

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：12201

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760025

研究課題名(和文) ナノトンネル接合における超巨大磁気抵抗効果のメカニズム解明

研究課題名(英文) Mechanism of anomalously large magnetoresistance in nanosized tunnel contacts

研究代表者

佐久間 洋志 (Sakuma, Hiroshi)

宇都宮大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：40375522

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,900,000円、(間接経費) 570,000円

研究成果の概要(和文)：独自のナノプローブ装置を用いて、いくつかの薄膜・ナノ粒子とナノトンネル接合を作り、磁場をかけながら電気抵抗の変化を測定したところ、数万パーセントにも及ぶ非常に大きな抵抗変化(超巨大磁気抵抗効果)を観測した。本研究では、この現象のメカニズム解明を目的として、電場によるナノ構造形成の可能性、新奇スピン依存伝導現象である可能性、装置自体の変形である可能性について検討した。結論には至らなかったものの、プローブ走査による原子移動を示唆する結果が得られた。

研究成果の概要(英文)：We observed anomalously large magnetoresistance in nanosized tunnel contacts formed by a nanoprobe system. In this study, three possible mechanisms for the observed phenomenon were examined: the formation of a nanostructure by a large electric field between probe and thin film, a novel magnetotransport phenomenon, and the deformation of the probe system. An experimental result suggesting that atoms migrate by the scanning of the probe on the thin film was obtained, although it was not conclusive.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：プローブ顕微鏡 トンネル接合 磁気抵抗効果

### 1. 研究開始当初の背景

我々はこれまで、物質のナノスケールにおける電気・磁気的および光学的特性を調べるために、走査トンネル顕微鏡 (STM) をベースとするナノプローバーの開発を進めてきた。このナノプローバーを用いて、様々な薄膜・ナノ粒子とナノトンネル接合を作り、磁場をかけながら電気抵抗の変化を測定したところ、一部の物質において、数万パーセントにも及ぶ非常に大きな抵抗変化 (超巨大磁気抵抗効果) を観測した。

研究開発当初、この現象のメカニズムは明らかではなかったが、以下のようなことがわかってきた。

- ・ 磁気抵抗効果の大きさはトンネル接合を形成するプローブと薄膜 (またはナノ粒子) の物質に依存する。例えば、白金 - イリジウム (Pt-Ir) プローブと金薄膜の場合には大きな磁気抵抗効果が観測されるが、Pt-Ir プローブとアルミニウム薄膜の場合には小さい。
- ・ 発現する場所としない場所がナノスケールで分布している。

本現象は特に非磁性の物質においても観測されるという点で特異である。過去にはバリストック磁気抵抗効果の研究において非磁性物質でも巨大な磁気抵抗効果が観測された例があり、この現象との関連についても興味を持たれた。

### 2. 研究の目的

観測した超巨大磁気抵抗効果を例えばハードディスクの読み取りヘッドに応用する場合、どのような材料で、どのような構造のデバイスを作ればよいのか明らかではない。その指針を得るためにはまず、メカニズムの解明が必要である。そこで本研究では、超巨大磁気抵抗効果のメカニズムを明らかにすることを目的とした。メカニズムの候補として以下の3つを挙げ、これらの可否について調べた。

- (1) プローブと薄膜の間に高い電場が生じることから、プローブまたは薄膜の原子が移動して原子スケールの特異な構造が形成される。このような構造における新しいスピン依存伝導現象 (電流の流れやすさがスピンの向きによって変わる現象)
- (2) 原子の移動はないが、電流パスが約  $1 \text{ nm}^2$  というナノスケールであることによる、新奇なスピン依存伝導現象
- (3) 装置自体が磁歪や静磁気力により歪んで、プローブと薄膜の間の距離が変化する現象

### 3. 研究の方法

- (1) 電場によるナノ構造の形成に関する検討

超巨大磁気抵抗効果を観測した条件は、電界にして  $10^9 \text{ V/m}$ 、電流密度にして  $10^{10} \text{ A/m}^2$

と非常に大きい。これまでの STM の研究から、このような条件においてはプローブと薄膜の間で原子の移動が起こることが知られている。また、空気中の酸素を取り込んで陽極酸化が起こったり、逆に酸化物を電気的に還元した例も報告されている。このような原子の移動により、トンネル接合の形状や化学状態 (酸化状態) が特異なナノ構造となっている可能性がある。

この可能性を調べるために、電場 (電圧) の大きさ、プローブと薄膜の距離を様々に変えて、形状や化学状態の変化を調べた。形状を測定するために、トンネル電流が一定となるようにプローブの高さをフィードバック制御しながら、薄膜面内でスキャンした。また、電流-電圧特性を測定し、それを解析することにより、トンネル障壁の高さ、幅、接合面積といった物理的・化学的状態を独立に求めた。

