

「革新的次世代デバイスを目指す材料とプロセス」研究領域 領域活動・評価報告書

－平成22年度終了研究課題－

研究総括 佐藤 勝昭

1. 研究領域の概要

この研究領域は、文部科学省平成19年度戦略目標「新原理・新機能・新構造デバイス実現のための材料開拓とナノプロセス開発」に基づき設定された領域である。この戦略目標の趣旨は、CMOS に代表されるシリコンデバイスが、限界を迎えつつある状況下で、beyond-CMOS のパラダイムシフトをとまなうような画期的な次世代デバイスを開発しようとするものである。しかし、さきがけ研究が3年半という短い期間に研究経験の少ない若手の研究者が取り組む研究であるという状況を踏まえ、領域名は「次世代デバイスそのもの」ではなく、次世代デバイスを目指す「材料とプロセス」とし、環境やエネルギー消費に配慮しつつ高速・大容量かつ高度な情報処理・情報蓄積・情報伝達を可能とする新しい材料の開拓およびプロセスの開発を図る挑戦的な研究を対象とした。

募集に当たっては、具体的な材料として、高移動度ワイドギャップ半導体材料、スピントロニクス材料、高温超伝導体を含む強相関係材料、量子ドット材料、ナノカーボン材料、有機半導体材料などを例示するとともに、これらに限らず将来のデバイス化を見据えた新しい材料または構造及びプロセスの開拓に向けた独創的な研究を歓迎することを明確にした。出口となる次世代デバイスのイメージとしては、電荷輸送を制御する従来型のデバイスに加え、スピン、軌道状態、準粒子、ボルクス、光位相などのさまざまな物理量、あるいは、それらの複合体の制御・輸送・蓄積を行うデバイスをイメージした。このため、太陽電池などのエネルギーデバイスは対象から除外した。

第1期生の応募および採択結果は、研究総括の研究分野であるスピントロニクスにかたよったが、2年目からの募集を通じて、前記の材料分野をほぼカバーすることができた。

2. 研究課題・研究者名

別紙1に示す一覧表参照

3. 選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

- 1) 選考は「革新的次世代デバイスを目指す材料とプロセス」領域に設けた選考委員 11 名と研究総括で行う。
- 2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。
- 3) 将来の産業化を見据えた提案であるかどうかを重視する。現行の技術水準をもってしては実用化が困難なデバイスを目指してはいるが、将来のイノベーションを見越して産業化が可能な提案であるかどうか。
- 4) 単なる材料・プロセスではなく、材料のどのような機能を活かして次世代デバイスの実現を目指すのかという出口イメージを明確にした提案であるか。

4. 選考の経緯

一課題につき3名の評価者をアサインして書類審査をおこなった。評価者としては領域アドバイザー11 名に加え、専門性や利益相反の観点から時には外部評価者 6 名に入ってもらった。書類審査結果に基づき書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。書類選考では、評価者の平均点によらず、1つでも A 判定があるものを重視することにより、リスクがあるが挑戦的な提案を拾い上げる努力を行った。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補者を選定した。面接選考に当たっては、単純な合議制をとらず、最終判断を研究総括の責任で行う形をとった。ダイバーシティへの配慮も十分におこなったが、女性研究者の応募が1桁にとどまり、1名しか採択することができなかった。

内容的には、11 課題中7課題までが何らかの形でスピントロニクスに関係するもの(誘電体スピントロニクス、分子スピントロニクス、金属間化合物スピントロニクス、超短パルス光スピントロニクス、チューナブルスピントロニクス、ナノ磁性体メタマテリアル、熱スピントロニクス)で、残る4課題は、ナノカーボン、有機半導体、縦型半導体デバイス、確率共鳴エレクトロニクスであった。スピントロニクス関係が多くなったのは、この分野の優れた応募が多かったため、研究総括の主たる研究分野を見ての応募であったのではないかと推察される。

選考	書類選考	面接選考	採用者
対象者数	108 名	25 名	11 名

5. 研究実施期間

平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月(10 名)

※ 高橋有紀子研究者は、ライフイベントのため研究期間が延長され、平成 23 年 6 月に終了の予定。

6. 領域の活動状況

(1) サイトビジット

研究開始直後に所属する研究機関へ研究総括、技術参事、および事務参事が訪問(サイトビジット)し、今後の研究の進め方についてアドバイスをするとともに、上司の先生にさきがけ研究遂行における研究環境の確保について説明し、ご理解と協力をいただいた。

研究総括(または技術参事)の研究実施場所訪問(別紙2参照)

研究開始時: 11 回(高橋研究者を含む)

異動、昇任時: 5 回

最終年度訪問: 8 回(高橋研究者を含む)

その他: 2 回

(2) 領域会議

領域会議を 7 回開催した。(別紙3参照)

領域会議においては、アドバイザーによる特別講演を企画し、研究分野が異なっても興味を持ち活発な意見交換ができるように試みた。さらに、他領域との交流も進め、合同領域会議 1 回、他領域の研究者招待 4 回、他領域への研究者参加 3 回を行い、研究遂行において広く情報交換できる場をつくった。領域会議での発表の様子はビデオ撮影し、研究者にフィードバックすることによって、発表のわかりやすさ、質疑内容を自己チェックできるよう配慮した。毎回の領域会議のはじめに総括が、さきがけ研究の意味、領域の概要や JST の置かれている状況などを述べ、さきがけが単なるファンディングとの違うことを研究者に徹底させた。会議の最後には、総括のまとめを行い、進展のあった研究を取り上げてエンカレッジした。

(3) ミニワークショップ

ミニワークショップを 5 回開催した。(別紙3参照)

領域会議では 1 発表あたり 25 分しかなく、討論の時間が十分に取れないという不満が研究者にあった。そこで、研究総括のイニシアティブで、重要な話題については、十分な時間をとって議論するミニワークショップを開催した。テーマ、発表者は、研究者からの自主的な提案によって決めた。ミニワークショップの場所は、主として JST 三番町 1F 会議室でおこなった。研究者からの 1 時間の話題提供に対しアドバイザー、研究者数名と 1 時間程度の議論を行って、研究の進め方等についてのアドバイスを行った。

(4) 四半期報

研究総括の提案により、義務づけられている半期報に加え、4 半期報の提出をしてもらうようにした。これによって、総括は研究状況を常に把握し、進捗状況を見ながら必要に応じたサポートをおこなった。

(5) 賞の推薦

研究総括宛にくる賞の推薦依頼にはできるだけ応じるよう努力し、総括判断で各賞に適切な研究者を選んで推薦文を書いた。

(6) ホームページ

領域のホームページに情報発信のためのページ(ニュースレターのページ)を設け、広い情報発信に心がけた。また研究総括が独自に研究総括のページを設けて、活動状況の発信に努めた。

(7) 終了年度サイトビジット

終了年度になる平成 22 年度になって、研究のとりまとめのための打ち合わせ、およびアドバイスのため所属する研究機関を訪問して、個々の研究について議論を行う場をつくった。

(8) 共同研究、アウトリーチ

研究の可能性を広げるため、研究総括は共同研究などの推奨を行った。さらに、研究総括が研究会等で領域の紹介等を行い、広く広報活動に努めた。プレスリリース、JST ニュース、JST 動画サイト(サイエンスニュース)などの場を通じて、研究成果のアウトリーチにつとめた。

(9) 知的所有権

バイドール法によって特許申請は原則として研究者の所属機関で行うべきものであるが、昨今の大学の財政状況は、維持経費不足から特許取得に十分な支援が得られないケースが多い。このため、いくつかの場

合において、技術参事が間に立って、JSTにおいて特許出願するためのサポートを行った。

(10) 研究成果報告会

成果を広く関連する大学・産業界の研究者に知ってもらうため、成果報告会を応用物理学会学術講演会（長崎大学）のシンポジウムとして行うことを研究総括が提案し、葛西研究者が企画者として名乗りをあげ、1期生が相談してプログラムを作成、応用物理学会に提案した。開催に当たっては、技術参事、事務参事が事前に会場を下見し、万全の準備を整えた。当日会場は終始立ち見ができる程盛況となり、大きな反響を呼んだ。なお、成果報告会チラシは、研究総括が原稿の電子データを作成し Web 入稿することで経費節約につとめた。（研究成果報告会プログラムは別紙4参照）

7. 評価の手続き

平成 22 年度開始早々に、各研究者の研究実施機関を訪問し、研究進捗の現状および今後の研究期間中の進め方について、討論を行い現状を把握した。一般公開である研究報告会は 9 月に応用物理学会のシンポジウムとして開催し、アドバイザーを含めた一般の研究者からの意見等を総合的に判断し、評価した。

非定期的に行っている非公開のミニワークショップを平成 22 年度は 5 月と 12 月に開催し、少人数による研究状況および今後の展開についての議論を行い、評価を行った。

研究者から事前に提出された研究報告書をもとに、これまでの研究報告会、ミニワークショップ等を総合的に判断し、評価項目について、全アドバイザーに評価、およびコメントを提出してもらい、これを参考にして、最終的な評価を研究総括が行った。

（評価の流れ）

平成 22 年 4 月	最終年度の研究実施機関訪問にて、研究の進捗状況等を把握
平成 22 年 9 月	研究報告会開催
平成 23 年 2 月	アドバイザーによる個別評価
平成 23 年 3 月	研究期間終了
平成 23 年 3 月	研究報告書提出
平成 23 年 3 月	研究総括による評価

8. 評価項目

- (1) 研究計画書に記載した初期目標が達成されたか
- (2) 戦略目標に資する成果が得られたか
- (3) 研究成果に優れた点が認められるか
- (4) 今後の研究継続における課題状況
- (5) 終了後の研究に対する期待
- (6) 外部発表、特許出願、プレスリリースなど研究成果の発信状況
- (7) 受賞、招待講演、昇進など外部からの評価状況

9. 研究結果

研究成果はスピントロニクスを中心にナノカーボン、有機などの分野において、革新的次世代デバイスの実現に資する結果が得られた。招待講演は80件を越え、すべての研究者が何らかの賞を受賞していることから、社会的評価が大きかったと言える。以下に、個々の研究者の結果を示す。

○葛西誠也

葛西研究者の提案は、通常のエレクトロニクスでは嫌われ者である「雑音」やデバイス特性の「ゆらぎ」を逆手にとり、「確率共鳴」によって雑音や揺らぎを利用して、エレクトロニクスデバイスの機能向上を図ろうというものである。それまで「確率共鳴」現象は生体機能性との関係でよく知られていたが、実証実験はほとんどなかった。葛西研究者は、この仮説を、ナノエレクトロニクスを用いて実証するため、半導体ナノワイヤネットワークを電氣的に制御する技術を駆使し、実際にノイズを加えて応答性がよくなることを半導体チップ上で実証した。さらに、特筆すべきは本質的にノイズやばらつきの影響を受けやすい「単電子デバイス」において、確率共鳴を用いて室温動作を目指す研究を行ったことで、通常1ビットあたり10000電子以上が必要であるデバイスで、並列化によっても100電子程度に抑えられることを見だし、超消費電力化への道筋を拓いた。

本さきがけ研究での成果がきっかけとなって、確率共鳴の研究コミュニティが国際的にできつつあり、今後の発展が大いに期待できる。

○齊藤英治

齊藤研究者は、応募前すでに逆スピンホール効果によって金属に注入されたスピンの流れを電気信号としてとりだすことに成功していたが、本領域に応募するに当たって、あえて金属でなく「誘電体」においてスピンの流れを伝搬させるという困難な課題を選んだ。彼は、①スピンホール効果により電流をスピン流に転換→②スピントルク効果で金属から誘電体にスピン波を転送→③スピン波スピン流を誘電体に沿って伝搬→④スピンポンピングによって金属にスピン波を励起→⑤逆スピンホール効果で電圧として取り出す、というストーリーを立て、②、③、④を順次実証し、最終的にこれらを総合して、世界で初めて「スピン流を使って誘電体に電気を流す」ことに成功した。彼は、さらに誘電体において、熱流をスピン流に変えて逆スピンホール効果で電圧に変換するスピンゼーベック効果を実証したが、この成果は企業からも注目されている。

このように、齊藤研究者は、本さがけ研究を通じて、スピン流の学理と応用において世界をリードする立場を確固たるものにした。彼の仕事に対する社会の評価は高く、サー・マーチンウッド賞、学士院研究奨励賞はじめ、多数の賞を受賞したほか、22年度にはCRESTにも採択され、スピン流の研究をさらに発展させており、スピン流イノベーションの推進役として活躍が期待される。

○白石誠司

白石研究者は、炭素でできたグラフェンにスピンを流すという非常に挑戦的な課題に挑んだ。彼は、多層グラフェンにおいて4端子非局所法を使った地道で慎重な実験によって、世界で初めて信頼性のある純スピン流の注入と、それによる巨大磁気抵抗効果を室温で検証した。さらに単層グラフェンでも純スピン流の注入に成功し、ゲート電圧によってスピン注入電流が制御できるというスピントランジスタ動作にも成功した。スピン拡散長が予想されるより、かなり短いという謎は期間中に解明には至らなかったが、所期の成果は十分得られたと評価したい。

彼は、さらに分子にスピン流を流す研究に挑戦をつづけているが、なかなか実現の道のりは遠い。その代わり、副産物として、フラーレン・コバルト微粒子ナノコンポジット材料で、低温ながら磁気スイッチング現象と140万%におよぶ巨大磁気抵抗効果を発見し、応用への貢献が期待されている。世界の分子スピントロニクス先導者として、この分野を引っ張ってってくれる存在になると大いに期待している。

○谷山智康

スピンを利用したエレクトロニクスであるスピントロニクスの分野においては、スピンを材料に注入するが、これまでスピン偏極度を自由に制御することはできなかった。谷山研究者はチューナブルスピン源という困難な課題を独創的な方法で実現した。

具体的には、反強磁性-強磁性の磁気相転移を示す物質を使って、相転移点付近で電流注入により磁気相転移を誘起しようとするもので、鉄ロジウム合金上にコバルトの細線を載せた微細構造において電流注入による反強磁性-強磁性相変化を実現することに成功した。また、金電極/マグネタイト/半導体量子井戸というヘテロ構造において、温度によるマグネタイトの金属・絶縁体転移を使ってスピン注入を制御する試みを行い、金属相では10%程度だったスピン偏極度が低温絶縁相(5K)では44%にも達することを見いだした。さらに、鉄/半導体量子井戸において、円偏光励起光電流の円偏光依存性が電圧で大きく変化することを通じて、磁性体/半導体接合界面での電子伝導のスピン依存性が電圧により制御可能であることを実証した。

原理的・基礎的研究成果ではあるが、重要な成果であり今後期待したい。

○塚本新

回転していない独楽が倒れやすいように、角運動量のないときに磁化が高速で反転しやすいという発想を基礎に、光による超高速な磁化反転を実現した。この角運動量補償点を利用する方法は、新しいデバイス構築への挑戦的な研究と言える。具体的には以下の成果を得た。

(1)フェリ磁性体補償点利用スピン動特性制御、(2)極短時間加熱利用超高速スピン制御、(3)光-スピン直接制御による非熱利用超高速磁化反転の3課題に取り組み、いずれも所期の成果を得ただけでなく、高速磁化反転時の磁気モーメントの挙動では当初予想を超える興味深い結果を得た。とくに、超短パルス光照射によってピコ秒オーダーの超高速プリセッションルスイッチングができることを実証したことは、2Tbit/in²を超える超高密度磁気記録のキーテクノロジーである光アシスト磁気記録のひとつの方向性を与えたものと評価でき、今後、日本における超高速磁気記録技術を先導する存在になるものと期待している。

○深田直樹

次世代デバイスとして高集積化可能な縦型構造を有するサラウンディングゲートトランジスタ(SGT)実現に向けたナノワイヤ成長制御技術、および機能発現のためのドーピングや評価手法の確立を進めてきた。

具体的には、ナノワイヤの直径制御に成功したほか、p型、n型のドーピングに成功し、さらに、ドーピングしたナノワイヤ中の不純物の濃度がどれくらいあるか、それらは活性化(キャリアを供給しているか)の評価を行った。電子スピン共鳴分光とラマン分光によって、シリコンおよびゲルマニウムのナノワイヤにドーピングされた微量のホウ素およびリンの濃度や活性化を定量的に判定する技術を確立した。バルクにおいても研究例がないゲ

ルマニウムにおいては不純物評価技術を確立したことは、特筆すべきことである。さらに、不純物散乱を抑制できるコアシェル構造のナノワイヤにおいて、コアとシェルのそれぞれにおける評価にまで成功した。

半導体ナノワイヤ技術は、今後、集積回路だけでなく、超高効率太陽電池用途としても大変期待されている材料でもある。深田研究者がこの分野のリーダーとして、この世界を先導することを期待する。

○村上修一

熱流とスピン流という、これまで別々に論じられてきた流れの関係を明らかにし、2つの物理を統合することで、熱電変換材料、スピントロニクス双方の分野での物性理解を深め、新規な物性を開拓するという提案で研究を進めた。

この目的のため、バルク自体は絶縁体であるが試料のエッジや表面が金属的でスピン流を運ぶ「トポロジカル絶縁体」に着目し、その熱電輸送を理論的に論じた。研究の結果、エッジ状態を用いると、ナノメートル程度の細いリボン状の系において低温で熱電輸送に優勢に働くことが明らかになった。

また、領域会議における齊藤研究者とのディスカッションを通じて、絶縁体中のスピン波スピン流の熱輸送に着目し、先行理論の欠陥を発見しこれを補完する新しい理論を打ち立てた。これにより、マグノンの波束は、自転運動と、試料の外縁に沿って回る運動との2種の運動を両方同時に行うことが明らかにされた。強磁性体ではマグノンの波束の運動が熱ホール効果として観測することができるという提案も行った。

