

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20360005

研究課題名(和文) 高機能スピン制御材料の創製

研究課題名(英文) Development of spintronic materials with multi-functionality

研究代表者：

浅野 秀文 (ASANO HIDEFUMI)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：50262853

研究成果の概要(和文)：本研究では、高スピン偏極特性、かつ低(ゼロ)磁気モーメント性を併せ持つ、高機能なスピン制御材料を創製、及び新規なデバイス機能を探求することを目的とした。

- (1) ハーフメタルの低磁気モーメント化：Fe系ホイスラー合金 $\text{Fe}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{M}_x)\text{Si}$ ($\text{M}=\text{Ti}, \text{V}$) 系バルク試料の実験により、Fe系ホイスラー合金は、従来に比較して1/2以下の低磁気モーメント性を持ち、擾乱耐性に優れたハーフメタルであることが明らかになった。
- (2) 反強磁性ホイスラー合金の歪み効果：格子整合 MgAl_2O_4 基板を用い、 Fe_2VSi のエピタキシャル薄膜歪みを精密制御により、反強磁性ネール温度 T_N の大幅(50%)なエンハンスを見出した。
- (3) 反強磁性体のハーフメタル化：二重ペロブスカイト SrLaVMoO_6 において、反強磁性状態と有限のスピン分極が共存することを初めて実証した。また、 SrLaVMoO_6 エピタキシャル薄膜の特性評価から、光電子分光によりハーフメタル電子構造の実験的証拠を得た。
- (4) ナノヘテロ構造を用いた検討：ナノヘテロ構造における界面ハーフメタル性の直接的検証方法として超伝導 NbN 接合法を開発した。この手法を、電気伝導スピン分極率 P_o がハーフメタルと予測されている Fe_4N に適用して、精密定量化を実証した。

研究成果の概要(英文)：(1) Reduced spin magnetic moment in half-metallic compounds：The magnetic and transport properties of bulk polycrystalline samples of $\text{Fe}_2(\text{Cr}_{1-x}\text{M}_x)\text{Si}$ ($\text{M}=\text{Ti}, \text{V}$) Heusler compounds have been investigated. These Fe-containing Heusler compounds were found to be half-metals with low magnetic moment and large densities of states at the Fermi energy.

(2) Strain effect in an antiferromagnetic Heusler compound：Strain effect on the properties of an antiferromagnetic Heusler compound Fe_2VSi was investigated. The strong enhancement in antiferromagnetic Neel temperatures T_N up to 193 K was observed in coherently strained Fe_2VSi films.

(3) Half-metallicity in an antiferromagnetic material：Coexistence of antiferromagnetism and high spin polarization has been found in bulk samples of double perovskite SrLaVMoO_6 . The large enhancement in Neel temperatures T_N was observed in epitaxial SrLaVMoO_6 thin films. Experimental evidence of a half-metallic electronic structure was obtained from XPS study.

(4) Experiments on half-metallic nano-hetero structures：We have developed the junction method using NbN as a superconducting electrode for measuring spin polarization of various ferromagnetic materials including half-metals. Application of this NbN junction method to Fe_4N , which was predicted to have current spin polarization P_o of 1, resulted in DOS spin polarization P_{DOS} of -0.68 . The NbN junction method was found to be a versatile technique which can simultaneously measure two types of spin polarization of P_{DOS} and P_o .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,400,000	2,520,000	10,920,000
2009年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
総計	14,000,000	4,200,000	18,200,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・応用物性

キーワード：新機能材料、ハーフメタル、スピントロニクス、反強磁性体

1. 研究開始当初の背景

現在の高度情報化社会を支えるハードディスクドライブ (HDD) 等の磁気ストレージ・メモリー技術の急速な進展は、電子の電荷とスピンの両方を活用するスピントロニクスに基礎を置いている。スピントロニクスにおいては、スピン偏極した電子を用いることを基本としており、室温においても完全スピン偏極電子の発生源となる材料の開発が今後の最重要課題の一つになっている。ハーフメタル磁性体は、基底状態のフェルミエネルギー (E_F) 近傍において一方のスピンバンドのみにエネルギーギャップが存在するという特徴的な電子構造を有することから、完全にスピン偏極した伝導電子の供給と受容が可能である。このような材料を、強磁性トンネル接合素子 (Magnetic Tunnel Junction; MTJ 素子) の強磁性電極に適用した場合、素子の性能指数である、トンネル磁気抵抗 (Tunnel Magneto-Resistance; TMR) 比やスピン注入効率を飛躍的に向上させることが期待でき、将来のスピンデバイス開発において極めて重要な役割を果たすことが予想されている。このような背景の中で、次世代スピントロニクスに不可欠な低消費電力化・高機能化を達成するために、高機能なスピン制御材料を創製が求められている。

