

機関番号：11301

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2010

課題番号：19048004

研究課題名（和文） ナノ構造制御による高効率スピン源の探索と創製

研究課題名（英文） Fabrication of highly efficient spin source materials by nanostructure control

研究代表者

高梨 弘毅 (TAKANASHI KOKI)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：00187981

研究成果の概要（和文）：スピン角運動量の流れであるスピン流の創出と制御において、高偏極・高効率スピン源を創製することが重要課題の一つである。本研究では、ナノ構造制御によって高偏極・高効率スピン源を創製することを目指した。その結果、 Co_2MnSi ホイスラー合金層を有する巨大磁気抵抗素子において室温で高い磁気抵抗効果比を実現した。また、非磁性 Au ホールクロスと FePt 垂直スピン源から成るナノ構造において巨大スピンホール効果を観測し、不純物添加効果などを系統的に調べた。さらに、Fe や Cr、Au ナノ粒子を介した磁気伝導特性を調べ、ナノ粒子におけるスピン緩和時間の増大の観測に成功した。

研究成果の概要（英文）：Fabrication of highly efficient spin source materials is an important issue for creation and control of spin current that is the flow of spin angular momentum. In this project, we fabricated highly spin-polarized / highly efficient spin source by nanostructure control. We achieved large magnetoresistance ratio at room temperature for giant magnetoresistance pillars with full-Heusler Co_2MnSi layers. We also successfully observed giant spin Hall effect in nanostructured devices with a Au Hall cross and an FePt perpendicular spin injector, and carried out the systematic investigation of spin Hall effect in impurity doped-Au. In addition, the enhancement of spin relaxation time was observed in nanoparticles by measuring the magneto-transport properties in Fe, Cr, and Au nanoparticles.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	19,000,000	0	19,000,000
2008年度	23,700,000	0	23,700,000
2009年度	23,700,000	0	23,700,000
2010年度	19,000,000	0	19,000,000
総計	85,400,000	0	85,400,000

研究分野：磁性材料、スピントロニクス

科研費の分科・細目：材料工学・構造・機能材料

キーワード：磁性、スピンエレクトロニクス、ナノ材料、スピン流、物性機能

1. 研究開始当初の背景

電子の持つ電荷とスピンという2つの性質を積極的に利用して、既存のエレクトロニクスデバイスにない新しい機能性を付与する工学分野がスピントロニクスである。スピン

トロニクスデバイスの最大の魅力は、磁性体を用いることによる情報の不揮発性であり、本研究開始当初、超低消費電力で動作可能なランダムアクセスメモリ(RAM)やスピン電界効果型トランジスタなどの開発、さらには

ロジック回路と RAM の融合などが期待され多くのグループにより研究が進められていた。また、磁性体が GHz 領域で磁化運動することに基づく全く新しい構造のダイオード素子や発振素子も提案された。このようにスピントロニクスが急速に発展していく過程において、スピン角運動量の流れである「スピン流」という新しい概念が生まれ、スピン流をいかに効率良く創出および制御するがスピントロニクスデバイスの高性能化、多機能化、省エネルギー化のためのキーになっていた。スピン流を効率良く創出するという観点からは、伝導電子が 100%スピン偏極したハーフメタルと呼ばれる物質群が有効であると考えられている。しかしながら、ハーフメタル性のような物質固有の性質に加えて、ナノ構造制御によって高偏極・高効率スピン源を創製できれば、スピン流を利用したデバイスの発展に大きく寄与することになると考えられた。

2. 研究の目的

本研究課題では、ナノ構造を制御することで高偏極・高効率スピン源を創製することを主目的とし、以下の研究内容を遂行した。

- (1) 磁性ナノ粒子や磁性超薄膜を用いた最適ナノ構造を探索することにより、高効率スピン源の創製を行う。サイズ効果によって高効率にスピン流を取り出せることが理論予測されている磁性ナノ粒子や磁性超薄膜を用いて磁性ナノ構造を作製し、磁気伝導特性を評価することにより、ナノ構造の探索および最適化を行い、高効率スピン源の創製を行う。
- (2) ハーフメタルホイスラー合金を用いた高効率スピン源の創製を行う。ホイスラー合金は、理論計算より完全スピン偏極した物質であり、半導体への高効率なスピン注入を行うためのスピン源としても期待されている。ホイスラー規則合金薄膜を用いたナノ構造体を作製し、磁気伝導特性を評価することにより、高効率スピン源の実現を目指す。
- (3) 高効率なスピン注入を可能にする垂直磁化スピン源の創製を行う。垂直磁化スピン源は、無磁場下でも膜面垂直にスピン偏極したスピン流を注入できるという面内磁化スピン源には無い特徴を有している。本研究では、垂直磁化を示し且つ高効率にスピン注入が可能なスピン源の探索および創製を行う。