○安田剛

有機膜を引き延ばすことで配向をそろえ、主鎖分子内の高速キャリア移動を向上させ高性能有機FETを実現する研究を進めた。

ポリプロピレン基板にスピコートした溶剤可溶性ポリアニリンを引っ張り機で基板ごと最大15倍まで延伸し、導電率を1000倍にも高めることに成功した。延伸膜の導電率の温度変化を測定すると、すべて3次元のホッピングで説明でき、当初期待した1次元のバンド伝導にはなっていなかった。次に、延伸配向法に適した高分子を探索し、結晶(rr-P3HT)、液晶(PFO)、アモルファス(MEH-PPV)薄膜いずれにおいても一部の例外を除き、延伸による配向が起きることを、変更吸収の線二色性から確認した。結晶性のrr-P3HTという高分子を延伸した薄膜について、トップゲート型の電界効果トランジスタを作製し、ホールの移動度に明確な異方性を見いだした。

結晶、液晶、アモルファス性薄膜いずれをも高度に配向させる手法は無く、延伸法が配向薄膜作製法として極めて優れていることを証明した。有機物の電気的特性測定技術を確立したという点でも、日本におけるこの分野のリーダーの1人になってくれると期待される。

○山口明啓

山口研究者の当初の提案は、磁性体ナノワイヤの集積構造を用いて、従来型の金属スプリット・リング共振器によらない左手系のメタマテリアルを実現しようというものである。彼は、この実現のためには、要素となる技術として、ナノ磁性体における高周波応答を明確にする必要があると考え、(1)ナノ磁性体のマイクロ波整流特性の物理機構の解明、(2)ナノ磁性体の強磁性共鳴状態での基本的な電磁波応答特性の解明、(3)結晶性の違いによる磁化過程の解明に取り組み、それぞれについて、分厚い研究成果を得ることができた。注目すべきは、微細円盤における磁気渦のカイラリティとポラリティの4つの組み合わせを共鳴スペクトルを使って電氣的に明確に分離して検出することに成功したことで、さらに共鳴スペクトルの形状が磁壁を生成・消滅させる度に、微妙に異なったパターンを出力することを明らかにし、磁気指紋と呼び話題を集めた。

さらに、副次的ではあるが、層間結合相互作用の空間変調構造において見られるステップ状の磁化反転の非対称性を見だし、この磁化反転機構を量子井戸ポテンシャルエネルギーの空間微分によることとして、大きな反響を呼んだ。空間勾配を有する量子井戸制御を行なうことにより、機能性素子への応用が期待できる。

○若林克法

ナノグラフェンの電子状態を明確にして、ナノグラフェンの電子物性を積極的に利用した電子デバイスの構築に貢献しようというものである。

グラフェンのナノ構造ではエッジの割合が大きく、エッジの形状が特性に大きく影響する。ジグザグ端があると、エッジ状態がフェルミ準位近傍に形成され、ほとんど分散のない平坦なバンドが現れる。エッジ状態は、伝導そのものには関与しないが、エッジ状態に起因するサブバンドに由来する、通常の量子細線とは本質に異なった電子構造をもち、常に一つのチャンネルが完全に伝導することを示した。また、アームチェア型のエッジを有するナノリボンでも、低エネルギー領域で、不純物散乱がほとんど電子輸送に影響を与えない特異な性質を有するを見いだした。任意のエッジ形状での伝導特性についても解析を行い、グラフェン結晶軸と伝導度の相関を数値的に明らかにした。接合系に対して数値解析を行ったところ、結晶軸がジグザグ方向に近くなると、完全伝導チャンネルのために、電気伝導は金属的になる一方、アームチェア方向に近づくにつれて、絶縁化していくことも示した。また、カイラルナノリボンにおいても、完全伝導チャンネルが現れることを明らか

かにした。

エッジの存在とその形状が、グラフェンの電子物性にどのように影響するかを具体的に明らかにしたことは大いに評価できる。さきがけで培われたネットワークを通じて実験研究との連携が進むものと期待する。

10. 評価者

研究総括 佐藤勝昭 東京農工大学 名誉教授

領域アドバイザー氏名(五十音順)

栗野 祐二 慶応義塾大学 理工学部 教授
 岡本 博 東京大学 大学院新領域創成科学研究科 教授
 小田 俊理 東京工業大学 量子ナノエレクトロニクス研究センター 教授
 工藤 一浩 千葉大学 大学院工学研究科 教授
 五明 明子 日本電気(株)人事部 キャリアアドバイザー
 小森 和弘 産業技術総合研究所 光技術研究部門 副研究部門長
 高梨 弘毅 東北大学 金属材料研究所 教授
 谷垣 勝己 東北大学 大学院理学研究科 教授
 名西 憶之 立命館大学 理工学部 教授
 波多野 睦子 東京工業大学 大学院理工学研究科 教授
 藤巻 朗 名古屋大学 大学院工学研究科 教授

外部評価者(五十音順、所属・役職は選考時点のもの)

阿部 正紀 東京工業大学 大学院理工学研究科 教授
 猪俣 浩一郎 物質・材料研究機構 フェロー
 笠原 二郎 ソニー株式会社 マテリアル研究所 統括部長
 鈴木 義茂 大阪大学 大学院基礎工学研究科 教授
 萩谷 昌己 東京大学 大学院情報理工学系研究科 教授
 藤田 恭久 島根大学 総合理工学部 准教授

(参考)

(1) 外部発表件数

	国内	国際	計
論文	8	154	162
口頭	243	210	453
その他	29	1	30
合計	280	365	645

※平成 23 年 3 月現在

(2) 特許出願件数

国内	国際	計
12	1	13

(3) 受賞等

- ・葛西 誠也
国際学会「MNC2007 Award for Outstanding Paper」(H20.10)
- ・齊藤 英治
丸文研究奨励賞(丸文研究交流財団)(H20.3)
第11回サーマーティンウッド賞(H20.11)
IUPAP Young Scientist Award (International Union of Pure and Applied Physics)(H21.7)
第7回学術振興会賞(H22.2)
第7回日本学士院学術奨励賞(H22.2)
日本物理学会若手奨励賞(H22.3)
- ・白石 誠司
応用物理学会論文賞(H19.10)
- ・谷山 智康

- 平成19年度東工大挑戦的研究賞(H19.10)
- ・塚本 新
 - Best poster Awards(MORIS2009)(H21.6)
- ・深田 直樹
 - Best Poster Award (MRS)(H20.12)
- ・村上 修一
 - 平成20年度東工大挑戦的研究賞(H20.10)
 - 丸文研究奨励賞(丸文研究交流財団)(H22.2)
 - 第31回本多記念学術奨励賞(H22.2)
 - 平成22年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞(H22.4)
 - 第12回サーマーティンウッド賞(H22.10)
- ・安田 剛
 - ナノ学会若手優秀発表賞(H20.5)
 - Poster Award(第9回 Chitose International Forum on Photonics) (H20.10)
 - 第19回日本 MRS 学術シンポジウム奨励賞(H22.3)
- ・山口 明啓
 - 平成22年度学術奨励賞(内山賞)(H22.9)
- ・若林 克法
 - 平成22年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞(H22.4)

(4)招待講演

国際 90件

国内 70件

「革新的次世代デバイスを目指す材料とプロセス」領域 研究課題名および研究者氏名

研究者氏名 (参加形態)	研究課題名 (研究実施場所)	現職 (応募時所属)	研究費 (百万円)
葛西 誠也 (兼任)	確率共鳴を利用した新しい情報処理のためのナノデバイスと集積化 (北海道大学 大学院 情報科学研究科)	北海道大学 大学院情報科学研究科 准教授 (同上)	42
齊藤 英治 (兼任)	誘電体スピントロニクス材料開拓とスピン光機能 (東北大学 金属材料研究所)	東北大学 金属材料研究所 教授 (慶応義塾大学 理工学部 専任講師)	65
白石 誠司 (兼任)	分子を介したスピン流の制御 (大阪大学 大学院 基礎工学研究科)	大阪大学 大学院基礎工学研究科 教授 (同上 准教授)	49
谷山 智康 (兼任)	スピン偏極の外的制御とチューナブルスピン源の創製 (東京工業大学 応用セラミックス研究所)	東京工業大学 応用セラミックス研究所 准教授 (同上)	47
塚本 新 (兼任)	フェムト秒パルス・レーザによる超高速スピン制御・計測 (日本大学 理工学部)	日本大学 理工学部 講師 (同上)	45
深田 直樹 (兼任)	縦型立体構造デバイス実現に向けた半導体ナノワイヤの研究 (物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス研究拠点)	物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス研究拠点 独立研究者 (物質・材料研究機構 半導体材料センター 主任研究者)	47
村上 修一 (兼任)	デバイス応用に向けたスピン流と熱流の結合理論 (東京工業大学 大学院 理工学研究科)	東京工業大学 大学院理工学研究科 准教授 (東京大学大学院 工学系研究科 助教)	28
安田 剛 (兼任)	π 共役高分子鎖内の超高速電荷輸送を利用した有機トランジスタ (物質・材料研究機構 材料ラボ融合領域研究グループ)	物質・材料研究機構 材料ラボ融合領域研究グループ 主任研究者 (九州大学 先導物質化学研究所 助教)	42
山口 明啓 (兼任)	ナノ磁性体集結群の新奇な磁気特性の究明 (慶応義塾大学 理工学部)	慶応義塾大学 理工学部 助教 (同上)	40
若林 克法 (兼任)	計算科学手法によるナノカーボン素子の設計と物性予測 (物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス研究拠点)	物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス研究拠点 独立研究者 (広島大学 大学院 先端物質科学研究科 助教)	32

研究実施場所訪問

研究開始直後

日程	訪問研究者	訪問先
2007年10月 4日	安田	九州大学
2007年10月 4日	若林	広島大学
2007年10月 9日	葛西	北海道大学
2007年10月10日	高橋	物質・材料研究機構
2007年10月10日	深田	物質・材料研究機構
2007年10月18日	村上	東京工業大学
2007年10月18日	谷山	東京工業大学
2007年10月22日	塚本	日本大学
2007年10月22日	白石	大阪大学
2007年10月24日	山口	慶応義塾大学
2007年10月24日	齊藤	慶応義塾大学

異動、昇任時

日程	訪問研究者	訪問先
2008年 8月11日	安田	物質・材料研究機構
2009年 7月 6日	齊藤	東北大学
2009年 8月17日	若林	物質・材料研究機構
2010年 5月13日	山口	慶応義塾大学
2010年 5月24日	白石	大阪大学

最終年度

日程	訪問研究者	訪問先
2010年6月 3日	若林	物質・材料研究機構
2010年6月 3日	深田	物質・材料研究機構
2010年6月 7日	安田	物質・材料研究機構
2010年6月 7日	高橋	物質・材料研究機構
2010年6月 8日	谷山	東京工業大学
2010年6月14日	村上	東京工業大学
2010年6月17日	葛西	北海道大学
2010年6月23日	塚本	日本大学

注) 山口研究者は2010年5月13日の訪問の際に打ち合わせを行った。
白石研究者の打ち合わせは、2010年5月12日のミニワークショップで行った。
齊藤研究者との打ち合わせは、2010年5月19日に領域事務所で行った。

その他（技術参事による研究状況調査）

日程	訪問研究者	訪問先
2009年 8月 3日	若林	物質・材料研究機構
2010年12月27日	齊藤	東北大学

領域会議

	日程	会場	特別講演	他領域との交流
第1回	2008年 1月13日～14日	IPC 生産性国際交流 センター	(なし)	(なし)
第2回	2008年 6月 5日～ 6日	淡路夢舞台国際会議場	名西 AD	(なし)
第3回	2008年 10月30日～31日	浅草セントラルホテル	谷垣 AD	「ナノ製造」領域と合同開催
第4回	2009年 4月23日～24日	KKR仙台	高梨 AD	(なし)
第5回	2009年 11月26日～28日	ホテルグランド東雲	工藤 AD	「光作用」領域から研究者参加
第6回	2010年 4月16日～18日	チサンホテル博多	小田 AD	「界面」領域から研究者参加
第7回	2011年 1月11日～13日	チサンホテル新大阪	藤巻 AD	「光創成」領域および「界面」領域から研究者参加

ミニワークショップ

	日程	場所	話題提供者	テーマ
第1回	2009年 2月26日	JST三番町ビル会議室	塚本、山口	(定めていない)
第2回	2009年 7月 7日	東北大学金属材料研究所 4号館会議室	葛西、齊藤	確率共鳴とスピントロニクス
第3回	2010年 2月24日	JST三番町ビル会議室	浜屋、福村	磁性
第4回	2010年 5月12日	JST三番町ビル会議室	白石、野田、町田	ナノカーボン
第5回	2010年12月 9日	JST三番町ビル会議室	村上、小林、海住	熱

研究成果報告会プログラム

2010年9月15日
長崎大学文教キャンパス

開始時刻と講演時間	講演者	演題
10:00 (45分)	佐藤勝昭	基礎研究が拓くデバイスイノベーション
10:45 (25分)	村上修一	デバイス応用に向けたスピン流と熱流の結合理論
11:10 (25分)	安田剛	π 共役高分子鎖内の超高速電荷輸送を利用した有機トランジスタ
11:35 (25分)	葛西誠也	確率共鳴を利用した新しい情報処理のためのナノデバイスと集積化
13:00 (45分)	高梨弘毅	スピン流とスピントロニクス
13:45 (25分)	谷山友康	スピン偏極の外的制御とチューナブルスピン源の創製
14:10 (25分)	高橋有紀子	スピントロニクスデバイス用室温ハーフメタルの探索
14:35 (25分)	深田直樹	縦型立体構造デバイス実現に向けた半導体ナノワイヤの研究
15:00 (25分)	若林克法	計算科学手法によるナノカーボン素子の設計と物性予測
15:40 (25分)	齊藤英治	誘電体スピントロニクス材料開拓とスピン光機能
16:05 (25分)	塚本新	フェムト秒パルス・レーザによる超高速スピン制御・計測
16:30 (25分)	白石誠司	分子を介したスピン流の制御
16:55 (25分)	山口明啓	ナノ磁性体集結群の新奇な磁気特性の究明
17:20 (10分)	栗野祐二	クロージングトーク

研 究 報 告 書

「確率共鳴を利用した新しい情報処理のためのナノデバイスと集積化」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：葛西 誠也

1. 研究のねらい

【概要】

研究のねらいは、雑音などのゆらぎにより機能が向上する「確率共鳴」と呼ばれる現象(図1)を電子的に利用するための新しいナノデバイス(装置)と集積化技術をつくりだすことである。

確率共鳴は、生体が過酷な自然界で安定して機能する上で重要な役割を担っており、雑音やゆらぎに弱い情報エレクトロニクス(電子工学)に新しい展開をもたらす可能性をもっている。本研究では、半導体ナノワイヤネットワークを電氣的に制御する技術を駆使し、半導体上に現象を発現させ、これを情報エレクトロニクスに有用なハードウェアへと発展させる。

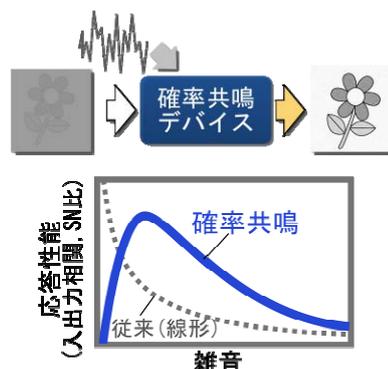


図1 確率共鳴現象と典型的な特性

【背景と研究状況】

確率共鳴は、1993年のザリガニの敵察知行動に見出されたのを契機に、視覚や聴覚あるいは姿勢制御など、ヒトを含め生体の様々な機能に関与していることがわかってきた。これ以降、確率共鳴の研究は生体分野を中心に進んだ。もともとは、地球での氷河期が10万年周期を持つことを説明するために1981年に考えだされた現象である。メカニズムは理解されており、電子回路や超伝導素子で人工的に現象が再現できることがわかっている。

確率共鳴を電子工学的に利用しようとするアイデアは想像に難くない。しかし、デジタル画像にわずかに雑音を混入させて階調を自然に見せる技術(ディザ)を除き、実用化された例は無い。理由は、①既存の技術と比較し際立って良い応答が得られない、②適切なデバイス(装置)が存在しないことの2点である。

【研究内容】

次の3つの要請を満たす、集積化可能な確率共鳴ナノデバイスと応用技術を創り出す。

- 要請1: 入力特定の値(しきい値)をこえたとき出力がでる、という特性をもつこと。確率共鳴を起こす必要条件である。
- 要請2: デバイスを並列化し加算ネットワークを構成できること。応答向上のため生体が採っている方法である。並列化数は多いほど応答は向上し、生体の神経系における並列化数は1000にもなる。
- 要請3: 小型で低消費電力動作であること。要請2を実践しようとする数が必要となるが、場所とエネルギーを費やすことになる。このデメリットを打ち消すためである。また、実用を考えると、室温動作、素子特性の設計と制御が求められる。

上記要請に基づき、本研究では実用化に近い「半導体ナノワイヤ電界効果トランジスタ(FET)」、および、究極の低消費電力動作を実現する「単電子デバイス」を取り上げ、現象の発現、解析と応用のための基礎技術について実験を主体とした研究を進めた。

2. 研究成果

(1) 半導体ナノワイヤ FET による確率共鳴の発現および理解と制御

1) 半導体ナノワイヤ電界効果トランジスタ(FET)を使い、確率共鳴を電子的に引き起こすことに成功した(図2)。

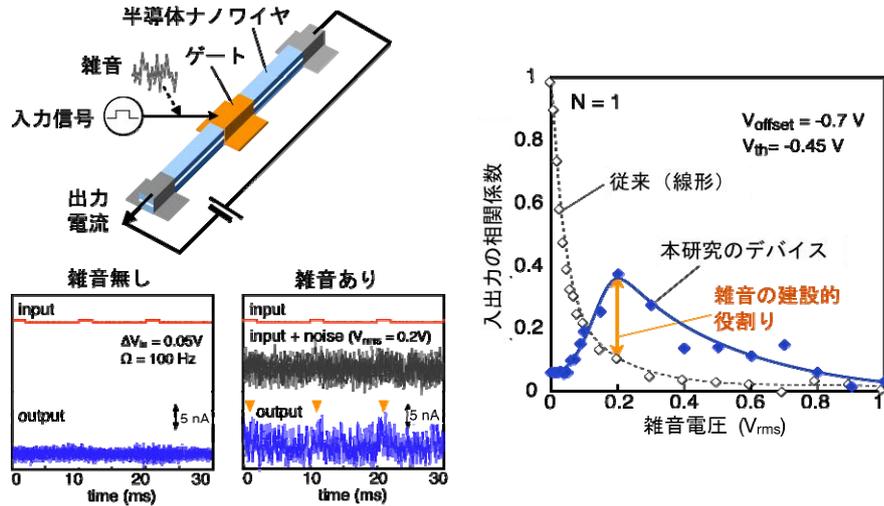


図2 ナノワイヤ FET と確率共鳴応答

トランジスタは、現代のエレクトロニクスにとって細胞のような役割をもった小さな装置で、さまざまところで大量に使われている(例えば、携帯電話では100億個)。しかも、入出力特性にきい値がある。半導体ナノワイヤはさらに極細の半導体の線で、神経の束のように並列に集積化ができる構造である。半導体ナノワイヤでトランジスタを実現すると、良好なきい値特性が得られ、確率共鳴を引き起こす上で有利である。以上の特徴は、目的で述べた条件を良く満たす。さらに、雑音がある中では従来技術である線形系よりも微小信号応答能力が高いことが示された。本研究のデバイスでは、雑音が建設的な役割を担うのである。