2. 研究の目的

本研究では、高スピン偏極材料であるハーフメタル磁性体に対して、そのハーフメタル性を規定するフェルミエネルギー (E_F) 近傍の電子構造を維持したままで、電子構造を制御して (飽和) 磁気モーメントを低減化させる材料制御手法を開拓することにより、高スピン偏極特性、かつ低磁気モーメントあるいはゼロ磁気モーメント性を併せ持つ、高機能なスピン制御材料を創製することを目的とする。さらに、その材料で構成されるナノヘテロ構造を用いて、高 (完全) スピン偏極特性と低 (ゼロ) 磁気モーメントがもたらす新規なデバイス機能の探求を目指す。

3. 研究の方法

本研究では、アップスピン電子の状態密度の絶対値が高く、スピン制御材料として高いポテンシャルを有することが期待できる、Fe系ホイスラー化合物 Fe_2YZ および二重ペロブスカイト型酸化物 Sr_2BBO_6 を対象として、実験的・理論的検討を行う。YZ 及び BB 元素の

組み合わせやその部分置換により電子構造を制御することにより、そのハーフメタル性とキュリー温度を維持したままで、磁気モーメントを低減化させる材料制御手法を開拓する。高スピン偏極特性、かつ低磁気モーメントあるいはゼロ磁気モーメントを有する、新しいタイプの高機能スピン制御材料を探求する。さらに、その材料で構成されるナノヘテロ構造を用いて、ナノヘテロ構造の新しい評価手法の開拓及び新規なデバイス機能を創製する。

4. 研究成果

(1) ハーフメタルの低磁気モーメント化

アップスピン電子のフェルミ面状態密度が大きく擾乱耐性に優れた Fe 系ホイスラー合金 $Fe_2(Cr_{1-x}M_x)Si$ ($M=Ti, V$) 系において、磁気特性、4.2 K でのポイントコンタクトアンドレーエフ反射 (PCAR) により評価したスピン分極率 P に対する置換元素やその置換量依存性を調べた。その結果、V 置換量 $x \leq 0.5$ の領域では強磁性キュリー温度を維持したまま磁気モーメント M_s が緩やかに低下し、スピン分極率 P がほぼ一定 (~ 0.6) で維持されることが明らかになった。従って、この Fe 系ホイスラー合金は、従来の Co 系ホイスラー合金に比較し、1/2 以下の低磁気モーメントを持ち、擾乱耐性に優れたハーフメタルであることが明らかになった。

(2) 反強磁性ホイスラー合金の歪み効果

反強磁性ホイスラー Fe_2VSi のエピタキシャル薄膜を用いて、基板との格子不整合歪みが磁気特性、電子構造に及ぼす影響を調べた。ホイスラー合金と格子整合性の良い $MgAl_2O_4$ 基板を用いて歪みを精密に制御することにより、反強磁性ネール温度 T_N の大幅(50%)

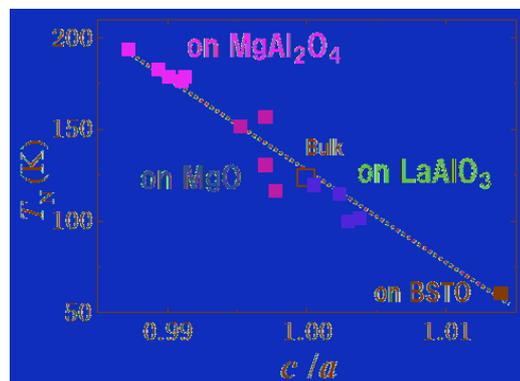


図1 Fe_2VSi 薄膜の T_N と歪み (c/a) の関係

なエンハンスが生じることを明らかにした。また、 T_N と歪み (c/a) の関係を調べた所、図 1 に示すような明確な相関関係があることを見出すとともに、この相関が、バンド計算に基づく理論的考察からバンド・ヤーンテラー効果に伴うフェルミ面近傍における電子状態密度の変調によることが分かった。この結果は、反強磁性ホイスラー合金のスピントロニクス応用の可能性を広げるための重要な知見である。

(3) 反強磁性体のハーフメタル化

二重ペロブスカイト SrLaVMoO_6 のバルク試料では、120 K で反強磁性転移が生じることを明らかにし、PCAR 測定から、スピン分極率 $P=0.5$ という値を得た。これらは、反強磁性状態と有限のスピン分極が共存することを示した初めての実験結果である。また、 SrLaVMoO_6 エピタキシャル薄膜の作製とその物性解明を行った。価数変化が生じやすい二種類の遷移金属元素を含むため薄膜成長が困難な SrLaVMoO_6 に対して、酸素分圧の精密制御と二段階成長により高品質なエピタキシャル薄膜を実現した。そのエピタキシャル成長薄膜の特性評価から、バルク値より反強磁性ネール温度の大幅な向上を見出すとともに、光電子分光によりハーフメタル電子構造の実験的証拠を得ることに初めて成功した。本成果は、従来理論予測に留まっていたハーフメタル反強磁性体の存在を初めて実証するとともに、ハーフメタル反強磁性体やその関連材料の今後の新たなスピントロニクス応用への可能性を広げるための重要な指針となる。

(4) ナノヘテロ構造を用いた検討

ナノヘテロ構造における界面ハーフメタル性の直接的検証方法として超伝導接合法を検討した。超伝導体として、従来の Al に比較し、化学的に安定で超伝導転移温度 T_c が高い ($T_c=16$ K) NbN を用いることにより、スピン分極率の精密な定量化が 1.8 K でも可能となり、従来法の Al ($T_c=1.5$ K) における 0.25 K 測定に必要な希釈冷凍が不要なることを見出した。この手法を、電気伝導率を考慮したスピン分極率 P_0 においてハーフメタルと理論予測されている Fe_4N に適用して、MgO バリア層とのナノヘテロ構造界面でのスピン分極率を評価した。その結果、MgO バリア層厚 t_{MgO} に依存して、 $t_{\text{MgO}} \leq 0.7\text{nm}$ では伝導機構がアンドレーエフ金属伝導になり P_0 が測定され、 $t_{\text{MgO}} > 0.7\text{nm}$ では伝導機構がトンネル伝導になり状態密度を反映した P_{bos} が測定できることが分かった。ここで、 Fe_4N の P_{bos} の実験値は -0.68 と求められ、理論予測と一致しており、精密定量化が実証された。二種類のスピン分極率 (P_0 と

P_{bos}) を定量化できる本手法は、ハーフメタルやその関連材料で構成されるナノヘテロ構造の評価、及びそのデバイス機能の開拓のための新手法として有用である。

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 16 件)

- ① Y. Takeda, N. Fukatani, K. Takahashi, H. Fujita, K. Ueda and H. Asano, "Structural and magnetic properties of Heusler alloy thin films and artificial lattices on MgAl_2O_4 substrate", 査読有り、IEICE Technical Report, MR2009-66 (2010) 45-51.
- ② N. Fukatani, K. Yamaji, C. Shishikura, Y. Takeda, H. Asano, A. Rajanikanth, K. Hono and S. Ishida, "Magnetic Properties and Spin Polarization of $\text{Fe}_2\text{Cr}_{1-x}\text{V}_x\text{Si}$ Heusler Alloy", 査読有り、J. Mag. Soc. Jpn., 34 (2010) 30-33.
- ③ H. Gotoh, Y. Takeda, H. Asano, J. Zhong, A. Rajanikanth and K. Hono, "Antiferromagnetism and Spin Polarization in Double Perovskite SrLaVMoO_6 ", Appl. Phys. Expr., 査読有り、2 (2009) 013001-1-3.
- ④ K. Kurachi, T. Kuroda, T. Ono, Y. Takeda and H. Asano, "Measurement of Interfacial Spin Polarization of Ferromagnetic Materials with the Use of Epitaxial NbN Junctions", Trans. Mater. Res. Soc. Jpn., 査読有り、34 (2009) 59-61.
- ⑤ N. Fukatani, C. Shishikura, Y. Takeda and H. Asano, "Stabilization of Antiferromagnetism in Fe_2VSi Epitaxial Thin Films", Appl. Phys. Expr., 査読有り、2 (2009) 053001-1-3.

[学会発表] (計 73 件)

- ① K. Sakuma, H. Akatsuka, T. Miyawaki, K. Ueda, H. Asano, "Epitaxial growth of the electron-doped $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{CuO}_2$ by magnetron sputtering", American Physical Society (2011 APS March Meeting), U.S.A, Mar.21-25, 2011.
- ② T. Hohjo, K. Sakuma, T. Miyawaki, K. Ueda, H. Asano, Y. Komasaki, M. Tsunoda, "Spin polarization measurements in $\text{Fe}_4\text{N}/\text{MgO}/\text{NbN}$ tunnel junctions using quasiparticle tunneling spectroscopy", American Physical Society (2011 APS March Meeting), U.S.A, Mar.21-25, 2011.
- ③ K. Ueda and H. Asano, "Fabrication of semiconducting cubic boron nitride films on

CVD diamond by ion-beam assisted sputtering”, Materials Research Society (2010 MRS Fall Meeting), U.S.A , Nov. 29-Dec. 3 (2010).

- ④ H. Matsushima, H. Gotoh, T. Miyawaki, K. Ueda, and H. Asano, “Fabrication and properties of double perovskite SrLaVMoO₆ epitaxial thin films”, The 55th Magnetism and Magnetic Materials Conference, U.S.A, Nov.14-18 (2010).
- ⑤ K. Ueda, H. Matsushima, T. Hojiyo, H. Gotoh, T. Miyawaki, and H. Asano, “Fabrication and physical properties of antiferromagnetic double perovskite compound Sr_{2-x}La_xVMoO₆”, Int. Workshop on Oxide Electronics (WOE17), Awaji, Sep. 19-22 (2010).
- ⑥ 藤田裕人, 真利研一郎, 深谷直人, 宮脇哲也, 植田研二, 浅野秀文, “ハーフメタル Fe₂CrSi/MgAl₂O₄ 接合のヘテロエピタキシーとトンネル磁気抵抗効果”, 2010 年秋季第 71 回応用物理学会、長崎大学、2010 年 9 月 14-17 日.
- ⑦ H. Asano, Y. Sugimoto, K. Yoshimoto, S. Kobayashi, S. Tachiki, and Y. Takeda, “Effects of B-site ordering on the magnetic properties of Sr₂CrReO₆ thin films”, Int. Conf. on Magnetism (ICM2009), Germany, Jul. 27 (2009).
- ⑧ 吉村哲, 江川元太, 斉藤準, 加藤史也, 浅野秀文, “多結晶 La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ 薄膜の磁気力顕微鏡を用いた垂直・面内磁場勾配の同時計測”, 2009 春季第 56 回応用物理学関係連合講演会 筑波大学 2009 年 3 月 30 日-4 月 2 日.
- ⑨ J. Zhong, F. Kato, T. Oka, Y. Takeda and H. Asano, “Intergrain Magnetoresistance Effect in La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ Films”, IUMRS-ICA2008, Dec. 9-13, (2008). 名古屋国際会議場
- ⑩ 吉本耕助, 杉本靖典, 加藤史也, 浅野秀文, 坂本渉, 余語利信, “エピタキシャル Bi_{1-x}Ba_xFeO₃ 薄膜のマルチフェロイック特性と積層化”, 2008 秋季応用物理学会 中部大学 2008 年 9 月 2-6 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

浅野秀文 (ASANO HIDEFUMI)
名古屋大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：50262853

(2) 研究分担者

藤井伸平 (FUJII SHINPEI)
鹿児島大学・理学部・教授
研究者番号：90189994
石田尚治 (ISHIDA SHOJI)

鹿児島大学・理学部・教授

研究者番号：10041237

(3) 連携研究者

植田研二 (UEDA KENJI)
名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：10393737
宮脇哲也 (MIYAWAKI TETSUYA)
名古屋大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号：10596844