

機関番号：17102

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008~2010

課題番号：20310078

研究課題名 (和文) Fe-Si 系強磁性体/半導体超格子における層間結合への光および温度効果

研究課題名 (英文) Effects of light irradiation and thermal heating on interlayer coupling in Fe-Si ferromagnetic metal/semiconductor superlattices

研究代表者

吉武 剛 (YOSHITAKE TSUYOSHI)

九州大学・総合理工学研究院・准教授

研究者番号：40284541

研究成果の概要 (和文) :

巨大磁気抵抗効果 (GMR) の発見以来, 電子のスピン依存現象に着目したスピントロニクスと呼ばれる新しい学問分野が形成され, 今後更なる発展が期待されている. 強磁性層間の磁気層間結合は, デバイスの基本原理となることから, 一つの大きなトピックである. 現在, 強磁性 (F) 結合, 反強磁性 (AF) 結合のスイッチングは磁場のみでなされており, まだ用途が限定されている. 本研究では, 温度と光に敏感な半導体を非磁性層に用いた強磁性金属 Fe<sub>3</sub>Si/半導体 FeSi<sub>2</sub> 人工格子を作製して, 強磁性層層間結合に及ぼす温度および光照射の効果の詳細に検討することを目的とした. 光照射に対する AF, F のスイッチングと考えられる現象が観測された. しかし, その変化は小さく感知するのが大変であった. そこで, 素子構造を膜面内に電流を流す CIP 構造から膜の垂直方向に電流を流す CPP 構造に変えて, 層間交換結合の変化に対する電気抵抗の変化幅を高めることを目指した. その結果, CIP 構造の場合の MR 比に比べて約 1 桁大きな 10% 近い変化幅が得られるようになった. また, CPP 構造にすることにより, 電気抵抗に電流注入に対するヒステリシスが観測されるようになった. 磁場中におけるそのヒステリシスに変化から, ヒステリシスの起源は層間結合の変化によると考えられる. 温度変調に関しては, 層間結合に明白な変化が得られた. CIP 膜では室温で AF 結合したものが, 100 K 以下で F 結合となることを確認した. CPP 膜でも室温で縦方向に誘起されると考えられる AF 状態が, 低温では誘起されなくなると考えられる結果を得た.

研究成果の概要 (英文) :

Spin-dependent phenomena have recently received much attention. Particularly, interlayer couplings between ferromagnetic layers separated by nonmagnetic metal and insulator spacer layers have been investigated to a large extent since they can induce the spin-dependent scattering of conduction carriers and spin-dependent tunneling, which are exploited for achieving the giant magnetoresistance (GMR) and tunnel magnetoresistance (TMR) effects, respectively. At present, the switching of interlayer couplings is made by applied magnetic fields. In this study, in order to switch them by the other methods such as light irradiation, thermal heating, and current injection, semiconducting interlayers were employed. Actually ferromagnetic Fe<sub>3</sub>Si/semiconducting FeSi<sub>2</sub> superlattices were prepared by sputtering and interlayer couplings were attempted to be switched by their methods. Although current in plane (CIP) films exhibited a change in the electrical resistivity for irradiation with a 1.3- $\mu$ m laser, which was expected to be due to a change in the interlayer coupling from antiferromagnetic (AF) to ferromagnetic (F) coupling, the change in the electrical resistivity was extremely small to be detected. Thus, we adapted current perpendicular plane (CPP) geometry for the detection. Owing to that, the magnetoresistance ratio was enhanced to be approximately 10%. This value is an order of magnitude larger than that of the CIP films. The CPP films exhibited hysteresis loops for the injection current. From the change in the hysteresis loop under magnetic field, the origin of the hysteresis loops was expected to be a change in the interlayer coupling. It was confirmed that the interlayer coupling of the CPP films was obviously changed from AF coupling at room temperature to F coupling at temperatures of lower than 100 K.

The CPP films also exhibited temperature-dependent interlayer couplings: AF coupling in a direction perpendicular to the plane induced at room temperature gradually weakened with a decrease in temperature and it finally disappeared at low temperatures.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	11,600,000	3,480,000	15,080,000
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
総計	15,300,000	4,590,000	19,890,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノマイクロ科学・マイクロナノデバイス