2) ナノワイヤ FET での確率共鳴に関する理論モデルをつくり、実験結果を説明した(図3)。

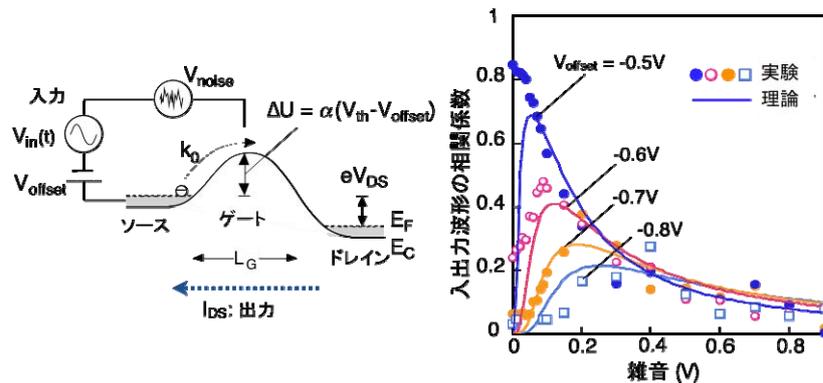


図3 ナノワイヤ FET の確率共鳴を説明するモデルと実験と理論の比較

理論は実験結果をよく再現する。トランジスタの構造サイズや半導体材料の性質(物性)と応答特性の関係を解明した。信号を入力するゲートのサイズを変えることで、応答のピーク位置などを制御できる。また、個々のトランジスタの応答を高めるにはどうすれば良いかも知ることができ、応答を設計することが可能になった。

(2) ネットワーク化による性能の向上

1) ナノワイヤ FET の並列加算ネットワークを構成することによって、確率共鳴応答が向上することを実証した(図4)。

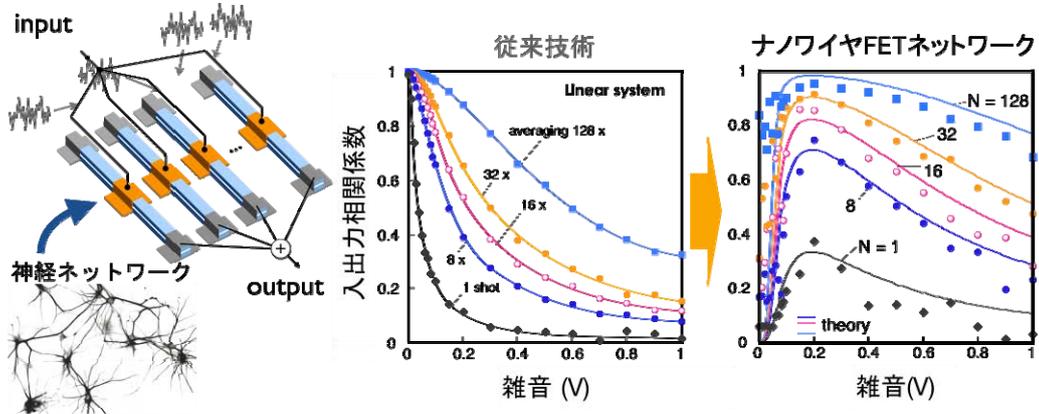


図4 ナノワイヤ FET ネットワークと確率共鳴

入力が相当ノジーであっても、このシステムは微小信号をとらえ出力することができるようになった。雑音の大きさが変わっても安定に応答できることもわかる。従来技術である加算平均化処理と比較すると、雑音下では確率共鳴の方が明らかに良い応答特性を示す。100個程度並列化すると、雑音の大きさが変動しても常に高い応答(相関値 >0.7)を維持できる。構成は本研究のほうが圧倒的にシンプルである。さらに、応答はリアルタイムであり速い。

2) 理論モデルによって、ネットワークの応答を説明した(図4中の実線)。理論式に基づき、要求応答性能(SN 比など)を実現するために必要な素子数を見積もることが可能になった。目安として、検出応用では1~10個、通信では10~100個、信号処理では1000~個である。

3) ネットワークを構成する FET のしきい値がばらついたときの影響を実験的に明らかにした。ばらつきは信号や雑音変化に対する適応や追従力の向上につながることを示した(図5)。

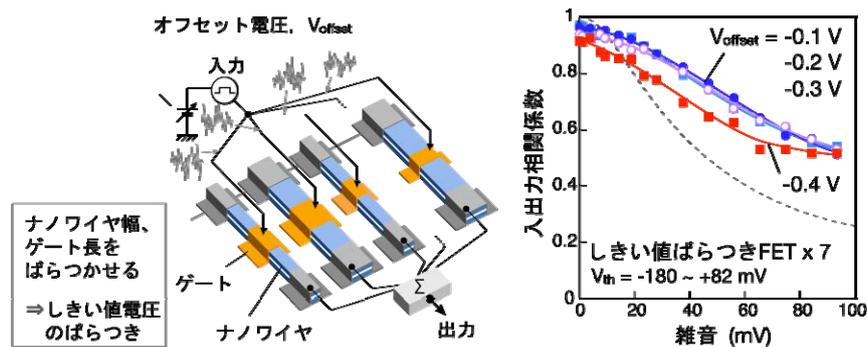


図5 しきい値ばらつきナノワイヤ FET ネットワークと確率共鳴応答

しきい値ばらつき FET ネットワークでは、入力信号の中心が大きくずれても、まったく応答曲線が変わらない。入力信号の変化に追従しているためである。また、雑音が 0 のときの応答が劇的に改善し、雑音なしでも応答できるようになった。しきい値がずれた FET を並列化した場合、入力がぶれてもいずれかのトランジスタが応答するためである(多重しきい値化)。

ここでは、ナノワイヤの幅やゲート長を変えることによって意図的にしきい値電圧をばらつかせている。先端集積回路の微細トランジスタは、同一設計であってもしきい値電圧がばらつく。これを逆に利用できる。

(3) 単一の電子が引き起こす確率共鳴の理論的証明と解析

1) 量子ドットを介して個々の電子が確率共鳴を起こすことを理論解析により証明した(図6)。

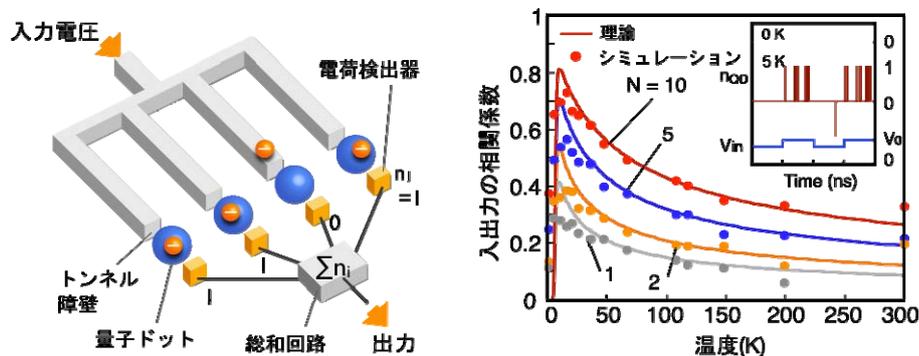


図6 量子ドットネットワークと単電子確率共鳴応答

解析式を導き、回路シミュレーションによって得られた特性を説明した。応答ピーク位置や高さについて、トンネル抵抗や接合容量などのパラメータと応答特性の関係を解明した。

また、量子ドット並列ネットワークにおける単電子確率共鳴では、要素ばらつきは平均化され、数を増すと均一ドットネットワークと区別がつかなくなることがわかった。この結果は、FETネットワークのばらつき効果と異なっている。理由は、電子が障壁を乗り越える場合と、通り抜ける(トンネルする)場合では遷移レートが異なるためである。

2) 単電子確率共鳴の実験実証のため、量子ドットと電荷検出トランジスタを集積した単電子計数システムを構築した。単電子計数ができることを確認した。

(4) 確率共鳴の電子工学的解釈

確率共鳴は、ランダムパルス密度変調と解釈できる。微小信号と雑音というネガティブな要素に、しきい値関数という単純機能を組み合わせ、高度な信号変調を実現している(図7)。

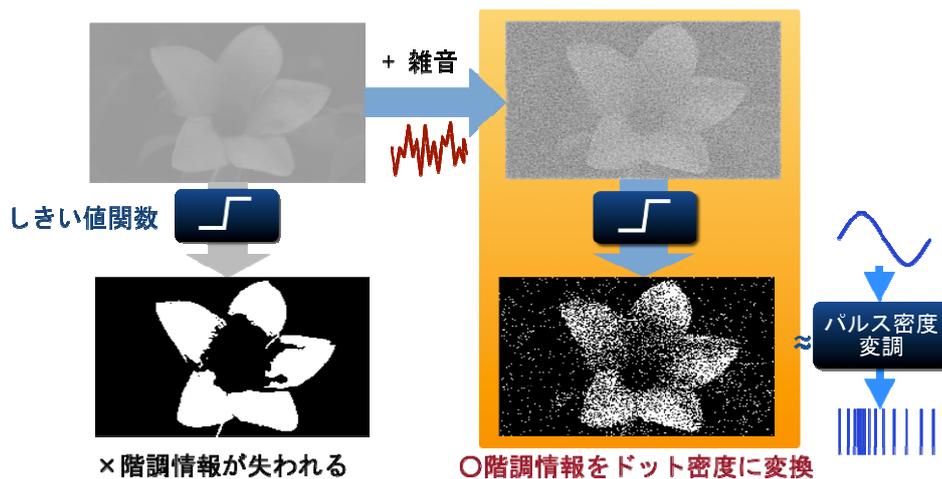


図7 確率共鳴における雑音の建設的役割

微弱な信号がもっていた振幅の大きさ(階調情報)が、パルスの密度に変換される。信号のデジタル化であり、アナログーデジタル変換(ADC)装置、あるいは1ビットオーディオの考え方によく似ている。並列加算ネットワーク化はADCのインターリーブ型オーバーサンプリングに相当し、より忠実に入力波形を再生する。

3. 今後の展開

(1) 確率共鳴の工学的応用のための要素技術開発

1) 理解の深化と精度の向上

系の非線形性の強さ確率共鳴応答特性(ピーク高さなど)との関係を明らかにする。しきい値がばらついた FET ネットワークについて、ばらつきの度合いとネットワーク応答曲線の対応を定量化する。これらは系の設計に不可欠である。

2) 適応性・追従性の獲得

さまざまな信号や雑音に対する適応性、および、これらの動的変化に対する追従性を実現する。実用的応用に必須である。ナノワイヤ FET の伝達特性の制御とネットワークの構成による応答の変化を理解し設計する技術を構築する。

(2) 新規確率共鳴デバイスの開拓

1) 単電子・量子デバイスと確率共鳴

熱ゆらぎと特性ばらつきにより実用化を妨げられてきたデバイスの復権について探る。ねらいは、少数電子操作による超低消費電力性を利用可能にすることである。

2) 生体機能の理解と応用

確率共鳴を切り口として、生体を実現している高い機能性と低エネルギー性の起源に迫り、エレクトロニクスに展開する技術を研究する。ナノワイヤ FET のように制御された人工系で生体の構成などを再現し、これを詳細に調べることで、生体機能の理解に寄与する。

(3) 応用展開

1) 特殊信号センシングへの応用

確率共鳴は、雑音が前提となる状況に加え、線形系が苦手とする信号に関する情報が無い、あるいは雑音に変化し予測できない場合に有効である。バイオセンシングなどである。また、量子デバイスの非線形性を用いた微小 THz 検出の感度向上や動作温度の向上への適用が挙げられる。

2) 生体工学への応用

生体の微小信号の検出に適用できるので、医学的な応用が期待される。また、単純なしきい値型センサであっても、巧く雑音を重畳することによって振幅情報をとりだせる。たとえば、脳波を非侵蝕で検出しコンピュータ上のカーソルを動かす場合、雑音を加えることにより動きがなめらかになる効果が得られる。BMI(Brain-Machine Interface)に有効である。

4. 自己評価

研究期間と規模に相応の成果が得られた。研究のねらいどおり、生物が過酷な自然環境の中で生き抜くために身につけた術をエレクトロニクスにやどすナノデバイスを開拓し、集積化による応答の向上を実現することができた。

当初計画課題については、ナノワイヤ FET での確率共鳴の実現やネットワーク化による応答向上といった中核部分はほぼ達成された。未達課題として、単電子確率共鳴の実験実証、素子間相関導入による応答制御であるが、いずれも現在進行中である。単純に当初計画に対する達成度のみで数値化すると70%程度である。一方、計画当初に予定していなかった成果が複数得られた。ナノワイヤ FET ネットワークが確率共鳴と関連現象の優れた実験プラットフォームとなったこと、現象およびそれを応用する生体機能性の理解の深化、ネットワークにおける物理ばらつきの効果の実験的解明などである。これらは今後研究を発展させる上で重要なものであり、上記未達分30%を補って余ある。

研究以外の成果も得られたことを付け加えておきたい。確率共鳴の認知の広がり、工学的応用の機運の高まり、企業や他研究機関との共同研究、さらにこれまで重なかった分野(分子、半導体、デバイス、通信、制御など)での横断的なコミュニケーションが始まったことなど、さきがけをきっかけとし分野として有意な動きが生まれた。

5. 研究総括の見解

葛西研究者の研究課題は、通常のエレクトロニクスでは嫌われ者である「雑音」やデバイス特性の「ゆらぎ」を逆手にとって、「確率共鳴」によって雑音や揺らぎを利用して、エレクトロニクスデバイスの機能向上を図ろうというものです。

それまで「確率共鳴」現象は生体機能性との関係でよく知られていたのですが、実証実験はほとんどありませんでした。葛西研究者は、この仮説を、ナノエレクトロニクスを用いて実証しようとしたのです。具体的には、半導体ナノワイヤネットワークを電氣的に制御する技術を駆使し、実際にノイズを加えて応答性がよくなることを半導体チップ上で実証しました。さらに、特筆すべきは、本質的にノイズやばらつきの影響をうけやすい「単電子デバイス」において、通常1ビットあたり10000電子以上が必要であるデバイスを並列化によって100電子程度に抑えられる可能性があり、超消費電力化への期待が高まるとともに、室温での単電子デバイスへ実現への端緒を築くものとなりました。

葛西研究者は、スピントロニクスのミニワークショップを齊藤研究者と共同提案したり、成果報告会を応用物理学会のシンポジウムとして行う時の企画者になったり、常に積極的に活動してくれました。研究成果のアウトリーチは、論文、特許出願、企業との共同研究のほか、JSTの動画サイト「サイエンスニュース」にも積極的に取り組んでくれました。本さがけ研究での成果がきっかけとなって、確率共鳴の国際的な研究コミュニティができつつあり、今後の発展が大いに期待でき、さがけならではの研究成果が得られたと評価します。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

S. Kasai and T. Asai, "Stochastic Resonance in Schottky Wrap Gate-controlled GaAs Nanowire Field Effect Transistors and Their Networks", Applied Physics Express vol.1 (2008) article no.083001.
S. Kasai, T. Nakamura, S. F. Bin abd Rahman, and Y. Shiratori, "Study on Nonlinear Electrical Characteristics of GaAs-based Three-branch Nanowire Junctions Controlled by Schottky Wrap Gates", Jpn. J. Appl. Phys. vol. 47 (2008) pp.4958-4964.
S. Kasai, "Investigation on Stochastic Resonance in A Quantum Dot and Its Summing Network", International Journal of Nanotechnology and Molecular Computation vol.1, (2009) pp.70-79.
S. Kasai, K. Miura, and Y. Shiratori, "Threshold-variation-enhanced adaptability of response in a nanowire field-effect transistor network", Appl. Phys. Lett. vol. 96 (2010) article no. 194102.
S. Kasai, Y. Shiratori, K. Miura, Y. Nakano, and T. Muramatsu, "Control of stochastic resonance response in a GaAs-based nanowire field-effect transistor", physica status solidi (c) 採択、2011 夏公開予定

(2)特許出願

研究期間累積件数: 4件
発 明 者: 葛西 誠也
発明の名称: 信号再生装置
出 願 人: JST
出 願 日: 2008/2/29

発 明 者: 葛西 誠也

発明の名称: 信号再生装置 (PCT 出願)
出願人: JST
出願日: 2008/9/2

発明者: 葛西 誠也
発明の名称: 信号再生装置
出願人: 北海道大学
出願日: 2009/11/30

発明者: 葛西 誠也
発明の名称: 信号再生装置 (PCT 出願)
出願人: 北海道大学
出願日: 2010/11/26

(3) その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

招待講演

S. Kasai, "Stochastic Resonance Nanodevices for Fluctuation-Robust Electronic Systems (keynote lecture)", The Seventeenth Annual International Conference on COMPOSITES/NANO ENGINEERING (ICCE-17), Honolulu, USA (2009/7/26-8/1).

S. Kasai, "Stochastic Resonance Nanodevices Toward Fluctuation Cooperative Nanoelectronics (invited)", 2010 International Conference on Enabling Science and Nanotechnology, Kuala Lumpur, Malaysia (2010/12/1-3).