3. 研究の方法

- (1) 分子線エピタキシー法を用いて、磁性ナノ粒子を含むトンネル磁気抵抗(TMR)薄膜や磁性超薄膜を作製した。ナノ粒子や超薄膜の成長形態の評価に走査プローブ顕微鏡を用い、成長条件と粒子形態の相関などを調べた。さらに、電子線リソグラフィーを用いた微細加工によって薄膜試料を TMR 素子へと

加工した。直流 4 端子法により TMR 効果および電流-電圧特性を測定し、ナノ粒子におけるスピン蓄積を観測することでスピン緩和時間の評価を行った。

- (2) 超高真空対応マグネトロンスパッタ装置を用いて、ホイスラー規則合金層を有する巨大磁気抵抗(GMR)薄膜を作製した。薄膜試料に対して構造解析および磁化測定を行うことにより、ホイスラー合金の規則度や飽和磁化などの基本的な特性を調べた。また、作製した薄膜試料に対して微細加工を施し、ナノサイズの面垂直通電型(CPP) GMR 素子を作製した。GMR 特性を系統的に評価し理論計算と比較することで、大きな磁気抵抗比が得られる条件およびそのメカニズムを明らかにした。

- (3) 超高真空対応マグネトロンスパッタ装置および電子線リソグラフィーによる微細加工技術を用いて、FePt 垂直スピン注入源および Au ホールクロスから成るナノサイズ面内多端子素子を作製した。直流 4 端子法を用いて非局所ホール抵抗を測定し、スピンホール効果の観測を行った。

4. 研究成果

- (1) 磁性ナノ粒子や磁性超薄膜を用いた高効率スピン源の創製に関して、以下の成果を得た。ナノ粒子および超薄膜の合成において、蒸着量とナノ粒子系の関係が Cr, Fe 等の遷移金属と Au 等の貴金属では大きく異なることを見いだした。MgO 基板上に Co のナノ粒子を蒸着することにより作製したグラニューラ薄膜の磁気輸送特性を測定した結果、Co 膜厚 1nm の試料において室温でトンネル磁気抵抗効果を観測することに成功した。また、Cr あるいは Au ナノ粒子を中間層として有する 2 重トンネル接合を作製し、明瞭なトンネル磁気抵抗効果の観測に成功した。図 1 に Cr 粒子を有する 2 重トンネル接合の磁気抵抗曲線を示す。これらの結果をもとにナノ粒

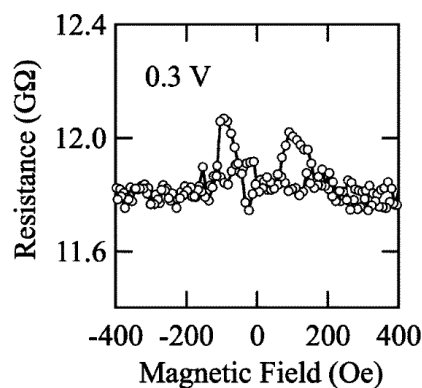


図1 Cr粒子を有する2重トンネル接合の磁気抵抗曲線。測定温度は7Kである。

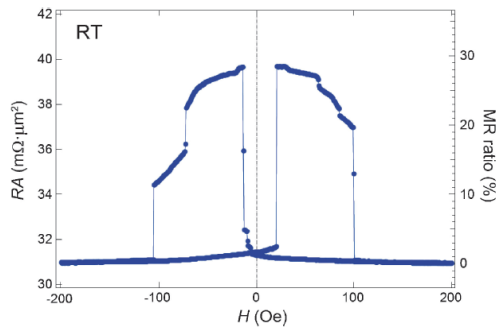


図2 Co_2MnSi 層 / Ag 非磁性中間層 / Co_2MnSi 層を有する CPP-GMR 素子の磁気抵抗曲線。室温で 28.8% の GMR 比が得られている。

