

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17433

研究課題名(和文) ファンデルワールス強磁性体を利用したグラフェンへのスピン注入

研究課題名(英文) Spin injection into graphene from ferromagnetic van der Waals materials

研究代表者

荒井 美穂 (Arai, Miho)

東京大学・生産技術研究所・特任研究員

研究者番号：20738588

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：近年グラフェン、h-BN、カルコゲナイド層状物質といった原子層物質を接合したファンデルワールスヘテロ構造(vdWヘテロ構造)の研究が急増している。しかし、強磁性を示す原子層物質を含む、vdWヘテロ構造は実現されていない。本研究では強磁性原子層物質を使用したFe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂MTJ素子、Fe_{0.25}TaS₂/Cr_{1/3}TaS₂vdWヘテロ接合を作製、その磁気抵抗を測定した。スピン偏極の平行・反平行状態によるトンネル磁気抵抗効果を観測することに成功した。この結果よりスピントロニクスデバイスとしてvdWヘテロ構造が応用できることを示した。

研究成果の概要(英文)：A van der Waals (vdW) junction based on two-dimensional materials presents a new method for constructing heterostructures with high quality interfaces. Since there are various layered materials, a number of combinations are applicable to built vdW heterostructures, such as metal, insulator, semiconductor, superconductor, and topological insulator. However, a vdW heterostructure including ferromagnetic layered materials is still missing. We fabricated Fe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂ and Fe_{0.25}TaS₂/Cr_{1/3}TaS₂ junctions and observed magnetic resistance. We observed magneto-resistance signals which can be assigned to the switching of magnetization between parallel and antiparallel configuration. The observed signal is attributed to a tunnel magneto-resistance effect. Our study demonstrates that vdW heterostructures can be used for spintoronic devices.

研究分野：複合原子層ファンデルワールス接合

キーワード：ファンデルワールス接合 強磁性 スピントロニクスデバイス

1. 研究開始当初の背景

異なる電子物性を有する原子層物質同士をファンデルワールス力によって接合することでヘテロ構造を作製するという、新しいヘテロ構造作製の概念が生まれている。このようなヘテロ構造はファンデルワールスヘテロ構造(vdWヘテロ構造)と呼ばれている。ファンデルワールス力による接合は分子線エピタキシー法と比較して、層間において原子の拡散が起こらない、格子整合の制約が存在しないといった優れた特徴を持つ。近年、vdWヘテロ構造の研究が急増しているが、強磁性を示す原子層物質を含む、vdWヘテロ構造は実現されていない。

2. 研究の目的

本研究では強磁性原子層物質を内包するvdWヘテロ構造を作製し、ファンデルワールス力のみで接合した2種類のスピントロニクスデバイスを作製する。強磁性原子層物質として、遷移金属カルコゲナイド(TMD)であるTaS₂の層間にFe原子またはCr原子がインターカレートしているおよびCr_{1/3}TaS₂に着目した。2種類のスピントロニクスデバイスとは() Fe_{0.25}TaS₂同士を接合したFe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂MTJ素子、()異なる磁気異方性示す強磁性原子層物質を接合したFe_{0.25}TaS₂/Cr_{1/3}TaS₂vdWヘテロ接合である。これらの強磁性層状物質を内包したvdWヘテロ構造の作製および磁気特性の評価が実現することで、vdWヘテロ構造を利用した応用デバイスへの利用価値を拡大することにつながる。

3. 研究の方法

(1) vdWヘテロ構造の作成

原子層物質を積層する技術として、PMMA膜、アクリル樹脂やPDMS/PCC膜を用いた転写技術が確立されているが、いずれも100度近くまで温度を上げる必要がある。強磁性原子層物質は加熱すると酸化する恐れがあるため、室温における転写技術の確立が必要がある。近年になって室温における転写技術としてPDMS膜を用いた方法が確立されており、この技術を強磁性vdWヘテロ構造作製に使用する。

SiO₂/Si基板とPDMS膜上にそれぞれスコッチテープを用いた機械的剥離によって強磁性原子層物質のフレークを作製する。2種類の基板に用意し強磁性原子層物質のフレークを向い合せにし、光学顕微鏡を用いて位置合わせを行い貼り付ける。その後PDMS膜をゆっくり持ち上げることで、PDMS上のフレークをSiO₂/Si基板のフレーク上に落とす。このようにして強磁性vdWヘテロ構造を作製する。