S. Kasai, "Stochastic Resonance and Related Phenomena in GaAs-based Nanowire FET Networks (invited)", The 2011 Villa Conference on Interaction Among Nanostructures (VCIAN-2011), Las Vegas, USA (2011/4/21-25).

葛西誠也、「確率共鳴の電子的利用を可能にする半導体ナノデバイス技術(招待講演)」、第58回応用物理学関係連合講演会、2011年3月24日-27日、厚木

葛西誠也、「雑音共存確率共鳴トランジスタ(チュートリアル講演)」、2011年電子情報通信学会総合大会、2011年3月14日-17日、東京

一般講演

S. Kasai, Y. Shiratori, K. Miura, H. Shibata, Y. Nakano, and T. Muramatsu, "THz Wave Detection by Gate-controlled GaAs Nanowire Devices", The 15th optoelectronics and communications conference (OECC2010) (2010/7/5-9).

著作物

葛西誠也、「ゆらぎや雑音と共存可能な新しい集積ナノデバイス(解説)」、計測と制御 vol.49、No.4、pp.229-235.

受賞

S. Kasai, T. Nakamura, S. F. B. abd Rahman, and Y. Shiratori, 21st International Micropocesses and Nanotechnology Conference Outstanding Paper Award (2008).

研 究 報 告 書

「誘電体スピントロニクス材料開拓とスピン光機能」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：齊藤 英治

1. 研究のねらい

本研究のねらいは、「誘電体を用いたスピントロニクス」を提起しその端緒を開くことである。スピントロニクスとは、電子の持つ電荷とスピンの両者を利用することで、新しいエレクトロニクスを作り出す科学である。従来のエレクトロニクスにおいて情報を運んでいたのは電流（電荷の流れ）であった。スピントロニクスにおける新しく重要な概念は、スピンの流れである「スピン流」である。スピン流の生成・制御は、スピントロニクスの新しい機能開拓の指導原理といってよい。

従来、物質は電流を流すか否かによって金属、半導体、誘電体（絶縁体）に分類され、物質概念の基礎を成している。しかし原理的には、スピン流を流すか否かは電流を流すか否かとは異なってよく、これが本研究の着眼点である。特に、電流は流さずにスピン流だけを流す物質群は重要である。何故なら、電荷の流れを完全に抑制することができればジュール熱など電荷移動が本質的に持つエネルギー損失から解放され、電流から切り離されスピン流のみを利用した「究極のスピントロニクス」が実現されるからである。

本研究ではこのコンセプトに基づき、従来金属や半導体のみに限定されていたスピントロニクスの研究の殻を破り、誘電体（絶縁体）を中心に据えた新しいスピントロニクスの体系を切り拓くことを目標にする。これを可能にするのは、我々が開拓してきたスピン流-電流変換に関する基礎学理である。

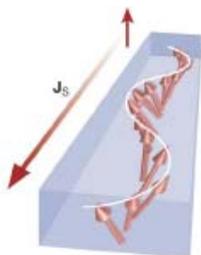


図1 スピン波スピン流の概念図。スピン波とは磁性体中の磁化の波であり、ある種のスピン波はスピン流（スピン角運動量の流れ）を運ぶことができる。

2. 研究成果

本研究の研究要素は、(1)磁性誘電体からスピン流を取り出す、(2)磁性誘電体へスピン流を注入する、(3)磁性誘電体中にスピン流を伝搬させる、の3つから成る。我々の開拓してきた「逆スピンホール効果」と呼ばれるスピン流-電流変換効果を軸に、これらの要素を実現する実験系を設計した。

(1)磁性誘電体からのスピンプンプ

まず「(1)磁性誘電体からスピン流を取り出す」ことから研究をはじめた。試行錯誤の末、磁性誘電体イットリウム鉄ガーネット(YIG)/Pt 二重膜の界面において、スピン流を取り出すことにはじめて成功した。YIGは2.7eVもの巨大な電荷ギャップのためスピンの個別励起(ストーナー励起)が強く抑制され、従って磁化緩和(ギルバート緩和)が大変小さい。またスピン波のギャップは μeV 程度と大変小さい(室温の熱ゆらぎに対して無視できる程小さい)。従って、YIGは電流に対しては巨大なギャップを有する絶縁体であるが、スピン流に対してはほぼギャップレスであり、スピン波スピン流の伝播媒体に適した性質を備えた物質である。

図2(a)に、この YIG 試料のマイクロ波共鳴スペクトルを示す。スペクトルには、多数の共鳴信号が現れ、すべての共鳴は磁気共鳴モード(静磁後退波モード及びデーモン・エッシュバツハモード)で指数付けされる。図2(b)に、9.5GHzのマイクロ波を照射しながら測定した Pt 層中の電圧の磁場依存性を示す。電圧信号が磁気共鳴の条件において現れている。本系では磁性体層は絶縁体であり、磁性体層に電流信号は生じない。実際、Pt を除いた系や Pt のみの系、Pt をスピホール効果の弱い Cu に置換した系ではこの電圧信号は消失する。また、電圧信号の磁場方向依存性は逆スピホール効果の予言によく一致し、観測された信号は YIG からスピポンプによる逆スピホール電圧であると同定された。この値から、この YIG/Pt 接合のスピ混成コンダクタンスが評価された。以上のように、スピポンプによって磁性誘電体からスピ角運動量を取り出せることをはじめて示した(Nature(2010))。

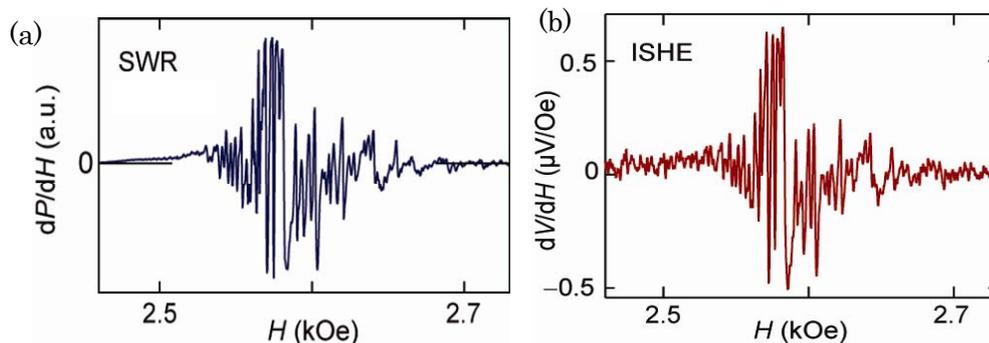


図2(a) 9.5GHzマイクロ波励起時の YIG/Pt のマイクロ波共鳴スペクトル。細かい振動構造はスピン波共鳴信号である。(b) 9.5GHzマイクロ波励起時の YIG/Pt の起電力信号。

(2) 磁性誘電体へのスピ注入

次に、その逆効果として YIG にスピ流を注入することを目指した。これが実現できれば、磁性誘電体にスピ流を出し入れすることができるようになり、スピ流科学を磁性誘電体(絶縁体)へ拡張する基礎現象が揃うことになる。

誘電体(絶縁体)へのスピ流注入を実現するのは、スピホール効果である。絶縁体であるので YIG へ電流やスピ偏極電流を加えることは不可能であるが、YIG 表面に平行に流れる電流によってスピホール効果を駆動することでスピ注入が可能である。前項と同じ試料の Pt 層に電流を流しながら測定した YIG 層の電磁波放射スペクトルを示す。電流を増加させスピホール効果を駆動させると、マイクロ波領域に電磁波発振信号が現れる。この発振信号は磁場を変えることによって Kittel の公式に従った周波数シフトを示すことから、注入されたスピ角運動量によりギルバート緩和の符号が反転したことによるスピ波の自励発振信号であると同定される。これは、Pt 中の伝導電子スピ流が YIG 中のスピ波スピ流に変換されたことを示している。

(3) 誘電体中のスピ流伝導

以上で、誘電体 YIG にスピ角運動量を出し入れすることができることが示された。これで、絶縁体中のスピ波スピ流を利用する原理が整ったことになる。

YIG はギルバート緩和が小さく、YIG のスピ流はミリメートルスケールを超える長距離の伝搬が可能である。これは、従来の伝導電子スピ流が高々数マイクロメートルで減衰してしまうのとは大きく異なっている。このスピ波スピ流の伝搬を観測することを目指した。

試料の構造を調整し、1ミリメートル離れた二つの Pt 膜(それぞれスピ注入用及び検出用)を取り付けた YIG 薄膜試料でスピ波スピ流伝導の観測に成功した。スピ注入用 Pt

膜に電流を注入すると、スピンホール効果によって電流はスピン流に変換される。YIG は電流を遮断するが、スピン流はスピン波スピン流として伝搬させることができる。この伝搬したスピン波スピン流を、検出用 Pt の逆スピンホール効果電圧によって検出した。この二つの Pt は YIG によって電氣的に相互に絶縁されているが、スピン流を経由することで信号情報を伝えることができたのである。

このように、本研究によって誘電体(絶縁体)中にスピン流を経由して電気信号を流す方法が見いだされた(Nature(2010))。

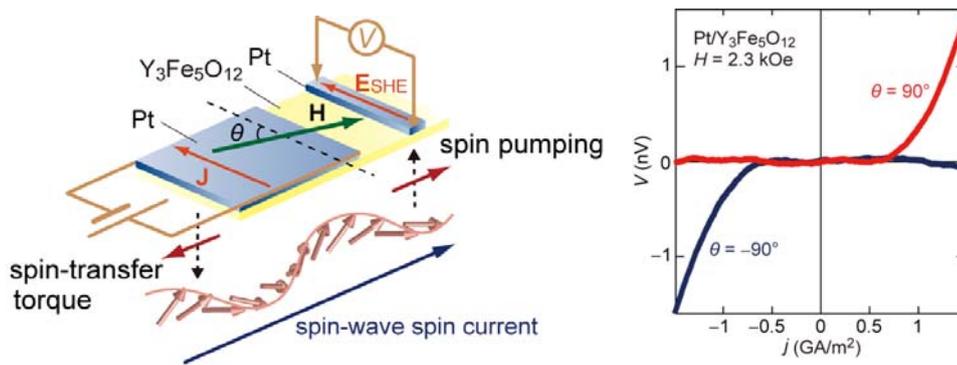


図3 Pt/YIG 薄膜のスピン流伝送試料の概念図(左)と非局所電気伝導信号。 j は左側 Pt に印加した電流密度、 V は右側 Pt での起電力である。

(4) 誘電体のスピンゼーベック効果

更に、誘電体(絶縁体)のスピン流を使うことで、従来全く不可能であった絶縁体による熱電変換を実現させた。まず、ゼーベック効果のスピン版であるスピンゼーベック効果を発見した(Nature (2008))。これは、強磁性金属に熱勾配をかけることで、スピン圧(スピン流を駆動するポテンシャル)が生成される現象である。このスピン圧は、逆スピンホール効果によって電圧に変換できる。

通常の従来型ゼーベック効果は伝導電子の熱運動を使っており、金属又は半導体のみで現れる現象である。しかし、この伝導電子の存在は同時にエネルギーのロスをもたらし、従来型のゼーベック効果による熱電変換の性能の上限を与えていた。一方で、スピンゼーベック効果は電流ではなくスピン流を用いているので、磁性誘電体(絶縁体)でも発現するはずである。我々は、YIG を皮切りに様々な磁性誘電体においてスピンゼーベック効果を実現させた(Nature materials (2010))。理論解析により、絶縁体のスピンゼーベック効果はスピンの非相反ダイナミクスに起因した熱的スピンプンプにより説明され、スピンプンプとスピンゼーベック効果を統合的に説明する理論式を導出することができた(Appl.Phys.Lett.(2010))。

以上のように、本研究により、絶縁体中の「ミリメートル級」のスピン流を利用することにはじめて成功し、「誘電体スピントロニクス」の端緒を開いた。

3. 今後の展開

本研究によって、従来全く目を向けられなかった誘電体(絶縁体)中のスピン流をスピントロニクスの枠組みのコアに組み入れることに成功した。誘電体のスピン波スピン流はミリメートルを超える伝搬長を有する。従って、従来短距離性が問題であったスピン流の概念を根底から変革し、新しい科学技術の芽を出したと考える。実際、絶縁体中のスピンゼーベック効果など従来では考えられなかった効果など新しい現象が数多く見つかっている。今後は、(1)これらの現象の奥にある物理原理を暴く基礎研究、(2)産業への応用研究が考えられる。(1)では、電子系に限定しない一般の角運動量を含む体系を作ることが重要と考え、CREST 課

題を申請した。(2)については、応用研究を既に企業と開始している。

4. 自己評価

目標は効果的に達成され、「誘電体スピントロニクス」の端緒が開かれた。この成果は、世界的にも大きく注目されている。

5. 研究総括の見解

齊藤研究者は、応募前に逆スピンホール効果の考え方を提唱し、金属に注入されたスピンの流れを電気信号としてとりだすことに成功していましたが、本さがけ研究としては、あえて金属でなく「誘電体」においてスピンの流れを伝搬させるという困難な課題に取り組みました。

彼は、①スピンホール効果により電流をスピン流に転換→②スピントルク効果で金属から誘電体にスピン波を転送→③スピン波スピン流を誘電体に沿って伝搬→④スピンポンピングによって金属にスピン波を励起→⑤逆スピンホール効果で電圧として取り出す、というストーリーを立て、②、③、④を順次実証し、最終的にこれらを総合して、世界で初めて「スピン流を使って誘電体に電気を流す」ことに成功しました。

成果は、Nature に掲載されるとともに、JST の広報からプレスリリースされ、国内 17 紙の紙面を飾りました。このような基礎的成果が、一般紙の一面に掲載されたことはまれなことです。米国物理学学会誌にもトピックスとして取り上げられました。

彼は、さがけ 2 年目に慶大講師から東北大に教授として招聘されるという栄誉を得ましたが、JST からの支援もあって、幸い研究をシームレスに続けることができました。領域会議では、彼は常にあらゆる研究に対しコメントし、領域全体を活性化してくれました。実験家でありながら理論に強く、理論家との密接な研究協力により、きちんとした理論的見通しの下にこの研究を進めたことが、この成果につながりました。

彼は、さらに金属磁性体において成功したスピンゼーベック効果が、磁性誘電体においても生じることを実証し、スピン流の学理と応用において世界をリードする立場を確立しました。

サー・マーチンウッド賞、学士院研究奨励賞はじめ、多数の賞を受賞したほか、22 年度には CREST にも採択され、スピン流の研究をさらに発展させており、スピン流イノベーションの推進役として、さらなる活躍が期待されています。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

【本研究テーマ直接の成果(代表的なもの5つ)】

1. Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and <u>E. Saitoh</u> (corresponding author), “Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator” Nature 464 (2010) 262–266.
2. K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and <u>E. Saitoh</u> (corresponding author), “Spin Seebeck insulator” Nature materials 9 (2010) 894 – 897.
3. J. Xiao, G. E. W. Bauer, K. Uchida, <u>E. Saitoh</u> , and S. Maekawa “Theory of magnon-driven spin Seebeck effect” Physical Review B 81 (2010) 214418_1–214418_8.
4. K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and <u>E. Saitoh</u> ,

	“Observation of longitudinal spin-Seebeck effect in magnetic insulators” Applied Physics Letters 96 (2010) 172505_1–172505_3.
	5. K. Uchida, T. Nonaka, T. Ota, and E. Saitoh, “Longitudinal spin-Seebeck effect in sintered polycrystalline (Mn,Zn)Fe ₂ O ₄ ” Applied Physics Letters 97 (2010) 262504_1–262504_3.

【上記以外の論文】

- [6] H.Y. Inoue, K. Harii, K. Ando, K. Sasage, and E. Saitoh,
“Detection of pure inverse spin-Hall effect induced by spin pumping at various excitation”
Journal of Applied Physics 102 (2007) 083915_1–083915_4.
- [7] K. Ando, K. Sasage, K. Harii, and E. Saitoh,
“Ferromagnetic resonance spectra in patterned and unpatterned NiFe/Pt films”
Physica Status Solidi B 244 (2007) 4522–4525.
- [8] K. Harii, K. Ando, H.Y. Inoue, E. Sasage, and E. Saitoh,
“Inverse spin-Hall effect and spin pumping in metallic films”
Journal of Applied Physics 103 (2008) 07F311_1–07F311_4.
- [9] K. Ando, S. Takahashi, K. Harii, K. Sasage, J. Ieda, S. Maekawa, and E. Saitoh,
“Electric manipulation of spin relaxation using spin-Hall effect”
Physical Review Letters 98 (2008) 036601_1–036601_4.
- [10] K. Ando, Y. Kajiwara, S. Takahashi, S. Maekawa, K. Takemoto, M. Takatsu, and E. Saitoh,
“Angular dependence of inverse spin-Hall effect induced by spin pumping
investigated in a Ni₈₁Fe₁₉/Pt thin film”
Physical Review B 78 (2008) 014413_1–014413_6.
- [11] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh,
“Observation of the spin Seebeck effect”
Nature 455 (2008) 778–781.
- [12] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh,
“Phenomenological analysis for spin-Seebeck effect in metallic magnets”
Journal of Applied Physics 105 (2009) 07C908_1–07C908_3.
- [13] K. Sasage, N. Okamoto¹, H. Tsujikawa, T Yamaoka, E. Saitoh,
“Magnetic force microscopic study on domain-wall molecules in NiFe nano rings”
Solid State Phenomena 152–153 (2009) 529–532.
- [14] K. Ando, H. Nakayama, Y. Kajiwara, D. Kikuchi, K. Sasage, K. Uchida, K. Ikeda, and E. Saitoh,
“Measurement of spin current using spin relaxation modulation induced by spin injection”
Journal of Applied Physics 105 (2009) 07C913_1– 07C913_3.

