

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 18 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760001

研究課題名(和文)分子スピントロニクスデバイスにおける交流インピーダンス特性

研究課題名(英文)AC impedance characteristics in molecular spintronics devices

研究代表者

海住 英生 (KAIJU, Hideo)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：70396323

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：近年、分子材料を用いた新たなスピントロニクス研究分野が大きな注目を集めている。本研究課題では、CoとNi₇₅Fe₂₅強磁性体電極間にtris(8-hydroxyquinolato) aluminium (Alq₃)有機分子を挟んだ分子スピントロニクスデバイスを作製し、その交流インピーダンス特性を調べることを目的とした。その結果、低温にて観測したスピン信号は、交流インピーダンス特性(Cole-Coleプロット)により解析した等価回路モデルにより良く説明できることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Recently, a new research field of spintronics utilizing molecular materials has attracted much attention. In this study, we have fabricated molecular spintronics devices, in which tris(8-hydroxyquinolato) aluminium (Alq₃) organic molecules are sandwiched between Co and Ni₇₅Fe₂₅ ferromagnetic electrodes, and investigated their ac impedance characteristics. As a result, the spin signal observed at low temperature can be qualitatively explained by the equivalent circuit model analyzed by Cole-Cole plot obtained from ac impedance characteristics.

研究分野：応用物理

キーワード：スピントロニクス 交流インピーダンス 磁性薄膜 有機分子

1. 研究開始当初の背景

近年、分子材料を用いた新たなスピントロニクス研究分野が大きな注目を集めている。一般に分子材料は炭素や水素などの軽元素で構成されるため、スピン軌道相互作用が小さい。そのため、スピンコヒーレンス長が長くなる。このような観点から、分子材料を用いたスピントロニクスデバイスは新たなスピン輸送素子として期待されている。しかしながら、現在のところ、本デバイスの交流インピーダンス特性に関する報告例は少ない。交流インピーダンス特性の調査は、非破壊状態での分子層内部構造の解明を可能にする他、新規な磁気インピーダンス効果の観測にも展開されることから、本研究課題の推進は極めて重要な意義をもつと位置付けられる。

2. 研究の目的

本研究課題では、Co と $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 強磁性体電極間に tris(8-hydroxyquinolino) aluminium (Alq_3) 有機分子を挟んだ分子スピントロニクスデバイスを作製し、その交流インピーダンス特性を調べることを目的とした。

3. 研究の方法

$\text{Co}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 接合の作製には高真空蒸着法を用いた。各層のパターニングにはメタルマスクを用いた。図 1 に作製したデバイスの構造を示す。Co 上部電極の磁気異方性は膜の面内長手方向に付与した。 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 下部電極の磁気異方性は膜の面内横方向に付与した。Co と $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ の膜厚はそれぞれ 10-40 nm、 Alq_3 の膜厚は 10-100 nm とした。接合部のサイズは $80 \times 80 \mu\text{m}^2$ とした。各層の表面状態観察には原子間力顕微鏡 (AFM) を用いた。 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ と Co の磁化状態評価には集光型磁気光学カー効果 (MOKE)、超伝導量子干渉素子 (SQUID) 磁力計を用いた。作製したデバイスの磁気抵抗 (MR) 効果測定には磁場中直流 4 端子法を用いた。交流インピーダンス測定には交流 4 端子法を用いた。測定周波数帯域は 100 Hz-1 MHz とし、交流電圧信号の振幅は 50 mV とした。

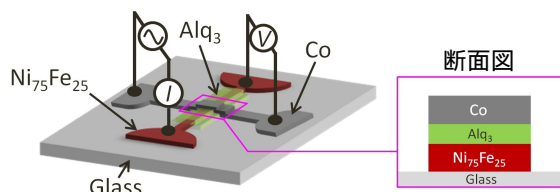


図 1: ガラス基板上に作製した $\text{Co}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ のデバイス構造

4. 研究成果

図 2 にガラス基板上の $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 、 Alq_3 、Co の表面 AFM 像を示す。表面粗さ R_a は、それぞれ、0.71、0.71、0.79 nm であり、平坦な膜が形成されていることがわかる。