- (2) 新奇スピン依存伝導現象に関する検討

(1) の可能性が否定されれば、先端がとがったプローブとフラットな薄膜の間に形成されるナノトンネル接合における新しいスピン依存伝導現象である可能性が高い。もしそうであれば、プローブや薄膜の物質を変えることにより、スピン軌道相互作用の大きさ、スピン偏極率、スピン拡散長が変化し磁気抵抗特性が変化するはずである。このような観点から、様々な物質 (常磁性および強磁性物質、金属および半導体) において磁気抵抗測定を行い、超巨大磁気抵抗効果と関連のある特性を見出すことを目指した。

- (3) 装置自体の変形に関する検討

ナノプローバー装置は磁性の弱いステンレス製ではあるものの、磁歪や静磁気力によるナノメートルオーダーの変形はあり得る。そこで、装置を非磁性のアルミニウム、銅、真鍮、チタン等の部品で作り替えた。

### 4. 研究成果

図1は我々が開発したナノプローバー装置の性能を示すものである。試料はアルミニウム薄膜上に鉄ナノ粒子を堆積させたもので、Pt-Ir プローブを用いて形状観察を行った。直径約  $20 \text{ nm}$  の鉄ナノ粒子が明瞭に観察できていることがわかる。

次に、超巨大磁気抵抗効果の3つのメカニ

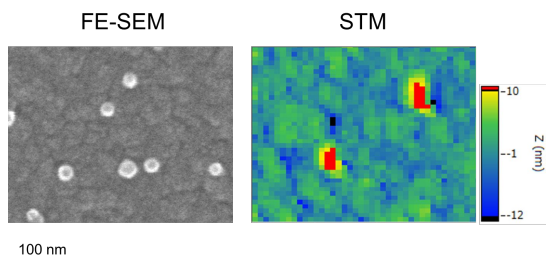


図1 ナノプローバーにより測定した鉄ナノ粒子の STM 像。左は比較のために示した電界放出形走査電子顕微鏡 (FE-SEM) 像。

ズム候補について検討した。

(1) 電場によるナノ構造の形成に関する検討

磁気抵抗効果測定後に形状測定を行ったところ、新たな凹凸は確認されなかったが、現状では計測制度はナノメートルオーダーのため、原子スケールの構造が形成されている可能性は否定できない。今後測定精度を向上させ、この可能性について検討する予定である。

電流 - 電圧特性から試料とプローブ間に形成されるトンネル接合の化学的性質を探った。図 2 の上段は鉄ナノ粒子周辺の 16 点において磁気抵抗効果を測定した結果である。ここで磁気抵抗比として、以下の定義を用いた。

$$MR = \log (I_{H=500 \text{ Oe}} / I_{H=0})$$

つまり、磁場を加えた時の電流の変化を対数で表わしている。2 桁以上の非常に大きな電流変化が観測されている。また、磁気抵抗比の特に大きい場所は鉄ナノ粒子上ではなく、粒子の周辺に多い。

磁気抵抗効果の測定とは別に電流-電圧特性を測定し、トンネル接合の物理・化学的性質を探ることにより、特異なナノ構造が形成されているかどうか調べた。図 2 の 2 段目から 4 段目は各点における電流-電圧特性から求めたトンネル障壁幅、仕事関数、接合面積である。トンネル障壁幅は図の左から右に行くほど大きくなっているが、これはバイアス

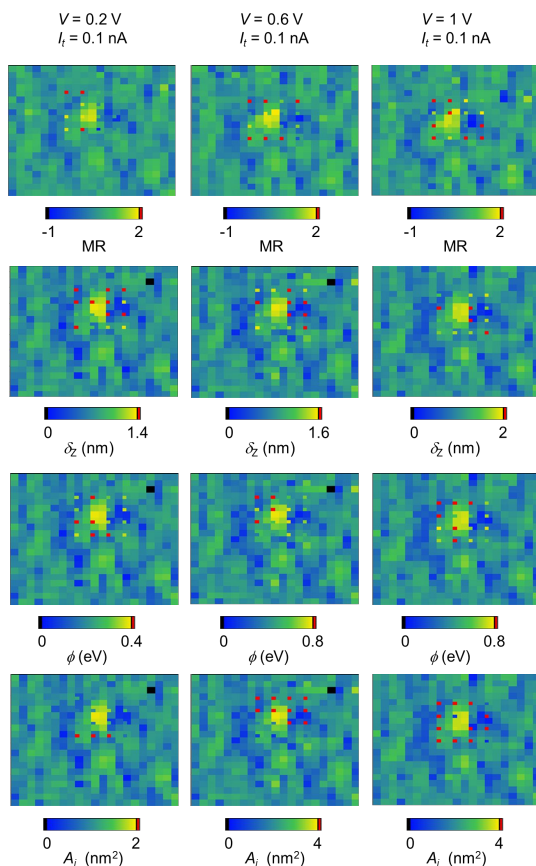


図 2 鉄ナノ粒子周辺の磁気抵抗比  $MR$  (1 段目), トンネル障壁の幅  $\delta_z$  (2 段目), 仕事関数  $\phi$  (3 段目), 接合面積  $A_j$  (4 段目)