- [15] Y. Kajiwara, K. Ando, K. Sasage, and E Saitoh,
 “Spin pumping and spin-Hall effect observed in metallic films”
 Journal of Physics (conference series) 150 (2009) 042080_1–042080_4.
- [16] K. Ando, T. Yoshino, and E. Saitoh,
 “Optimum condition for spin-current generation from magnetization precession in thin film systems”
 Applied Physics Letters 94 (2009) 152509_1–152509_3.
- [17] K. Uchida, T. Ota, K. Harii, K. Ando, K. Sasage, H. Nakayama, K. Ikeda, and E. Saitoh,
 “Spin Seebeck Effect in Ni₈₁Fe₁₉/Pt Thin Films with different widths”
 IEEE transactions on magnetics 45 (2009) 2386–2388.
- [18] K. Ando, J. Ieda, K. Sasage, S. Takahashi, S. Maekawa, and E. Saitoh,
 “Electric detection of spin wave resonance using inverse spin-Hall effect”
 Applied Physics Letters 94 (2009) 262505_1–262505_3.
- [19] T. Ota, K. Uchida, Y. Kitamura, T. Yoshino, H. Nakayama, and E. Saitoh
 “Electric detection of the spin-Seebeck effect in Ni and Fe thin films at room temperature”
 Journal of Physics (conference series) 200 (2010) 062020_1–062020_4.
- [20] T. Yoshino, Y. Kajiwara, K. Ando, H. Nakayama, T. Ota, K. Uchida, and E. Saitoh
 “Detection of inverse spin-Hall effect in Nb and Nb₄₀Ti₆₀ thin films”
 Journal of Physics (conference series) 200 (2010) 062038_1–062038_4.
- [21] H. Nakayama, K. Harii, Y. Kajiwara, T. Yoshino, K. Ando, K. Uchida, T. Ota, and E. Saitoh
 “Detection of inverse spin-Hall effect induced in Pt_{1-x}M_x (M = Cu, Au) thin films”
 Journal of Physics (conference series) 200 (2010) 062014_1–062014_4.
- [22] S. Takahashi, E. Saitoh, S. Maekawa
 “Spin current through a normal-metal/ferromagnetic-insulator junction”
 Journal of Physics (conference series) 200 (2010) 062030_1–062030_4.
- [23] K. Ando, M. Morikawa, T. Trypiniotis, Y. Fujikawa, C. H. W. Barnes, and E. Saitoh,
 “Photo-induced inverse spin-Hall effect: conversion of light-polarization information into electric voltage”
 Applied Physics Letters 96 (2010) 082502_1–082502_4.
- [24] K. Uchida, T. Ota, K. Harii, S. Takahashi, S. Maekawa, Y. Fujikawa, and E. Saitoh,
 “Spin-Seebeck effects in Ni₈₁Fe₁₉/Pt films”
 Solid State Communications 150 (2010) 524–528.
- [25] K. Sasage, K. Harii, K. Ando, K. Uchida, E. Saitoh,
 “Modulation of Gyromagnetic Ratio in Ni₈₁Fe₁₉ Thin Film Due to Spin Pumping”
 Journal of Magnetism and Magnetic Materials 322 (2010) 1425–1427.
- [26] K. Ando, T. Yoshino, N. Okamoto, Y. Kajiwara, K. Sasage, K. Uchida, and E. Saitoh,
 “Angular dependence of inverse spin-Hall effect induced by spin pumping: experimental

- verification of phenomenological model of spin pumping”
Journal of Magnetism and Magnetic Materials 322 (2010) 1422–1424.
- [27] K. Uchida, T. Ota, K. Harii, K. Ando, H. Nakayama, and E. Saitoh,
“Electric detection of the spin–Seebeck effect in ferromagnetic metals”
Journal of Applied Physics 107 (2010) 09A951_1–09A951_5. May.
- [28] K. Ando, M. Morikawa, T. Trypiniotis, Y. Fujikawa, C. H. W. Barnes, and E. Saitoh,
“Direct conversion of light–polarization information into electric voltage using photoinduced
inverse spin–Hall effect in Pt/GaAs hybrid structure: Spin photodetector”
Journal of Applied Physics 107 (2010) 113902_1–113902_5. June.
- [29] K. Ando, Y. Kajiwara, K. Sasage, K. Uchida, and E. Saitoh,
“Inverse spin–Hall effect induced by spin pumping in various metals”
IEEE transactions on magnetics. 46 (2010) 1331 – 1333. May 19.
- [30] H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, Y. Kajiwara, T. Yoshino, K. Uchida, and E. Saitoh
“Inverse spin–Hall effect induced by spin pumping in different thickness Pt films”
IEEE Transaction on Magnetism 46 (2010) 2202 – 2204. June.
- [31] K. Ando and E. Saitoh,
“Inverse spin–Hall effect in palladium at room temperature”
Journal of Applied Physics 108 (2010) 113925_1–113925_4. December 15.
- [32] C. W. Sandweg, Y. Kajiwara, K. Ando, E. Saitoh, and B. Hillebrands,
“Enhancement of the spin pumping efficiency by spin wave mode selection”
Applied Physics Letters 97 (2010) 252504_1–252504_3. December 21.
- [33] H. Adachi, K. Uchida, E. Saitoh, J. Ohe, S. Takahashi, and S. Maekawa,
“Gigantic enhancement of spin Seebeck effect by phonon drag”
Applied Physics Letters 97 (2010) 252506_1–252506_3. Dec24.

(2)特許出願

研究期間累積件数: 4件

発 明 者: 梶原瑛祐、内田健一、安藤和也、齊藤英治
 発明の名称: スピントロニクスデバイス及び情報伝達方法
 出 願 人: 学校法人慶應義塾
 出 願 日: 2008/6/5

発 明 者: 内田健一、梶原瑛祐、中山裕康、齊藤英治)
 発明の名称: 熱電変換素子
 出 願 人: 学校法人慶應義塾
 出 願 日: 2008/6/12

発 明 者: 梶原瑛祐、齊藤英治

発明の名称: マイクロ波発振素子及びマイクロ波発振装置
出願人: 学校法人慶應義塾
出願日: 2009/4/9

発明者: 内田健一、齊藤英治
発明の名称: 熱電変換素子及び熱電変換装置
出願人: 学校法人慶應義塾
出願日: 2010/4/30

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

【プレナリー講演】

・ 2010年9月19日”(Plenary Talk) Spin current coupled with charge and heat currents”
The IEEE 7th International Symposium on Metallic Multilayers (MML2010, Berkeley).

【主要な招待講演】(招待講演数 計39件)

- ・ 2009年5月6日 “Spin Hall Effects and spin Seebeck effect in NiFe/Pt films,” INTERMAG 2009 conference (Sacramento).
- ・ 2009年7月27日 “Spin Hall effects and spin Seebeck effect in metallic films” International Conference on Magnetism (ICM 2009)(Karlsruhe, Germany).
- ・ 2010年3月18日 “Electric detection of magnetization dynamics through inverse spin Hall effects” American Physical Society March Meeting 2010 (Portland).
- ・ 2010年8月12日 “Spin Seebeck effect” Gordon Research Conferences, Magnetic Nanostructures (Lewiston, USA).
- ・ 2010年11月17日 “Spin current generation from insulators and metals” Magnetism and Magnetic Materials Conference 2010 (Atlanta, Georgia).

【受賞】

[1] 2008年11月 サー・マーティンウッド賞, 「スピン流生成・検出技術に関する研究」
(Mrenium Science Forum).

[2] 2009年3月 丸文研究奨励賞, 「スピン流生成・検出のための基礎物理現象の開拓」(丸文研究交流財団).

[3] 2009年7月 IUPAP Young Scientist Award,
「For the fabrication of highly original nanostructures and for the discovery of important spin transport phenomena, including the spin-Seebeck effect and the inverse spin-Hall effect.」
(International Union of Pure and Applied Physics).

-受賞決定-

[4] 日本物理学会若手奨励賞 “Conversion of spin current into charge current at room temperature: inverse spin-Hall effect”.

[5] 第7回日本学術振興会賞「スピン流物理現象及び応用技術の開拓.」

【主要な著作物】

- [1] 安藤和也、齊藤英治、「スピンプンピングによる逆スピンホール効果の観測」固体物理 42 (2007) 19-28.
- [2] 安藤和也、齊藤英治、「スピンホール効果の応用 -スピン流の検出とスピンドイナミクス制御-」応用物理 77 (2008) 836-840.
- [3] 齊藤英治、「伝導Ⅱ (スピン流)」応用物理学会スピントロニクス研究会「スピントロニクスの基礎」テキスト(2008) 56-64.
- [4] E. Saitoh, “New order for magnetism (news &view)” Nature 455 (2008) 474-475.
- [5] 内田健一、齊藤英治、「スピン流生成・検出技術の最前線-スピンホール効果の応用とスピンゼーベック効果の観測-」固体物理 44 (2009) 281-291.
- [6] K. Ando, and E. Saitoh “Application of direct and inverse spin-Hall effects: electric manipulation of spin relaxation and electric detection of spin currents” in Foundation of quantum mechanics in the light of new technology ISQM Tokyo 08 (World Scientific, 2009) 61-68.
- [7] 安藤和也、齊藤英治、「スピン流」科学(岩波書店) 79 (2009) 1029-1033.
- [8] 齊藤英治、「スピン依存伝導」応用物理学会スクール「スピントロニクスの基礎」テキスト(2008) 13-21.
- [9] 針井一哉、安藤和也、内田健一、中山裕康、梶原瑛祐、齊藤英治、「強磁性 Ni₈₁Fe₁₉/非磁性 Au 二層膜における磁化ダイナミクススピン注入のマイクロ波強度依存性」表面科学 30 (2009) 688-693.
- [10] 中山裕康、安藤和也、針井一哉、梶原瑛祐、吉野達郎、齊藤英治、「Pt_{1-x}M_x (M = Cu, Au) 薄膜における逆スピンホール効果」日本磁気学会誌 34 (2010) 337-341. March
- [11] 内田健一、齊藤英治、「強磁性金属におけるスピンゼーベック効果の観測」まぐね 5 (2010) 283-289. June
- [12] 内田健一、齊藤英治、「熱流に付随したスピントロニクス現象」まてりあ 49 (2010) 357-363. August
- [13] 梶原瑛祐、安藤和也、齊藤英治、「磁性絶縁体を用いたスピン流の伝送」まてりあ 49 (2010) 575-579.
- [14] 齊藤英治「物理科学、この1年: スピン流科学の進展」パリティ 26 (2011) No.1 32-33. Jan.11

【新聞(国内)】

- [1] 2010年3月11日掲載 毎日新聞(朝刊1面)「絶縁体で電気信号伝達」.

- [2] 2010年3月11日掲載 河北新報(朝刊1面トップ)「絶縁体に電気信号伝達」.
- [3] 2010年3月11日掲載 読売新聞(夕刊2面)「絶縁体に電気信号通す」.
- [4] 2010年3月11日掲載 日刊工業新聞「絶縁体に電気信号通す」.
- [5] 2010年3月11日掲載 日経産業新聞「絶縁体使い伝送」.
- [6] 2010年3月11日掲載 山形新聞「電子の自転を利用 絶縁体に電気通る」.
- [7] 2010年3月11日掲載 京都新聞「絶縁体に電気信号通った!」.
- [8] 2010年3月11日掲載 神戸新聞「絶縁体に電気信号通す」.
- [9] 2010年3月11日掲載 宮崎日日新聞(朝刊3面)「絶縁体に電気信号伝達」.
- [10] 2010年3月11日掲載 琉球新聞「電気信号が絶縁体通る」.
- [11] 2010年3月15日掲載 産経新聞(朝刊14面)「絶縁体で電気信号の伝達に成功」.
- [12] 2010年3月16日掲載 朝日新聞(科学欄)「絶縁体を流れる電気信号発見 東北大」.
- [13] 2010年3月19日掲載 科学新聞(4面)「電子のスピンを利用-東北大と慶応大の研究グループ-絶縁体に電気信号流す方法発見」.
- [14] 2010年9月27日掲載 日刊工業新聞(24面)「磁性絶縁体から電気エネルギー 原子力機構・東北大が成功」.
- [15] 2010年9月27日掲載 電気新聞(2面)「絶縁体磁石で熱電発電 原子力機構・東北大学 効率高く多用途期待」.
- [16] 2010年10月8日掲載 日経産業新聞(13面)「絶縁体から発電技術 スピン振動現象を利用」.
- [17] 2010年10月28日掲載 読売新聞(夕刊9面)「「熱電変換」のコスト大幅減」.

【その他のメディアでの報道】

- [1] news and views “Recipe for spin currents” Nature 455 (2008) 741-742.
- [2] 「熱で磁気の流れを作るスピンゼーベック効果を発見」 Nature Digest Vol.6 No.2 (2009) 32-33.
- [3] 「絶縁体で電子スピンを送る」現代化学 No. 471 (2010) pp. 13, 6月1日掲載.
- [4] 「絶縁体も電気信号を送ることを発見」JSTNEWS Vol.7, No. 3 (2010) pp.8-9. (表紙にも採用)

[5] 「絶縁体で電気信号を伝える 電子スピン流」JST サイエンスニュース 2010年6月1日配信.

[6] 「電流ならぬ「スピン流」物理の開拓」科研費 NEWS Vol. 1 (2010) pp. 12.

[7] 5月3日「Japan & World Update」NHK WORLD.

[8] “A magnetic insulator transmits electrical signal via spin waves” Physics Today 2010 vol. 5 13-15.5月

[9] news and views “Think globally but act locally” Nature Materials 10 (2011) 880-881. September 20

[10] “SCIENCE WATCH: A New Spin on Electric Signal Transmission” The Japan Journal 7 (2010) Vol.6 pp. 30. October 1

研 究 報 告 書

「分子を介したスピンの制御」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：白石 誠司

1. 研究のねらい

スピントロニクスは beyond CMOS の観点から近年急速に発展を遂げている研究領域であるが、スピン注入層・障壁層に分子材料を用いる分子スピントロニクスは、金属スピントロニクス・無機半導体スピントロニクスに次いでスピントロニクス領域の新たな第三極として近年大きな注目を集めている。この理由としてスピン散乱要因の1つであるスピン軌道相互作用が分子材料は軽元素からなるために小さいこと、また分子を介したトンネルスピン伝導で新奇な物性が発現する可能性があることなどが挙げられる。そこで本研究では、分子材料を介したスピンの制御と、スピントランジスタなどの beyond CMOS 型新機能素子の創出を目指すことを目的として研究を遂行した。特に分子材料としてはグラフェンやフラーレンなどのナノカーボン分子、ルブレンなどの分子性単結晶半導体を主な対象材料とした。

2. 研究成果

2.1 グラフェンを介したスピンの制御

グラフェンは2010年のノーベル物理学賞を授与されたことから分かるように現在、物理や材料科学分野で最もホットな材料の1つである。2007年までに様々な視点から年に1000件近くの論文が発表されていたがスピン素子の観点からの研究は行われてこなかった。そこで4端子非局所法なる純スピン流を生成・注入する手法を用いてまず多層グラフェンへの室温スピン

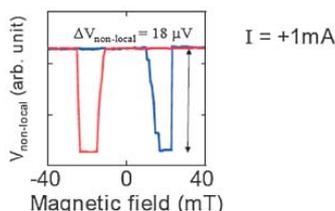
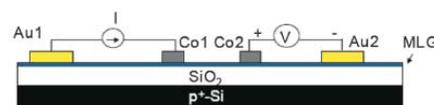
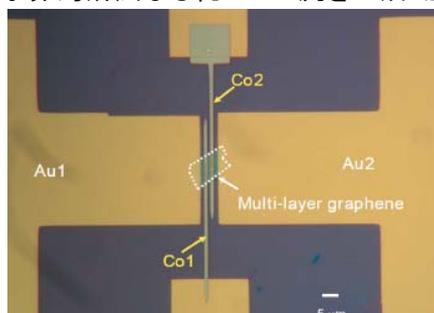


図1: 実験に用いたグラフェンスピン素子の例(上)と断面図(中)。グラフェンとCoの間にトンネル障壁層は入れていない。下は非局所スピン注入信号を示す。

注入・純スピン流生成に世界に先駆けて成功した(左図参照)。これは分子材料系への純スピン流生成という観点でも世界初の成果となる。ここで言う「純スピン流」とは電流とは全く異なる概念の「流れ(カレント)」である。電流とは「電荷の流れ」であるのに対し、純スピン流とは「電荷の流れを伴わないスピンのみの流れ」であるために、理想的にはエネルギー消費を伴わない。そのため、消費電力を限りなくゼロにしながら情報を伝送する、ということが可能となる。このような流れを室温で生成できたことは新機能素子開発に極めて重要である。

グラフェンはキャリアの少ない系であるため、ゲート電極からの電圧印加などの方法でその伝導度を制御できる。即ち、シリコン同様トランジスタとして動作させることができる。トランジスタ動作の際にはドレイン電圧を印加しなければ素子動作は不可能である。一方、広くスピン素子では、このドレイン電圧に相当する電圧を印加することでスピン注入信号が極端に低下することが広く知られており、応用上の障害と1つとなっている。グラフェンでも同様の問題が生じる可能性があるため、次にこのスピン注入信号のバイアス依存性を詳細に調べた。その結果、従来の金属や無機半導体、またAlq3、カーボンナノチューブなど