図 3 に室温にて MOKE により測定したガラ

ス基板上的 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ (35.3 nm) と Co (38.8 nm) の磁気ヒステリシス曲線を示す。図 3 より $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ の保磁力は 11 Oe、Co の保磁力は 30 Oe となり、典型的な軟磁性を示すことがわかった。図 4 に低温にて SQUID により測定した同材料の磁気ヒステリシス曲線を示す。図 4 より、 $T = 10, 77, 300 \text{ K}$ では、 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ の保磁力はそれぞれ、29、14、10 Oe、Co の保磁力は 77、51、25 Oe となることがわかった。MOKE と SQUID 測定により測定した室温での保磁力は、 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ と Co とともに良い一致を示した。また、温度が低くなるに伴い保磁力が大きくなることがわかった。

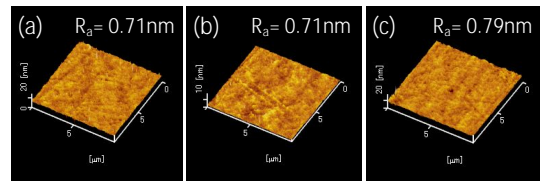


図 2: ガラス基板上の (a) $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 、(b) Alq_3 、(c) Co の表面 AFM 像

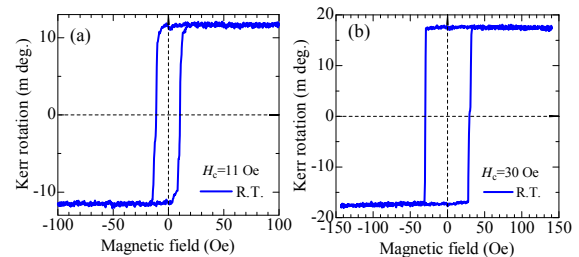


図 3: MOKE により測定したガラス基板上の (a) $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 、(b) Co の磁気ヒステリシス曲線

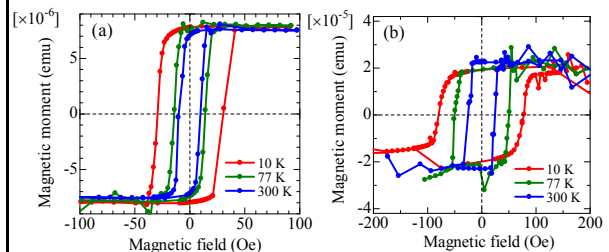


図 4: SQUID により測定したガラス基板上の (a) $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 、(b) Co の磁気ヒステリシス曲線

図 5 に $\text{Co}(26.1 \text{ nm})/\text{Alq}_3(40 \text{ nm})/\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}(18.2 \text{ nm})$ における 77 K での MR 効果を示す。 $\pm 25 \text{ Oe}$ 付近に見られる負の MR 効果は AMR 効果であると考えられる。それに対し、磁場の絶対値が 30-75 Oe では正の MR 効果が見られる。これは SQUID による磁気ヒステリシス曲線との対応から、磁化反転に起因するスピン信号を観測できていると考えられる。すなわち、Co と $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ の磁化方向が平行であるときは抵抗が小さく、反平行のときは抵抗が大きくなる。ただし、そのスピン信号の値は AMR 信号と同程度であり小さい。そこで、その原因を明らかにするため、交流インピーダンス特性を調べた。図 6 に $\text{Co}(21.1 \text{ nm})/\text{Alq}_3(100 \text{ nm})/\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}(26.7 \text{ nm})$ における Cole-Cole プロ

ットを示す。インピーダンス解析を行った結果、Alq₃層は内挿図に示す等価回路で表されることがわかった。RC 並列回路で表される層は Alq₃層で、RL-C 並列回路で表される層は Co と Alq₃層の混相となっていると推察される。これは Co 原子が Alq₃層に潜り込むことを意味している。この潜り込みが原因でスピン信号が小さくなるものと考えられる。このように、交流インピーダンス特性を調査することによって、非破壊状態で分子層内部の構造を明らかにすることができたと同時に、スピン信号増大の設計指針を得ることができた。

