

科学研究費補助金研究成果報告書

平成24年 5月 21日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究 (A)

研究期間：2008 ~ 2010

課題番号：20686001

研究課題名 (和文) 垂直磁気異方性およびスピンモードロックを利用した
周波数変調型新規発振素子の開発研究課題名 (英文) Development of frequency-modulation type oscillation devices using
perpendicular magnetic anisotropy and spin mode-lock

研究代表者

水口 将輝 (MIZUGUCHI MASAKI)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：50397759

研究成果の概要 (和文)：

本研究では、外部磁場を必要とせず、非常に高いQ値を有したまま周波数変調が可能な究極的スピン発振素子を実現することを目指した。そのために、可能な限り構造を制御したナノサイズの磁性構造体、すなわち完全エピタキシャル結晶からなる微小素子の作製を行った。続いて、これらの素子の高周波スピン応答を測定し、発振条件を探究した。また、実際に高い磁気抵抗効果を示すナノメートルサイズの素子の発振現象の測定を行うことにより、これまでにない究極的なスピン発振素子を完成させることに挑戦した。

研究成果の概要 (英文)：

This research aimed to develop ultimate spin oscillation devices with high Q-value in which frequency modulation is possible, and an external magnetic field is not needed. To realize the purpose, nano-scaled magnetic superstructures including full-epitaxial crystals were fabricated. Then, high frequency spin response of these elements was measured, and oscillation conditions were investigated. Moreover, oscillation spectra were measured for actual nano-scaled devices with large magnetoresistance to develop novel oscillation devices.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	7,500,000	2,250,000	9,750,000
2009年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：スピントロニクス、磁性材料

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、高周波、モードロック、発振

1. 研究開始当初の背景

ナノメートルサイズの GMR (巨大磁気抵抗効果) 素子を舞台に、局在スピンの歳差運動を定常的に永続させることによる高周波発振を誘起する研究が進められている。近年、アメリカのグループから、GMR 素子に

直流電流を注入することによる発振現象が報告されたのを皮切りに (Kiselev *et al.*, Nature 2003)、いくつかのグループから類似研究が報告されており、成熟期に入ったスピントロニクスの分野において、高周波の利用が新しい展開を見せつつある。しかしながら、

その発振強度は未だナノワット程度の大きさに留まっているのに加え、発振の周波数選択性に大きく影響を及ぼす共鳴線幅も十分に狭くはなっておらず、従来の発振素子の性能を超えるものにはなっていない。2005年に、アメリカのグループから同時に二つの局在スピンをモードロックさせることにより、発振強度を高める検証実験が報告された(Kaka *et al.*, Nature 2005)。これは、微細加工を利用して作製した発振部位を百ナノメートル程度の距離まで近接させることにより、スピンの歳差位相をロックさせ、高いQ値(共振ピークの鋭さを表す値)を実現する手法である。モードロック現象自体は、レーザー発振などで広く用いられている手法であるが、これをスピン系に応用した点は新しい。しかしながら、この研究例においても、モードロックのメカニズムが、強磁性体内に誘起されるスピン波に因るものなのか、交換相互作用に因るものなのか明らかになっていないのに加え、スピンを素子面直方向に立てるために、外部磁界の印加が不可欠となっており、デバイス応用の観点からは、実用化の目処が全く立っていないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究では外部磁場を必要とせず、非常に高いQ値を有したまま周波数変調が可能な究極的スピン発振素子を実現することを目指す。そのために、まず対象を可能な限り構造制御したナノサイズの高磁気抵抗構造体、すなわち完全エピタキシャル結晶からなるTMR(トンネル磁気抵抗)素子を用いる。これは、モードロック現象に潜む未解明のメカニズムを顕わに明らかにする目的に加えて、高い磁気抵抗比を利用することにより、発振強度を増大させる目的もある。二つ目に、磁気異方性を制御したナノ構造体、すなわち高い垂直磁気異方性を有する強磁性体を利用する。これにより、高いQ値を持つ共振ピークが期待されるだけでなく、外部磁場を全く必要としない実用化に即した発振素子の実現が可能となる。三つ目に、電界により磁気異方性を変化させることが可能な超構造体を採用する。すなわち、電界効果を介して発振部位の磁気異方性の変化が可能である構造を用いることにより、周波数を変調することを目的とする。これらの方針に則って実験を進め、そこで観測されるスピンモードロック現象の物理を詳細かつ系統的に調べて開発にフィードバックさせることにより、これまでになく究極的なスピン発振素子を完成させることに挑戦する。