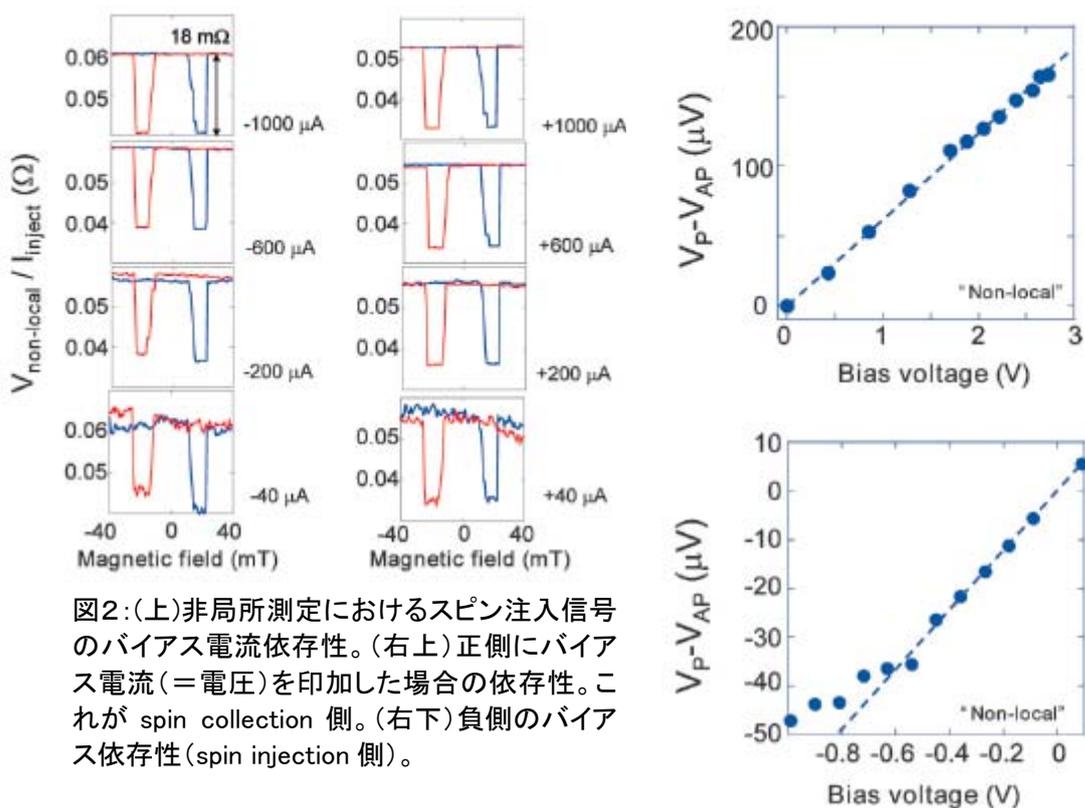
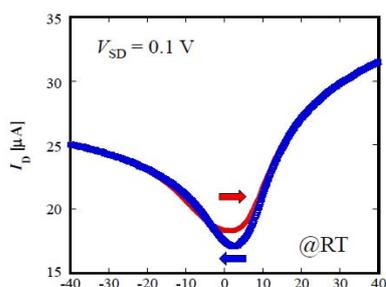


図2:(上)非局所測定におけるスピン注入信号のバイアス電流依存性。(右上)正側にバイアス電流(=電圧)を印加した場合の依存性。これが spin collection 側。(右下)負側のバイアス依存性 (spin injection 側)。

の分子を用いたスピン素子で観測されたバイアス依存性とは全く異なり、スピン信号はバイアス電圧によって劣化しないことを発見した。これはグラフェンのスピントランジスタ应用到極めて重要なマイルストーンの達成であり、材料の有する優位性と考えられる。興味深いことにこの特性はグラフェンとシリコン単結晶のみで見出されることが本研究から明らかになっており、IV族元素の有する特性と考えられる。この特性はグラフェンを伝導するスピンをコバルトに取り出す (spin collection) 時に強く現れ、グラフェンにスピンを注入する (spin injection) 時には相対的に弱くなるが、これはスピンドリフトの影響によるものである。更に強いバイアス電圧(=バイアス電流)を印加すると spin collection 側では(電流)¹の依存性、spin injection 側では(電流)²の依存性が現れることが最近の半導体スピントロニクス理論の発展により明らかとなった。これはグラフェンがキャリアの少ない系でありそれゆえにスピンドリフトの影響が顕在化することの傍証になっている。

この一連の実験で得られたさらに重要な点は、非局所スピン信号と局所スピン信号の強度比が 1:2 となるという理論で予測された振る舞いが観測されたことであり、分子を介したスピン流の系でこのような結果が得られたことは世界で初めてであることから、分子スピントロニクスという学問領域の基礎学理の構築に大きく資する結果を得たことである。

FET characteristics between Co electrodes



A gate voltage dependence of the spin signal

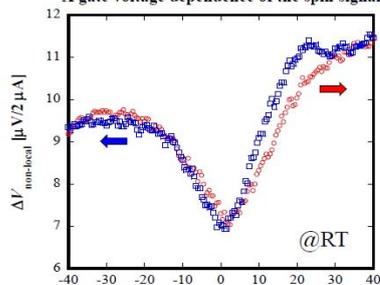


図3: 単層グラフェンのスピントランジスタ的動作の観測。

冒頭に述べたようにグラフェンを用いたスピントランジスタは、グラフェン中の電子が光速の 1/300 程度であるために超高速性と不揮発・再構成可能性を両立する論理回路の創出に向けて重要な役割を担う。そこで最も有効に伝導性を制御できる単層グラフェンを用いてス

ピントランジスタの試作を行った。前ページ図 3 がその結果である。左がコバルト電極間での電界効果トランジスタ動作であり、典型的な単層グラフェントランジスタの動作を示している。一方、右に示されているのが“スピン注入信号の”ゲート電圧依存性であり、両者はよい一致を示していることが分かる。理論の教えるところによれば、本研究の実験にあるようにグラフェンとコバルトの間にトンネル障壁層をいれないオーミックな(電氣的に透明な)状況では、スピン信号はチャネル(今の場合ではグラフェン)の伝導度に比例するはずであり、実験結果は理論から期待される振る舞いと一致する。以上からスピン注入信号はゲート電圧印加によって良く制御されている、即ちスピントランジスタ的な動作が観測されていると考えられる。

2.2 フラーレンを介したスピン流の制御

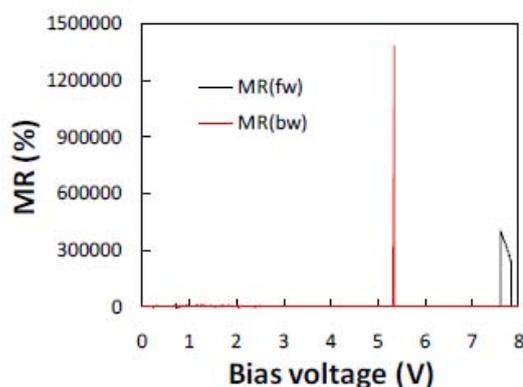
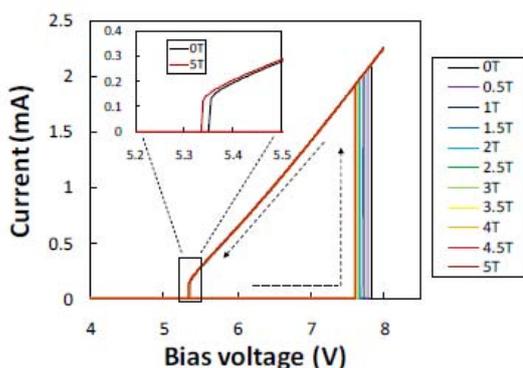
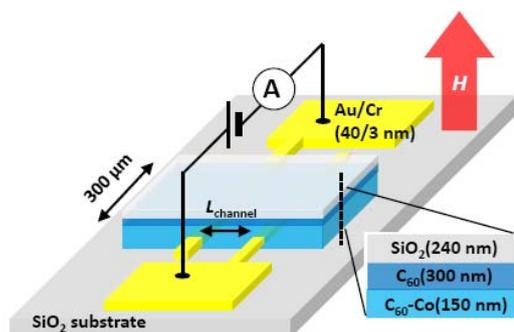


図4: (上)素子構造。(中)2 K における電流＝電圧特性の磁場依存性。電圧スイープによってヒステリシスが現われる。(下)磁気抵抗比。

フラーレンはバンドギャップが 1.6eV 程度の分子性半導体であり、トランジスタ特性や超伝導性を示すことから分子材料科学において重要な位置を占める分子である。本研究ではフラーレンの中でも特に C₆₀ に注目し、C₆₀ を介したトンネルスピン伝導現象を集中的に研究した。素子構造は C₆₀ マトリクス中にコバルト微粒子(粒子サイズ～2.5 nm)をほぼ均一に分散させたいわゆるナノコンポジット(グラニューラ)構造である。

本研究ではこのような素子では低温でクーロン＝ブロケード効果が発現すると同時に高次のスピン依存コトネルリング効果が発現することで、分子を用いない酸化物グラニューラ素子に比べて大きな磁気抵抗(MR)比が観測されることをまず明らかにしたが、このような素子を組成を最適化しつつ 20 K 以下の低温に冷却して電流＝電圧特性を測定すると、極めて顕著な磁気スイッチング効果が現われること、その MR 比は最大で 140 万%(2 K)でありこれは全てのスピントロニクス素子の中で最大であることを新たに見出した。理論面からの検討を同時に行い、特異な磁場依存のヒステリシスの発現とクーロンブロケードの閾値電圧のシフトが見られることから、「外部磁場がコバルト微粒子の電荷状態を制御する」「コバルト微粒子の電荷状態がその磁化配置を制御する」という機構が互いに絡み合った一種のマルチフェロイックな現象を新たに発見したことを明らかにした。

この機構の発現には様々な要素が必要であるが、C₆₀ は誘電率が小さいこと、バンドギャップが小さくコトネルリングが発現しやすいこと、コバルト粒子のサイズを小さく成長させることが可能であることなど分子が果たしている特有の役割があることが徐々に明らかとなっている。

2.3 ルブレ単結晶を介したスピンの制御

半導体性分子を介したスピンの制御はスピントランジスタの創出に非常に重要である。中でも分子性薄膜では伝導キャリアがホッピング伝導をするためにスピン拡散長が短いことが一般に予想される一方、バンド伝導が実現する分子性単結晶ではスピン拡散長が長いことが期待される。これを背景に、分子材料中で最も高い電界効果移動度が観測されているルブレ単結晶を対象に電氣的なスピン注入・純スピン流生成を目指した。現在までに Bethe のダイオード理論に基づいたニッケル/ルブレ単結晶界面のショットキー障壁高さの見積もり(0.46 eV)など要素技術・基礎知見の蓄積はあるが、目標を達成するに至っていない。この原因は考察の結果、ルブレ単結晶に内在するキャリアトラップ、強磁性金属とルブレ単結晶の間の大きなショットキー障壁高さなどにあることが明らかとなった。これらの諸問題を解決し、目標を達成するには地道な材料の質の向上、新たな実験手法の開拓、物理コンセプトの提案が求められると考えている。

3. 今後の展開

スピントランジスタなどの従来のシリコンテクノロジーで実現できない新機能素子の創出・発展への希求はさらに高まっている。一方、グリーンテクノロジー開拓への期待から、IV 族材料のポテンシャルへの期待も同様に高まっている。分子スピントロニクスはこの期待に応えるべく、更なる発展を遂げなければならない。

その観点から、まずグラフェンデバイスにおいてはバンドギャップ制御によるトランジスタ特性の向上、強磁性体/グラフェン界面制御によるスピン注入効率の向上とスピン信号強度の増大が直近に求められる解決課題であり、これに向けて地道な基礎実験を積み重ねることが必要である。一方、分子性単結晶をはじめとする有機分子系材料に関しては信頼性あるスピン注入、スピン輸送がまず求められており、同時に電氣的な手法以外の新たな実験・評価手法やスピン情報の伝播方法の考案も非常に重要であり、これらが新たな分子スピン素子を創出するキーテクノロジーとなりうる。本研究により、分子を介したスピン伝導の物理に関する基礎学理や実験技術の基盤整備が進んだことで、今後数年程度でこの分野に基礎・応用両面で大きなブレイクスルーを喚起できると期待される。

本研究の by-product とも言える新奇な磁気スイッチング効果に関しては基本的にコバルト粒子の粒径制御によるより大きな効果、より高い温度での効果が期待できることから、その観点からデバイス展開をしていくことが重要である。

4. 自己評価

グラフェンを介したスピンの制御に関しては幾つかの重要な知見(室温における局所 MR 効果の観測、特異なバイアス依存性の発見など)を得るとともに、局所法・非局所法を有効に使い分ける中で分子スピントロニクスの基礎学理の構築を行うことができたほか、初歩的なスピントランジスタ的動作まで確認できたことから、或る程度所定の目標を達成できた部分があると考えられる。但し、さきがけ研究提案時に含めていた長いスピンコヒーレンスの実現については道半ばの観があり、この点は今後精力的に研究を進めていかなければならない点であろう。

一方分子性単結晶へのスピン注入・スピンデバイス創出の面では、by-product である磁気スイッチング効果の発見・超巨大 MR 効果の発見があったものの、所定の目標を達成したとは到底言いがたい。しかしながらブレイクスルーをもたらすことのできる幾つかの予備実験に徐々に成功しており、ここ 1,2 年のタイムスケールでの目標達成に向けて全力を傾注して邁進していきたいと考えている。

5. 研究総括の見解

白石研究者は、炭素でできたグラフェンにスピンを流すという非常に挑戦的な課題に取り組んできました。

彼は、多層グラフェンにおいて4端子非局所法を使った地道で慎重な実験によって、世界で初めて信頼性のある純スピン流の注入と、それによる巨大磁気抵抗効果を室温で検証しました。以前からグラフェンを使った磁気抵抗効果の実験結果は多数発表されていましたが、それらは、電極に使った磁性材料にもとづく異方性磁気抵抗効果を測定していたので信頼性がないことも指摘しました。さらに単層グラフェンでも純スピン流の注入に成功し、ゲート電圧によってスピン注入電流が制御できるというスピントランジスタ動作にも成功しました。スピン拡散長が予想されるより、かなり短いという謎は期間中に解明には至りませんでした。所期の成果は十分得られたといってもよいでしょう。

彼は、さらにルブレンなど有機分子にスピン流を流す研究に挑戦をつづけていますが、なかなか実現の道のりは遠いようです。その代わりに、副産物として、フラーレン・コバルト微粒子ナノコンポジット材料で、低温ながら磁気スイッチング現象と140万%におよぶ巨大磁気抵抗効果を発見しました。

彼は、素粒子物理学を専攻したのち、企業での半導体研究開発に転じ、海外での研究生活を経て、大学に職を得たという異色の存在で、その豊富な経歴に裏打ちされた幅広い知見とプロ意識は、齊藤研究者とともに、領域会議での議論を活性化し、ある意味の緊張感を与え、領域運営に大いに貢献しました。今後とも、世界の分子スピントロニクス先導者として、この分野を引っ張ってってくれるものと大いに期待しています。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

査読付き論文

- 1) M. Shiraishi and T. Ikoma, "Molecular spintronics" (Review Article), Physica E, in press.
- 2) M. Shiraishi et al., "Graphene spintronics", Proc. SPIE 77600H-1.
- 3) Z. Tang, S. Tanabe, D. Hatanaka, T. Nozaki, T. Shinjo, S. Mizukami, Y. Ando, Y. Suzuki and M. Shiraishi, "Investigation of spin-dependent transport properties and spin-spin interactions in a CuPc-Co nano-composite system", Jpn. J. Appl. Phys. 49, 33002 (2010).
- 4) M. Shiraishi, K. Muramoto, N. Mitoma, T. Nozaki, T. Shinjo and Y. Suzuki, "Analysis of degradation in graphene-based spin valves", Appl. Phys. Exp. 2, 123004 (2009).
- 5) M. Shiraishi, M. Ohishi, R. Nouchi, N. Mitoma, T. Nozaki, T. Shinjo and Y. Suzuki, "Robustness of spin polarization in graphene-based spin valves", Adv. Func. Mat. 19, 3711 (2009).
- 6) D. Hatanaka, S. Tanabe, H. Kusai, R. Nouchi, T. Nozaki, T. Shinjo, Y. Suzuki and M. Shiraishi, "Enhanced magnetoresistance due to charging effects in a molecular nano-composite spin device", Phys. Rev. B 79, 235402 (2009).
- 7) R. Nouchi, M. Shiraishi and Y. Suzuki, "Transfer characteristics in graphene field-effect transistors with Co contacts", Appl. Phys. Lett. 93, 152104 (2008).
- 8) M. Shiraishi, H. Kusai, R. Nouchi, T. Nozaki, T. Shinjo, Y. Suzuki, M. Yoshida and M. Takigawa, "A nuclear magnetic resonance study on rubrene-cobalt nanocomposites", Appl. Phys. Lett. 93, 53103 (2008).
- 9) Y. Sakai, E. Tamura, E. Shikoh, T. Shinjo, V.K. Lazarov, A. Hirohata, Y. Suzuki and M. Shiraishi, "A novel magnetic switching effect in a C₆₀-Co nanocomposites system", submitted.

著書

- 1) M. Shiraishi, “Graphene Spintronics” (“Graphene; The future”, American Scientific Press, 2011).

解説記事など

- 1) 白石誠司「有機分子を介したスピン依存伝導の観測」(応用物理学会誌「応用物理」小特集「基礎から学ぶスピンを操る科学・技術」2009年3月号).
- 2) 白石誠司 “Spin-dependent Transport and Spin Current in Molecular Spin devices”, 「まぐね」 「スピン流に付随した新現象と応用」トピックス (2009年2月号).

