

機関番号：10101

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760001

研究課題名 (和文) 量子十字素子における巨大磁気抵抗効果に関する研究

研究課題名 (英文) Study of large magnetoresistance effect in quantum cross devices

研究代表者

海住 英生 (KAIJU HIDEO)

北海道大学・電子科学研究所・助教

研究者番号：70396323

研究成果の概要 (和文)：

本研究課題では、強磁性薄膜のエッジとエッジに有機分子を挟んだ強磁性薄膜/有機分子/強磁性薄膜量子十字素子を提案し、その表面・界面構造、電気伝導特性、並びに、磁気特性を調べることを目的とした。初めに、表面状態、磁化状態、及び、エッジ状態について詳細に調べた結果、Co/SiO<sub>2</sub>が量子十字素子の電極材料として最も適していることがわかった。次に、本研究課題で構築した独自の成膜・研磨・エッチング技術を用いて、Co/有機分子/Co 量子十字素子を作製し、その特性評価を行った。その結果、室温にて非常に興味深いスイッチング特性を見出すことに成功した。

研究成果の概要 (英文)：

In this study, we have proposed quantum cross devices, which consist of organic molecules sandwiched between two ferromagnetic metals whose edges are crossed, and investigated their surface and interfacial structures, electrical characteristics, and magnetic properties. From the viewpoint of surface structures, magnetic properties, and edge states, Co/SiO<sub>2</sub> is found to be the best materials for electrodes in quantum cross devices. As a result of the fabrication of Co/molecules/Co quantum cross devices, interesting switching properties have been successfully observed at room temperature.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：応用物理、磁性、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：スピントロニクス、磁気抵抗効果、ナノ接合、有機膜、強磁性体、表面・界面状態、磁化状態、電流電圧特性

## 1. 研究開始当初背景

高度情報化社会の発展に伴い、ハードディスク装置(HDD)の更なる高記録密度化が要求されている。この高記録密度化を実現するため、現在までに、強磁性薄膜を用いた異方性磁気抵抗効果(AMR)素子、巨大磁気抵抗効果

(GMR)素子、トンネル磁気抵抗効果(TMR)素子等の様々な磁気抵抗(MR)素子に関する研究開発が行われてきた。一方で、我々は、強磁性薄膜のエッジに注目し、現在までエッジとエッジを互いに対向させた量子十字素子に関する研究を行ってきた。その結果、Ni/Ni

量子十字素子において、室温にて経時変化のない非常に安定したオーミック特性を得られるまでに至った。

## 2. 研究の目的

そこで、本研究課題では、新たな磁気抵抗効果素子として、強磁性薄膜のエッジとエッジに有機分子を挟んだ強磁性薄膜/有機分子/強磁性薄膜量子十字素子(図 1)を提案し、その表面・界面構造、電気伝導特性、並びに、磁気特性を調べることを目的とした。

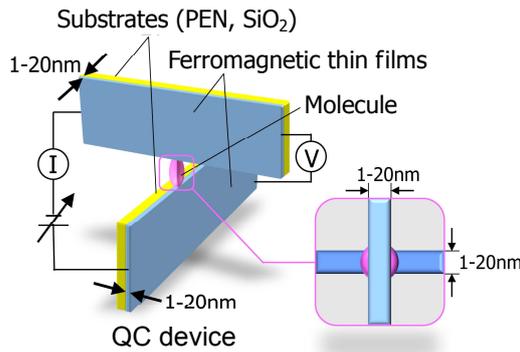


図 1: 強磁性薄膜/有機分子/強磁性薄膜量子十字素子の構造。

## 3. 研究の方法

初めに、量子十字素子の強磁性体電極材料について検討し、その表面状態、磁気特性、エッジ状態の観点から、最適な電極材料を決定した。そして、決定した強磁性体電極材料のエッジとエッジの間に有機分子を挟み、強磁性層/有機分子/強磁性層量子十字素子を作製し(図 2)、その電気伝導特性を調べた。