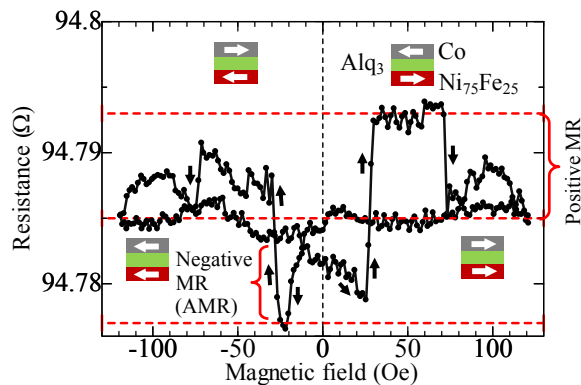


図 5: Co(26.1 nm)/Alq₃(40 nm)/Ni₇₅Fe₂₅(18.2 nm)の MR 効果

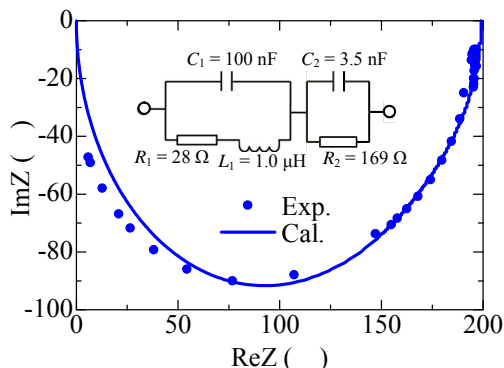


図 6: Co(21.1 nm)/Alq₃(100 nm)/Ni₇₅Fe₂₅(26.7 nm)の Cole-Cole プロット

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 10 件)

H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, S. Mori, T. Misawa, T. Abe, and J. Nishii: “Co Thickness Dependence of Structural and Magnetic Properties in Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields”, J. Appl. Phys. Vol. 117, pp. 17C738-1-17C738-4, 2015, DOI: 10.1063/1.4917061, 査読有.

H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, T. Misawa, and J. Nishii: “Magnetic Properties of Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields”, Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 1708, pp. vv09101-vv09106, 2014, DOI: 10.1557/opl.2014.488, 査読有.

H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi, and K. Yoshimi: “Magnetic properties on the surface of FeAl stripes induced by nanosecond pulsed laser irradiation”, J. Appl. Phys. Vol. 115, pp. 17B901-1-17B901-3, 2014, DOI: 10.1063/1.4862376, 査読有.

H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi, and K. Yoshimi: “Magnetic Properties on FeAl Stripes and Dots Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation”, J. Magn. Soc. Jpn. Vol. 38, pp. 157-161, 2014, DOI: 10.3379/msjmag.1407R001, 査読有.

M. D. Rahaman, H. Kaiju, and A. Ishibashi: “Ultra-high Cleanliness of ISO Class Minus 2 Realized by Clean-Unit System Platform for Integrating the Bottom-up and Top-down Systems”, D. U. Journal of Science Vol. 61, pp. 157-160, 2013, DOI: 10.3329/dujs.v61i2.17063, 査読有.

Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishibashi, and K. Yoshimi: “Nanopatterns induced by pulsed laser irradiation on the surface of an Fe-Al alloy and their magnetic properties”, Appl. Phys. Lett. Vol. 102, pp. 183109-1-183109-4, 2013, DOI: 10.1063/1.4804363, 査読有.

K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: “Focused Magneto-Optic Kerr Effect Spectroscopy in Ni₇₅Fe₂₅ and Fe Ferromagnetic Thin Films on Organic Substrates”, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 52, pp. 013001-1-013001-5, 2013, DOI: 10.7567/JJAP.52.013001, 査読有.

H. Kaiju, T. Abe, K. Kondo, and A. Ishibashi: “Surface Roughness and Magnetic Properties of Co Ferromagnetic Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, J. Vac. Soc. Jpn. Vol. 55, pp. 187-190, 2012, DOI: 10.3131/jvsj2.55.187, 査読有.

H. Kaiju, K. Kondo, N. Basheer, N. Kawaguchi, S. White, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: “Fabrication of Nickel/Organic-Molecule/Nickel Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties”, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 51, pp. 065202-1-065202-8, 2012, DOI: 10.1143/JJAP.51.065202, 査読有.

H. Kaiju, T. Abe, K. Kondo, and A. Ishibashi: “Surface Morphologies and Magnetic Properties of Fe and Co Magnetic Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, J. Appl. Phys. Vol. 111, pp. 07C104-1-07C104-3, 2012, DOI: 10.1063/1.3670609, 査読有.

〔学会発表〕(計 29 件)

三澤貴浩、森澄人、阿部太郎、笠晴也、海住英生、西井準治:「低融点ガラスに挟まれた Co 薄膜の磁気特性評価とスピン注入デバイスへの応用」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 12 日、東海大学(神奈川県・平塚市)

森澄人、三澤貴浩、笠晴也、阿部太郎、海住英生、西井準治:「スピン量子十字デバイス創製に向けた Co と $Ni_{78}Fe_{22}$ 薄膜の磁気特性」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 11 日、東海大学(神奈川県・平塚市)

三澤貴浩、森澄人、阿部太郎、笠晴也、海住英生、西井準治:「Co 薄膜エッジを利用したスピン注入デバイスの創製および特性評価」, 第 50 回応用物理学会北海道支部/第 11 回日本光学会北海道地区合同学術講演会、2015 年 1 月 10 日、旭川勤労者福祉会館(北海道・旭川市)

森澄人、三澤貴浩、笠晴也、阿部太郎、海住英生、西井準治:「スピン量子十字デバイスにおける低融点ガラス上の Co と $Ni_{75}Fe_{25}$ 薄膜の磁気特性」, 第 50 回応用物理学会北海道支部/第 11 回日本光学会北海道地区合同学術講演会、2015 年 1 月 10 日、旭川勤労者福祉会館(北海道・旭川市)

T. Sakashita, Y. Kamaya, H. Kaiju, K. Kondo and A. Ishibashi: “AC impedance characteristics of Co/Alq₃/Ni₇₅Fe₂₅ junctions”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, 2014 年 12 月 16 日, ガトーキングダムサッポロ (北海道・札幌市)

S. Mori, T. Misawa, H. Kasa, T. Abe, H. Kaiju and J. Nishii: “Magnetic properties of Co and Ni₇₅Fe₂₅ thin films on low-melting-point glasses in spin quantum cross devices”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, 2014 年 12 月 16 日, ガトーキングダムサッポロ (北海道・札幌市)

H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, S. Mori, T. Misawa, T. Abe, and J. Nishii, “Structural and Magnetic Properties of Co-based Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields”, The 59th Annual Magnetism and Magnetic Materials Conference, 2014 年 11 月 7 日, Hawaii (USA)

三澤貴浩、森澄人、笠晴也、海住英生、西井準治:「高効率スピン注入デバイスの創

製に向けた低融点ガラス上の Co 薄膜の磁気特性」第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 18 日、北海道大学(北海道・札幌市)

森澄人、三澤貴浩、笠晴也、小峰啓史、阿部太郎、海住英生、西井準治:「漏洩磁場を用いたスピン量子十字デバイスの磁気特性」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 17 日、北海道大学(北海道・札幌市)

坂下友規、釜谷悠介、海住英生、近藤憲治、石橋晃:「Ni₇₅Fe₂₅/Alq₃/Co 接合における交流インピーダンス特性」, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 17 日、北海道大学(北海道・札幌市)

S. Mori, T. Misawa, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, H. Kaiju and J. Nishii: “Spin quantum cross devices utilizing stray magnetic field”, The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science, 2014 年 8 月 1 日, 北海道大学(北海道・札幌市)

H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, T. Misawa, and J. Nishii: “Magnetic properties of spin quantum cross devices utilizing stray magnetic fields”, 2014 Material Research Society Spring Meeting, 2014 年 4 月 24 日, San Francisco (USA)

海住英生、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「磁性薄膜エッジを用いたナノスケール接合デバイス」, 日本磁気学会第 194 回研究会、2014 年 1 月 10 日、中央大学駿河台記念館(東京都・千代田区)【依頼講演】

H. Kaiju, K. Kondo, and A. Ishibashi: “Magnetic Properties of Fe and Co Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, The 14th RIES-Hokudai International Symposium, 2013 年 12 月 11 日, ガトーキングダムサッポロ (北海道・札幌市)

H. Kaiju, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Ni-based Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties", The 2013 Energy, Materials and Nanotechnology Fall Meeting, 2013 年 12 月 7 日, Orlando (USA) 【招待講演】

海住英生、近藤憲治、阿部太郎、石橋晃:「Co/PEN における面内磁気光学カー効果の回転磁場依存性」, 日本物理学会秋季大会、2013 年 9 月 25 日、徳島大学(徳島県、徳島市)

釜谷悠介、海住英生、近藤憲治、石橋晃:「Co/Alq₃/Ni₇₅Fe₂₅ 接合における電気・磁気・

構造特性」, 日本物理学会秋季大会、2013年9月25日、徳島大学(徳島県、徳島市)

近藤憲治、海住英生、石橋晃:「集光型磁気光学 Kerr 効果による Co/PEN の磁気光学定数の決定と表面磁性」, 日本物理学会秋季大会、2013年9月25日、徳島大学(徳島県、徳島市)

海住英生、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「薄膜エッジを利用したナノスケール接合の作製とその電気伝導特性」, 物質・デバイス領域共同研究拠点研究会、2013年7月19日、北海道大学(北海道・札幌市)【依頼講演】

H. Kaiju, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties", Collaborative Conference on Materials Research, 2013年6月26日, Jeju Island (South Korea)【招待講演】

②① H. Kaiju, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Ni-based Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges", 2nd International Congress on Advanced Materials 2013年5月18日, Zhenjiang (China)【招待講演】

②② 海住英生:「薄膜エッジを利用した新たなナノ細線・ナノ接合作製技術」北海道地域4大学1高専新技術説明会、2013年3月19日、JST 東京本部別館ホール(東京都・千代田区)【依頼講演】

②③ H. Kaiju, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Fabrication of Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Current-Voltage Characteristics", The 13th RIES-Hokudai International Symposium Joined with The 1st International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, 2012年12月13日, ガトーキングダムサッポロ (北海道・札幌市)【招待講演】

②④ H. Kaiju, T. Abe, N. Basheer, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Magnetoresistance and Magneto-Optical Kerr Effect in $Ni_{75}Fe_{25}$ Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", The 13th RIES-Hokudai International Symposium Joined with The 1st International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, 2012年12月13日, ガトーキングダムサッポロ (北海道・札幌市)

②⑤ 海住英生、阿部太郎、近藤憲治、石橋晃:「ポリエチレンナフタレート有機膜上の Co、

Fe 強磁性薄膜における磁気特性」, 日本物理学会秋季大会、2012年9月18日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

②⑥ 釜谷悠介、海住英生、近藤憲治、石橋晃:「 $Ni_{75}Fe_{25}/Alq_3/Co$ 接合における電流電圧特性に関する研究」, 日本物理学会秋季大会、2012年9月18日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

②⑦ 近藤憲治、海住英生、石橋晃:「集光型磁気光学 Kerr 効果による有機基板上の強磁性薄膜 ($Ni_{75}Fe_{25}$ ならびに Fe) の表面磁性」, 日本物理学会秋季大会、2012年9月18日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

②⑧ H. Kaiju, T. Abe, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Magnetic Properties of Co Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", The 19th International Conference on Magnetism, 2012年7月13日, Busan (Korea)

②⑨ K. Kondo, H. Kaiju, and A. Ishibashi: "Focused Magneto-Optic Kerr Effect Spectroscopy in $Ni_{75}Fe_{25}$ and Fe Ferromagnetic Thin Films on Organic Substrates", The 19th International Conference on Magnetism, 2012年7月13日, Busan (Korea)

〔図書〕(計2件)

海住英生、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「磁性薄膜エッジを用いたナノスケール接合デバイス」, 日本磁気学会研究会資料, Vol. 194, pp. 13-19 (2014).

H. Kaiju, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Recent advances in magnetic thin films on flexible organic substrates", Transworld Research Network "RECENT RESEARCH DEVELOPMENTS IN APPLIED PHYSICS", Vol. 10, pp. 1-23 (2012).

〔その他〕

ホームページ
<http://nanostructure.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・准教授
研究者番号: 70396323