電圧を反映したものである。位置による違いは明確には見られない。仕事関数は鉄ナノ粒子上よりもアルミニウム薄膜上で大きい傾向にあり、これは物質の違いを反映したものであると考えられる。なお、仕事関数の大きさは一般的に知られている値よりもかなり小さいが、これは空気中での測定に特有のものである。接合面積はバイアス電圧の増大に伴って大きくなるが、位置による違いは小さいようである。

これらの 3 つのパラメータを磁気抵抗比と比較すると、磁気抵抗比が大きい点では、トンネル障壁幅は小さく、仕事関数は大きく、接合面積とは相関がないようである。しかしながら、研究期間内に実施した実験では測定点が少ないため、確定的な傾向は得られていない。今後、測定とデータ処理の自動化により多数の測定点について分析し、相関を見出したい。

電圧のかかったプローブと薄膜が近づくことによる原子の移動について調べるために、プローブ - 薄膜間の距離と電流の関係を詳細に調べた。図 3 にその結果を示す。プローブ - 薄膜間の距離の変化に応じて、段階的な電流の変化が見られることから、何らかの物理的・化学的な変化が生じている可能性がある。この点についても今後さらに詳細な検討が必要である。

(2) 新奇スピン依存伝導現象に関する検討

スピン軌道相互作用の大きさ、スピン偏極率、スピン拡散長といったパラメータを変更して、磁気抵抗効果への影響を調べるため、各種材料からなる薄膜・ナノ粒子の形成技術を開発した。

本研究で磁気抵抗効果の測定に用いた鉄ナノ粒子は主に球形であったが、粒子の成長条件を調整すると、粒子表面に結晶面が現れることが明らかとなった。このような高品質な粒子表面において磁気抵抗効果がどのようになるのか、今後調べる予定である。

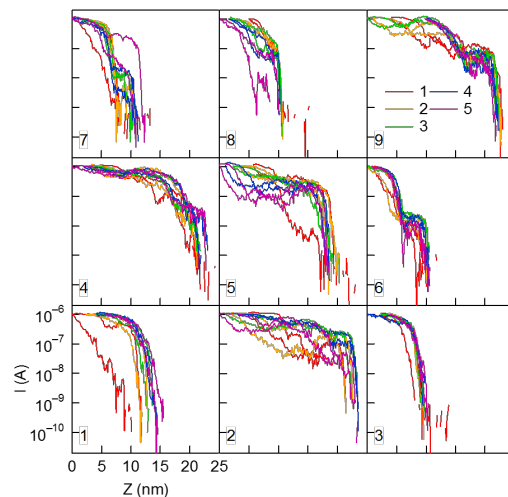


図 3 プローブと薄膜の距離による電流の変化。9 箇所においてそれぞれ 5 回測定した。バイアス電圧は  $0.01 \text{ V}$ 。

その他，以下のような新しいスピントロニクス材料について検討した．鉄 - 白金 (Fe-Pt) 合金は最近，巨大なスピンホール効果が発見されるなど，スピントロニクス分野において注目される物質である．本研究では Fe-Pt 合金の原子配列評価と磁気特性について調べた．マグネタイト ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) はスピン偏極率が非常に大きいと言われている物質である．本研究では，ヒ化ガリウム (GaAs) 単結晶上に一度酸化層を形成することにより， $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{GaAs}$  エピタキシャル接合を形成することに成功した．また，酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ ) や酸化亜鉛 ( $\text{ZnO}$ ) に少量の磁性元素をドーブした酸化物磁性半導体は，電気伝導を担うキャリアが強磁性の発現にも寄与していると言われ，興味深いスピントロニクス材料である．本研究では，これらの材料からなる高品質な薄膜の作製プロセスについて検討した．今後，上に示したナノ粒子や薄膜に対してナノプローブによる磁気抵抗効果測定を行い，材料依存性を調べる予定である．

