

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630116

研究課題名(和文) マグネトプラズモニック構造体を用いた温度自己制御型グリーン素子の創成

研究課題名(英文) Magneto-plasmonic nanostructure for magneto-plasmonic self temperature control device

研究代表者

齊藤 伸 (SAITO, Shin)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50344700

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性MnSb薄膜の光学特性および局在プラズモンを励起したAu/MnSb複合ナノ構造の共鳴条件へのスピン依存散乱の影響を検討した。波長200-1700 nm, 温度25-375 Kの範囲で光学特性を評価した結果, 以下のことがわかった。(1) MnSb薄膜の誘電率の温度変化は, 長波長領域(620 nm以上)で顕著に現れる。(2) キュリー点近傍で抵抗率と伝導電子の散乱時間の温度依存性の傾向が変化する。これはスピン依存散乱がドルーデ項に反映された結果であると考えられる。(3) スピン依存散乱の効果は, Auと複合化した強磁性ナノ構造においても, 局在プラズモンの共鳴条件の変化として現れる。

研究成果の概要(英文)：Effect of spin-dependent scattering on the optical properties were studied by evaluating the transmittance spectra of ferromagnetic MnSb thin film and Au/MnSb composite nanostructure, between wavelength of 200 and 1700 nm and temperature from 25 to 375 K. It was found that: (1) large shift in temperature dependent of dielectric constant at long wavelength region was observed; (2) tendency change of temperature dependent of resistivity and scattering time of conduction electron at around the Curie temperature suggested that the spin-dependent scattering is reflected in the Drude term; (3) in composite nanostructure with ferromagnetic and Au layer, the effect of spin-dependent scattering appeared in the conditions variation of Localized Surface Plasmon Resonance (LSPR).

研究分野：電気・電子材料

キーワード：プラズモン スピン依存散乱 光学特性 誘電率スペクトル キュリー温度

1. 研究開始当初の背景

近年、貴金属/強磁性金属薄膜に数 10 ~ 数 100 nm オーダーの微細加工を施した単位構造集合体に局在表面プラズモン (LSPR) を励起し、磁気光学効果 (磁気モーメントの方向に依存した偏光変化) を増強させる試みが報告されている¹⁻²⁾。これらの報告は、磁気モーメントの方向情報を含む磁気光学信号を LSPR にて増大させて実用デバイスに用いる主旨の研究であり、屈折率変化センサーへの応用等が期待されている。申請者らは、微細加工技術を確立 (単位構造 45 nm[□]-50 nm[□], 150 nm ピッチ配列体)³⁾すると共に、白色光入射-検出側分光により、微小偏光変化の磁界依存性を僅か 2 分間で取得する磁気光学効果スペクトル計測装置を開発し⁴⁾、LSPR の基礎実験に供している。

一方で研究代表者は次世代ハードディスクドライブ (HDD) の基幹技術として熱アシスト磁気記録に注目して材料と評価装置の開発に着手しており、本申請の発案となる研究シーズを見出した。HD 用媒体の材料開発の過程では、熱磁気記録 (T_c 付近まで昇温してヘッド磁界により記録する) に関わる諸物性を制御するため、材料の T_c (強磁性を維持できなくなる温度) とブロッキング温度 (熱擾乱により強磁性結晶粒の磁気モーメントが一方向を維持できなくなる温度) とを区別して評価する必要がある。研究代表者は T_c 前後では、伝導電子の散乱機構に差異が現れると考え、 T_c 付近の光学誘電率スペクトルを広い波長範囲で測定した。その結果 Ni や Fe₃C 薄膜において、 T_c 付近で赤外光領域の誘電率実部 (導電率の虚部) が変化する現象を見出した。本効果は、伝導電子がコヒーレント長以下の寸法の空間において、原子磁気モーメントの短距離秩序に依存した散乱を受けることを示唆している。ブロッキング現象に影響されずに T_c を評価できる手法として注目すべき効果である⁵⁾。

金属強磁性体における T_c 付近での誘電率変化に関する先行文献を調べたところ、1970 年代に鏡面研磨した Ni のバルク試料を用いた実験結果しかなく、解釈についてはバンド間遷移に起因するものとされている⁶⁾。また他の材料系での報告はないため、赤外光波長領域での磁気モーメントの短距離秩序による伝導電子の散乱現象を一般論として解明することは強磁性金属薄膜の基礎物性領域の新たな開拓となる。

- 1) P. K. Jain et al., *Nano Lett.*, **9**, 1644 (2009).
- 2) A. A. Zharov et al., *J. Appl. Phys.*, **102**, 123514 (2007).
- 3) G. X. Du et al., *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 081915 (2010).
- 4) G. X. Du et al., *Rev. Sci. Instr.*, **83**, 013103 (2012).
- 5) S. Saito et al., 2013 Joint MMM/INTERMAG 会議 (1 月, AB-08).
- 6) P. B. Johnson et al., *Phys. Rev. B*, **9** 5056 (1974).

2. 研究の目的

以上の 2 分野の研究背景を鑑み、 T_c 近傍での伝導電子の散乱挙動を LSPR 単位構造内に持込むことを発案した。すなわち、本研究では研究期間内に、 T_c 以下の温度域では LSPR が励起され、 T_c 以上の温度域では励起が停止することを想定した試料を作製し、その特性を検証することを目的とする。将来的には太陽光を利用した、温度自己制御型素子への展開を見据える。本研究は、伝導電子の散乱現象を、伝導電子の共鳴運動が顕著な LSPR と結びつける研究展開が極めて独創的であり、太陽光と基礎物性を利用して LSPR を制御し温度制御できれば、省エネ素子の創成に繋がる点で、意義深い。

3. 研究の方法

本研究は、強磁性金属薄膜の T_c 付近の誘電率が変化する波長域と、Au/強磁性層/Au マグネットプラズモニック構造体の LSPR 共鳴波長とを合致させ、 T_c を利用して LSPR を ON/OFF 制御しようという挑戦的な試みである。平成 25 年度には、強磁性薄膜の T_c を自在に制御できる薄膜材料の知見を得、誘電率の T_c 付近での温度変化の基礎データを取得した。この間に電子線リソグラフィとリングによる微細加工技術を確立すると共に、微細加工試料の光学特性の温度変化を計測できる光学システムの構築を行った。平成 26 年度には、初年度に得た強磁性薄膜の T_c 近傍での誘電率スペクトルの温度変化特性を基に強磁性材料と層構成を決定し、Au/強磁性層/Au マグネットプラズモニック構造体を単位構造とする配列組織を微細加工により作製して、LSPR 共鳴に関わる諸特性を評価した。

(1) 強磁性金属薄膜の誘電率スペクトルの温度変化特性の評価

検証実験のために T_c が適当な温度にある MnSb 薄膜 ($T_c \sim 320$) について、誘電率スペクトルの温度変化特性を取得した。この MnSb 系の場合、融点あまり高くないため、薄膜では再結晶等の構造変化の影響が光学特性変化をもたらすことが考えられるため、一旦計測の最高温度まで昇温してから、降温時にスペクトル計測した。また T_c 近傍温度では細かいステップ幅でスペクトルを取得した。得られたスペクトルはドローデ項と複数のローレンツ項からなる振動子モデルによりフィッティングを行い、特にドローデ項のフィッティングパラメータ (抵抗率、緩和時間) に注目して、温度軸に対してプロットし解析した。尚、光学特性の温度変化測定には、楕円偏光解析装置 (米国 J.A.Woollam 社製、M-2000) を活用した。

(2) 電子ビームリソグラフィによる微細加工条件の確立

研究代表者は、Au 薄膜ならびに Au/ MnSb サンドイッチ積層膜の加工条件について検討し、加工実現可能なディスク状構造体のディスク直径と配列周期について知見を得た。積層試料は基板/密着層 Ti (2 nm)/ Au (30 nm)/ MnSb (5 nm)/ Au (10 nm) とした。

(3) 局在プラズモンを励起した Au/MnSb 複合ナノ構造におけるスピン依存散乱の効果とその温度変化

初年度の後半から光学特性の波長依存性の評価システムの立ち上げを開始し、透過測定に供する温度変化計測用の試料ホルダを作製した。これを用いて微細加工を行ったマグネトプラズモニック構造体に白色光を照射し、特に T_C 近傍では細かい温度ステップで LSPR スペクトルを計測した。

4. 研究成果

(1) 強磁性金属薄膜の誘電率スペクトルの温度変化特性の評価

MnSb 薄膜の光学特性に及ぼす磁気秩序の効果

図 1 に楕円偏光解析装置にて評価した MnSb 薄膜の誘電率スペクトルの温度変化を示す。誘電率実部 ϵ_1 に注目すると、325 以上および 100 以下では、測定温度毎のスペクトルがほぼ重畳しているのに対して、100–325 の温度範囲では、特に 2 eV 以下 (620 nm 以上) で大きく変化していることがわかる。

