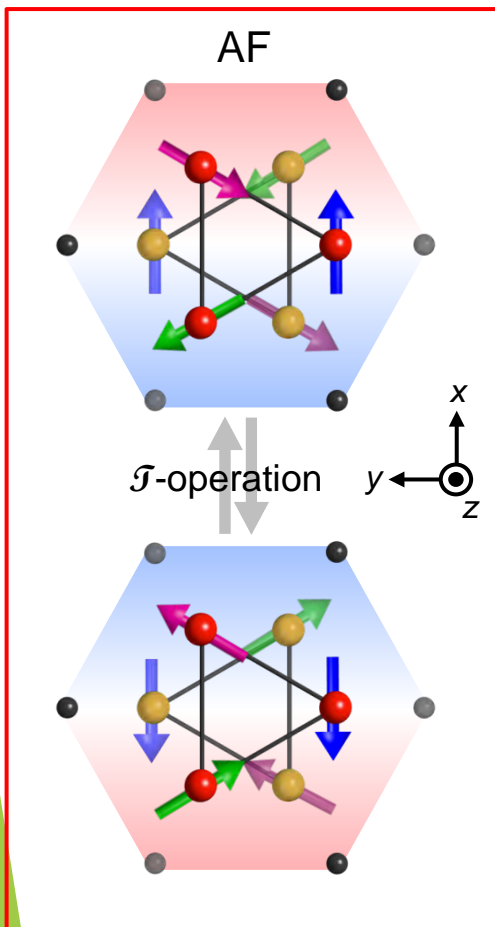
- 逆三角スピン構造(ITS)
- ➔ 巨視的 時間反転対称性の破れをともなう反強磁性
“磁気八重極子”のフェロイック秩序
- 自発弱強磁性モーメント
面内 $M \sim 0.005 \mu_B/f.u.$ ← キャント磁化 + 軌道磁気モーメント
- 小さな面内磁気異方性

AF domains breaking the global TRS can be controlled by the in-plane B

クラスタ磁気多重極子: 対称性破れを表す巨視的オーダーパラメータ

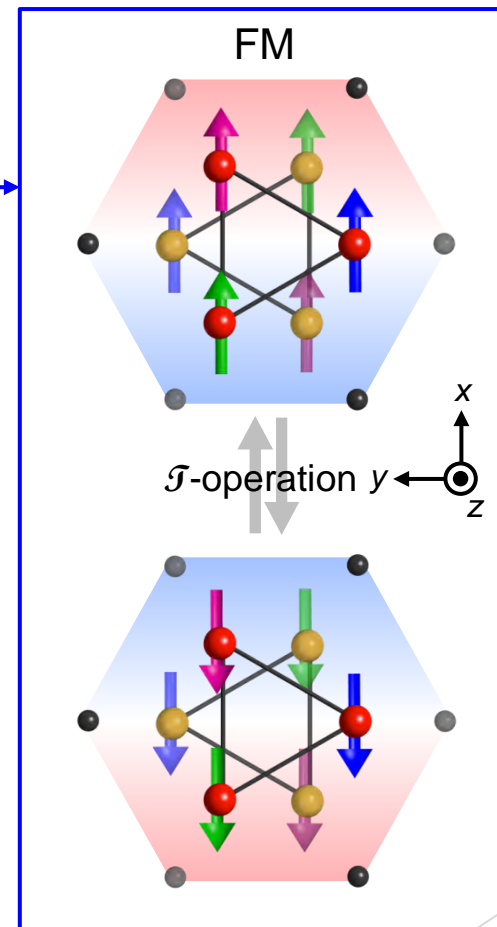
$$M_{\ell m} \equiv \sqrt{\frac{4\pi}{2\ell+1}} \sum_{i=1}^N \nabla_i (R_i^\ell Y_{\ell m}(\hat{R}_i)^*) \cdot m_i \quad \text{Suzuki, Koretsune, Ochi and Arita, PRB 95, 094406 (2017).}$$