### (3) 装置自体の変形に関する検討

磁場印加によるナノプローブ装置自体の変形があるかどうかについて検討するために，従来ステンレス製であった装置本体をアルミニウムや真鍮，チタン等の非磁性金属製に変更した．新たに製作したナノプローブ装置の写真を図 4 に示す．新しい装置による磁気抵抗効果の測定は研究期間内には実施することができなかった．今後，前装置における超巨大磁気抵抗効果の観測条件と同じ条件にて測定を行い，同様の現象が発現するかどうか調べる予定である．

## 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)

H. Sakuma, S. Sakamoto, A. Naoi, Y. Saito, and K. Ishii, Growth of Fe cubical particles on substrates during gas flow sputtering, Journal of Vacuum Science and Technology A, 査読有, Vol.30, No.6, 2012, pp.061604/1-6

DOI: 10.1116/1.4764933

H. Sakuma, Y. Shidara, Y. Kagi, R.

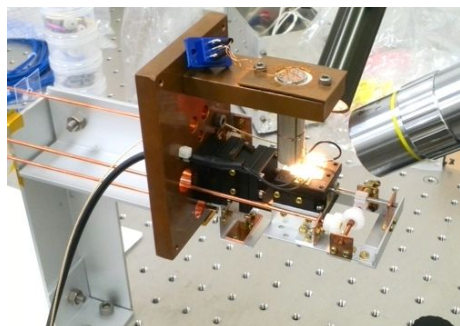


図 4 非磁性化したナノプローブ装置

Suzuki, and K. Ishii, Formation of  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{GaAs}$  heterostructure via surface oxidation of GaAs substrate, Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 査読有, 掲載決定

佐久間洋志, 高橋 新 杉山友希, 石井 清, ガスフロースパッタ法により堆積した Co ドープ  $\text{TiO}_2$  薄膜の磁気特性と磁気光学特性, 電気学会マグネティックス研究会資料, 査読無, MAG-12-063, 2012, pp.33-36

<https://ieej.ixsq.nii.ac.jp/ej/>

佐久間洋志, 佐藤芳樹, 石井 清, MgO 上の Fe-Pt 薄膜の結晶構造と配向の解析, 電気学会マグネティックス研究会資料, 査読無, MAG-12-073, 2012, pp.15-18

<https://ieej.ixsq.nii.ac.jp/ej/>

### [学会発表] (計 7 件)

H. Sakuma, Y. Sato, and K. Ishii, Structural and magnetic analyses of  $\text{FePt}_3/\text{FePt}$  composite films, The 2nd International Conference of the Asia Union of Magnetism Societies, 2012 年 10 月 2 日, 奈良県新公会堂

乳井浩平, 岩間三典, 佐久間洋志, 石井 清, 磁性ナノプローブによるスピン流の観測, 第 3 回電気学会東京支部栃木・群馬支所合同研究発表会, 2013 年 3 月 1 日, 宇都宮大学

H. Sakuma, Y. Sato, and K. Ishii, Evaluation of Degrees of Crystal Orientation and Atomic Ordering in Epitaxial  $\text{L}_{10}$  Type Ordered Alloy Thin Films, the 11th International Conference on Ferrites, Apr. 16, 2013, Okinawa Convention Center

H. Sakuma, K. Matsumoto, A. Naoi, S. Sakamoto, Y. Saito, and K. Ishii, Growth of Faceted Fine Particles by Gas Flow Sputtering, Collaborative Conference on 3D & Materials Research 2013, Jun. 26, 2013, Ramada Jeju, Korea

宮本孝佑, 佐久間洋志, 石井 清, グラニューラ薄膜のマトリクスにおけるスピンスローダイナミクスに関する研究, 第 23 回日本 MRS 年次大会 2013 年 12 月 10 日, 横浜情報文化センター

K. Nagamoto, T. Hara, S. Naganawa, T. Kondo, H. Sakuma, and K. Ishii, Properties of Transparent Conductive Ga-doped Zinc Oxide Films Deposited on Ultra High Gas Barrier Plastic Substrate for Flexible Devices, 8th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology, Dec. 2013, National Chiao Tung University, Taiwan

渡邊浩平, 岩間三典, 佐久間洋志, 石井 清, ナノプローブ電圧測定による金属/半導体の検出, 第 4 回電気学会東京支部栃木・

群馬支所合同研究発表会，2014 年 3 月 4  
日，群馬大学

〔その他〕

ホームページ等

<http://sakuhiro.way-nifty.com/>

<http://www.ee.utsunomiya-u.ac.jp/~ishii/>

/

6．研究組織

(1)研究代表者

佐久間 洋志 (SAKUMA, Hiroshi)

宇都宮大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：4 0 3 7 5 5 2 2