他 5 件

(2)特許出願

なし

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

- ・ 2007 年度応用物理学会論文賞(2007 年 9 月)
- ・ 国際会議招待講演 19 件(多内定済み・3 件)及び
国内学会招待講演 13 件(他内定済み・2 件) 計 37 件

研 究 報 告 書

「スピン偏極の外的制御とチューナブルスピン源の創製」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：谷山 智康

1. 研究のねらい

電子の電荷制御に基づく半導体エレクトロニクスがコンシューマ向け電子機器の創出に革命的進歩をもたらしたことは、物理学の基本法則とそれを活用した学術研究が人類の生活環境の改善に直接的な貢献をした良い例となっている。一方、電子は電荷に加えスピン自由度を持つことが広く知られており、電子スピンを制御することで、従来の電荷制御に基づく技術では実現しえない高機能、多機能エレクトロニクスへの更なる展開が期待されている。この電子のスピン制御に基づくエレクトロニクス(スピントロニクス)デバイスを創出するためには、電子のスピン自由度を一方向に揃えた電子群を半導体等の非磁性体に注入(スピン注入)し、そのスピンの配向方向を制御する技術の開発が必須となる。これは半導体エレクトロニクスにおける電荷制御に基づく電界効果トランジスタに類似したスピン制御デバイスの創出に繋がる基本要素技術であり、特にスピン注入技術はスピントロニクスの根幹をなす最も重要な技術と考えられる(図 1-1)。以上のような観点から、本研究では、電子のスピン配向の程度を外的に制御して非磁性体に注入することができるスピン注入源の開発を目指し、その基本原理の検証と物理的メカニズムの解明を狙っている。

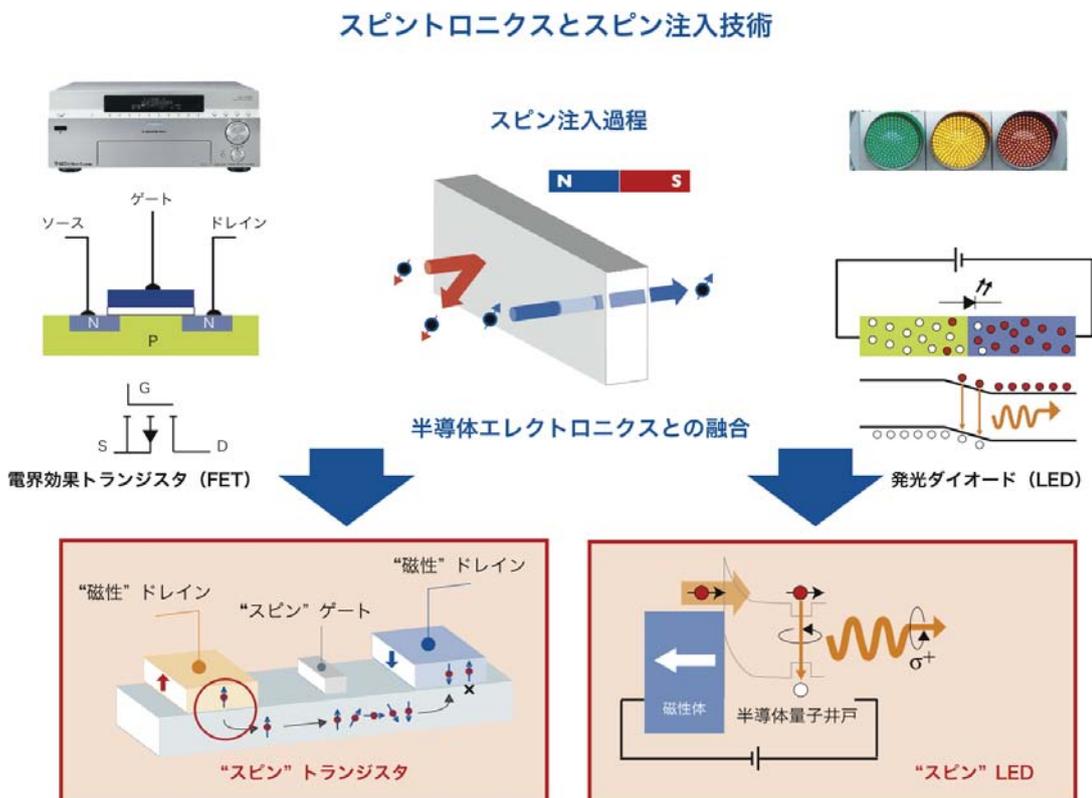


図 1-1 スピントロニクスにおけるスピン注入技術とその応用。半導体エレクトロニクス技術にナノ磁性(スピン)を融合化することで、従来の CMOS テクノロジーを凌駕する新しい機能性デバイスの構築が期待されている。

2. 研究成果

本研究では、電子のスピンの配向を外的に制御することが可能なスピン注入源の開発に向けて、その根幹をなす重要な物理的機構として以下の3機構について実験的に検討した。その具体的研究成果を以下に記す。

(1) 反強磁性-強磁性相転移型 FeRh 合金細線におけるスピン注入誘起磁気相転移

原子組成 1:1 を持つ FeRh 合金は、CsCl 構造を形成し室温で反強磁性基底状態を示す。また、400K 付近で約 0.3% の格子の増大と 40% 程度の電気抵抗の減少を伴い、強磁性状態に磁気相転移する(図 2-1、2-2)。このような磁気的性質はごく限られた物質群においてのみ見られる特異な物性として非常に興味深い。本研究では、この磁気相転移を利用することで、スピン配向の程度が異なる電子群を創出するためのスピン源を提案している。一般に、反強磁性状態では、隣り合う原子の磁気モーメントは反対向きに配列しており、その結果、物質中を流れる伝導電子の持つスピンの配向はランダムとなる。一方、強磁性状態では、全ての原子磁気モーメントは同一方向に配向するため、物質中を流れる伝導電子のスピンの配向はある程度揃えられている。このことは、強磁性状態、反強磁性状態等の物質の磁気秩序を制御することができれば、スピン配向の程度が異なる電子を持つスピン源の創出が可能であることを意味する。本研究では、図 2-1(c)に示すようにスピン配向した電子群を反強磁性-強磁性磁気相転移を示す上記 FeRh 合金に注入することで磁気相転移を誘起できるかどうかについて実験的に検証した。これが可能となれば、外的にスピン配向を制御することが可能なスピン注入源を創出するための基礎的知見が得られる本技術基盤の確立に繋がると考えられる。以下に本研究での具体的な研究成果の詳細を記す。

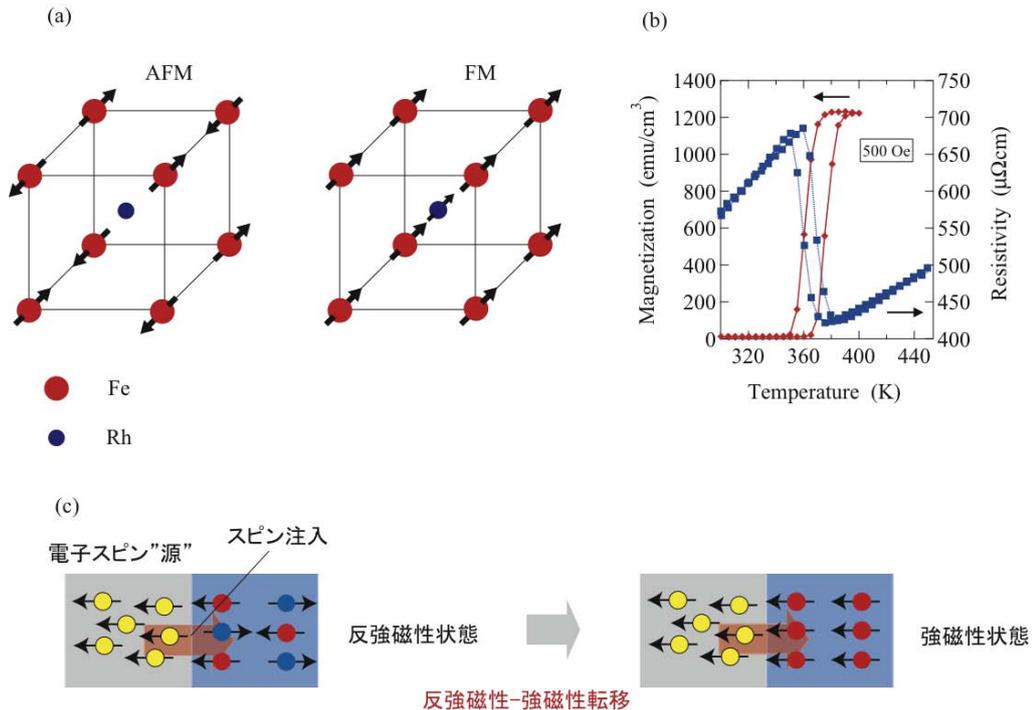


図 2-1 (a) FeRh 規則合金の CsCl 型結晶構造と磁気構造。左図、右図がそれぞれ反強磁性状態 (AFM)、強磁性状態 (FM) を示す。(b) FeRh 合金の電気抵抗および磁化の温度依存性。約 370K 付近に急激な磁化の上昇を伴う反強磁性-強磁性相転移が観測される。それに伴い電気抵抗が 40% 程度減少する。(c) FeRh 合金におけるスピン注入誘起磁気相転移の概念図。スピン偏極電子を反強磁性状態に注入することで、強磁性状態への磁気相転移を誘起させることができる様子を表している。

FeRh薄膜をマグネトロンスパッタリング法によりエピタキシャル成長し、電子線リソグラフィおよびアルゴンイオンエッチングを用いて $60\ \mu\text{m}$ 程度の線幅を持つ細線形状に微細加工した。FeRh細線にスピン配向した電子群を注入するために、さらに作製したFeRh細線に強磁性コバルト細線を接合し、最終的な測定用試料とした。図 2-2(a)に示すように、測定用試料には線幅 $1\ \mu\text{m}$ の多数のコバルト細線が $1\ \mu\text{m}$ 間隔で配置されている。コバルトとFeRhとでは電気抵抗率が 2 桁程度異なるために、FeRh細線に沿って電流を流すと、コバルトを接合した部分では図 2-2(b)に示すように多くの電子はコバルト細線を流れる。その結果、本測定用試料では、それぞれのコバルト細線の両端部直下において、強磁性コバルトからFeRhへスピン配向した電子が注入される。また、本研究では、FeRhの電気抵抗が磁気相転移に伴い大きく変化することから(図 2-2(b))、FeRh細線の電気抵抗変化を計測することで磁気相転移を観測する手法を採用した。図 2-2(c)に上記測定試料の電流-電圧特性を示す。強磁性コバルト細線からFeRh細線にスピン配向した電子を注入すると、電流密度約 $1.5 \times 10^7\text{A}/\text{cm}^2$ 付近で反強磁性-強磁性磁気相転移を示す明瞭な屈曲(電気抵抗の減少)が観測される(図 2-2(c))。この電気抵抗の減少はFeRh細線に電子群を注入することにより発現したFeRh細線におけるスピン注入誘起反強磁性-強磁性相転移に起因する推察される。一方で、物質に電流を流すと物質にはジュール熱が生じ、物質の温度が上昇する。そのため、上記の反強磁性-強磁性相転移はスピン配向した電子を注入した結果であるか、もしくはジュール熱に伴う温度上昇による結果であるかを判断することができない。そこで、強磁性コバルト細線の代わりに非磁性の銅細線を用いて同様にFeRh細線に電流を注入する参照実験を行った。銅は非磁性体であるため、注入される電子群はスピン無配向の状態であるため、相転移が生じる電流密度を両方で比較することで、スピン配向した電子による効果を判別することができる。実際、図 2-2(d)に示す測定結果に見られるように、銅細線を用いた場合に磁気相転移を誘起するためには、コバルト細線を用いた場合と比較して 13%程度大きな電流密度が必要であることが明らかとなり、スピン配向した電子が反強磁性-強磁性磁気相転移を誘起する上で重要な役割を果たしていることが実証された。

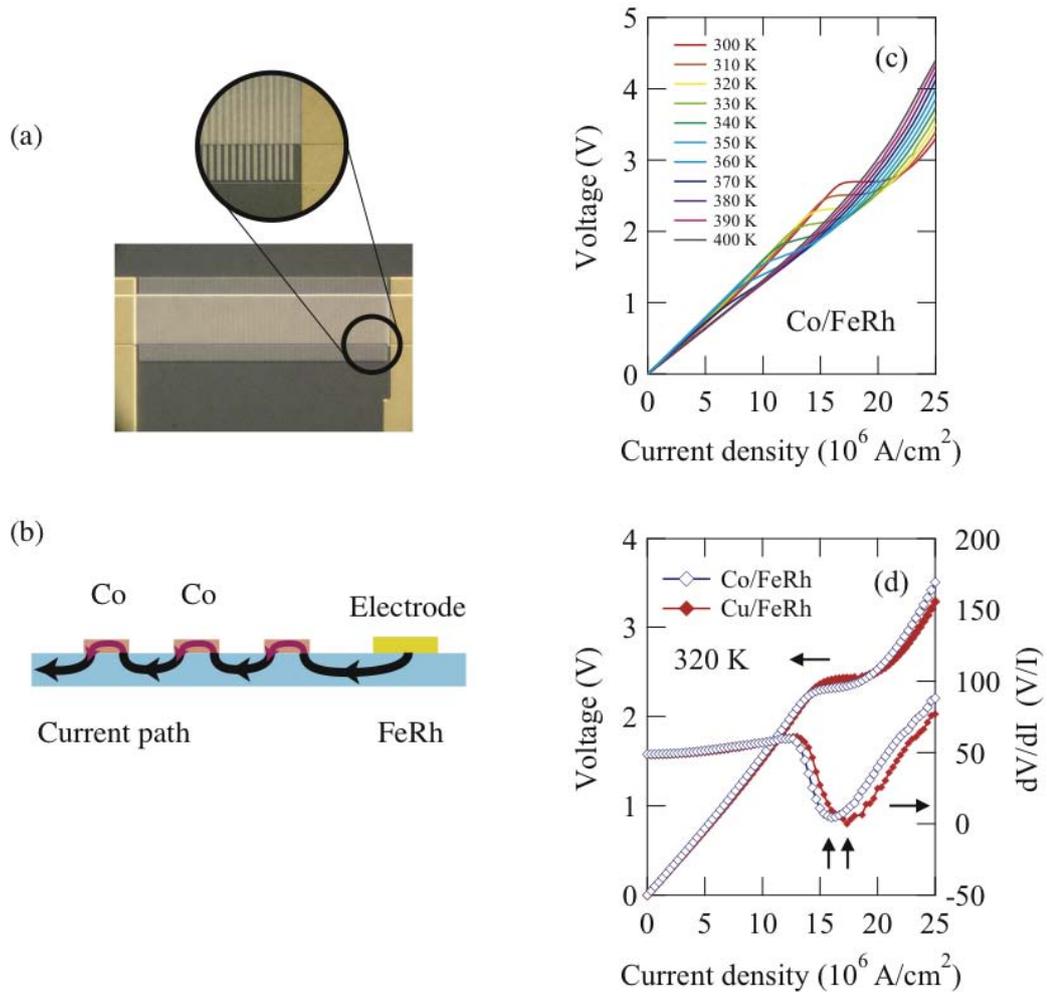


図 2-2 (a) コバルト細線/FeRh細線接合試料の光学顕微鏡写真。(b)接合試料を流れる電流パスの模式図。(c) 接合部付近におけるFeRhの電流-電圧特性。電流密度約 $1.5 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$ 付近で磁気相転移に伴う屈曲が観測される。(d)320Kにおける接合部付近でのFeRhの微分抵抗。強磁性コバルトを接合した場合と非磁性銅を接合した場合とは、磁気相転移が誘起される電流密度に 13%程度の相違が現れる。

次に図 2-3(a)に示すように単一のコバルト細線からFeRh細線へスピン偏極電子を注入し、それに伴う磁気相転移の挙動を電氣的に検出した。本試料は、非磁性の電極からの電流注入効果を同時に計測できるよう、FeRh細線にコバルト細線に加え銅細線を接合した構造となっている。図 2-3(b)-(d)にコバルト細線/FeRh細線注入端および銅細線/FeRh注入端でのFeRhの電気抵抗率の温度依存性を種々の電流密度に対して測定した結果を示す。電流密度が $8 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ の時にはコバルト細線/FeRh注入端および銅細線/FeRh注入端におけるFeRhの電気抵抗率の温度依存性に変化が認められない。一方、電流値を増加させると両者に顕著な相違が現れることがわかる。注目すべきは、銅細線/FeRh注入端では電流密度を変化させても基本的な振る舞いに変化が見られないのに対して、コバルト細線/FeRh注入端ではFeRhが反強磁性を示す370K以下において電流密度の増加に伴い電気抵抗率が低下する点である。この結果は、コバルトからのスピン偏極電子の注入によって接合端付近から徐々にFeRhの反強磁性状態が強磁性状態に変化していることを示唆している。また、銅細線/FeRh注入端で電流密度に依存した効果が全く見られないことから、スピン偏極電子の注入がFeRhの磁気状態に変調を与えたと考えるのが妥当である。さらに、低電流密

度の際には、電気抵抗率に温度ヒステリシスが見られるのに対して、電流密度の増加に伴って温度ヒステリシスが消失する傾向が観測される。この結果は磁気相転移挙動が電流密度に依存することを示唆するが、その詳細については現在のところ検討中である。

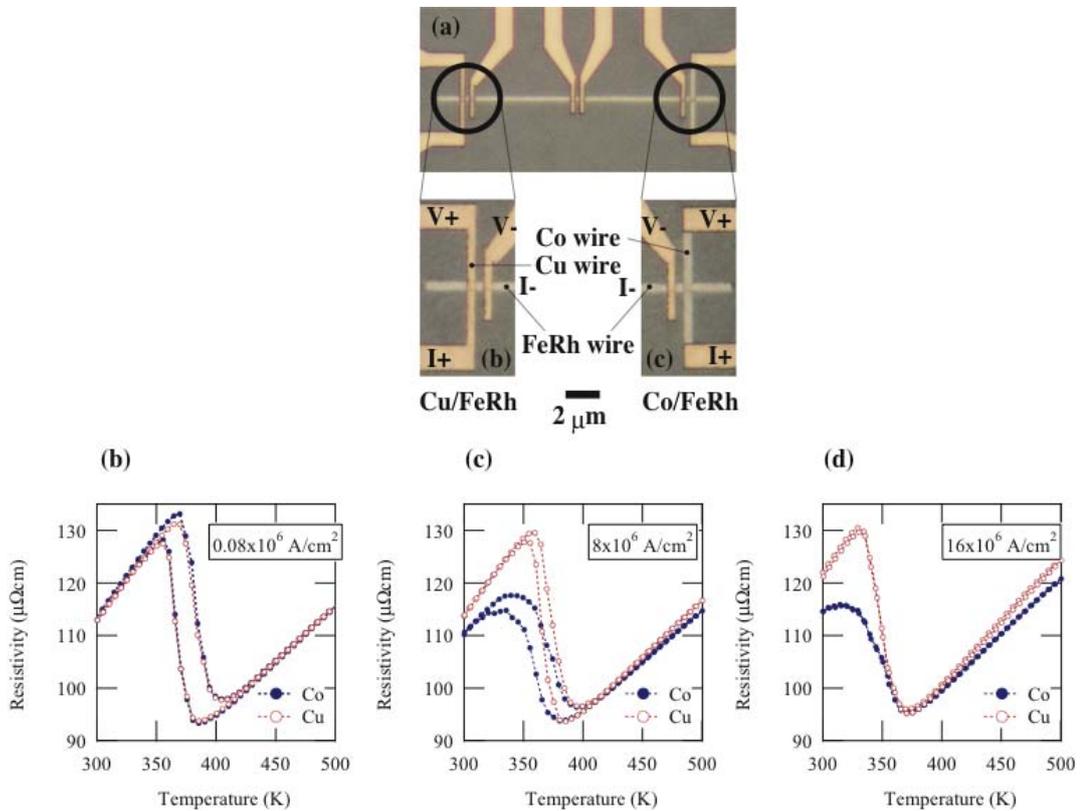


図 2-3 (a) 単一コバルト(銅)細線/FeRh 細線接合試料の光学顕微鏡写真。(b)-(d) 異なる電流値に対して測定した接合部付近における FeRh の電気抵抗率の温度依存性。