m_i : Magnetic moment on i th atom



	IREP	CMP
双極子	A_{2g}	$J_z \equiv M_{10}$
	E_{1g}	$J_x \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(-M_{11} + M_{1-1})$
		$J_y \equiv \frac{i}{\sqrt{2}}(M_{11} + M_{1-1})$
四重極子	A_{1u}	$Q_{3z^2-r^2} \equiv M_{20}$
	E_{2u}	$Q_{x^2-y^2} \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(M_{22} + M_{2-2})$
		$Q_{xy} \equiv \frac{i}{\sqrt{2}}(-M_{22} + M_{2-2})$
	E_{1u}	$Q_{zx} \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(-M_{21} + M_{2-1})$
		$Q_{yz} \equiv \frac{i}{\sqrt{2}}(M_{21} + M_{2-1})$
八重極子	A_{2g}	$T_z^\alpha \equiv M_{30}$
	E_{1g}	$T_x^\gamma \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(-M_{31} + M_{3-1})$
		$T_y^\gamma \equiv \frac{i}{\sqrt{2}}(M_{31} + M_{3-1})$
	E_{2g}	$T_{xyz} \equiv \frac{i}{\sqrt{2}}(-M_{32} + M_{3-2})$
		$T_z^\beta \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(M_{32} + M_{3-2})$
	B_{2g}	$T_x^\zeta \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(-M_{33} + M_{3-3})$
	B_{1g}	$T_y^\zeta \equiv -\frac{i}{\sqrt{2}}(M_{33} + M_{3-3})$

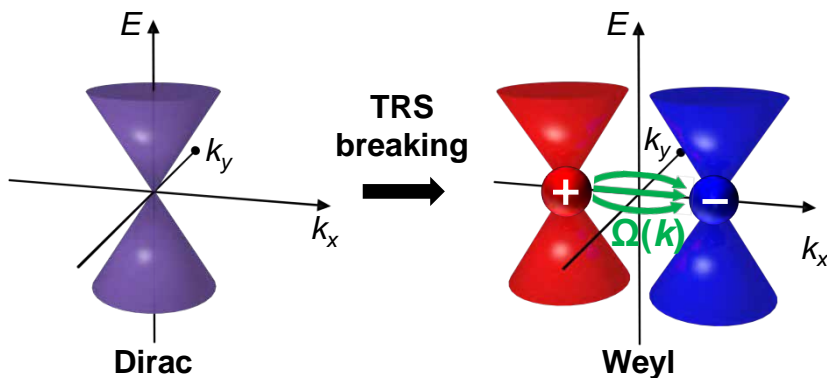
for the D_{6h} point group



Mn₃Snの反強磁性秩序は E_{1g} -八重極子モーメントによって生じる

Mn₃Sn における反転対称性が破れた(磁性)ワイル金属状態

② 大きなベリー曲率

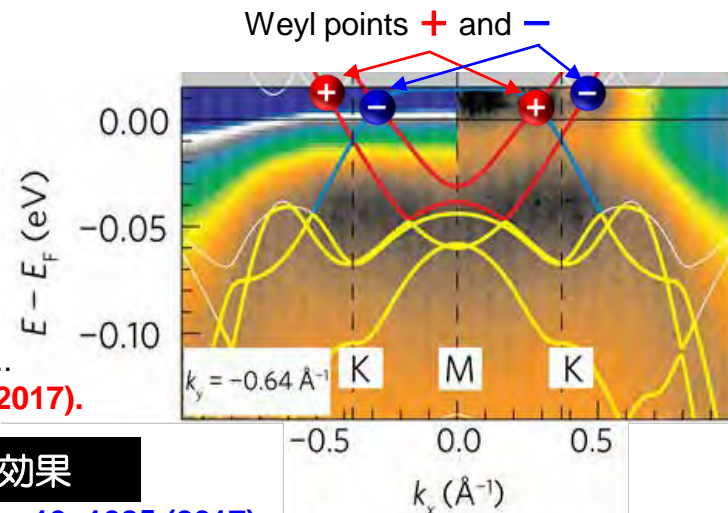


[Theory] Wan et al., PRB **83**, 205101 (2011).