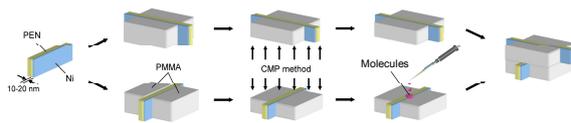


図 2: 強磁性薄膜/有機分子/強磁性薄膜量子十字素子の作製方法。

## 4. 研究成果

初めに、量子十字素子の強磁性層に用いる材料として、Polyethylene Naphthalate (PEN) 有機膜上の Ni 磁性薄膜、及び、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> 磁性薄膜について検討した。それぞれの磁性薄膜の膜厚は 10-30nm とした。まず初めに原子間力顕微鏡(AFM)を用いて表面状態を調べた。その結果、Ni/PEN では、観察スケール  $L$  が膜厚  $d$  と等しいとき、表面粗さ  $R_a = 0.34\text{nm}$  となり原子レベルで平坦になることがわかった。また、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> でも、観察スケール  $L$  が膜厚  $d$  と等しいとき、表面粗さ  $R_a = 0.25\text{nm}$  となり原子レベルでの平坦性が実現した。こ

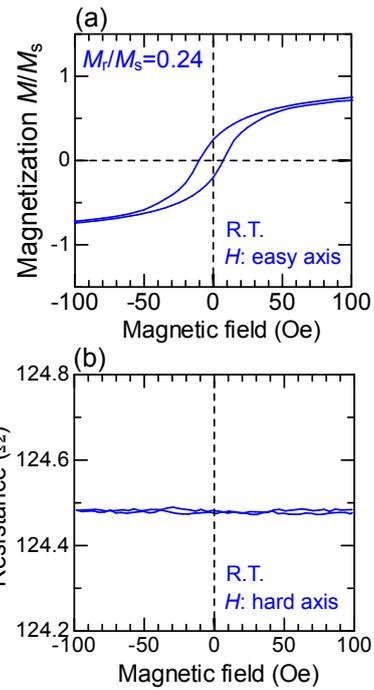


図 3: Ni/PEN における(a)磁化特性と(b)磁気抵抗効果。

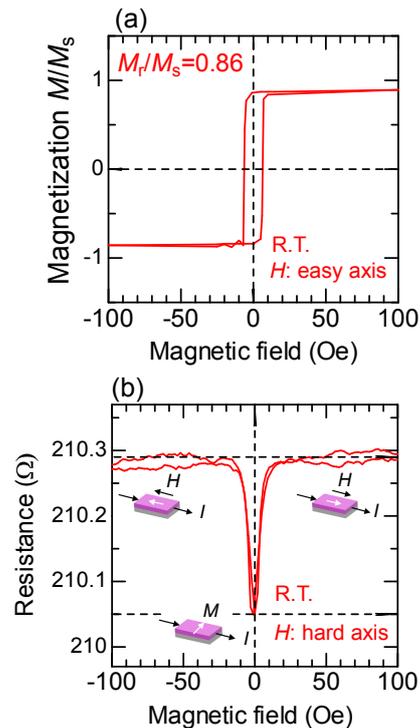


図 4: Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>/PEN における(a)磁化特性と(b)磁気抵抗効果。

のように表面粗さの観点からは Ni 磁性薄膜、及び、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> 磁性薄膜が量子十字素子に適していることがわかった。次に、磁化特性、並びに、磁気抵抗効果について調べた。その結果、Ni/PEN では、角型比が 0.24 と小さく、AMR 効果を示さないことがわかった(図 3)。これは一軸磁気異方性の付与が完全ではないことを示す。それに対し、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>/PEN で