子におけるスピン蓄積を評価したところ、Au ナノ粒子においてスピン緩和時間の増大を観測した。理論計算と比較したところ、ナノ粒子の帯電効果がスピン蓄積を増大させ、スピン源としての性能改善に有益であることを明らかにした。さらに、Au ナノ粒子におけるスピン蓄積の系統的な実験を進めた結果、スピン緩和時間のメカニズムに関する重要な知見が得られた。

(2) ハーフメタルホイスラー合金を用いた高効率スピン源の創製に関して、以下の成果を得た。 Co_2MnSi フルホイスラー合金を強磁性電極に用いた CPP-GMR 素子を作製し、その磁気抵抗効果を測定したところ、室温で 28.8% と高い GMR の観測に成功した。図 2 に、 Co_2MnSi 層 / Ag 非磁性中間層 / Co_2MnSi 層を有する CPP-GMR 素子の磁気抵抗曲線を示す。この結果より、ホイスラー合金の高偏極スピン源としての有用性が確認された。得られた実験結果を理論計算と比較したところ、Ag 層と Co_2MnSi 層との界面での伝導がスピンに強く依存していることが示唆され、高い GMR 比の発現メカニズムが明らかとなった。

(3) 高効率なスピン注入を可能にする垂直磁化スピン源の創製に関して、以下の成果を得た。FePt 垂直スピン注入源および Au ホールクロスから成るナノサイズ面内多端子素子において、大きなスピン流の生成を示す巨大スピンホール効果が観測された。その発現メカニズムを明らかにするために、Fe や Pt などの不純物を添加する効果や Au ホールクロス膜厚がスピンホール効果に与える影響について調べた。その結果、Pt 不純物を増加するに伴い、スピンホール角が増加する傾向が見られた。また、図 3 に示すように、Pt 添加 Au ではスピンホール効果による非局所ホール抵抗変化が膜厚の増加に伴い急激に低下した。このことは、スピンホール角が膜厚に依存することを意味しており、理論計算と比

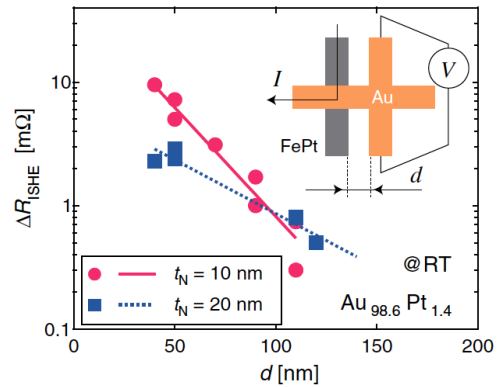


図3 FePt 垂直スピン注入源および Pt 添加 Au ホールクロスから成るナノサイズ面内多端子素子における非局所ホール抵抗変化の電極間距離依存性。ホールクロス膜厚 t_N の増加に伴い、抵抗変化が低下している。

較した結果、Au 表面上の Pt 原子がスピンホール角の増大に寄与している可能性が示唆された。これらの結果は、FePt 規則合金が垂直磁化スピン源として有望であることのみならず、スピンホール効果を利用することで、非磁性金属も高効率なスピン源に成りうることを示唆するものである。

以上、本研究で得られた結果はナノ構造化が高偏極・高効率スピン源の創製に有効であることを示唆するものである。今後は更なる材料探索および構造の最適化を図ることにより、スピントロニクス発展に大きく貢献する高性能なスピン源が実現するものと期待される。

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 36 件)

① B. Gu, I. Sugai, T. Ziman, G.Y. Guo, N. Nagaosa, T. Seki, K. Takanashi and S. Maekawa, Surface-Assisted Spin Hall Effect in Au Films with Pt Impurities, Physics Review Letters, 査読有、105 巻、2010 年、216401-1-4 頁

② Y. Sakuraba, K. Izumi, T. Iwase, S. Bosu, K. Saito, K. Takanashi, Y. Miura, K. Futatsukawa, K. Abe and M. Shirai, Mechanism of large magnetoresistance in $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Ag}/\text{Co}_2\text{MnSi}$ devices with current perpendicular to the plane, Physics Review B, 査読有、82 巻、2010 年、094444-1-5 頁

③ T. Koda, S. Mitani, M. Mizuguchi and K.