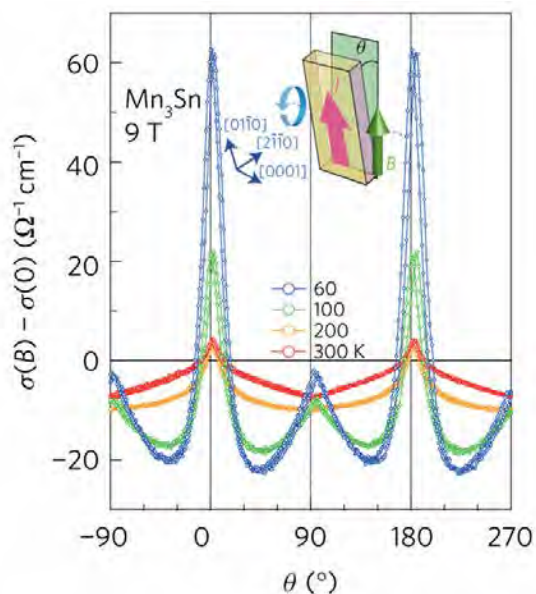
[Experiment] IS-B: Science **349**, 613 (2015); PRX **5**, 031013 (2015)..

TRS-B: Kuroda, Tomita et al., Nat. Mater. **16**, 1090 (2017).

角度分解光電子分光 + 第1原理計算



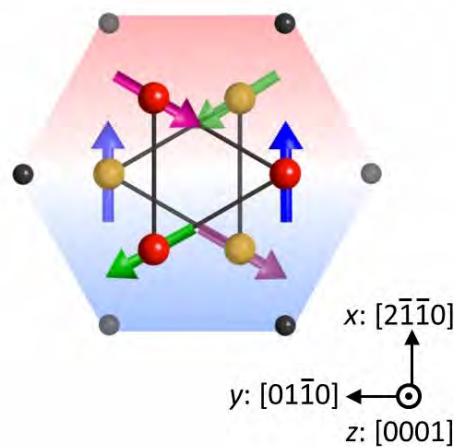
キラル異常



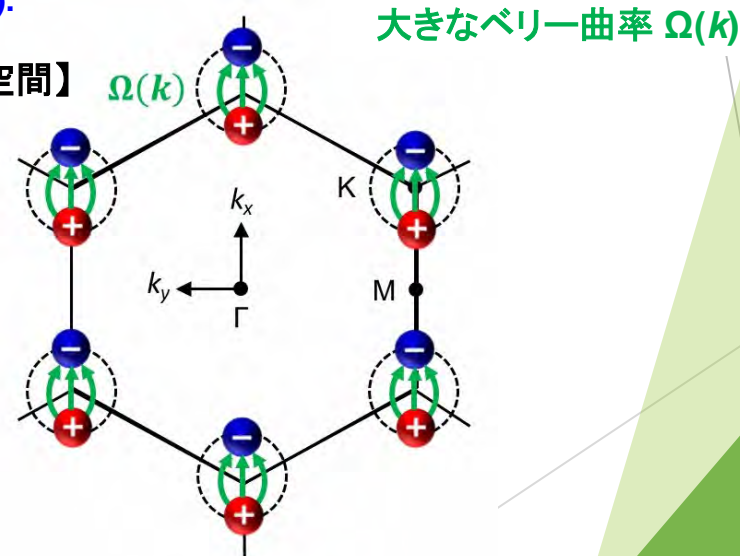
大きな異常ネルンスト効果

Ikhlas, Tomita et al., Nat. Phys. **13**, 1085 (2017).

【実空間】



【k空間】



時間対称性を破るワイル状態が反強磁性スピントキシチャによって大きなベリー曲率をもたらす

マグノニクスと脳型コンピューティング

- ▶ スピン波やマグノンをキャリアとするデバイスの実現をめざす、マグノニクスと呼ばれる研究領域も誕生しており、ドイツや日本を中心に進展している。例えば、スピン波スピン流を用いた論理ゲートが提案され、動作実証が報告されている。
- ▶ スピン波は室温でも十分に干渉効果を得ることが可能であるため、これを利用することでデバイス構造を簡易化可能であることが指摘されている。また、スピン波やスピントルク発振の非線形性を利用して脳型コンピューティングを行おうという動きもある。スピントルク発振器とディレイラインを用いてリザーバーコンピューティングの実証が行われ注目を集めている。
- ▶ また、スピントルク発振器はHDDのさらなる記録密度向上のためのマイクロ波アシスト磁気記録（Microwave Assisted Magnetic Recording : MAMR）用の発振器としても期待されている。この他、磁性ドット間の双極子相互作用を利用した脳型計算のシミュレーションが発表されるなど近年急激に研究開発が活発になっている。