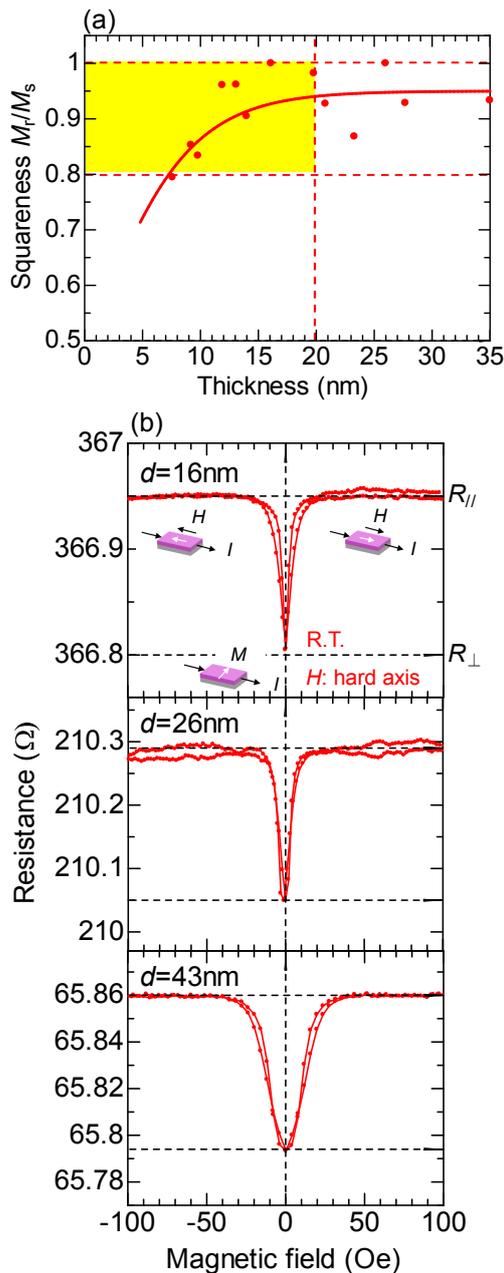


図 5: Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>/PEN における (a)角型比と (b)磁気抵抗効果の膜厚依存性。

は、角型比が 0.86 と大きく、AMR 効果を示すことがわかった(図 4)。これは一軸磁気異方性が付与されていることを示す。以上より、表面粗さ、並びに、磁気特性の観点から、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>/PEN は量子十字素子(接合面積  $S=10 \times 10\text{-}30 \times 30\text{nm}^2$ )に用いる強磁性体材料として有望であることがわかった。しかしながら、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>/PEN において、磁気特性の膜厚依存性を詳細に調べた結果、膜厚 7nm 以下において、角型比が 0.8 以下となり AMR が生じないことがわかった(図 5)。

そこで、次に量子十字素子の強磁性層に用いる材料として、PEN 有機膜上の Fe、Co 磁性薄膜について検討した。その結果、Fe、Co

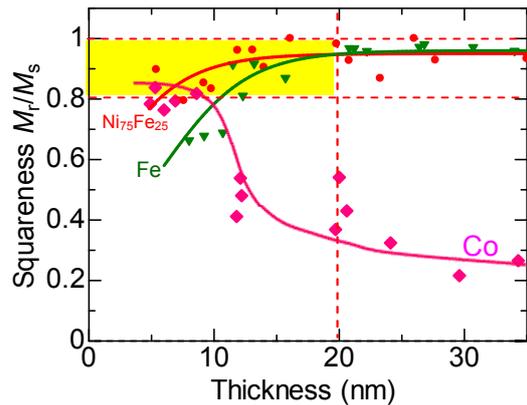


図 6: PEN 上の Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>、Fe、Co 磁性薄膜における角型比の膜厚依存性。

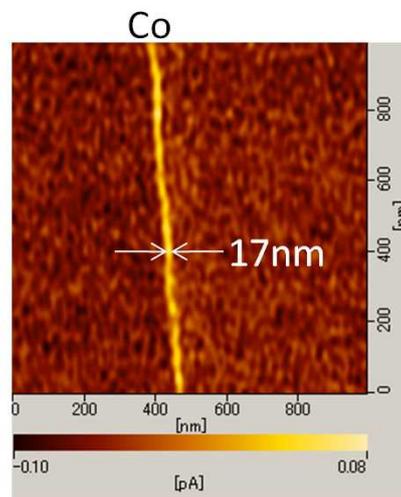


図 7:走査型プローブ顕微鏡(SPM)による Co エッジ面の電流マッピング像。

磁性薄膜でも、観察スケール  $L$  が膜厚  $d$  と等しいとき、表面粗さ  $R_a = 0.1\text{nm}$  以下となり原子レベルでの平坦性が実現した。次に磁気特性について調べた結果、Fe/PEN では、膜厚が 10nm 以下で角型比が 0.8 以下となることがわかった。それに対し、Co/PEN では、膜厚が 10nm 以下で角型比が 0.8 以上となり、量子十字素子に適することがわかった(図 6)。そこで、Co/PEN を用いて、Co エッジ面を評価した。しかしながら、結果的には良好なエッジを見出すことができなかった。そこで、石英ガラス(SiO<sub>2</sub>)上に Co を蒸着し、そのエッジ面を評価することを検討した。その結果、極めて明瞭なエッジ面の検出に成功した(図 7)。このとき、SiO<sub>2</sub> 上の Co 薄膜では、膜厚 30nm 以下において、表面粗さ 0.03nm 以下、角型比 0.9 以上が実現している。以上より、表面状態、磁化状態、及び、エッジ状態の観点から、量子十字素子の電極材料としては Co/ SiO<sub>2</sub> が最も適していることがわかった。最後に、本研究課題で構築した独自の成膜・研磨・エッチ