3. 研究の方法

本研究を遂行するために、以下の研究計画・方法を実践する。まず、高品質薄膜成長装置を整備し、エピタキシャルTMR素子を作製する。続いて、微細加工により近接する並列した発振部位を作製し、電極を作り込む。その後、直流電流を注入した状態で高周波応答を精密に測定し、スピンモードロック状態を誘起する外部磁場・電流条件を明らかにする。その際、発振部位間距離依存性や磁気抵抗比、部位形状依存性などを調べることにより、スピンモードロック現象のメカニズムの全容を明らかにする。次のステージとして、エピタキシャル垂直磁気異方性TMR素子を準備し、外部磁場を印加しない状態でのモードロック状態を実現する。その際、前ステージで得られた知見を利用し、高いQ値を達成する条件を見いだす。これが実現された後は、電界印加が可能な素子に改良を行い、電圧を印加することにより発振周波数がどのように変化するかを検証する。これらの工程を経て、最終的には集積度や発振強度が十分な実用的発振素子の完成を目指す。

4. 研究成果

始めに、高周波測定を行う環境の整備を行った。本研究で購入したネットワークアナライザおよびスペクトラムアナライザを既存のプロバーに接続し、20 GHzまでの帯域で高周波応答を測定できる環境を整えた。実際に、強磁性絶縁体であるガーネットに電圧を印加することにより、スピン波を励起し、4~5 GHz程度の高周波発振が可能なことを実験的に示すことに成功した(図1;参考文献⑨)。これは、絶縁体においてもスピン波を介した電気信号の伝達が可能であることを示す画期的な実験となった。