トポロジカル物質で超伝導ダイオードを実現

- ▶ 理研ほかのグループは、トポロジカル絶縁体と超伝導体の相互作用を研究するため、FeTeとBi₂Te₃の積層界面に着目しました。いずれの物質も単体では超伝導を示しませんが、これらの積層界面では超伝導を発現することが明らかになっています。さらに、この界面にはトポロジカル絶縁体表面状態が存在することから、その表面状態と超伝導との相互作用を研究することに適しています。分子線エピタキシー法を用いてFeTeとBi₂Te₃の積層構造を作製し、試料を極低温で測定したところ、7 K程度で抵抗が0となり、界面において超伝導が発現していることを確認しました（図1 a）。
- ▶ そこで超伝導状態の理解を深めるため、界面に平行（面内）に磁場を加えた状態で、整流効果（ダイオード効果）を、図2の赤方向電流下での抵抗と青方向電流下での抵抗の差分に対応する、非相反抵抗を通して測定しました。常伝導状態では、非相反抵抗は0であるのに対し、部分的に超伝導に転移した温度では、有限な非相反抵抗が生じ、整流効果が現れました（図1 b）。特に、磁場方向の反転に伴って、非相反抵抗の符号が反転する重要な性質を確認しました。これは、超伝導電流の流れやすい方向を外部から加える磁場の方向で制御できることを意味しています。