キーワード：量子効果，ヘテロ超格子，層間結合

### 1. 研究開始当初の背景

外部磁場により抵抗が大きく変化する現象である巨大磁気抵抗 (Giant Magnetic Resistance: GMR) 効果の発見以来、スピントロニクス分野の研究が急速な広がりを見せている。電子の電荷特性のみを利用する半導体工学とは異なり、スピントロニクス分野では電子の電荷とスピンの両方を利用する。通常 GMR 効果は磁性金属と非磁性金属を交互に積層させた金属人工格子で観測される。非磁性金属を絶縁体に置き換えた構造では電子は絶縁層をトンネルするのでトンネル磁気抵抗 (Tunnel Magnetic Resistance: TMR) 効果と呼ばれる。スピントロニクスの代表的物理現象である GMR 効果, TMR 効果とともに、強磁性層間結合が強磁性 (F)・反強磁性 (AF) で切り替わった結果起こる現象である。従来は、この強磁性層間結合のスイッチングは外部磁場により制御してきた。また最近の研究では電流を流すことにより、強磁性層間結合を制御できることが報告されており、この方法は電流注入磁化反転 (Current-Induced Magnetization Switching: CIMS) と呼ばれ、活発に研究が行われている。これらに対し、強磁性体と半導体のヘテロ構造では、半導体の電子状態が光・熱・圧力などで敏感に変化することを利用し、従来の外部磁場以外で強磁性層間結合を制御できる可能性がある。

### 2. 研究の目的

我々は鉄とシリコンの化合物である Fe-Si 系材料に注目している。Fe-Si 系には強磁性体  $\text{Fe}_3\text{Si}$  と半導体  $\text{FeSi}_2$  が存在し、共に d 電子が伝導に寄与するため、これらを積層させた人工格子は磁性体と半導体を融合させたスピントロニクスの新たな系として大変興味深

い。半導体が光、熱、圧力に対して電子状態を敏感に変化させることを利用して、強磁性層間結合を制御できる可能性がある。本研究では、これまで行ってきた磁場印加による強磁性層間結合制御のみならず、電流注入・温度変調・光照射による磁化反転制御技術に挑戦した。さらに、従来までの面内方向電流注入法 (CIP) から面直方向電流注入法 (CPP) へと転換することで、磁気抵抗 (MR) 比の向上を目指した。ここでは、CPP 積層膜における層間結合の温度変調および CIMS に関して報告する。

### 3. 研究の方法

$[\text{Fe}_3\text{Si}(25 \text{ \AA})/\text{FeSi}_2(10 \text{ \AA})]^{20}$  CIP-積層膜， $\text{Fe}_3\text{Si}(100 \text{ \AA})/[\text{Fe}_3\text{Si}(25 \text{ \AA})/\text{FeSi}_2(7.5 \text{ \AA})]^{19}/\text{Fe}_3\text{Si}(100 \text{ \AA})$  CPP-積層膜を対向ターゲット式 DC スパッタリング (FTDCS) 装置を用いて作製した。堆積時には Ar ガスを 15.0 sccm 流入し、全圧を  $1.33 \times 10^{-1} \text{ Pa}$  とした。基板には高抵抗 Fz-n Si(111) を用いた、結晶構造を XRD、磁化曲線および MR 比測定には VSM を用いた。MR 比測定および電流注入による電気抵抗変化の測定は、四端子法で行った。温度変調効果にはクライオスタットと液体ヘリウムを用いた。

### 4. 研究成果

$[\text{Fe}_3\text{Si}(25 \text{ \AA})/\text{FeSi}_2(10 \text{ \AA})]^{20}$  CIP-積層膜の面内方向磁化曲線温度依存を図 1 に示す。300 K では反強磁性結合 (AF 結合) していた積層膜が、77 K 以下の低温では強磁性結合 (F 結合) あるいは非結合へと磁化反転を起こしている。通常  $\text{FeSi}_2$  の電子を介して磁気層間結合が起きているが、温度の低下と共に  $\text{FeSi}_2$  の電子密度が減少し、それをトリガとして結

合の再編成あるいは結合が切れたと考えられる。これは非磁性層として半導体を用いていることを活かした磁化反転制御の手法であるといえる。

図 2 に  $\text{Fe}_3\text{Si}(100 \text{ \AA})/[\text{Fe}_3\text{Si}(25 \text{ \AA})/\text{FeSi}_2(7.5 \text{ \AA})]^{19}/\text{Fe}_3\text{Si}(100 \text{ \AA})$  CPP-積層膜の電流注入磁化反転 (CIMS) の磁場依存性を示す。測定的手法としては磁場を一定値に固定し、その状況下で CIMS を行っている。外部磁場 0 Oe では行き帰り共に強磁性層間結合が注入電流で切り替わり、明確なループが見られる。一方、強磁場中 (20 kOe, -20 kOe) では、磁場により結合が F 結合へと固定され、AF 結合・F 結合の切り替わりに起因するループは見られなかった。この結果から磁化反転が電流注入により誘起されていることが確認できた。