ング技術を用いて、Co/有機分子/Co 量子十字素子を作製し、その特性評価を行った。その結果、室温にて非常に興味深いエネルギー準位由来の振動現象と特異なスイッチング特性を見出すことに成功した。以上により、Co/有機分子/Co 量子十字素子は新たな磁気抵抗効果素子として大きな期待がもてることがわかった。

#### 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 9 件)

- ① H. Kaiju, N. Basheer, T. Abe, K. Kondo, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Surface and Interface Structures and Magnetic Properties of Ni and Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", J. Vac. Soc. Jpn. Vol. 54, pp. 203-206, 2011, 査読有.
- ② K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: "Large Thermoelectric Voltage in Point Contacts of Ni Ferromagnetic Metals", Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1314, pp. 110836-1-110836-6, 2011, 査読有.
- ③ H. Kaiju, K. Kondo, A. Ono, N. Kawaguchi, J. H. Won, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi: "The fabrication of Ni quantum cross devices with a 17 nm junction and their current-voltage characteristics", Nanotechnology Vol. 21, pp. 015301-1-015301-6, 2010, 査読有.
- ④ H. Kaiju, N. Basheer, K. Kondo and A. Ishibashi: "Surface Roughness and Magnetic Properties of Ni and Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub> Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", IEEE Trans. Magn. Vol. 46 pp. 1356-1359, 2010, 査読有.
- ⑤ K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: "A Theoretical Study and Realization of New Spin Quantum Cross Structure Devices using Organic Materials", Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1198, pp. E07011-E07016, 2010, 査読有.
- ⑥ H. Kaiju, K. Kondo, N. Basheer, N. Kawaguchi, S. White, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication and Current-Voltage Characteristics of Ni Spin Quantum Cross Devices with P3HT:PCBM Organic Materials", Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1252, pp. J02081-J02086, 2010, 査読有.
- ⑦ H. Kaiju, K. Kondo, and A. Ishibashi:

"Current-Voltage Characteristics in Nanoscale Tunnel Junctions Utilizing Thin-Film Edges", Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 49, pp. 105203-1-105203-5, 2010, 査読有.

⑧ K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: "Theoretical and Experimental Results of Electronic Transport of Spin Quantum Cross Structure Devices", J. Appl. Phys. Vol. 105, pp. 07D522-1-07D522-3, 2009, 査読有.

⑨ H. Kaiju, K. Kondo, A. Ono, N. Kawaguchi, J. H. Won, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Quantum Cross Devices Using Ni Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", J. Magn. Soc. Jpn. Vol. 33, pp. 242-246, 2009, 査読有.

[学会発表] (計 16 件)

① K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: "Large Thermoelectric Voltage in Point Contacts of Ni Ferromagnetic Metals", 2010 Material Research Society Fall Meeting, Boston, Massachusetts, LL8.36 (2010年12月1日)

② 海住英生、ヌブラバシール、阿部太郎、近藤憲治、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃: 「ポリエチレンナフタレート(PEN)有機膜上のNi及びNi<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>薄膜における表面・界面構造と磁気特性」, 真空・表面科学合同講演会 第30回表面科学学術講演会 第51回真空に関する連合講演会 大阪大学 5P-036V (2010年11月5日)

③ 海住英生、ヌブラバシール、近藤憲治、石橋晃: 「ポリエチレンナフタレート有機膜上のNi及びNi<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>薄膜の表面状態と電気磁気特性」, 日本物理学会秋季大会 大阪府立大学 25aPS-11 (2010年9月25日)

④ 海住英生、近藤憲治、ヌブラバシール、川口敦吉、スザンホワイト、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃: 「Ni/P3HT:PCBM/Ni ナノスケール接合の作製とその評価」, 日本物理学会秋季大会 大阪府立大学 23pPSB-67 (2010年9月23日)

⑤ 近藤憲治、海住英生、石橋晃: 「有機分子を挟んだナノスケール接合素子の理論とそのデバイスの作製」, 日本物理学会秋季大会 大阪府立大学 23pPSB-66 (2010年9月23日)

⑥ H. Kaiju, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Large Thermoelectric Voltage in Ni Nanoscale Junctions", The 29th International Conference on Thermoelectrics, Shanghai, China P2-93 (2010年6月1日)

⑦ H. Kaiju, K. Kondo, N. Basheer, N. Kawaguchi, S. White, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication and current-voltage characteristics of Ni spin quantum cross devices with P3HT/PCBM organic materials", 2010 Material Research Society Spring Meeting, San Francisco, California, J2.7 (2010年4月6日)

⑧ H. Kaiju, K. Kondo, N. Basheer, N. Kawaguchi, S. White, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication and Evaluation of Ni/P3HT:PCBM/Ni Nanoscale Junctions", International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices, Tomakomai, Japan, pp. 113-114, P-32 (2010年3月25日)

⑨ K. Kondo, H. Kaiju and A. Ishibashi: "Theoretical and Experimental Results of a Large Thermoelectric Voltage at Point Contacts of Spin Quantum Cross Structure Devices", 11th Joint MMM-Intermag Conference, Washington DC, FR-10 (2010年1月21日)

⑩ H. Kaiju, N. Basheer, K. Kondo, and A. Ishibashi: "A Study of Ni and Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub> Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates for Spin Quantum Cross Devices", 11th Joint MMM-Intermag Conference, Washington DC, BR-09 (2010年1月19日)

⑪ K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: "A Theoretical Study and Realization of New Spin Quantum Cross Structure Devices using Organic Materials", 2009 Material Research Society Fall Meeting, Boston, Massachusetts E7.1 (2009年12月2日)

⑫ 海住英生、小野明人、川口敦吉、近藤憲治、元鍾漢、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「磁場中及び無磁場中蒸着によるポリエチレンナフタレート有機膜上のニッケル薄膜に関する研究」, 日本物理学会秋季大会 熊本大学 26pPSB-19 (2009年9月26日)

⑬ 近藤憲治、海住英生、石橋晃:「スピン量子十字構造素子の輸送特性の理論的研究とその実験検証」, 日本物理学会秋季大会 熊本大学 25pPSA-21 (2009年9月25日)

⑭ 海住英生、近藤憲治、石橋晃:「トンネルバリアをもつ量子十字素子のトランスポール理論計算」, 日本物理学会秋季大会 熊本大学 25pPSB-11 (2009年9月25日)

⑮ K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi:

"Theoretical and Experimental Results of Electronic Transport of Spin Quantum Cross Structure Devices", International Symposium of Post-Silicon Materials and Devices Research Alliance Project, Ichou Kaikan of Osaka University, Osaka, P-15, p.54 (2009年9月5日)

⑯ H. Kaiju, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Fabrication and current-voltage characteristics of spin quantum cross devices", International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures, Hokkaido University Sousei Conference room, Sapporo, Japan, p. 57 (2009年7月27日)

〔図書〕 (計1件)

① H. Kaiju, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Lithography-Free Nanostructure Fabrication Techniques Utilizing Thin-Film Edges", InTech "Lithography" ISBN 978-953-308-72-7 (2011). [Invited, in press]

〔産業財産権〕

○出願状況 (計3件)

①名称:プローブおよびその製造方法ならびにプローブ顕微鏡ならびに磁気ヘッドおよびその製造方法ならびに磁気記録再生装置  
発明者:石橋 晃、海住英生  
権利者:北海道大学  
種類:特許  
番号:特願 2009-154644  
出願年月日:2009年6月30日  
国内外の別:国内

②名称:Nickel Thin Film, Method for Formation of the Nickel Thin Film, Ferromagnetic Nano-Junction Device, Method for Producing the Ferromagnetic Nano-Junction Device, Thin Metallic Wire, and Method for Formation of the Thin Metallic Wire  
発明者:H. Kaiju, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, A. Ono, and A. Ishibashi  
権利者:北海道大学  
種類:特許  
番号:US-2010-0266868  
出願年月日:2008年8月28日  
国内外の別:国外

③名称:ニッケル薄膜およびその形成方法ならびに強磁性ナノ接合およびその製造方法ならびに金属細線およびその形成方法  
発明者:海住英生、石丸学、弘津禎彦、小野明人、石橋晃  
権利者:北海道大学  
種類:特許  
番号:特願 2009-534258  
出願年月日:2008年8月28日

国内外の別：国内

〔その他〕

○報道

① H. Kajiu, K. Kondo, and A. Ishibashi:  
SPINTRONICS-INFO.COM  
(<http://www.spintronics-info.com/>), “Researchers from Hokkaido University aim to fabricate “Beyond CMOS” switching devices” (2011年3月19日)

② H. Kajiu, K. Kondo, A. Ono, N. Kawaguchi, J. H. Won, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi:  
Nanotechweb,<http://nanotechweb.org/cws/article/lab/41438>, “Thin-film edges crossed to give nanoscale junction” (2010年1月20日)

○ホームページ

<http://qed4.es.hokudai.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

海住 英生 (KAIJU HIDEO)  
北海道大学・電子科学研究所・助教  
研究者番号：70396323

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし