

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360004

研究課題名(和文) ナノスピンの超構造を用いた位相同期型高出力発振・高感度検波素子の創製

研究課題名(英文) Development of high efficiency oscillators and detectors using nano-spin superstructures

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 16,100,000円、(間接経費) 4,830,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、非常に高いQ値を有したまま発振強度がサブミリワット程度となる究極的スピン発振・検波素子を実現することを目指した。そのために、可能な限り構造制御したナノサイズの強磁性ドットの集合体、すなわちナノスピンの超構造の作製を行った。同時に、これらの構造における磁気共鳴に起因したスピントルク発振モデルの構築を行った。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GMR素子の発振現象の測定を行うことにより、これまでになかった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 oscillators and detectors with high Q-values and high efficiency. To realize the purpose, nano-scaled spin-superstructures including ferromagnetic nano-dot arrays were fabricated. The influence of the ac spin current injection on spin torque oscillation has been also investigated within the framework of macro-spin model. Moreover, oscillation spectra were measured for actual nano-scaled GMR devices with large magnetoresistance to develop novel oscillation devices.

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：磁性 スピントロニクス 高周波 発振 検波

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) 素子や TMR (トンネル磁気抵抗) 素子を舞台として、局在スピンの歳差運動を定常的に永続させることにより高周波発振を誘起する研究が進められている。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)、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分野において、高周波の利用が新しい展開を見せている。しかしながら、発振の周波数選択性に大きく影響を及ぼす共鳴線幅が十分に狭くなっていないのに加え、その発振強度は最も大きいものでも未だ 100 ナノワット程度の大きさに留まっている (Deac *et al.*, Nature Physics 2008) のが現状である。これらの性能特性は、ガンダイオードを用いた既存の半導体発振素子の性能には遠く及んでいない。同時に複数の局在スピンを位相同期させることにより、発振強度を高める検証実験も報告されている (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、高強度および高 Q 値 (共振ピークの鋭さを表す値) を実現する手法である。位相同期現象自体は、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。最近になって、位相同期のメカニズムとして強磁性体内に誘起されるスピン波に起因する現象であることが明らかになってきており、スピン波の伝播の過程を直接的に観測した研究例も報告されている (Demidov *et al.*, Nature Materials 2010)。しかしながら、現状では強磁性体発振部位の数として、高々四つの磁気渦構造において位相同期に成功した報告例 (Ruotolo *et al.*, Nature Nanotechnology 2009) がある程度に留まっており、それ以上の複合構造での位相同期発振観察の報告例はない。そのため、位相同期を利用して高出力化を果たした研究例はなく、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

本研究では非常に高い Q 値を有したまま発振強度がサブミリワット程度となる究極的スピン発振・検波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強磁性ドットの集合体、すなわちナノスピン超構造を用いる。理論的には、発振強度は同期素子の数の二乗に比例するため、多数の強磁性ドット間で位相同期を起こすことで飛躍的に発振強度を増大させることが可能となるはずである。ま

た、発振素子の逆現象を利用した検波ロック現象においては周波数選択感度を定めるパラメータとなる Q 値が高い程、高性能な検波素子となる。位相同期を用いると Q 値を高く保持したまま強度を高めることが可能であり、高効率検波素子の実現にも有利に働く。ナノ超構造の作製は、主に自己組織化法を採用する。作製した構造の発振および検波特性を詳細に調べ、素子応用に向けた構造の最適化を図る。同時に、観測される位相同期現象の物理を詳細かつ系統的に調べて素子開発にフィードバックさせることにより、これまでにない究極的なスピン発振・検波素子を完成させることに挑戦する。

3. 研究の方法

ナノサイズの強磁性ドットの集合体の作製は、超高真空分子線エピタキシにより行った。MgO(001)基板を用い、下地層の成膜の後、Fe や Co などの強磁性金属材料を室温で成膜した。作製した試料の構造評価は、反射高速電子線回折法 (RHEED)、原子間力顕微鏡 (AFM)、透過電子顕微鏡 (TEM)、X 線回折 (XRD) などを用いて行った。微細素子の作製は、電子線リソグラフィを用いた微細加工により行った。理論的解析は、マクロスピンモデルに基づいた LLG 方程式をもとにした解析的シミュレーションにより行った。

4. 研究成果

(1) 自己組織化法によるナノスピン超構造の創製条件の探索

可能な限り構造制御したナノサイズの強磁性ドットの集合体、すなわちナノスピン超構造 (図 1) を創製するための作製条件の探索を行った。自己組織化法により強磁性ナノドットを作製し、そのサイズ制御と整列条件を探った。まず、MgO(001)単結晶基板の上に Fe の二次元ドット集合体を分子線エピタキシ法により自己組織的に成長させた。MgO 緩衝層の成膜条件を様々に変えることで、MgO と Fe ドット間の格子歪みを精密に制御することが可能であり、ドットサイズの分散を小さくすることができることが分かった。また、

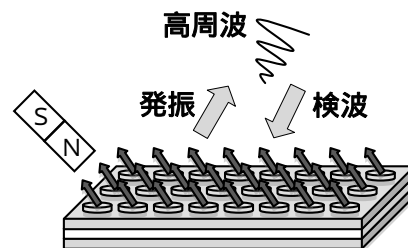


図 1: ナノスピン超構造を用いた発振・検波素子のイメージ図。素子全体が強磁性層/絶縁層/強磁性層のトンネル磁気抵抗素子構造になっている。

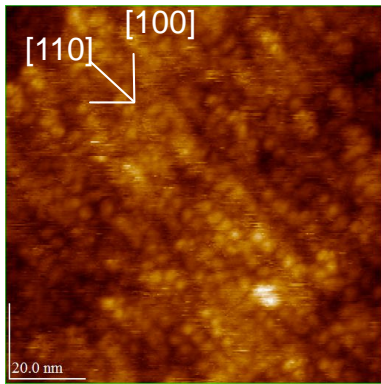


図 2 : MgO 基板上に成膜した Fe ドットの AFM 観察像。

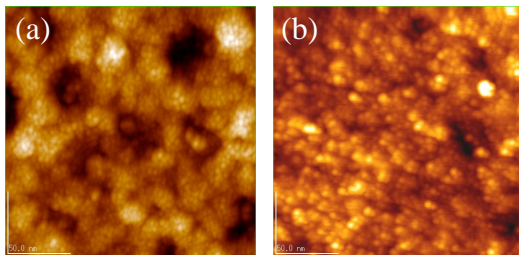


図 3 : MgO 基板上に成膜した (a)Fe ドットおよび (b)Co ドットの AFM 観察像。

Fe 成膜後のアニール温度などの作製条件を最適化することにより、図 2 に示すように Fe ドットを一方方向に整列させることが可能であることが分かった。さらに、MgO 単結晶基板上への Co ナノドット集合体の作製についても、実験的な検証を行った。Co ナノ粒子の構造観察を行ったところ、図 3 に示すように、Co ドットの平均直径は 5 nm 程度であり、同膜厚で作製した Fe ドット (平均直径は 2 nm) と比較してサイズが大きいことが分かった。これは、Co の方が孤立したナノ粒子を形成する可能性が高いことを示しており、ナノスピン超構造を作製する目的には適していると想定された。

続いて、強磁性ドットの形状やドット位置が制御された三次元ナノドット集合体の作製を試みた。Fe あるいは Co のナノ粒子と MgO の交互積層を行い、RHEED で表面構造の解析を行った結果、各層はエピタキシャル成長していることが分かった。金属ナノ粒子が MgO 層に与える周期的な歪みの影響を受け、多数の金属ナノ粒子が膜厚方向に連結した三次元的集合体になっていると考えられる。

このナノドット集合体に微細加工を施して素子化し、縦方向の電流 電圧測定を行うことにより、室温における電気伝導特性を測定した結果、非線形的な伝導現象を観測する

ことができた。残念ながら、発振現象を観測するまでには至らなかったが、これらの知見は、今後の高出力発振素子の実現に資するものである。

(2) GMR ピラーを用いたスピントルク発振の実験的観測

ナノスピン超構造を用いた位相同期型高出力発振・高感度検波素子を創製するための予備的な実験として、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、高出力なスピン自励発振特性を観測することに成功した (図 4; 雑誌論文)。一般にホイスラー合金はスピン偏極率が大きく、強磁性電極にスピン偏極率の高い材料を用いることにより、高出力な発振現象を観測することに成功した。また、発振電流領域と強磁性電極のスピン偏極率との関係が明らかになった。さらに、LLG 方程式をもとにした解析的シミュレーションを行った結果、スピン偏極率の増加にともない、発振出力が増加する傾向が得られ、計算と実験それぞれの発振挙動は良く一致することが明らかになった。

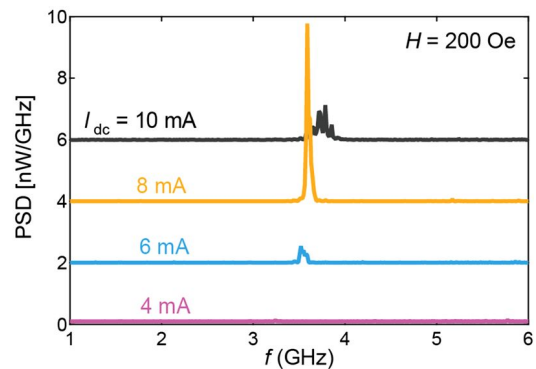


図 4 : GMR ピラー素子における発振スペクトルの注入電流依存性。

(3) 磁気共鳴に起因するスピントルク発振モデルの構築

LLG 方程式に基づいた磁気共鳴に起因するスピントルク発振モデルの構築とその完成を目指した (図 5; 雑誌論文)。その結果、発振に至る臨界電流と発振周波数を独立に制御することが可能なことが分かった。また、実効的なギルバート緩和は、スピン流の一次関数として導出されることが示された。また、スピントルク発振の効率化についての理論的な検討も行った。その結果、マクロスピンモデルに基づく数値計算を実行し、スピン波 (交流のスピン流) を注入した場合に、発振現象を制御するギルバート減衰定数が 0 となる臨界電流の値が、直流の場合と比較して 1/3 程度に低減できる可能性を理論的に示した (図 6)。

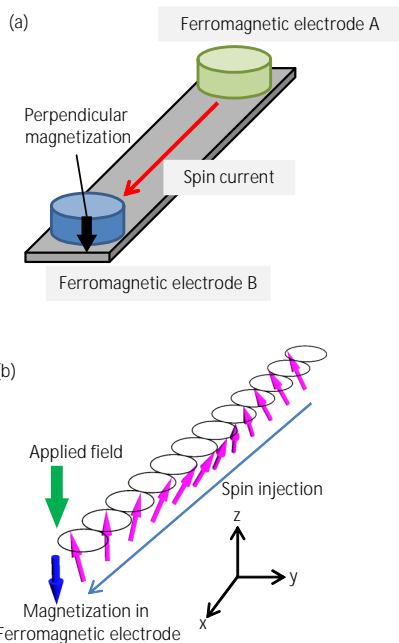


図 5: 磁気共鳴に起因するスピントルク発振モデルの概念図。

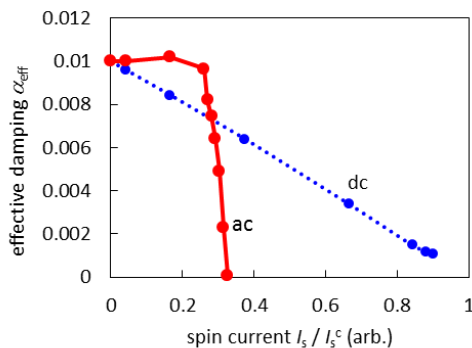


図 6: 有効ギルバート減衰定数のスピン波注入量依存性。

以上、本研究では、ナノスピン超構造を用いた位相同期型高出力発振・高感度検波素子を創製するための、自己組織化法によるナノスピン超構造の創製条件の探索を行った。また、GMR ピラーを用いたスピントルク発振の実験的観測と磁気共鳴に起因するスピントルク発振モデルの構築を行った。当初の研究目的である、非常に高い Q 値を有したまま発振強度がサブミリワット程度となる究極的スピン発振・検波素子を実現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、本研究を進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 4 件)

“Magneto-optical properties and size effect of ferromagnetic metal nanoparticles”, T. Kaihara, M. Mizuguchi, K. Takanashi, and H. Shimizu, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, **52** (2013) 073003-1-6, 107567/JJAP.52.073003

“Relationship between the Microstructure and the Magnetic Properties of Nano-scale Magnetic Particles Formed in a Cu-10 at% Ni-5 at% Co Alloy”, D. H. Lee, T. Moriki, M. Takeda, S. Kang, D. S. Bae, M. Mizuguchi, and K. Takanashi, Journal of the Korean Physical Society, 査読有, **63** (2013) 555-558, 10.3938/jkps.63.555.

“High power radio frequency oscillation by spin transfer torque in a Co₂MnSi layer: Experiment and macrospin simulation”, T. Seki, Y. Sakuraba, R. Okura and K. Takanashi, Journal of Applied Physics, 査読有, **113** (2013) 033907-1-6, 10.1063/1.4776719.

“Simple Analysis for Frequency Increase in Spin Torque Oscillation”, C. Mitsumata, S. Tomita, T. Seki, and M. Mizuguchi, IEEE Transactions on Magnetism, 査読有, **48** (2013) 3955-3957, 10.1109/TMAG.2012.2201700

〔学会発表〕(計 6 件)

C. Mitsumata and M. Mizuguchi, “Reducing critical spin current on spin torque oscillation in perpendicular magnetization system”, International Magnetism Conference, INTERMAG 2014, 2014 年 5 月 8 日, Dresden (Germany).

C. Mitsumata, S. Tomita, T. Seki, and M. Mizuguchi, “Analysis of magnetic resonance in term of linearized Landau-Lifshitz-Gilbert equation for nano-dots induced by spin transfer torque”, International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies (invited), 2012 年 10 月 4 日, Nara (Japan).

C. Mitsumata and S. Tomita, “Frequency control of spin torque oscillation in magnetic metamaterials for microwave generator”, The 6th International Congress on Advanced

Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, 2012 年 9 月 20 日, St. Petersburg (Russia).

貝原輝則、水口将輝、高梨弘毅、清水大雅, “強磁性金属ナノ粒子の磁気光学効果の評価”, 第73回応用物理学会学術合講演会, 2012年9月14日, 松山(日本).

C. Mitsumata, S. Tomita, M. Mizuguchi, and T. Seki, “Simple Analysis for Frequency Enhancement in Spin Transfer Oscillation”, International Magnetism Conference, INTERMAG 2012, 2012年5月10日, Vancouver, (Canada).

三俣千春、富田知志, “メタマテリアルにおける磁気共鳴状態の制御とダンピング定数”, 第35回日本磁気学会学術講演会, 2011年9月29日, 新潟(日本).

6. 研究組織

- (1)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
- (2)研究分担者
関 剛斎 (SEKI TAKESHI)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号: 40579611
- (3)連携研究者
三俣 千春 (MITSUMATA CHIHARU)
独立行政法人物質・材料研究機構・
元素戦略磁性材料研究拠点・企画
マネージャー
研究者番号: 70600542