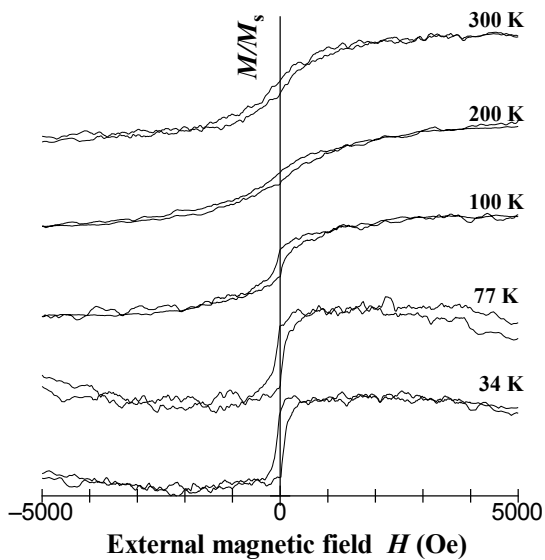


図 1 磁化曲線(面内)の温度依存性

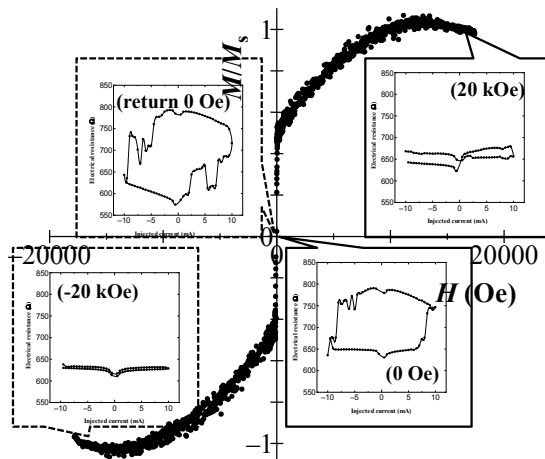


図 2 磁化曲線と磁場中における電気抵抗-注入電流特性

$\text{Fe}_3\text{Si}(100 \text{ \AA})/[\text{Fe}_3\text{Si}(25 \text{ \AA})/\text{FeSi}_2(7.5 \text{ \AA})]^{19}/\text{Fe}_3\text{Si}(100 \text{ \AA})$  CPP-積層膜の MR 比測定結果を図 3 に示す。金属と絶縁体の中間の電気伝導度を有する  $\text{FeSi}_2$  のおかげで、CPP 構造で MR 曲線をうまく測定できた。MR 比は約 10% に達した。これは以前の CIP による MR 比が約 0.85% だったことと比較すると、1 桁上向上した。しかし、一般的な TMR 素子の値と比較するとまだまだ低い値である。これは私たちの CPP サンプルが部分的にエピタキシャル成長している膜であるためであると考えている。もし、完全にエピタキシャル成長している CPP 膜を作製することが出来れば、さらなる MR 比向上の可能性が残されている。

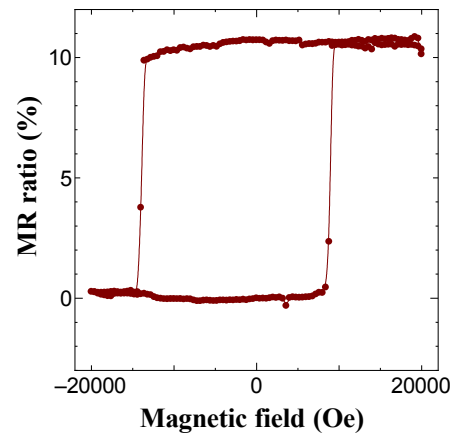


図 3. 典型的な MR 曲線(CPP)

## 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 7 件)

① Shin-ichi Hirakawa, Takayuki Sonoda, Ken-ichiro Sakai, Kaoru Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake  
Temperature-Dependent Current-Induced Magnetization Switching in  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{FeSi}_2/\text{Fe}_3\text{Si}$  trilayered films  
(査読有り)  
Jpn. J. Appl. Phys. (2011) in press

② Shin-ichi Hirakawa, Ken-ichiro Sakai, Takayuki Sonoda, Kaoru Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake  
Current-Induced Magnetization Switching in  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{FeSi}_2$  Superlattices  
Physics Procedia, Vol. 11 (2011) pp. 154-157.  
(査読有り)

③ Shin-ichi Hirakawa, Ken-ichiro Sakai, Kaoru

Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake  
Temperature-Dependent Interlayer Couplings in  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> multilayers prepared by facing  
targets direct-current sputtering

(査読無し)

Proceedings of 63rd Annual Gaseous Electronics  
Conference and 7th International Conference on  
Reactive Plasmas (2010) CTP-187(2pages).

④ Shin-ichi Hirakawa, Ken-ichiro Sakai, Kaoru  
Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake  
Fabrication of Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> Multilayers by Facing  
Targets Direct-Current Sputtering and The  
Magnetic Properties

(査読無し)

Proceedings of 63rd Annual Gaseous Electronics  
Conference and 7th International Conference on  
Reactive Plasmas (2010) KWP-073(2pages).

⑤ 平川信一, 堺 研一郎, 武田 薫, 吉武 剛  
強磁性金属 Fe<sub>3</sub>Si/半導体 FeSi<sub>2</sub> 人工格子におけ  
る CPP 素子の創製

(査読無し)

北九州産業学術推進機構・九州シンクロトロン  
光研究センター合同シンポジウム「ものづく  
りと放射光応用技術が拓くナノワールド」  
実施報告書, 52 頁, 2010.

⑥ K. Sakai, S. Hirakawa, K. Takeda, and T.  
Yoshitake

Current-induced magnetization switching in  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub>/Fe<sub>3</sub>Si trilayer films

(査読無し)

Proceedings of The 11th Cross Straits  
Symposium on Materials, Energy and  
Environment Sciences (2008) pp. 165-166.

⑦ Kaoru TAKEDA, Tsuyoshi YOSHITAKE,  
Yoshiki SAKAMOTO, Daisuke HARA, Masaru  
ITAKURA, Noriyuki KUWANO, and Kunihito  
NAGAYAMA

"Interfacial structure of Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> layered films  
deposited on Si(111) at elevated  
substrate-temperatures"

(査読有り)

Int. J. Mod. Phys., Vol. 23, Issue 17 (2009) pp.  
3543-3549.

[学会発表] (計 19 件)

① Shin-ichi Hirakawa, Ken-ichiro Sakai,  
Takayuki Sonoda, Kaoru Takeda, and Tsuyoshi  
Yoshitake

Temperature dependence of interlayer coupling in  
[Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub>]<sup>20</sup> artificial lattices

第 2 回半導体材料・デバイスフォーラム, 2010  
年 12 月 11-12 日, アークホテル熊本, 熊本市.

② Takayuki Sonoda, Shinichi Hirakawa,  
Kenichiro Sakai, Kaoru Takeda, and Tsuyoshi  
Yoshitake

Current-induced magnetization switching in  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub>/Fe<sub>3</sub>Si trilayered films

第 2 回半導体材料・デバイスフォーラム, 2010  
年 12 月 11-12 日, アークホテル熊本, 熊本市.

③ 高崎理一, 中西剛司, 武田 薫, 平川信一,  
園田貴之, 吉武 剛

Fe-Si 系人工格子の高圧下における電気抵抗  
測定

第 116 回日本物理学会九州支部例会, 2010 年  
12 月 4 日, 長崎大学.

④ 園田 貴之, 平川 信一, 堺 研一郎, 武田  
薫, 吉武 剛

Fe<sub>3</sub>Si/ナノ微結晶 FeSi<sub>2</sub> 積層膜における磁気  
層間結合の温度変調

平成 22 年応用物理学会九州支部学術講演会,  
2010 年 11 月 27-28 日, 九州大学.

⑤ 高崎理一, 中西剛司, 武田 薫, 平川信一,  
園田貴之, 吉武 剛

Fe<sub>3</sub>Si / FeSi<sub>2</sub> 人工格子の電気特性に及ぼす圧  
力効果

平成 22 年応用物理学会九州支部学術講演会,  
2010 年 11 月 27-28 日, 九州大学.

⑥ Shin-ichi Hirakawa, Ken-ichiro Sakai, Kaoru  
Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake

Temperature-Dependent Interlayer Couplings in  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> multilayers prepared by facing  
targets direct-current sputtering

63rd Annual Gaseous Electronics Conference and  
7th International Conference on Reactive  
Plasmas, October 4-8, 2010, Paris, France.

⑦ Shin-ichi Hirakawa, Ken-ichiro Sakai, Kaoru  
Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake

Fabrication of Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> Multilayers by Facing  
Targets Direct-Current Sputtering and The  
Magnetic Properties

63rd Annual Gaseous Electronics Conference and  
7th International Conference on Reactive  
Plasmas, October 4-8, 2010, Paris, France.

⑧ Shin-ichi Hirakawa, Kenichiro Sakai, Kaoru  
Takeda, and Tsuyoshi Yoshitake

Temperature-Dependent Interlayer Couplings in  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> Artificial Lattices

Asia-Pacific Conference on Semiconducting  
Silicides and Related Materials, July 24-26 2010,  
Tsukuba, Japan

⑨ 平川信一, 堺 研一郎, 武田 薫, 吉武 剛

強磁性金属 Fe<sub>3</sub>Si/半導体 FeSi<sub>2</sub> 人工格子における CPP 素子の創製

FAIS・SAGA-LS 合同シンポジウム「ものづくりと放射光応用技術が拓くナノワールド」, 2010年7月20日, 北九州学術研究都市 学術情報センター

⑩ 平川信一, 堺研一郎, 武田 薫, 吉武 剛  
Fe<sub>3</sub>Si/NC-FeSi<sub>2</sub>/Fe<sub>3</sub>Si 三層膜における磁化反転制御  
平成 22 年春季第 57 回応用物理学関係連合講演会, 2010 年 3 月 17-20 日, 東海大学

⑪ 平川信一, 堺 研一郎, 武田 薫, 吉武 剛, 永山邦仁  
Fe<sub>3</sub>Si/ナノ微結晶 FeSi<sub>2</sub>/Fe<sub>3</sub>Si 三層膜における電流注入による磁化反転  
平成 21 年応用物理学九州支部学術講演会, 2009 年 11 月 21-22 日, 熊本大学.

⑫ 堺研一郎, 平川信一, 武田 薫, 吉武 剛, 板倉 賢, 桑野範之, 永山邦仁  
Fe<sub>3</sub>Si/NC-FeSi<sub>2</sub> 人工格子の強磁性層間結合に及ぼす電流注入および温度変調効果  
平成 21 年応用物理学九州支部学術講演会, 2009 年 11 月 21-22 日, 熊本大学.

⑬ K. Sakai, S. Hirakawa, K. Takeda, and T. Yoshitake  
CURRENT-INDUCED MAGNETIZATION SWITCHING IN Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub>/Fe<sub>3</sub>Si TRILAYER FILMS  
The 11th Cross Straits Symposium on Materials, Energy and Environment Sciences, November 12-13, 2008, Pusan, Korea.

⑭ 堺研一郎, 武田 薫, 吉武 剛  
Fe<sub>3</sub>Si/NC-FeSi<sub>2</sub> 人工格子の強磁性層間結合に及ぼす電流注入および光照射の効果  
平成 21 年春季第 56 回応用物理学関係連合講演会, 2009 年 3 月 30 日~4 月 2 日, 筑波大学

⑮ 堺 研一郎, 武田 薫, 吉武 剛, 坂本佳輝, 板倉 賢, 桑野範之, 梶原寿了, 永山邦仁  
Fe<sub>3</sub>Si/NC-FeSi<sub>2</sub> 人工格子の強磁性層間結合に及ぼす電流注入および光照射の効果  
平成 20 年応用物理学九州支部学術講演会, 2008 年 11 月 29-30 日, 宮崎大学

⑯ K. Takeda, T. Yoshitake, Y. Sakamoto, T. Ogawa, D. Hara, M. Itakura, N. Kuwano, T. Kajiwara, and K. Nagayama  
Epitaxy of Fe<sub>3</sub>Si layers across FeSi<sub>2</sub> layers in Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> superlattices  
International Conference on Electronic Materials 2008, Sydney, Australia, 28th July to 1st August

2008

⑰ K. Takeda, T. Yoshitake, Y. Sakamoto, T. Ogawa, D. Hara, M. Itakura, N. Kuwano, T. Kajiwara, and K. Nagayama  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> superlattices prepared at elevated temperatures  
International Conference on Electronic Materials 2008, Sydney, Australia, 28th July to 1st August 2008

⑱ 武田 薫, 吉武 剛, 坂本佳輝, 板倉 賢, 桑野範之, 梶原寿了, 永山 邦仁  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> 人工格子の基板温度と磁気特性  
ナノ学会第 6 回大会, 2008 年 5 月 7-9 日, 九州大学

⑲ 武田 薫, 吉武 剛, 坂本佳輝, 板倉賢, 桑野範之, 梶原寿了, 永山 邦仁  
Fe<sub>3</sub>Si/FeSi<sub>2</sub> 人工格子のエピタキシャル成長と磁気特性  
ナノ学会第 6 回大会, 2008 年 5 月 7-9 日, 九州大学

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.asem.kyushu-u.ac.jp/qq/qq01/yoshitake/index.htm>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉武 剛 (YOSHITAKE TSUYOSHI)

研究者番号 : 40284541

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし