

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20360002

研究課題名(和文) 低次元ナノ構造化によるスピン緩和時間の増大と面内構造3端子素子への応用

研究課題名(英文) Spin relaxation time in low dimensional nanostructures and its application to spintronic devices

研究代表者

三谷 誠司 (MITANI SEIJI)

独立行政法人物質・材料研究機構・磁性材料センター・グループリーダー

研究者番号：20250813

研究成果の概要(和文)：

伝導電子スピンの緩和現象の理解は、スピントロニクス素子の開発に関する重要な課題であり、本研究ではナノ粒子や超薄膜等の低次元系におけるスピン緩和に関して、トンネル磁気抵抗測定等の実験を行った。ナノ粒子では離散準位に起因すると思われるスピン緩和時間の増大が見られるが、超薄膜ではそれを示唆する挙動は得られなかった。超薄膜では、面内方向が量子化されていないためと考えられる。また、スピン緩和時間が増大した場合における2重トンネル素子の設計に関するモデル計算を行った。

研究成果の概要(英文)：

The understanding of spin relaxation of conduction electrons is of particular interest for the development of spintronic devices. In this study, we investigated spin relaxation in low dimensional systems such as nanoparticles and ultrathin films by spin dependent transport measurements. While enhancement of spin relaxation time was observed in nanoparticles, such behavior was not obtained in ultrathin films. The difference possibly comes from the fact that electronic states in ultrathin films are not quantized in the in-plane directions. Simple model calculations were also performed for double-barrier magnetic tunnel junctions with enhanced spin relaxation time.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
2009年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
2010年度	3,300,000	990,000	4,290,000
年度			
年度			
総計	14,200,000	4,260,000	18,460,000

研究分野：磁性材料・スピントロニクス

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用物性・結晶工学

キーワード：磁性、スピントロニクス、ナノ構造、ナノ粒子、低次元、超構造、2重接合

1. 研究開始当初の背景

伝導電子のスピンの緩和現象は、巨大磁気抵抗効果をはじめとする種々のスピン伝導機能や、それらのダイナミクスの理解と制御に直接関係するスピントロニクス分野における重要な研究課題である。研究開始当初、研究

代表者らはCoやAuのナノ粒子においてスピン緩和時間が大幅に増大することを見いだし、より詳細な実験的研究が望まれていた。加えて、超薄膜などの他の低次元系での研究は、素子開発上の重要性にもかかわらず、手付かずに近い状況であった。

2. 研究の目的

本研究では、これまでほとんど研究されていなかった、スピン偏極電流注入による非平衡スピンの緩和に及ぼす低次元ナノ構造化の効果を調べた。これにより、どのような低次元ナノ構造においてスピンの緩和時間が大きく増大するかを明らかにするとともに、そのメカニズムの解明を試みた。また、素子化に関する検討も行った。

3. 研究の方法

分子線エピタキシー法や超高真空マグネトロンスパッタを用いて、強磁性電極(Fe)/トンネル障壁(MgO)/非磁性ナノ粒子(Au, Cr etc./トンネル障壁(MgO)/強磁性電極(Fe)という構造の2重トンネル接合、および、Fe/非磁性金属超薄膜層(Ag etc.)/MgO/Fe という擬2重トンネル接合の試料を作製し、磁気伝導特性の測定を行った。

試料の構造評価は、主に反射高速電子線回折によって行い、磁気伝導測定は **Current-In-Plane-Tunneling** 法と微細加工試料を用いたプローブシステムによる方法を併用した。微細加工には一般的な電子線リソグラフィとアルゴンイオンミリング等を用いた。

スピン緩和時間の増大効果の理解や素子開発では、理論的検討も重要であり、モデル計算も行った。簡単のため **Julliere model** にスピン蓄積による化学ポテンシャルのスピン分裂を取り入れたモデルを用いた。

4. 研究成果

ナノ粒子を用いた実験では、新しい物質系として Cr ナノ粒子に関する結果を得た。Cr は反強磁性オーダーを持ち得る物質であり、スピン蓄積との関わりにおいて興味深い。得られた Cr ナノ粒子は Au ナノ粒子よりも大きいものであったが、図1に示すように、ナノ粒子の伝導現象に特有のクーロン階段特性が観測された。また、スピン蓄積に起因するトンネル磁気抵抗効果 (図2) を観測し、そ

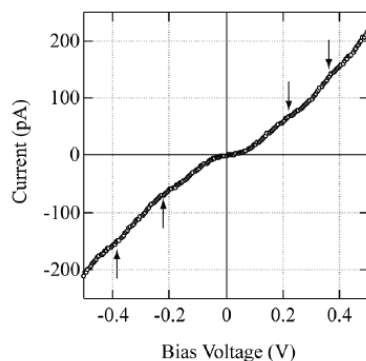


図1. Cr ナノ粒子におけるクーロン階段

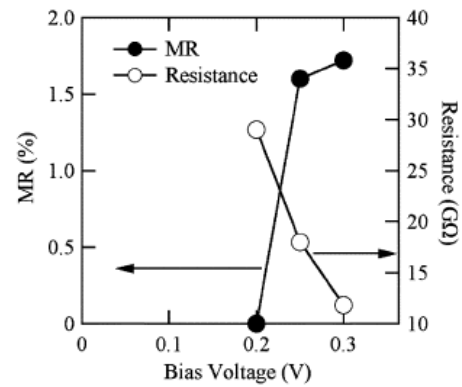


図2. Cr ナノ粒子のスピン蓄積によるトンネル磁気抵抗効果 (MR) の大きさと Cr ナノ粒子を含む2重トンネル接合の素子抵抗

の電流値依存性による解析から、Cr ナノ粒子の 4.2 K でのスピン緩和時間は 10 nsec 以上であると見積もられた。

Au ナノ粒子については、さらに詳しい結果が得られた。トンネル磁気抵抗効果の温度依存性の詳細かつ系統的なデータが得られ、トンネル磁気抵抗効果の測定電流値依存性からスピン緩和時間の温度依存性を見積もることができた。理論的な解析は今後の課題であるが、その結果は離散準位がスピン緩和時間の増大の起源であるとする解釈を支持するものであった。

Fe/Ag/MgO/Fe 擬2重トンネル接合の実験では、まず、各層の成長条件の最適化を行った。その結果、高品位の MgO 基トンネル接合の作製手法について種々知見を得、さらに図3に示すように、Ag 層厚に対するトンネル磁気抵

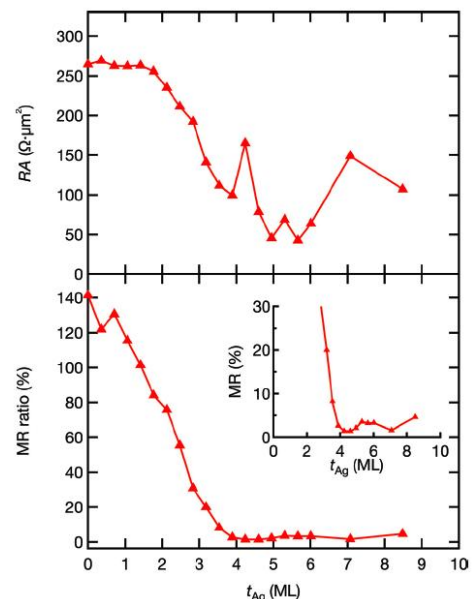


図3. Ag 超薄膜を含む Fe/Ag/MgO/Fe 接合の素子抵抗とトンネル磁気抵抗効果 (MR)

抗効果の振動的振舞が観測された。これは、Ag 超薄膜層内において離散準位が形成されていることを示唆する結果である。しかしながら、Ag 層厚の増大とともにトンネル磁気抵抗効果の大きさは減少する傾向にあり、スピン緩和長（すなわちスピン緩和時間）の増大は生じていないと推察される。Ag 以外にも Cu 等の非磁性金属超薄膜においても同様の結果が得られており、超薄膜では面内方向の電子準位が量子化されていないことにより、スピン緩和時間の増大は生じないと考えられる。

Julliere model にスピン蓄積の効果を取り入れたモデル計算では、磁気抵抗効果測定によって強磁性超薄膜層のスピン緩和を定量的に評価する表式を得た。図4にその理論モデルを示す。通常の強磁性トンネル接合の左側に、磁化配置を平行状態に固定した電極をトンネル障壁と共に付加した構造となっている。スピン緩和時間が短く、中間超薄膜電極にスピン蓄積が生じない場合には、磁気抵抗効果の大きさは $P^2/(1-P^2)$ となるが、スピン

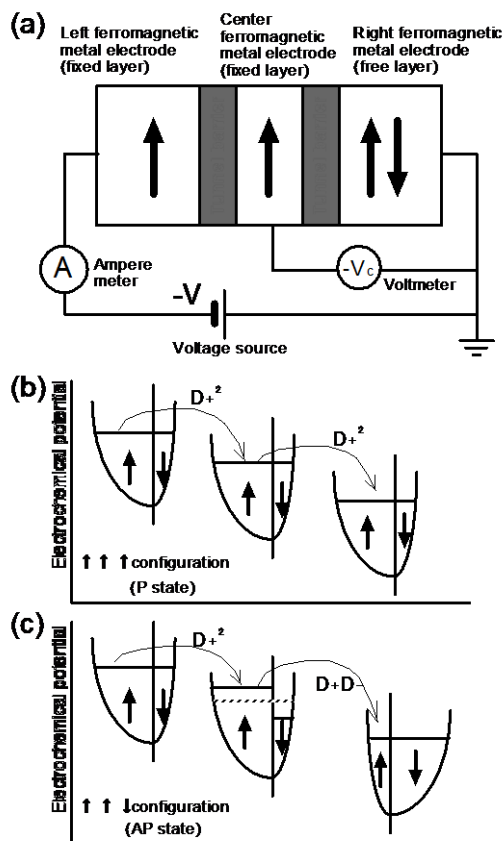


図4. 中間超薄膜層のスピン蓄積効果の定量評価のための計算モデル。(a): 構造模式図, (b): 右側電極の磁化が平行配置となっている場合のトンネル効果の様子, (c): 右側電極の磁化が反平行配置となっている場合のトンネルの様子とスピン蓄積。

緩和時間の増大が生じた場合には、up-spin および down-spin 電流 ($j_{\uparrow}, j_{\downarrow}$) にそれぞれ以下の関係式が得られ (詳細は発表論文(2)を参照)、

$$j_{\uparrow} = (2\pi e^2/\hbar) |T|^2 D_+^2 (V/2 - \delta_{\uparrow}) \\ = (2\pi e^2/\hbar) |T|^2 D_+ D_- (V/2 + \delta_{\downarrow})$$

$$j_{\downarrow} = (2\pi e^2/\hbar) |T|^2 D_-^2 (V/2 + \delta_{\downarrow}) \\ = (2\pi e^2/\hbar) |T|^2 D_+ D_- (V/2 - \delta_{\uparrow})$$

($|T|$: 透過係数、 D_+, D_- : 多数および少数電子のフェルミレベルでの状態密度、 $\delta_{\uparrow}, \delta_{\downarrow}$: up および down スピン電子の化学ポテンシャルのシフト量)

磁気抵抗効果は $2P^2/(1-P^2)$ に増大する。この増大を測定電流の関数として測定することによって、スピン緩和時間の評価を行うことができる。図5には、その原理を表すエネルギーダイアグラムを示した。

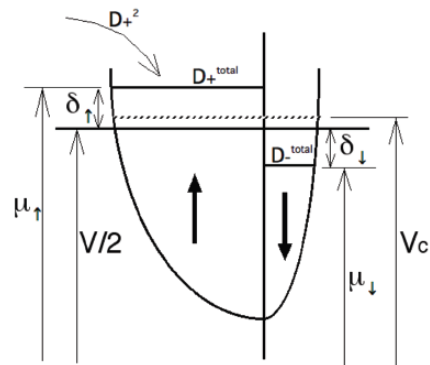


図5. 2重接合のトンネル磁気抵抗効果によるスピン緩和の評価原理を表すエネルギーダイアグラム

その他の関連する結果としては、Co ナノ粒子が分散した C_{60} -Co グラニューラ薄膜のトンネル磁気抵抗効果において、コトンネリングの寄与を明確にした。温度依存性の微視的メカニズムについては依然不明であり、この系でのスピン緩和時間に関する知見は十分には得られなかった。また、超薄膜の作製技術の開発として、Fe や Ni の超薄膜を種々の条件で作製し、異常ホール効果測定等によってその物性評価を行った。N 添加の有効性を見いだした他、超薄膜の構造安定性の評価も行った。超薄膜用の下地層、キャップ、トンネル障壁層としての $MgAl_2O_4$ 層の成長についても基礎的知見を得た。

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7件)

(1) S. Sakai, S. Mitani, I. Sugai, K. Takanashi, Y. Matsumoto, S. Entani, H. Naramoto, P. Avramov and Y. Maeda

Effect of cotunneling and spin polarization on the large tunneling magnetoresistance effect in granular C₆₀-Co films

Phys. Rev. B **83**, 174422-1~174422-6 (2011). (査読有)

(2) T. Koda, S. Mitani, M. Mizuguchi and K. Takanashi

Surface morphology and transport properties of Cr nanoparticles in single electron tunneling regime

J. Phys.: Conf. Ser. **266**, 012093-1~012093-3 (2011). (査読有)

(3) S. Mitani and T. Niizeki

Structural instability of FeCo ultrathin films grown on MgO(100)

J. Phys.: Conf. Ser. **266**, 012121-1~012121-3 (2011). (査読有)

(4) T. Niizeki, S. Mitani, H. Sukegawa, S. Kasai and K. Inomata

Fully epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junctions with nonmagnetic metal layer insertion

J. Appl. Phys. **109**, 07C726-1~07C726-3 (2011). (査読有)

(5) T. Koda, S. Mitani, M. Mizuguchi and K. Takanashi

Spin accumulation in Cr nanoparticles in single electron tunneling regime

IEEE Trans. Magn. **46**, 2060~2062 (2010). (査読有)

(6) S. Mitani

Simple model for detection of spin accumulation in a ferromagnetic double tunnel junction

J. Phys.: Conf. Ser. **200**, 052015-1~052015-4 (2010). (査読有)

(7) Y. Matsumoto, S. Sakai, Y. Takagi, T. Nakagawa, T. Yokoyama, T. Shimada, S. Mitani, K. Takanashi, H. Naramoto and Y. Maeda

X-ray absorption spectroscopy and magnetic circular dichroism in codeposited C₆₀-Co films with giant tunnel magnetoresistance

Chem. Phys. Lett. **470**, 244~248 (2009). (査読有)

[学会発表] (計8件)

(1) T. Niizeki, S. Mitani, H. Sukegawa, S. Kasai and K. Inomata

Fully Epitaxial Fe/MgO/Fe(001) Junctions with Nonmagnetic Metal Layer Insertion

55th Magnetism and Magnetic Materials Conference

2010年11月18日, Atlanta, USA

(2) 新関智彦、三谷誠司、介川裕章、葛西伸哉、猪俣浩一郎

フルエピタキシャルFe/MgO/Fe(001)接合界面への非磁性層挿入

第71回応用物理学会学術講演会

2010年9月17日、長崎大学

(3) S. Mitani

Magnetic Tunnel Junctions with Unconventional Materials and Nanostructures (招待講演)

10th IEEE International Conf. on Nanotechnology

2010年8月19日, Seoul, Korea

(4) 三谷誠司、介川裕章、葛西伸哉

強磁性2重トンネル接合におけるスピン蓄積効果I

第33回日本磁気学会学術講演会

2009年9月14日、長崎大学

(5) 三谷誠司、葛西伸哉、介川裕章

2重トンネル接合におけるスピン蓄積の効果: 簡易モデルによる計算

第70回応用物理学会学術講演会

2009年9月8日、富山大学

(6) S. Mitani

Magnetotransport in novel spintronic materials and nanostructures (招待講演)

3rd Japanese-German Young Researchers Workshop From Nanomaterials to Innovation

2009年7月30日

Institute of Nanotechnology, Karlsruhe, Germany

(7) 三谷誠司、水口将輝、高梨弘毅

FeおよびNi超薄膜のホール効果II

日本物理学会第64回年次大会

2009年3月27日、立教大学

(8) Sugai, S. Sakai, S. Mitani, M. Mizuguchi, K. Takanashi, Y. Matsumoto, H. Naramoto, P.V. Avramov, S. Okayasu and Y. Maeda

Mechanism of giant tunnel magnetoresistance in fullerene-cobalt granular thin films

53rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials

2008年11月11日、Austin, USA

[図書] (計2件)

(1) 三谷誠司

「スピン依存単一電子トンネル現象」

高梨弘毅編、スピントロニクス基礎と材料・応用技術の最前線、

シーエムシー出版

2009, 421ページ (pp.83-93)

(2) S. Mitani

“Spin accumulation in metallic nanoparticles”

Handbook of Nanophysics: Nanoparticles and
Quantum Dots, Chap. 13, Taylor and Francis
2010, 800 pages (15 pages)

[その他]

ホームページ:

<http://www.nims.go.jp/apfim/spin/indexj.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三谷 誠司 (MITANI SEIJI)

独立行政法人物質・材料研究機構・磁性材料センター・グループリーダー

研究者番号: 20250813

(2) 研究分担者

桜庭 裕弥 (SAKURABA YUYA) (2008 年度)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号: 10451618

水口 将輝 (MIZUGUCHI MASAKI) (2008 年度)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号: 50397759

(3) 連携研究者

新関 智彦 (NIIZEKI TOMOHIKO) (2009-2010 年度)

独立行政法人物質・材料研究機構・磁性材料センター・NIMS ポスドク研究員

研究者番号: 40567749