振動子モデルによる MnSb 薄膜の誘電率解析

光学特性の温度変化の起源を調べるために、振動子モデルを用いて誘電率解析を行った。一例として、室温における MnSb 薄膜の誘電率スペクトルの解析結果を図 2(a) に示す。ドルーデ項と 2 つのローレンツ項により、測定結果を良く

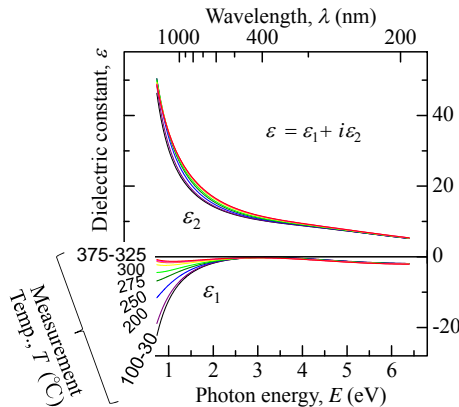


図1 MnSb薄膜の誘電率スペクトルの温度変化。

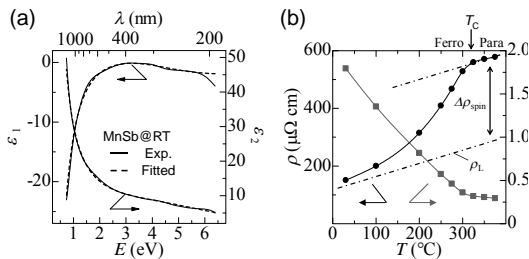


図2 (a) 振動子モデルによる誘電率フィッティング。(b) ドルーデ項より求めた抵抗率 ρ および散乱時間 τ の温度変化。一点鎖線は、格子振動による抵抗率 ρ_L の温度変化を示す。

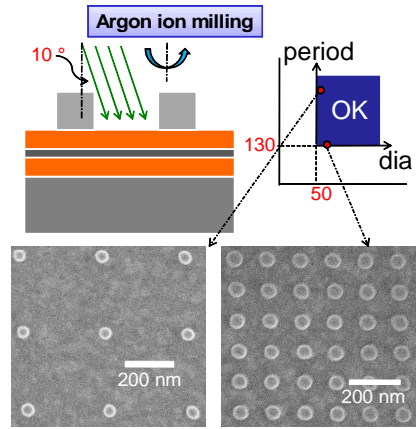


図3 確立した微細加工条件と典型的なマスクパターン。各単位構造が50 nm程度の高さを有するため、小径化・短周期化の両立が難しい。

フィッティングできることがわかる。ドルーデ項の解析結果より、抵抗率 ρ および散乱時間 τ を同時に求めることができ、それぞれ 151 $\mu\Omega$ cm, 1.8 fs であった。図 2(b) に測定温度毎に誘電率解析をして求めた ρ および τ の温度変化を示す。変化傾向が T_C を境に変化していることがわかる。格子振動による抵抗率変化 $\Delta\rho_L$ が、温度の一次関数であることを踏まえると、スピン依存散乱による抵抗率変化 $\Delta\rho_{spin}$ は約 300 $\mu\Omega$ cm と見積られる。MnSb パルクの直流抵抗率の温度変化の報告³⁾によると、室温での抵抗率 $\rho^{bulk} \sim 130 \mu\Omega$ cm, $\Delta\rho_{spin}^{bulk} \sim 200 \mu\Omega$ cm であった。したがって、今回測定した MnSb 薄膜の光学特性から求めた ρ や $\Delta\rho_{spin}$ は妥当な値であると考えられる。

(2) 電子ビームリソグラフィによる微細加工条件の確立

積層試料 基板/ 密着層 Ti (2 nm)/ Au (30 nm)/ MnSb (5 nm)/ Au (10 nm) について電子線ビームリソグラフィによる微細加工条件を検討した。微細加工は Ar イオンミリングによって行い、リデポ剥離等も考慮して、入射角を 2 段階に変えて実施した。ディスク径と周期の下限の組合せは、45 nm^φ-150 nm、もしくは 50 nm^φ-130 nm であった (図 3)。

