

高強度テラヘルツパルスによる相変化材料の新たな結晶成長機構の発見

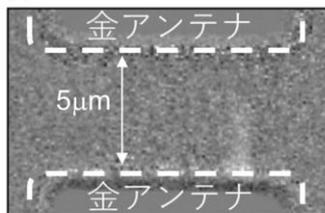
—ナノスケールの新規メモリデバイス開発に期待—

概要

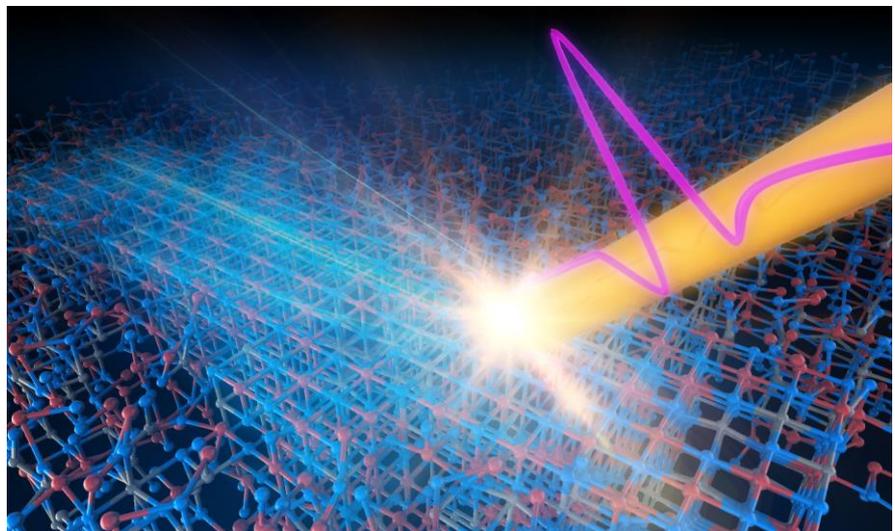
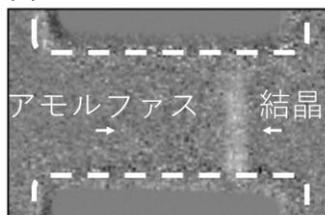
京都大学化学研究所の廣理英基 准教授（兼：京都大学物質－細胞統合システム拠点（iCeMS＝アイセムス）連携准教授）、金光義彦 教授、佐成晏之 同博士課程学生、同理学研究科の田中耕一郎 教授（兼 iCeMS 連携主任研究者）、筑波大学数理物質系の長谷宗明 教授、東海大学工学部光・画像工学科の立崎武弘 講師、国立研究開発法人 産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門の齊藤雄太 主任研究員、牧野孝太郎 研究員、フォンス・ポール 上級主任研究員、コロボフ・アレキサンドル 首席研究員、富永淳二 首席研究員らの研究グループは、高強度テラヘルツパルス^{注1)}を相変化材料 GeSbTe 化合物(GST)^{注2)}に照射すると、アモルファス状態^{注3)}からナノスケールで結晶成長する機構を発見しました。GST は現在使用されている記録型 DVD や次世代の不揮発性固体メモリ^{注4)}として期待されている相変化メモリ^{注5)}の記録材料です。本研究では、世界最高強度のテラヘルツパルスの発生技術を駆使することで、ピコ秒（1兆分の1秒）という非常に短い高電場パルスを GST に加えることに成功し、電場方向へ選択的にナノスケールの結晶成長が生じることを明らかにしました。本研究成果は、メモリのスイッチング動作において瞬間的に生じる高電場効果を明らかにし、またナノスケールという極めて小さな構造変化の誘起が可能なことを示したものであり、今後相変化メモリの小型化や高効率化にもつながると期待されます。

本研究成果は、2018年10月19日に米国物理学会の学術誌「Physical Review Letters」に掲載されました。

(i) 13000パルス



(ii) 15000パルス



図：照射する高強度テラヘルツパルスを増やすにつれて相変化材料 GeSbTe 化合物がアモルファス状態（灰色）から一次的に結晶化（白色）する様子を捉えた顕微鏡写真（左図）と模式図（右図）。

1. 背景

DVD などに代表される光記録媒体で使用されている記録膜材料は、Te（テルル）を主成分とするカルコゲン化合物と呼ばれる半導体で、相変化材料と呼ばれています。代表的な相変化材料である GeSbTe 化合物 (GST) においては、結晶状態とアモルファス状態で大きな反射率の差（屈折率の差）や電気抵抗の差があり、これらの差を利用して情報を記録・消去可能な不揮発性固体メモリに応用されています。特に、GST は 2 つの相（原子が規則正しく並んでいる結晶相と不規則に配列するアモルファス相）を電氣的にスイッチングすることが可能であるため、コンピューターや電気デバイスの省エネルギー化に貢献する不揮発性メモリとして期待され、ごく最近 Intel や Micron といった大手半導体メーカーが量産を開始しました。電氣的スイッチングは、電流を流したときに発生するジュール熱によって相変化を制御することによって実現されます。しかし、ナノ秒（1 ナノ秒は 10 億分の 1 秒）程度続く電気パルスを用いるため、加熱中に熱がマイクロメートル程度に拡散してしまい、ナノスケールの超小型のメモリ開発には熱の拡散を抑制することが極めて重要であると考えられてきました。さらに、今年のノーベル物理学賞はレーザー物理学分野での画期的な発明に贈られることになりましたが、この発明以来のレーザー技術の発展には目覚ましいものがあり、高強度のレーザーパルスを生み出すことが可能になっています。

2. 研究手法・成果

電磁波の一種であるテラヘルツパルス（THz パルス）は、1 ピコ秒（1 兆分の 1 秒）という極短時間だけ電場が持続する電気パルスという側面を持ちます。本研究では、高強度のレーザーパルスから生み出された高強度テラヘルツパルスを用いることにより、ナノ秒の電気パルスよりも 3 桁も短い高電場を試料に加え、熱の拡散を極限的に抑制し、アモルファス GST 薄膜においてナノスケールの結晶化を引き起こすことに成功しました。試料として用いた代表的な相変化材料である GST 薄膜（膜厚 40 ナノメートル）は、国立研究開発法人 産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門の齊藤雄太 主任研究員、富永淳二 首席研究員らによってスパッタリング法^{注6}により作製されました。さらに、研究グループはテラヘルツ電場を加えた瞬間の試料の光学応答を調べることによって、高強度・短パルスなテラヘルツパルスの電場が加えられると、GST 薄膜内部でゼナートンネリング^{注7}によって大量のキャリア（電荷を運ぶ自由電子）が生成していることを解明しました。この大量のキャリアは結晶相の電気伝導度をアモルファス状態に比べ約 100 倍程度上昇させます。このため、結晶化した部分の先端にテラヘルツ電場が集中し、結晶部先端で局所的にジュール熱が発生します。つまり結晶部先端でのジュール熱による結晶成長が逐次的に進むため、結果として電場方向に沿った異方的な結晶成長を引き起こすという新しいメカニズムの解明に成功しました。

3. 波及効果、今後の予定

これまでの相変化材料を用いたデバイス開発においては、相変化の高速化や動作の低エネルギー化といった観点で研究が行われてきました。本研究により明らかとなった、高電場・短パルスの電場パルスを用いた新たな結晶化・結晶成長機構により、GST を用いたメモリデバイスの微細化に向けた研究の発展が期待されます。

本研究によって高電場物性制御研究の基盤技術を構築できたといえます。これは、次世代エレクトロニクス技術の開発に向けて極めて重要な課題である「高電場による物質の制御」を目指した研究を加速させると期待されます。今後は、グラフェンに代表される単原子層物質やトポロジカル物質、磁性体など、様々な新規電子材料の高電場現象解明に本プラットフォームを利用し、新機能の発現と物質制御の研究へと発展させます。

4. 研究プロジェクトについて

本研究は、JST 戦略的創造研究推進事業 個人型研究（さきがけ）「素材・デバイス・システム融合による革新的ナノエレクトロニクス創成（研究総括：桜井 貴康）」の研究課題「超高強度テラヘルツ光のナノ空間制御と物性制御技術への応用（研究代表者：廣理 英基、研究期間：平成 26 年 10 月～30 年 3 月）」の支援を受けて行われました。

<用語解説>

注 1) テラヘルツパルス：テラヘルツ電磁波とは光波と電波の中間の周波数帯に位置する電磁波のことであり、約半周期（1 ピコ秒）だけ持続する時間的形狀を有するもの（図中の桃色で示されている）。最近まで未踏領域の電磁波とされてきたが、レーザー技術の進歩とともに、発生や検出、操作の技術が大きく進展した。1 テラヘルツは光子のエネルギーにすると約 4 ミリエレクトロンボルト (meV)、周期にすると 1 ピコ秒に相当する。1 周期程度だけ振動するパルス状のテラヘルツ電磁波をテラヘルツパルスとして実験で用いている。

注 2) GeSbTe 化合物(GST)： Ge（ゲルマニウム）、Sb（アンチモン）、Te（テルル）の 3 つの元素からなる化合物。

注 3) アモルファス状態：原子や分子が規則的に並んだ結晶とは異なり、無秩序に配置された状態のことを指す。非晶質とも呼ばれる。

注 4) 不揮発性固体メモリ：不揮発性メモリとは、電源を切っても記録した情報を保持できる記録装置（メモリ）のことをいう。特に半導体など、固体で作製された不揮発性メモリを不揮発性固体メモリと呼ぶ。

注 5) 相変化メモリ：不揮発性固体メモリの一種であり、カルコゲン化合物と呼ばれる半導体が相変化メモリの記録膜材料として用いられる。半導体レーザーなどのパルス状レーザービームやパルス電流を入射させることによって光記録膜の温度を変化させ、結晶とアモルファス相を高速でスイッチできる。

注 6) スパッタリング法：ガスイオン等を固体ターゲット試料に照射して、衝撃によってターゲット材料から粒子を放出させ、基板に堆積させて薄膜試料を作製する方法。

注 7) ゼナートンネリング：半導体や誘電体に高電場を加えると価電子帯から伝導帯に電子が励起される現象。

<論文タイトルと著者>

タイトル：Zener tunneling breakdown in phase-change materials revealed by intense terahertz pulses（高強度 THz パルスによる相変化材料におけるゼナートンネリング絶縁破壊機構の解明）

著者：Yasuyuki Sanari, Takehiro Tachizaki, Yuta Saito, Kotaro Makino, Paul Fons, Alexander V. Kolobov, Junji Tominaga, Koichiro Tanaka, Yoshihiko Kanemitsu, Muneaki Hase, and Hideki Hirori

掲載誌：Physical Review Letters

<お問い合わせ先>

廣理 英基（ひろり・ひでき）

京都大学化学研究所 准教授

TEL：0774-38-4512

E-mail：hirori@scl.kyoto-u.ac.jp