Takanashi、Spin Accumulation in Cr Nanoparticles in Single Electron Tunneling Regime、IEEE Transactions on Magnetics、査読有、46 巻、2010 年、2052-2055 頁

④ S. Bosu, Y. Sakuraba, K. Saito, H. Wang, S. Mitani, and K. Takanashi、Chemical ordering dependence of interlayer exchange coupling in Co-Mn-Si/Cr/Co-Mn-Si trilayer structures、Physics Review B、査読有、81 巻、2009 年、054426-1-8 頁

⑤ T. Iwase, Y. Sakuraba, S. Bosu, K. Saito, S. Mitani and K. Takanashi、Large interface spin-asymmetry and magnetoresistance in fully epitaxial $\text{Co}_2\text{MnSi} / \text{Ag} / \text{Co}_2\text{MnSi}$ current-perpendicular-to-plane magnetoresistive devices、Applied Physics Express、査読有、2 巻、2009 年、063003-1-3 頁

⑥ T. Seki, S. Mitani, and K. Takanashi、Nucleation-type magnetization reversal by spin-polarized current in perpendicularly magnetized FePt layers、Physics Review B、査読有、77 巻、2008 年、214414-1-8 頁

⑦ S. Mitani, Y. Nogi, H. Wang, K. Yakushiji, F. Ernult and K. Takanashi、Current-induced tunnel magnetoresistance due to spin accumulation in Au nanoparticles、Applied Physics Letters、査読有、92 巻、2008 年、152509-1-3 頁

⑧ T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa, J. Nitta, and K. Takanashi、Giant spin Hall effect in perpendicularly spin-polarized FePt/Au devices、Nature Materials、査読有、7 巻、2008 年、125-129 頁

[学会発表] (計 34 件)

① K. Takanashi and T. Seki、 $L1_0$ -ordered alloy as a spintronic material (invited)、IUMRS-ICA 2011-12th International Conference in Asia、2011 年 9 月 21 日、Taipei, Taiwan

② T. Koda, S. Mitani, M. Mizuguchi and K. Takanashi、Mechanism of Enhanced Spin Relaxation Time in Au Nanoparticles、55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials、2010 年 11 月 15 日、Atlanta, USA

③ M. Mizuguchi and K. Takanashi、Spin dynamics in ferromagnetic nano-scaled dots (invited)、The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2010)、2010 年 7 月 16 日、Sendai、

Japan

④ Y. Sakuraba, K. Izumi, S. Bosu, K. Saito and K. Takanashi、Large interface spin-asymmetry and magnetoresistance in full-epitaxial $\text{Co}_2\text{MnSi} / \text{Ag} / \text{Co}_2\text{MnSi}$ CPP-GMR devices (invited)、The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2010)、2010 年 7 月 15 日、Sendai, Japan

⑤ K. Takanashi, Y. Sakuraba, T. Iwase, K. Izumi, S. Bosu and K. Saito、Large magnetoresistance in half-metallic Heusler alloy Co_2MnSi -based current-perpendicular-to-plane magnetoresistive devices (invited)、International Conference on Superconductivity And Magnetism (ICSM 2010)、2010 年 4 月 27 日、Antalya, Turkey

⑥ T. Koda, S. Mitani, M. Mizuguchi, and K. Takanashi、Spin Accumulation in Cr Nanoparticles in Single Electron Tunneling Regime、11th Joint MMM-Intermag Conference、2010 年 1 月 20 日、Washington D.C., USA

⑦ 高梨弘毅、菅井勇、三谷誠司、Au の室温巨大スピンホール効果 (招待講演)、2009 年秋季第 70 回応用物理学会学術講演会シンポジウム、2009 年 9 月 10 日、富山大学

⑧ Takanashi, T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa and J. Nitta、Giant spin Hall effect in perpendicularly spin-polarized FePt/Au systems (invited)、Moscow International Symposium on Magnetism、2008 年 6 月 21 日、Moscow, Russia

⑨ T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, K. Takanashi, S. Takahashi, S. Maekawa, H. Imamura, and J. Nitta、Giant spin Hall effect in perpendicularly spin-polarized FePt/Au devices (invited)、Intermag 2008, Madrid, 2008 年 5 月 7 日 Spain

[図書] (計 1 件)

① 桜庭裕弥、高梨弘毅、出版社：内田老鶴圃、機能材料としてのホイスラー合金 第 9 章 スピントロニクス材料としてのホイスラー合金、2011、233-270

[その他]

領域ホームページ

http://www.scl.kyoto-u.ac.jp/~ono/tokutei/public_html/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高梨 弘毅 (TAKANASHI KOKI)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号 : 00187981

(2) 研究分担者

水口 将輝 (MIZUGUCHI MASAKI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号 : 50397759