(3) 局在プラズモンを励起した Au/MnSb 複合ナノ構造におけるスピン依存散乱の効果とその温度変化

図 4(a) に顕微分光装置 (自作) にて評価した種々のディスク直径 d を有する Au/ MnSb 複合ナノ構造の透過率スペクトルを示す。局在プラズモン共鳴が透過率のディップとして観測され、 d が增大するほど、ディップが長波長側にシフトしていることがわかる。続いて、図 4(b) に温度変化の一例として、ディスク直径 96 nm の Au/ MnSb 複合ナノ構造 (SEM 像参照) の共鳴波長付近の透過率スペクトルを示す。温度を低下させるほど、共鳴波長 λ_R は短波長側にシフトし、 λ_R における最小透過率 T_{min} が増加していることがわかる。図 4(c) および (d) に、測定温度に対する λ_R および T_{min} を示す。MnSb 薄膜の T_C 近傍で共鳴条件の温度変化の傾向が明瞭に変

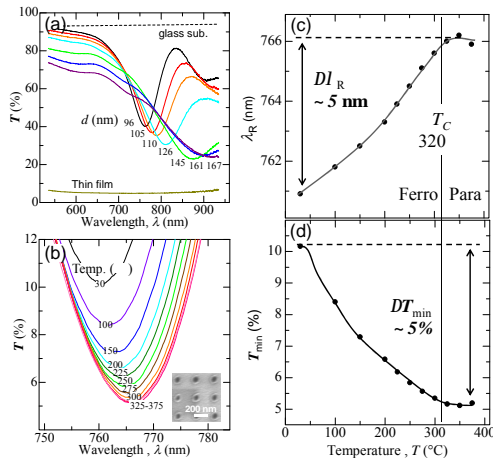


図4 (a) 種々のディスク直径 d を有するAu/ MnSb複合ナノ構造の透過率スペクトル. (b) 共鳴波長付近の透過率スペクトル. 挿入図は $d = 96$ nmのナノ構造のレジストパターンのSEM像. (c) 共鳴波長 λ_R , (d) 最小透過率 T_{\min} の温度依存性.

化している. キュリー点から室温まで, 原子磁気モーメントが秩序配列するに伴い, λ_R が5 nm程度, T_{\min} が5%程度変化した. 以上より, スピン依存散乱によってAu/ MnSb複合ナノ構造の局在プラズモン共鳴条件が変化することを明らかとした.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

Shin Saito, Shintaro Hinata and Migaku Takahashi, "Evaluation of Atomic Layer Stacking Structure and Curie Temperature of Magnetic Films for Thermally Assisted Recording Media..", IEEE Transactions on Magnetic, Vol. 50, 2014, 3201205-1 – 3201205-5, 査読有
DOI: 10.1109/TMAG.2013.2285286

[学会発表](計5件)

佐藤春彦, 齊藤伸, 赤羽浩一, 内田裕久, 「Co/Ru多層膜のマグネトリフラクティブ効果の積層構造依存性」, 平成27年東北地区若手研究者研究発表会「音・光・電波・エネルギー・システムとその応用」, 2015年2月28日, 日本大学, 郡山

佐藤春彦, 水野翔太, 赤羽浩一, 齊藤伸, 内田裕久, 「反強磁性的層間結合多層膜の光学応答に現れるスピン依存散乱の効果」, 電気学会マグネティクス研究会, 2014年12月12日, 日本大学, 船橋

齊藤伸, 水野翔太, 赤羽浩一, 佐藤春彦, 内田裕久, 「Co/Ru多層膜の光学応答に現れるスピン依存散乱の効果」, 第37回日本磁気学会学術講演会, 2014年9月2日, 慶應大学, 横浜

水野翔太, 齊藤伸, 赤羽浩一, 内田裕久, 「Co/Ru多層膜の光学応答に現れるスピン依存散乱の効果」, 平成26年東北地区若手研究者研究発表会「音・光・電波・エネルギー・

システムとその応用」, 2014年2月28日, 東北工業大学, 仙台

齊藤伸, 佐々木龍昭, 杜関祥, 王文秀, 高橋研, 「強磁性金属薄膜の光学特性に及ぼすスピン依存散乱の効果」, 第37回日本磁気学会学術講演会, 2013年9月3日, 北海道大学, 札幌

[その他]

ホームページ等

http://www.ecei.tohoku.ac.jp/electronic_physics/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齊藤伸 (SAITO, SHIN)
東北大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 50344700

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

目黒 栄 (MEGURO, Sakae)
ネオアーク株式会社・製造技術部・部長代理

磯上 慎二 (ISOGAMI, Shinji)
福島工業高等専門学校・一般教科・准教授
研究者番号: 10586853