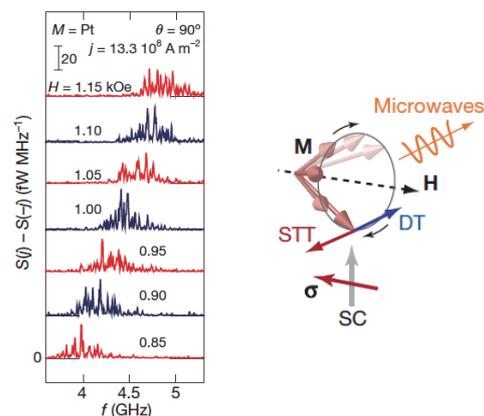


図1 ガーネットで観測された発振スペクトルと発振現象の概念図。

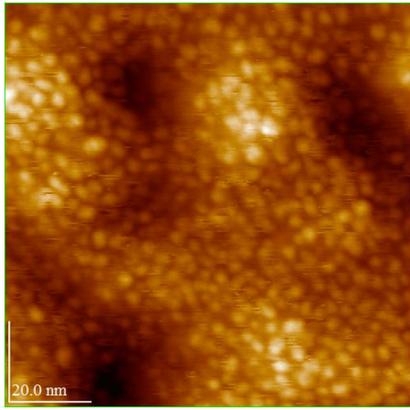


図2 膜厚 0.7 nm の Fe ナノ粒子の原子間力顕微鏡像。

続いて、スピンモードロックを利用した発振素子を作製するための足がかりとして、完全エピタキシャルの整列ナノドット集合体を作製してその高周波応答測定を行い、ナノ構造におけるスピンの動的挙動を明らかにすることを旨とした。まず、MgO 下地層上に Fe のナノ粒子を蒸着し、MgO 下地層の膜厚を変化させることによる Fe ナノ粒子の形態制御の可能性を調べた。AFM により成長後の Fe ナノ粒子の表面構造の観察を行ったところ、図2に示すように膜厚 0.4 および 0.7 nm の MgO 下地層上の Fe ナノ粒子では、比較的粒径の揃った粒子が分散している様子が確認されたが、膜厚 1.5 nm 上の Fe では、粒子の粗大化と粒径のばらつきが確認された。MgO 下地層の膜厚の変化が Fe ナノ粒子に与える歪みの効果の半定量的な評価を試みたところ、MgO 下地層が Fe シード層上に転位を導入しないで成長できる臨界膜厚は、0.83 nm であることが分かった。この臨界膜厚以下の膜厚の MgO 下地層上の Fe ナノ粒子では転位が導入されないで分散度の高いナノ粒子形成されている一方、臨界膜厚以上の MgO 上に成長した Fe ナノ粒子では、格子不整合による歪みに起因した転位がナノ粒子に導入され、Fe の粒径の粗大化と粒径分布の広がりがもたらされたことが分かった。さらに、MgO 下地層と Fe ナノ粒子の双方の膜厚を制御することにより、Fe ナノ粒子が一方に整列した構造を作製することも可能であることが明らかになった。この様なナノサイズ磁性ドットの高周波応答測定も行った(参考文献⑨)。MgO(001)下地層上に Fe のナノドットを作製し、コプレーナウェーブガイドを使った強磁性共鳴(FMR)の測定を行った。外部磁場を基板面内方向に印加して FMR の測定を行ったところ、図3に示すように MgO<100>方向と MgO<110>の間で共鳴周波数に大きな差が見られた。これは、Fe のナノドットが面

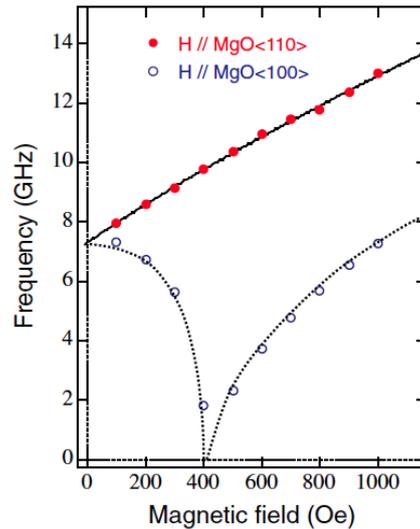


図3 Fe ナノ粒子の強磁性共鳴周波数の外部磁場依存性。

内で強い磁気異方性を有していることを示唆する結果である。また、共鳴ピークの線幅から見積もられるギルバート緩和定数は、Fe の連続膜のそれと比較して、2 倍程度の大きさであることが分かった。これは、ナノドットと連続膜との間で、有効磁場のばらつきに差があるためと考えられる。これらの結果は、半導体のナノ粒子系で行われている格子不整合による粒子の形態制御と共鳴状態の制御が磁性金属ナノ粒子でも可能であることを示したものであり、高い制御性を有したスピン発振素子の開発の可能性が示された。さらに、数種類の磁気異方性定数を有する FePt 薄膜の強磁性共鳴スペクトルを取得することにも成功した。磁気異方性の大きさに依存して、発振周波数は大きく変化すること

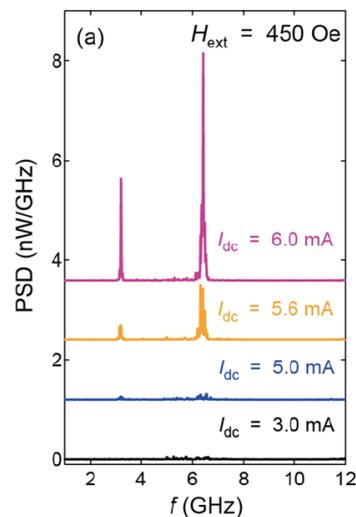


図4 巨大磁気抵抗素子における発振スペクトルの注入電流依存性。

が確認された(参考文献①)。これらの結果は、周波数変調発振素子作製のための知見となるものであり、その実現に向けた指針が得られた。

次に、ホイスラー合金を電極に用いた巨大磁気抵抗素子を作製し、スピン自励発振特性を観測することに成功した(図4; 参考文献②)。ホイスラー合金は一般にスピン偏極率が大きく、それに応じて出力も高くなった。観測された発振出力は、電流を面直に流すタイプの巨大磁気抵抗素子における発振出力としては、これまでの報告の中では最大の大きさである。しかしながら、複数の磁気抵抗素子を並べた構造において発振スペクトルの取得を行ったが、モードロック状態を示す振る舞いを確認するには至らなかった。これは、素子構造の均一性が、一定の水準に達しておらず、モードロックが起きなかったためと推測される。