(2) Fe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂MTJ素子の磁気特性の評価

Fe_{0.25}TaS₂は電子スピンのc軸方向に偏極するという磁気異方性を持ち、保磁力が5T~9Tという非常に大きな磁化安定性を示す。

筆者は機械的剥離によって、膜厚100nmまで薄膜化したFe_{0.25}TaS₂フレークを低温において磁気抵抗を測定し、フレークの形状によって保磁力が異なることを明らかにした。そのため異なる形状のFe_{0.25}TaS₂同士を接合することでMTJ素子を作製できると期待される。MTJ素子が作製できていることを確認するため低温において磁気抵抗測定を行う。垂直磁場を掃引すると2つのFe_{0.25}TaS₂間でスピン偏極が反平行状態となり抵抗値が急峻に変化する磁気抵抗が観測される。

(3) Fe_{0.25}TaS₂/Cr_{1/3}TaS₂vdWヘテロ接合の磁気特性の評価

Cr_{1/3}TaS₂は電子スピンの面内に偏極するという磁気異方性を持つため、異なる磁気異方性を有するFe_{0.25}TaS₂と接合することでMTJ素子を作製できると期待される。またCr_{1/3}TaS₂は保磁力が100Oeと非常に小さいため、スイッチング磁場を減少させることが可能であると期待できる。MTJ素子が作製できていることを確認するため低温において磁気抵抗測定を行う。

4. 研究成果

(1) Fe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂MTJ素子

Fe_{0.25}TaS₂間のI-V特性を低温において測定したところ、非線形となった。これはFe_{0.25}TaS₂間ではトンネル伝導が生じていることを示す(図1)。素子の断面TEM像を観測したところ、Fe_{0.25}TaS₂フレークの表面一層が酸化していることが分かった。この酸化膜がFe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂MTJ素子において絶縁膜の役割を果たしていると考えられる。

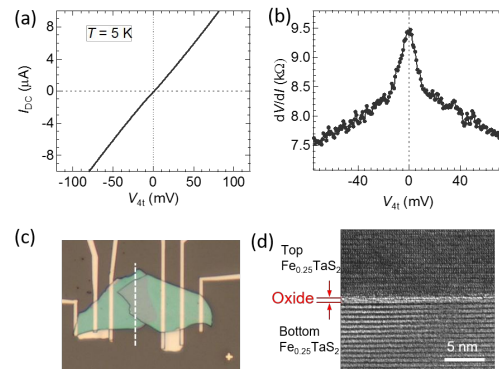


図1 (a)(b) I-V特性、(c) Fe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂接合の光学顕微鏡像、(d) 断面TEM像

低温においてFe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂接合に対して垂直磁場を印加、掃引し磁気抵抗を測定したところ、5T付近において急峻な抵抗の上昇を観測した(図2)。上昇した抵抗値は一定値をとり、5.5T付近で急峻に下降した。磁場掃引を逆方向にしたところ、同様の現象が生じた。また、各Fe_{0.25}TaS₂フレークの磁気抵抗を測定したところ、各Fe_{0.25}TaS₂フレークで保磁力が異なることが分かった。さらに、Fe_{0.25}TaS₂/Fe_{0.25}TaS₂接合における抵抗値の急

峻な上昇および下降した磁場の値と、各フレイクの保磁力が一致していることが分かった。つまり $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 接合における抵抗値の特性は、スピン偏極が平行状態から反平行状態となり平行状態に戻るトンネル磁気抵抗効果であることを示している。このことから作製した $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 接合が MTJ 素子として機能していることが明らかとなった。

