

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2010～2012
 課題番号：22560001
 研究課題名（和文） ハーフメタル強磁性体／超伝導体接合を用いた高効率スピン偏極電流注入源の創出
 研究課題名（英文） Highly-efficient spin-polarized current source using half-metallic ferromagnet/superconductor junctions.
 研究代表者
 松田 健一（MATSUDA KEN-ICHI）
 北海道大学・大学院情報科学研究科・助教
 研究者番号：80360931

研究成果の概要（和文）：本研究では、Co 基ホイスラー合金ハーフメタル強磁性体と超伝導体からなるエピタキシャルヘテロ構造の作製に成功した。また、このヘテロ構造についてその電気伝導特性測定から、スピン偏極超伝導成分の存在を示唆する結果を得た。

研究成果の概要（英文）：In this study, epitaxial growth of Co-based Heusler alloy/superconductor hetero-structures were achieved. Moreover, the existence of spin-polarized superconducting components was implied by the conductance measurement using the hetero-structures.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：スピントロニクス、エピタキシャル成長、新機能材料

1. 研究開始当初の背景

(1) 電子スピンを利用した新しい概念に基づく電子デバイスの創出、いわゆるスピントロニクスは、次世代の重要なデバイス革新技術として注目されている。中でもスピン偏極電流を生成し対象物質に注入することは、重要な基盤技術と考えられている。

(2) この目的に対し、理想的には 100% のスピン偏極率をもつと考えられているハーフメタル強磁性体を電子スピン源として用いることが有効であるが、それでもなお次のような点が問題となっている。すなわち、(a) 接合界面付近におけるスピン散乱、(b) 界面状態制御のために絶縁層を挿入した場合には、

接合抵抗が大きくなってしまふ、などの問題が高効率なスピン偏極電流注入を妨げる要因となっている。

(3) 一方で、ハーフメタル強磁性体の一種である CrO_2 中における非常に長距離 (~ 200 nm) にわたる超伝導近接効果を実験的に見出された。これは、スピン偏極超伝導成分の生成によるもの考えられている。また、近年は理論的にもハーフメタル強磁性体に対する長距離にわたる超伝導近接効果のメカニズムが説明されるようになってきた。

2. 研究の目的

(1) 本研究の目的は、超伝導体／ハーフメタル強磁性体／絶縁体積層構造を用いた高ス

ピン偏極電流源の作製と、その電気的特性を調べることである。

(2) この研究の主な特徴と利点は、(a) 被スピン偏極電流注入物質（図の例では半導体）の接合界面付近におけるスピン散乱効果を抑制できる点、(b) スピン偏極電流をトンネル注入する際の接合抵抗を低減化できる点、にある。

(3) 本研究によって、高効率なスピン偏極電流注入を実現できる可能性があり、また、超伝導体/強磁性体接合界面における電子状態の解明に向けた基礎的知見が得られるという点でも貢献できる。

3. 研究の方法

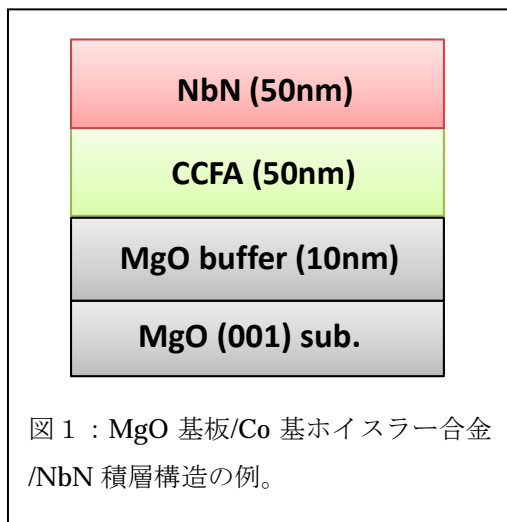
(1) ハーフメタル強磁性体として、Co 基ホイスラー合金を用いる。また格子整合性の観点から、基板として MgO を採用し、また同様の理由から超伝導体として NbN を採用する。

(2) MgO 基板上への、Co 基ホイスラー合金、NbN 薄膜のエピタキシャル成長を行う。

(3) Co 基ホイスラー合金/NbN 接合における電気伝導特性測定を行い、接合界面付近での超伝導近接効果の様子を調べる。

4. 研究成果

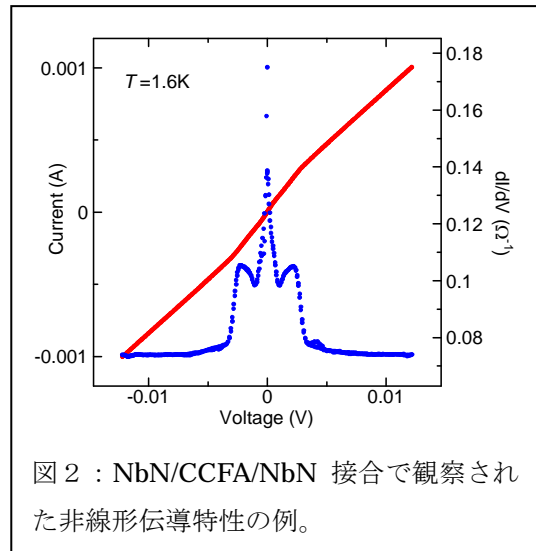
(1) ハーフメタル強磁性体である Co 基ホイスラー合金と、比較的に高い超伝導転移温度を有する NbN を、真空一貫の環境で MgO 基板上にエピタキシャル成長させることに成功した。具体的には、Co 基ホイスラー合金として、 $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ （以下では CCFA と略す）、 Co_2MnSi （以下では CMS と略す）、 Co_2MnGe （以下では CMG と略す）を用いた。



図に示すような積層構造において、X線回折、RHEED 像観察、TEM 観察などによって、全層エピタキシャル成長していることを確認した。

(2) NbN/CCFA/NbN 接合を用いて、液体ヘリウ

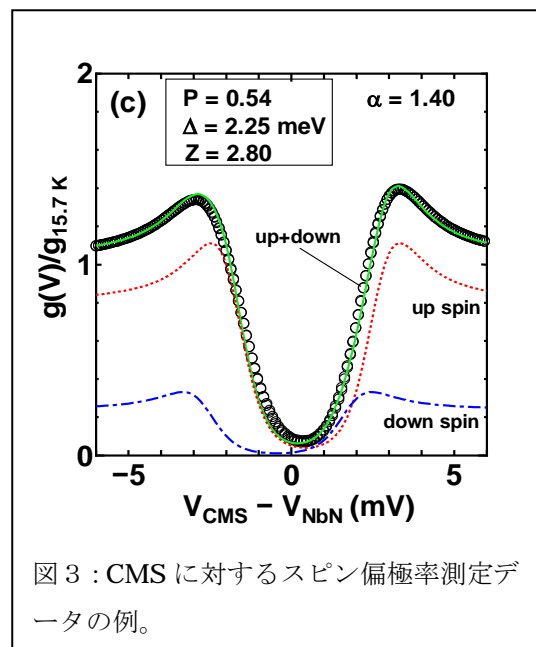
ム温度以下の領域で、その電気伝導特性を測定したところ、S-F-S 接合では考えられないような、強いゼロバイアス異常（図 2）を観測した。しかし、同じ接合において、いわゆるジョセフソン接合特性は観測されなかったことから、期待していたようなスピン偏極超伝導成分の生成を示すデータであるか、不



明である。

(3) Co 基ホイスラー合金は、バルクとしては非常に高いスピン偏極率を持つことが、いくつかの実験によって支持されているが、接合界面の特性について不明である。そのため、Co 基ホイスラー合金/MgO/NbN 接合を作製し、その電気伝導度からスピン偏極率を推定する実験を行った。その結果、ホイスラー合金の Mn 組成に対するスピン偏極率の変化は、強磁性トンネル接合から得られた傾向と訂正的には一致したものの、スピン偏極率そのものは高くても 60%程度であった。これは、界面の電子状態が、接合の構造や界面状態に非常に敏感であることを示唆している。

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 9 件)

- ① T. Akiho, T. Uemura, M. Harada, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, Effect of MgO Barrier Insertion on Spin-Dependent Transport Properties of CoFe/n-GaAs Heterojunctions, *Jpn. J. Appl. Phys.* vol. 51, pp. 02BM01-1 – 02BM01-5 (2012). 査読有.
DOI:10.1143/JJAP.51.02BM01
- ② T. Uemura, K. Kondo, J. Fujisawa, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, Critical effect of spin-dependent transport in a tunnel barrier on enhanced Hanle-type signals observed in three-terminal geometry, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, pp. 132411-1 – 132411-4 (2012). 査読有.
DOI:10.1063/1.4754545
- ③ T. Uemura, M. Harada, T. Akiho, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, Influence of GaAs surface structure on tunneling anisotropic magnetoresistance and magnetocrystalline anisotropy in epitaxial $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}/\text{n-GaAs}$ junctions, *Appl. Phys. Lett.* vol.98, pp.102503-1 – 102503-3 (2011). 査読有.
DOI:10.1063/1.3561759
- ④ T. Uemura, T. Akiho, M. Harada, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, Non-local detection of spin-polarized electrons at room temperature in $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}/\text{GaAs}$ Schottky tunnel junctions, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 99, pp. 082108-1 – 082108-3 (2011). 査読有.
DOI:10.1063/1.3630032
- ⑤ G.-f. Li, T. Taira, K.-i. Matsuda, M. Arita, T. Uemura, and M. Yamamoto, Epitaxial growth of Heusler alloy $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$ heterostructures on Ge(001) substrates, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 98, pp. 262505-1 – 262505-3 (2011). 査読有. DOI:10.1063/1.3605675
- ⑥ T. Akiho, T. Uemura, M. Harada, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, Suppression of in-plane tunneling anisotropic magnetoresistance effect in $\text{Co}_2\text{MnSi} / \text{MgO} / \text{n-GaAs}$ and $\text{CoFe} / \text{MgO} / \text{n-GaAs}$ junctions by inserting a MgO barrier, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 98, pp.

232109-1 – 232109-3 (2011). 査読有.
DOI:10.1063/1.3595311

- ⑦ S. Imai, K.-i. Matsuda, T. Ishikawa, T. Uemura, M. Yamamoto, Fabrication and the Transport Properties of NbN / $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$ / NbN Lateral Junctions, *Physica C* vol.470, pp. S851-S853 (2010). 査読有.
DOI:10.1016/j.physc.2009.10.034
- ⑧ T. Uemura, M. Harada, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, Internal electric field influence on tunneling anisotropic magnetoresistance in epitaxial ferromagnet/n-GaAs junctions, *Appl. Phys. Lett.* vol. 96, pp. 252106-1 – 252106-3 (2010). 査読有.
DOI:10.1063/1.3456558
- ⑨ T. Marukame, T. Ishikawa, T. Taira, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto, Giant Oscillations in Spin-Dependent Tunneling Resistances as a Function of Barrier Thickness in Fully Epitaxial Magnetic Tunnel Junctions with a MgO Barrier, *Phys. Rev. B* vol.81, pp. 134432-1 – 134432-5 (2010). 査読有.
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.134432

[学会発表] (計 61 件)

1. H.-x. Liu, Y. Honda, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto, F.-y. Shi, and P. Voyles, “Influence of interface termination layer on temperature dependence of tunneling magnetoresistance of $\text{Co}_2\text{MnSi} / \text{MgO}$ -based magnetic tunnel junctions”, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川工科大学, 神奈川県 (2013 年 3 月 30 日発表)
2. T. Akiho, J. Shan, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, and T. Uemura, “Annealing temperature dependence of spin signals observed in $\text{Co}_2\text{MnSi} / \text{CoFe} / \text{n-GaAs}$ through four-terminal non-local geometry”, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川工科大学, 神奈川県 (2013 年 3 月 28 日発表)
3. 鳥野剛史, 松田健一, 山本眞史, 植村哲也, 「GaAs ショットキートンネル障壁を介した強磁性体から InGaAs チャネルへのスピン注入」, 2013 年 (平成 25 年) 第 48 回応用物理学会北海道支部学術講演会, 釧路市生涯学習センター「まなぼっと幣

- 舞], 釧路市 (2012年1月12日発表).
4. 蛭名優也, 松田健一, 植村哲也, 山本眞史, 「Nb/Cu₅₀Ni₅₀ 二層薄膜の電気伝導特性と超電導近接効果」, 2013年(平成25年)第48回応用物理学会北海道支部学術講演会, 釧路市生涯学習センター「まなぼつと幣舞」, 釧路市 (2012年1月12日発表).
 5. 藤澤潤, 松田健一, 山本眞史, 植村哲也, 「Co₂MnSi/CoFe/MgO/Si における Hanle 信号の MgO 膜厚依存性」, 2013年(平成25年)第48回応用物理学会北海道支部学術講演会, 釧路市生涯学習センター「まなぼつと幣舞」, 釧路市 (2012年1月12日発表).
 6. T. Akiho, J.-h. Shan, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, and T. Uemura, “Transient effects on oblique Hanle signals observed in ferromagnet/semiconductor heterojunctions with non-local four-terminal configuration”, 12th Joint MMM/Intermag Conf., Chicago, Illinois, USA (Presented on January 18, 2013)
 7. H.-x. Liu, Y. Honda, K.-i. Matsuda, M. Arita, T. Uemura, and M. Yamamoto, “Influence of interfacial structural properties on tunnel magnetoresistance in epitaxial magnetic tunnel junctions with Co₂MnSi electrode and MgO barrier”, 12th Joint MMM/Intermag Conf., Chicago, Illinois, USA (Presented on January 17, 2013)
 8. G.-f. Li, T. Taira, H.-x. Liu, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, “Tunnel magnetoresistance in fully epitaxial CoFe/MgO/CoFe magnetic tunnel junctions on Ge(001) substrates via a MgO interlayer”, 5th Int’l Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation, Hokkaido University, Sapporo, Japan (Presented on January 16, 2012)
 9. H.-x. Liu, T. Taira, Y. Honda, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto, Y. Miura, and M. Shirai, “Spin transport properties of fully epitaxial magnetic tunnel junctions of CoFe/MgO/CoFe ultrathin layer/Co₂MnSi”, 5th Int’l Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation, Hokkaido University, Sapporo, Japan (Presented on January 16, 2012)
 10. T. Akiho, J.-h. Shan, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, and T. Uemura, “Electrical spin injection and electrical detection of dynamic nuclear polarization in ferromagnet / semiconductor heterojunctions”, International Workshop on Spintronic Nano Materials 2012, Hokkaido Univ., Sapporo, Japan [Invited Talk] (Presented on November 5, 2012)
 11. H.-x. Liu, Y. Honda, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, “Enhanced coherent tunneling contribution in epitaxial magnetic tunnel junctions with a Co₂MnSi electrode and a MgO barrier due to improved interfacial structural properties”, The 2nd Int’l Conf. of Asia Union of Magnetics Societies (ICAUMS 2012), The 36th Annual Conf. on Magnetics in Japan, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan (Presented on October 2, 2012)
 12. Y. Honda, H.-x. Liu, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, “Temperature dependence of spin-dependent tunneling resistances of MgO-buffered Co₂MnSi / MgO / Co₂MnSi magnetic tunnel junctions”, 2012 Int’l Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan (Presented on September 27, 2012)
 13. J.-h. Shan, T. Akiho, K.-i. Matsuda, M. Yamamoto, and T. Uemura, “Transient oblique Hanle signals observed in Co₂MnSi/CoFe/n-GaAs with non-local four-terminal configuration”, 2012 Int’l Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan (Presented on September 27, 2012)
 14. T. Uemura, G.-f. Li, J. Fujisawa, K.

- Konda, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, "Tunnel barrier thickness dependence of Hanle-type signals in CoFe / MgO / n-Si and CoFe / MgO / n-Ge junctions investigated through three-terminal configuration", 2012 Int' l Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan (Presented on September 27, 2012)
15. G.-f. Li, M. Miki, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "Tunnel barrier thickness dependence of Hanle-type signals in CoFe/MgO/n-Ge tunnel junctions investigated through three-terminal configuration" The 17th Int' l Conf. on Molecular Beam Epitaxy (MBE 2012), Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Japan (Presented on September 24, 2012)
 16. Ken-ichi Matsuda, Takaho Shinoki, Tomoyuki Taira, Tetsuya Uemura, and Masafumi Yamamoto, "Spin-polarization measurements for Co-2MnSi using Co2MnSi/MgO/NbN epitaxial tunnel junctions" The 19th Int' l Conf. on Magnetism (ICM2012), BEXCO, Busan, Korea (Presented on July 13, 2012)
 17. Ken-ichi Matsuda, Tetsuya Uemura, and Masafumi Yamamoto, "Possibility of Superconducting Proximity Effect of Equal-spin Triplet Components in NbN/Co₂Cr_{0.6}Fe_{0.4}Al/NbN Junctions", Int' l Conf. on Topological Quantum Phenomena (TQP2012), Nagoya University, Nagoya, Japan (Presented on May 19, 2012)
 18. H.-x. Liu, Y. Honda, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "Temperature dependence of spin-dependent tunneling conductances of fully epitaxial Co2MnSi-based magnetic tunnel junctions", Int' l Magnetism Conf. 2012 (INTERMAG 2012), Vancouver Convention Center, Vancouver, Canada (Presented on May 10, 2012)
 19. T. Akiho, T. Uemura, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, "Electrical spin injection from Co2MnSi Heusler alloy into GaAs and electrical detection of dynamic nuclear polarization", Int' l Magnetism Conf. 2012 (INTERMAG 2012), Vancouver Convention Center, Vancouver, Canada (Presented on May 8, 2012)
 20. T. Uemura, J. Fujisawa, K.-i. Matsuda, and M. Yamamoto, "MgO thickness dependence of spin accumulation signal in Co₅₀Fe₅₀/MgO/Si", Int' l Magnetism Conf. 2012 (INTERMAG 2012), Vancouver Convention Center, Vancouver, Canada (Presented on May 8, 2012)
 21. 植村哲也, 秋保貴史, 松田健一, 山本眞史, 「高スピン偏極材料を用いた GaAs へのスピン注入」、第 17 回半導体スピン工学の基礎と応用 (PASPS17), 九州大学伊都キャンパス, 稲森フロンティア研究センター, 福岡県 (2012 年 12 月 19 日発表). 招待講演
 22. 植村哲也, 李桂芳, 藤澤潤, 松田健一, 山本眞史, 「CoFe/MgO/SC (SC = Si or Ge) における Hanle 信号の半導体種依存性」, 第 17 回半導体スピン工学の基礎と応用 (PASPS17), 九州大学伊都キャンパス, 稲森フロンティア研究センター, 福岡県 (2012 年 12 月 19 日発表).
 23. H.-x. Liu, Y. Honda, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "Temperature dependence of spin-dependent tunneling resistances of fully epitaxial Co2MnSi-based magnetic tunnel junctions", 2012 年 (平成 24 年) 秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学&松山大学, 愛媛県, (2012 年 9 月 11 日発表).
 24. 松田健一, 篠木崇帆, 植村哲也, 山本眞史, 「Co₂MnSi/MgO/NbN 接合を用いたホイスラー合金 Co₂MnSi のスピン偏極率評価」, 2012 年 (平成 24 年) 秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学&松山大学, 愛媛県 (2012 年 9 月 12 日発表).
 25. G.-f. Li, M. Miki, K.-i. Matsuda, T. Uemura, and M. Yamamoto, "MgO tunnel barrier thickness dependence of three-terminal Hanle-type signals in CoFe/MgO/n-Ge tunnel junctions", 2012 年 (平成 24 年) 秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学&松山大学, 愛媛県 (2012 年 9 月 13 日発表).
 26. 単津海, 秋保貴史, 松田健一, 山本眞史, 植村哲也, 「非局所四端子配置を用いた