以上、本研究により数 GHz 程度の高周波帯におけるナノ磁性体のスピン挙動を明らかにすることに成功した。特に、構造を可能な限り制御した完全エピタキシャル磁性ナノドットの強磁性共鳴スペクトルと、ホイスラー合金を電極に用いた巨大磁気抵抗素子の発振スペクトルの取得に成功した。当初の研究目的である、垂直磁化を示すナノ磁性体のスピン挙動をモードロック状態で制御することまでは達成できなかったが、得られた知見は将来的に、本研究を発展させて発振素子の作製を目指す研究に大いに資するものである。

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5件)

- ① J.G Kang, M. Mizuguchi and K. Takanashi, "Ferromagnetic resonance study on FePt thin films with in-plane magnetization using coplanar waveguide", Key Engineering Materials, 査読有, **508** (2012) 261-265.
- ② R. Okura, Y. Sakuraba, T. Seki, K. Izumi, M. Mizuguchi and K. Takanashi, "High-power rf oscillation induced in half-metallic Co₂MnSi layer by spin-transfer torque", Applied Physics Letters, 査読有, **99** (2011) 052510-1-052510-3.
- ③ M. Mizuguchi and K. Takanashi, "Ferromagnetic resonance of epitaxial Fe nanodots grown on MgO measured using coplanar waveguides", Journal of Physics D: Applied Physics, 査読有, **44** (2011) 064007-1-064007-7.
- ④ 水口将輝, "金属スピントロニクスと表面科学", 表面科学, 査読有, **32** (2011)

145-151.

- ⑤ Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa and E. Saitoh, "Transmission of electric signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator", Nature, 査読有, **464** (2010) 262-266.

[学会発表] (計10件)

- ① Y. Sakuraba, R. Okura, T. Seki, M. Mizuguchi and K. Takanashi, "Spin-torque induced rf-oscillation in half-metallic Co₂MnSi-based CPP-GMR devices", 56th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, 2011年11月3日, Scottsdale, USA.
- ② Y. Sakuraba, R. Okura, S. Bosu, F. Yang, T. Seki, M. Mizuguchi, K. Saito and K. Takanashi, "Spin-torque induced magnetization switching and oscillation in half-metallic Co₂MnSi-based CPP-GMR devices (invited)", 2011 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2011), 2011年9月30日, Nagoya, Japan.
- ③ M. Mizuguchi and K. Takanashi, "Spin dynamics in ferromagnetic nano-scaled dots (invited)", The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications (ISAMMA 2010), 2010年7月16日, Sendai, Japan.
- ④ 水口将輝、大道悟、高梨弘毅, "格子不整合を用いた磁性ナノ粒子集合体の創製(招待講演)", 磁気学会 第172回研究会, 2010年5月27日、東京.
- ⑤ 水口将輝、岡航平、高梨弘毅, "強磁性ナノ粒子集合体の創製とスピン共鳴現象", 第33回日本磁気学会学術講演会, 2009年9月13日、長崎市.
- ⑥ 水口将輝、岡航平、高梨弘毅, "二次元Feグラニューラ構造におけるスピン共鳴現象", 第70回応用物理学学会学術講演会, 2009年9月10日、富山市.
- ⑦ M. Mizuguchi and K. Takanashi, "Growth and characterization of epitaxial Co nano-dots on insulating layers", International Conference on Magnetism 2009 (ICM 2009), 2009年7月28日, Karlsruhe, Germany.
- ⑧ M. Mizuguchi, K. Oka and K. Takanashi, "Fabrication and spin resonant phenomena of self-assembled epitaxial ferromagnetic nano-dots fabrication and spin resonant", 20th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (ICMFS 2009), 2009年7月23日, Berlin, Germany.
- ⑨ M. Mizuguchi, S. Mitani and K. Takanashi,

“Fabrication of two-dimensional assembly of well-isolated epitaxial Co-nanoparticles on insulating layers”, 53rd Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, 2008年11月14日, Austin, USA.

- ⑩ 水口将輝、三谷誠司、高梨弘毅、“ナノサイズ Co 微粒子を含む二次元グラニューラー薄膜の伝導特性”、第69回応用物理学学術講演会、2008年9月2日、春日井市.

6. 研究組織

(1)研究代表者

水口 将輝 (MIZUGUCHI MASAKI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：50397759