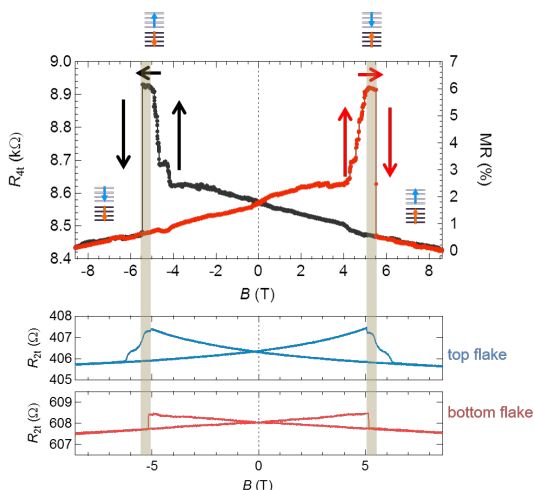


図 2 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 接合における磁気抵抗の観測

(2) $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ vdW ヘテロ接合

まず、これまでに報告が無かった $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ 単結晶における伝導特性についても調べた。異方性磁気抵抗効果では、面内方向に磁場をスイープさせた場合、面直方向に磁場をスイープさせたときと比較して、低磁場での抵抗変化の度合いが大きいことが判明した。また、異常ホール効果において低磁場で正常ホール項が支配的であるという点は、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ と類似した結果であった。ホール伝導率の解析から、ホール伝導率の異常ホール項のスケール定数 S_H が温度に対して一定にならず、非弾性励起による散乱の影響もうけていることが考えられる。これは、 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ の単結晶と類似した結果であったが、その散乱の機構に違いがある可能性を示唆する結果も得られた。また、 $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ の劈開にも成功し、そのフレイクにおいて伝導測定を行った。劈開したフレイクでは、単結晶の異方性磁気抵抗効果では観測されない特異な抵抗のヒステリシスが観測された。 $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ という強磁性を示す層状物質が劈開可能で、劈開しても強磁性を示すという結果は、強磁性材料の候補がほとんどない vdW ヘテロ構造において、新たな強磁性材料の選択肢をもたらしたという意味で意義のある結果である。

$\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ と $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ 間の I-V 特性を低温において測定したところ、非線形及び非対称となった。非対称性が現れた理由として $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 側と $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ 側それぞれにできた自然酸化膜の厚さが異なり、非対称なトンネルバリアが形成されたことによると考え

られる。

低温において $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ 接合に対して垂直磁場を印加、掃引し磁気抵抗を測定したところ、0T 付近において急峻な抵抗の上昇を観測した。上昇した抵抗値は磁場を上げるにつれて上がっていき、5 T 付近で急峻に下降した。0T において $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ がそのまま上向きの磁化を保つのにに対し、 $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ はソフトな強磁性体でかつ面内方向に容易磁化方向を持つため、2 つの強磁性体の磁化配置は垂直となる。その後磁気抵抗値が急峻に上昇するのは、 $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ の面直方向の磁化が $B = 0$ T 近傍で急に下向きに変化するのを反映していると考えられる。最後 5T 付近の磁気抵抗値の急峻な下降は、 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ の磁化が反転することを反映している。このことから作製した $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ 接合が MTJ 素子として機能していることが明らかとなった。さらに得られた MR 比は、 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ vdW ヘテロ構造よりも全体的に大きくなっていった。

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 1 件)

M. Arai, R. Moriya, N. Yabuki, S. Masubuchi, K. Ueno and T. Machida, “Construction of van der Waals magnetic tunnel junction using ferromagnetic layered dichalcogenid”, *Applied Physics Letters*, **107**, 103107-5 (2015). (査読有)

[学会発表](計 4 件)

山崎雄司、荒井美穂、守谷頼、増淵覚、卞舜生、為ヶ井強、上野啓司、町田友樹、”カルコゲナイド系強磁性層状物質 $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ の伝導特性”、日本物理学会第 72 回年次大会、3月 18 日 2017 年、大阪大学。

Y. Yamasaki, R. Moriya, M. Arai, S. Masubuchi, S. Pyon, T. Tamegai, K. Ueno, and T. Machida, “Magnetic tunnel junction built from intercalated transition metal dichalcogenide ferromagnets with different magnetic anisotropy”, 第 52 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム (FNTG)、3月 2 日 2017 年、東京大学。

Y. Yamasaki, M. Arai, R. Moriya, S. Masubuchi, K. Ueno, and T. Machida, “Tunnel magnetoresistance effect in van der Waals junction composed of layered material ferromagnets”, Graphene Week 2016, Jun. 15, 2016, Warsaw.

M. Arai, R. Moriya, N. Yabuki, S. Masubuchi, K. Ueno, and T. Machida, “Observation of tunneling magnetoresistance effect in $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2/\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ van der Waals junction”, 7th International Conference on

Recent Progress in Graphene & 2D
Materials Research (RPGR2015), Oct. 28,
2015, Victoria. (招待講演)
〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

荒井 美穂 (Arai Miho)
東京大学生産技術研究所特任研究員
研究者番号：20738588

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()