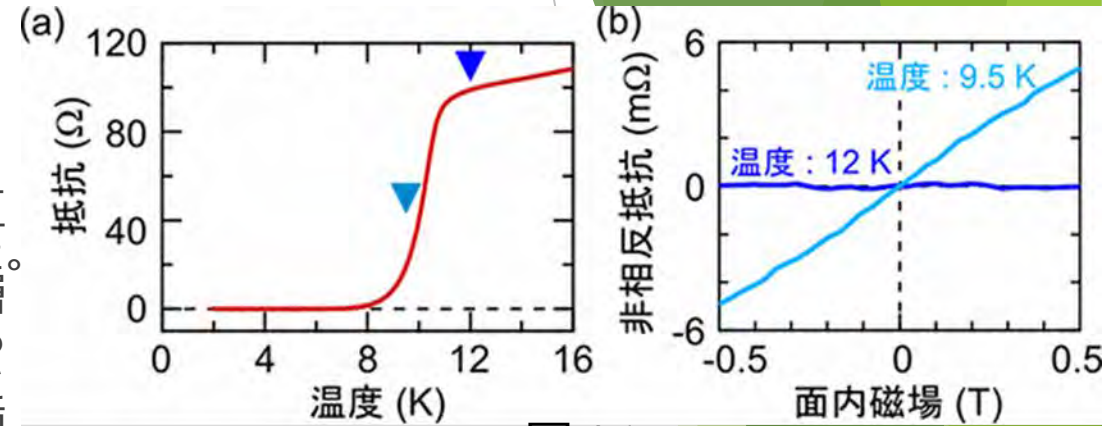


図 1 a

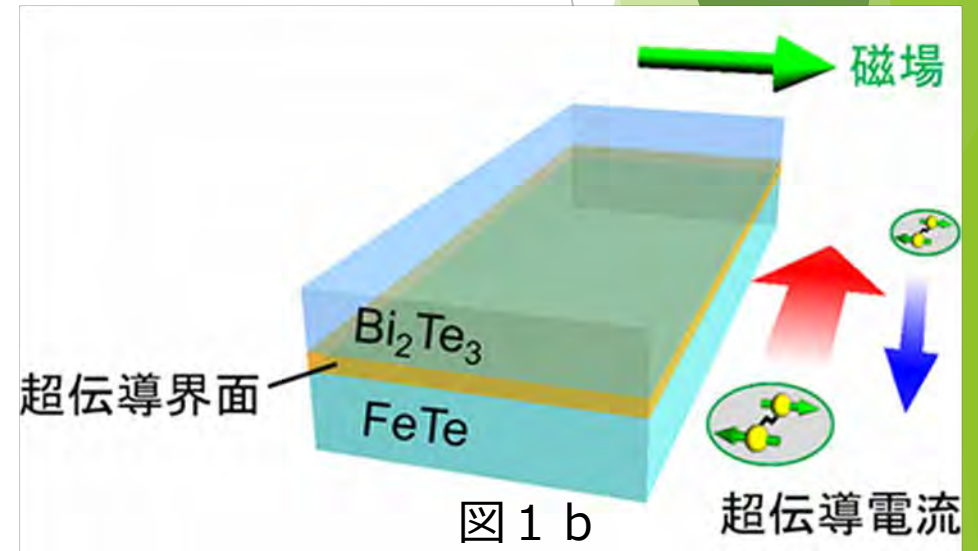


図 1 b

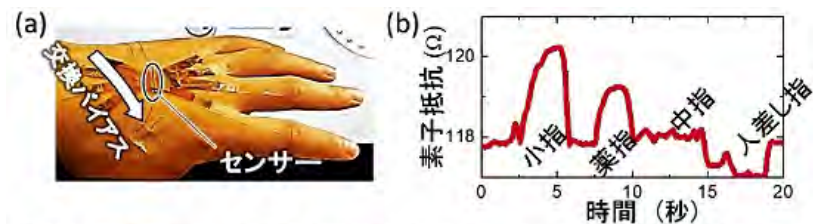
超伝導トポロジカル量子整流

- ▶ 第二種超伝導体MoGeを、磁性絶縁体 $Y_3Fe_5O_{12}$ 基板に成膜した試料において、試料の温度を一定に保ちながらこの薄膜試料の面内方向にある特定の強度の磁場を印加すると、外部からの入力がかかかわらずMoGeの面内方向に直流電圧が発生した。
- ▶ この直流電圧は、電磁ノイズのある測定環境では一日中安定して観測され続けた。
- ▶ この直流電圧はMoGeがいわゆる渦糸液体相にあるときに生じており、磁性体界面と開放側界面における渦糸のアンバランスが整流機能を生じたと考えられる。
- ▶ 温度差ではなく環境のゆらぎを検出しており、低温動作ながらも非常に感度の高い整流素子であり、ノイズ評価や微弱信号の検出に利用できる可能性がある。

垂直熱電相互変換

- ▶ 従来型の熱電変換は熱流と電流が平行であったため、性能に限界があった。これに対しスピitzerベック効果、異常ネルンスト効果は熱流と電流が垂直方向であるため、非常にシンプルな構造で高い変換効率が期待される。
- ▶ 理論上の上限であるカルノー効率に達することが原理的には可能であると示された。
- ▶ 最近の垂直熱発電の出力密度は $200\mu\text{W}/\text{cm}^2$ に達しており、あと1桁向上すればBiTe系の従来型熱電素子を超えるところまで達している。
- ▶ 逆過程であるスピンペルチエ効果では、微小領域のスピン流－熱流変換現象の可視化が行われる。

フレキシブルスピントロニクス



【図1】(a)手の甲に貼り付けた柔軟なスピントロニクスセンサーと(b)各指を曲げたときの抵抗変化

- ▶ 磁気抵抗素子をフレキシブル基板上に製膜することにより磁歪効果を用いたベクトル型のひずみセンサとなることが示された。
- ▶ 今後、ゼロエネルギー消費のデータロガー付きセンサとなる可能性があり注目されている。



12. 終わりに

- ▶ スピントロニクス領域で見出された数々の基礎物理法則は、新たなデバイス開発への道筋を示しており、次世代の革新的デバイス技術の芽として熱い視線を浴びています。
- ▶ スピン科学は、ナノという舞台を得て、大きく育ちつつあります。理論と実験がかみ合って、新しい世界が開かれる予感を感じます。