- Co₂MnSi/CoFe/n-GaAs ショットキートンネル接合における oblique Hanle 信号の過渡特性」, 2012 年 (平成 24 年) 秋季第 73 回応用物理学学会学術講演会, 愛媛大学 & 松山大学, 愛媛県 (2012 年 9 月 14 日発表).
27. H.-x. Liu, T. Taira, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto: "High tunnel magnetoresistance in fully epitaxial CoFe-buffered Co₂MnSi/MgO/Co₂MnSi magnetic tunnel junctions" 4th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation. (Presented on January 18, 2011). Hokkaido University Sapporo, Japan
28. G.-f. Li, T. Taira, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto: "Spin-dependent transport properties of Co₂MnSi/MgO/n-GaAs tunnel junctions" 4th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation. (Presented on January 18, 2011). Hokkaido University, Sapporo, Japan
29. 植村哲也, 原田雅亘, 秋保貴史, 松田健一, 山本眞史: "Co₅₀Fe₅₀/n-GaAs におけるスピンの電氣的検出" 2011 年 (平成 23 年) 春季第 58 回応用物理学関係連合講演会. (2011 年 3 月 24 日). 神奈川工科大学 (厚木市)
30. G.-f. Li, T. Taira, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto: "Epitaxial growth of Co₂MnSi/MgO heterostructures on Ge(001) substrates" 2011 年 (平成 23 年) 春季第 58 回応用物理学関係連合講演会. (2011 年 3 月 25 日). 神奈川工科大学 (厚木市)
31. 本田佑輔, 平田進之佑, 李桂芳, 劉宏喜, 松田健一, 植村哲也, 山本眞史: "Epitaxial growth of Co₂MnSi/MgO heterostructures on Ge(001) substrates" 2011 年 (平成 23 年) 春季第 58 回応用物理学関係連合講演会. (2011 年 3 月 26 日). 神奈川工科大学 (厚木市)
32. 平田進之佑, 李桂芳, 本田佑輔, 松田健一, 植村哲也, 山本眞史: "Co₂MnSi 薄膜を用いた強磁性トンネル接合におけるスピン依存トンネル抵抗の MgO バリア膜厚依存性" 2011 年 (平成 23 年) 第 46 回応用物理学学会北海道支部学術講演会. (2011 年 1 月 7 日). 室蘭工業大学 (室蘭市)
33. 原田雅亘, 秋保貴史, 植村哲也, 松田健一, 山本眞史: "強磁性体/n-GaAs ヘテロ接合におけるトンネル特性の MgO 層挿入効果" 2011 年 (平成 23 年) 第 46 回応用物理学学会北海道支部学術講演会. (2011 年 1 月 7 日). 室蘭工業大学 (室蘭市)
34. H.-x. Liu, T. Taira, Y. Honda, K.-i. Matsuda, T. Uemura, M. Yamamoto, Y. Miura, and M. Shirai, "Spin-dependent transport properties of fully epitaxial magnetic tunnel junctions of CoFe/MgO/CoFe ultrathin layer / Co₂MnSi", 56th Annual Conf. on Magnetism & Magnetic Materials, JW Marriott Desert Ridge, Scottsdale, Arizona, USA (Presented on November 1, 2011)

他、27 件発表

[その他]

ホームページ等

<http://nsed.ist.hokudai.ac.jp/contents/article/article.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松田 健一 (MATSUDA KEN-ICHI)
北海道大学・大学院情報科学研究科・助教
研究者番号：80360931

(2) 研究分担者

山本 眞史 (YAMAMOTO MASAFUMI)
北海道大学・大学院情報科学研究科・教授
研究者番号：10322835

(3) 連携研究者

植村 哲也 (UEMURA TETSUYA)
北海道大学・大学院情報科学研究科・准教授
研究者番号：21360140