以上の結果より、本研究ではスピン配向した電子を FeRh 合金細線に注入することで反強磁性-強磁性磁気相転移を誘起することができることを世界で初めて実証することに成功した。本成果は、スピン配向した電子群を注入することで誘起される磁気相転移を利用することで、外的に制御可能なスピン源を創出するための基盤技術の構築のための基礎的知見を提供するものである。

(2) 磁性絶縁体／半導体量子井戸ヘテロ構造におけるスピン注入機構の制御

強磁性金属のスピン配向した電子群を半導体に高効率に注入するためには、強磁性金属／半導体界面におけるスピン伝導機構の解明と、注入された電子のスピン配向の明確な評価手法の開発が必須である。そしてこれら要素技術を構築することによって、例えば図 2-4(a)に示すようなスピン配向した電子の注入による円偏光発光 LED 構造(スピン LED)が実現される。上記の課題の克服に向けた従来の研究として、後者に関しては、既に図 2-4(a)に示すようなデバイス構造において、半導体量子井戸における電子-正孔再結合により生じる発光の円偏光度が量子井戸に注入された電子のスピン配向の程度と直接的な対応関係を持つという理論的裏付けに基づいて定量化する手法が確立している(図 2-4(c))。一方、前者に関しては多くの点で不明な点が多い。特に界面付近における電子状態の変化がスピン配向した電子の伝導過程に大きな影響を与えようと考えら

れている。本研究では、フェリ磁性体マグネタイトの電荷秩序化に伴う電子状態の変化を利用することで、半導体量子井戸に注入される電子のスピンの配向の程度を制御するための手法を提案し、実証した。以下に具体的な研究成果の詳細を記す。

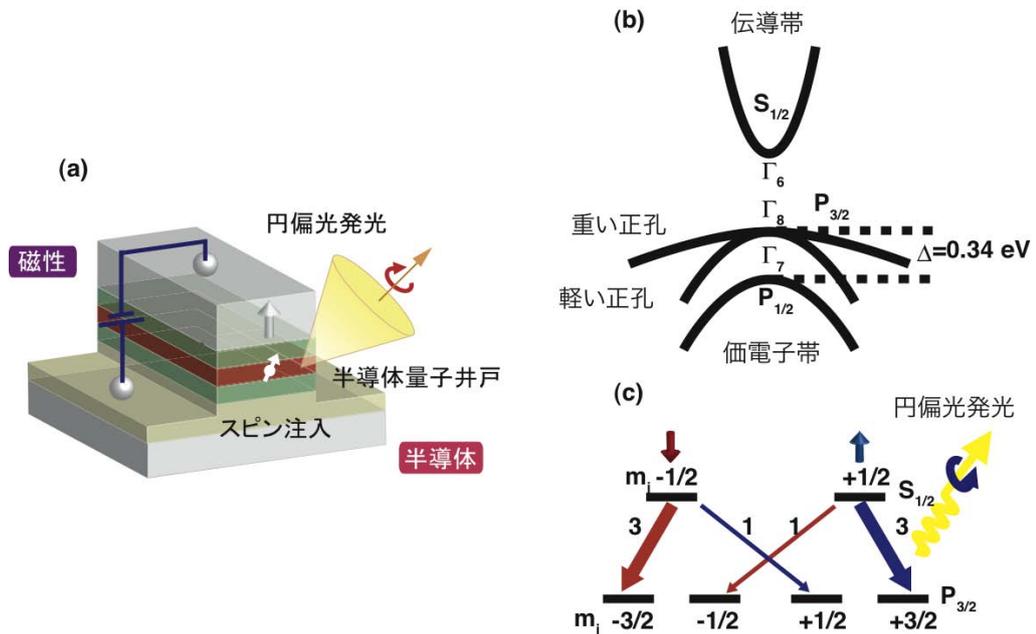


図 2-4 (a)強磁性体から半導体へのスピン注入と円偏光発光素子(スピンLED)の概念図。(b)GaAs のバンド構造の模式図。(c)スピンの依存した電子-正孔再結合過程。100%スピン偏極した電子が GaAs に注入されると、50%の円偏光度を持つ円偏光発光が生じる過程を表している。このことから発光の円偏光度を解析することで GaAs に注入された電子のスピンの配向の程度を見積もることが可能となる。

マグネタイト(Fe_3O_4)は、室温でフェリ磁性磁気秩序を持ち電気的には金属的性質を示すが、温度の低下に伴って約 120Kにおいて Fe^{2+} イオンと Fe^{3+} イオンが秩序的に配列する絶縁体相に相転移する。これはVerwey転移として広く知られている現象である。これを半導体量子井戸表面に接合し、ナノメートルスケールのマグネタイトを介して電子群を半導体量子井戸に注入すると、室温では、マグネタイトが金属的フェリ磁性体であることからマグネタイト中のスピン配向した電子が半導体へと注入される(図 2-5(a)左図)。一方、温度がVerwey転移温度よりも低温になると絶縁的電気特性を示すフェリ磁性体へと変化するため、電子はマグネタイト層をトンネル伝導して半導体へと注入される(図 2-5(a)右図)。その際、トンネル障壁としてのマグネタイトはフェリ磁性体であるため、電子が持つスピンの方向によってトンネル障壁の高さが異なり、結果としてトンネル確率は電子のスピンの方向に依存することになる。このことは、マグネタイトトンネル障壁が一方のスピンの持つ電子を良く透過させ、他方のスピンの持つ電子を透過させない、いわゆるスピンのフィルターとしての役割を担うことになる。この相転移現象を利用すると半導体にスピン配向の程度の異なる電子群を注入することが可能となる。

これを実証するために本研究では、マグネタイト薄膜を反応性分子線エピタキシー法により GaAs/AlGaAs 量子井戸上に成長し、マグネタイト上に取付けた電極から GaAs 量子井戸に電子を注入し、その際に半導体量子井戸から生じる発光の円偏光度を詳細に解析することによって、注入された電子群のスピンの配向の程度(スピン偏極率)を定量化した。具体的には、図 2-5(b)に示すように電子注入により生じた GaAs 量子井戸からの発

光の右回り円偏光成分と左回り円偏光成分を分離計測することで発光の円偏光度を算出し、それに基づいて注入された電子群のスピンの偏極率を定量化した。その結果、発光は全ての温度範囲で部分円偏光化しており、スピン配向した電子群が半導体に注入されることが確認された。さらに興味深いことに、図 2-5(d)に示すように、室温で注入された電子群のスピンの偏極率は10%程度であるのに対して、温度を低下させるとVerwey 転移温度である 120K 以下においてスピンの偏極率が急激に増大し、10K においては44%にまで到達することが明らかとなった。この大きな注入電子のスピンの偏極率は従来のスピン注入に関する報告と比較しても特に大きく、絶縁性磁性体を介したトンネル伝導が半導体への高効率なスピン注入に有効であることを初めて明確に示した成果と言える。

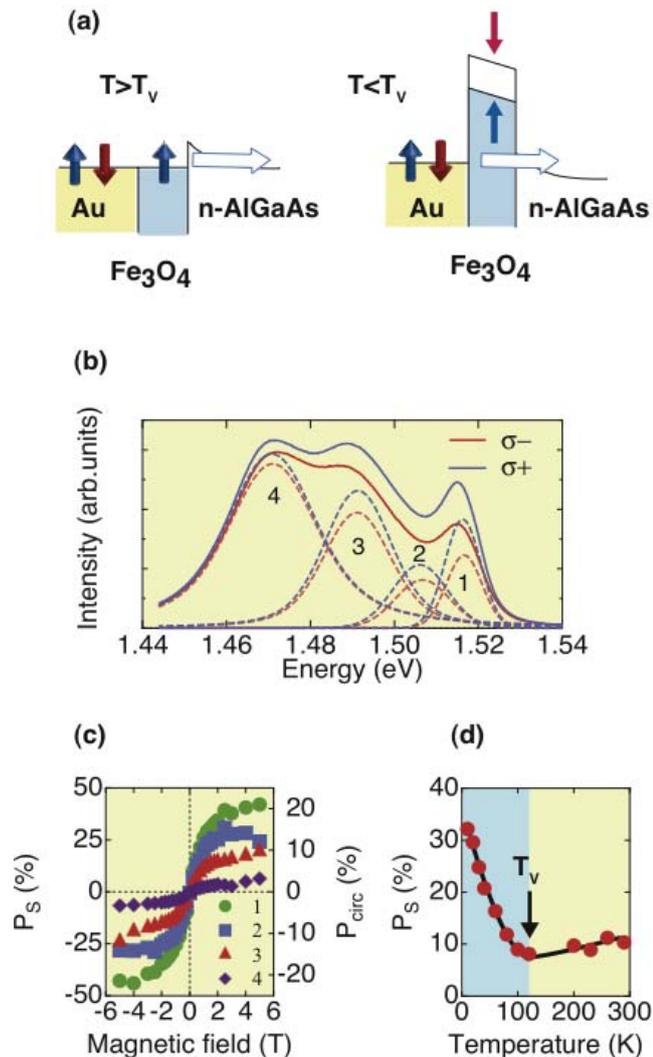


図 2-5 (a)マグネタイトから GaAs 量子井戸へのスピン注入過程。左図は Verwey 転移温度以上、右図は Verwey 転移温度以下でのスピン注入過程を模式的に表している。(b)10K における発光スペクトルの右回り円偏光成分(σ⁻)と左回り円偏光成分(σ⁺)。それぞれの発光スペクトルが 4 本のサブピークから構成されることがわかる。サブピーク 1 が GaAs 量子井戸からの発光であり、サブピーク 2-5 は GaAs バルク由来の発光である。(c)各サブピークに対する円偏光度とそれから算出された注入電子のスピンの偏極率の磁場依存性。5T において 44%のスピンの偏極率が得られている。(d) 注入電子のスピンの偏極率の温度依存性。Verwey 転移である 120K 以下においてスピンの偏極率が急激に上昇することがわかる。

以上の結果より、マグネタイトの示す Verwey 転移を利用することで、半導体へ注入される電子群のスピンの配向を制御することが可能であることを世界で初めて実証することに成功した。本成果は、磁性体の電荷秩序化相転移を利用することで外的に制御可能なスピン源を創成するための基盤技術を提供するという観点から大きな意義を持つと考えられる。

(3) 磁性金属／半導体量子井戸ヘテロ構造におけるスピン伝導機構の解明と電圧制御

上記(2)では磁性体から半導体へスピン配向した電子群を注入する技術について検討した。本研究項目では、半導体中の電子が磁性体へと伝導する過程の電子のスピンの配向依存性について詳細に調査することで、磁性金属／半導体接合界面を介した電子透過率の制御手法について検討した。一般に半導体量子井戸に円偏光を照射すると量子力学的法則に基づいてスピン配向した電子群を半導体量子井戸に生成することができることが広く知られており、円偏光スピン励起手法と呼ばれている(図 2-6)。これは図 2-4(c)に示した円偏光発光過程の逆過程に対応する。本研究では、円偏光スピン励起手法を利用してスピン配向した電子(スピン偏極電子)を半導体量子井戸中に生成し、そのスピン偏極電子が磁性薄膜／半導体界面を透過する際の透過率のスピンの依存性を図 2-6 に示す光電流計測に基づいて評価した。その結果、接合界面に印加する電圧に依存して電子透過率のスピンの配向依存性が大きく変化し、特定の電圧印加時にはそのスピンの配向依存性の符号が反転することを見出すことに成功した。以下にその詳細を記す。

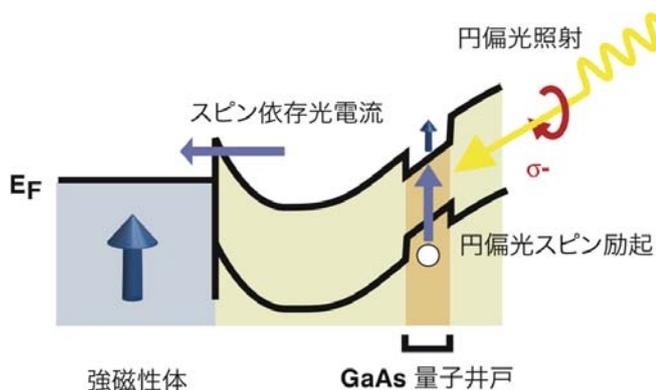


図 2-6 円偏光照射により GaAs 量子井戸にスピン偏極電子が励起され、励起されたスピン偏極電子のスピンの向きに依存した光電流が観測される過程。

分子線エピタキシー法により膜厚 5nm を有する Fe 薄膜を GaAs/AlGaAs 量子井戸構造上に成長し、これに光電流計測用の電極端子を取付け試料とした。この試料に対して、膜面に垂直に磁場を印加して Fe を磁化させた状態で、右回り円偏光、左回り円偏光を膜面に垂直に交互に照射する(実際には、光弾性変調器を用いて 50kHz の周波数で照射光の円偏光度を変調した)。右回り円偏光、左回り円偏光の照射によりそれぞれ反対向きにスピン偏極した電子群を生成することが可能であることから、それぞれの円偏光照射により生じる光電流の差が、界面を介した電子透過率のスピンの配向依存性の指標を与えることとなる。このようにして測定した光電流の差 (ΔI)、すなわち電子透過率のスピンの配向依存性を界面に印加したバイアス電圧の関数として評価すると、図 2-7(a)(b)に示すようにバイアス電圧により明瞭に透過率のスピンの配向依存性が変化することが明らかとなった。特にバイアス電圧が特定の値に一致した時には、そのスピン依存性が反転する現象(図 2-7(a)の ΔI に見られるくぼみ)が観測された。この現象は、図 2-7(d)に示す

ように界面に形成される局在化した電子準位 (IRS) と光照射により生成された電子のエネルギーとが一致する際に特異的に現れる局在準位を介した共鳴トンネル伝導過程として理解することができる。一方で理論的には、Fe/GaAs 接合界面にはスピン分極した局在化した準位が形成されることが予測されており、このようなスピン分極した界面状態を介した電子伝導によっても上記の結果が理解される。このように特定の電圧を接合界面に印加することで界面を介した電子透過率のスピン配向依存性が変化するという知見は、印加電圧を操作することで界面の電子スピン透過率を制御可能であることを示している。

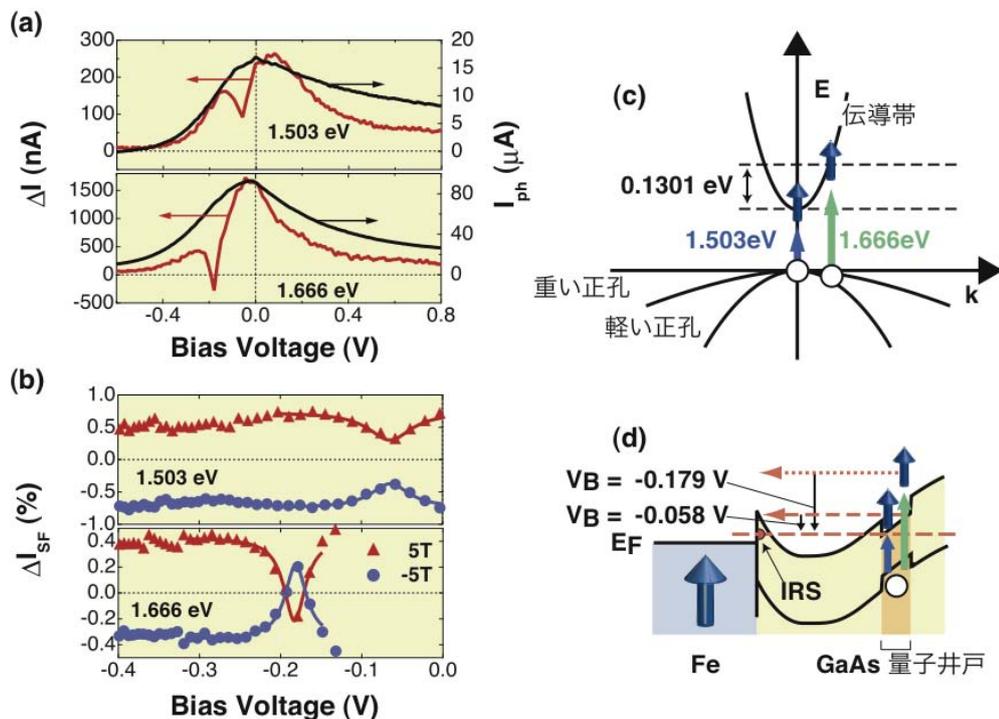


図 2-7 (a)スピン依存光電流成分(左軸)および全光電流(右軸)のバイアス電圧依存性。照射円偏光のエネルギーが異なる2つの場合に対して図示してある。(b)全光電流で規格化したスピン依存光電流のバイアス電圧依存性。磁場の反転に伴い符号が反転し、また、特定のバイアス電圧においては、急激なスピン依存性の減少および符号反転が観測される。(c)円偏光照射時におけるスピン偏極電子の励起過程の模式図。(d)界面に形成される局在準位 (IRS) を介したスピン依存伝導を示す模式図。バイアス電圧を印加することで励起電子のエネルギーと界面局在準位とが一致する際に共鳴トンネル伝導が生じる様子を表している。

以上の結果より、Fe/AlGaAs 界面に形成される局在準位を介した電子伝導が生じるときにおいてのみ電子透過率のスピン依存性が反転するという本研究において初めて見出された知見を利用することで、磁性体/半導体接合界面での電子伝導のスピン依存性を電圧により制御可能であることを実証することに世界で初めて成功した。本成果は、電圧制御可能なスピン源を創成するための基盤技術の構築に貢献できるものと期待できる。

以上のように、本研究では上記 3 研究項目について外的に制御可能なスピン源の創成に向けた新手法を提案し、基礎的知見の収集を通してスピン源への適用の可能性を検討した。いずれも世界に先駆けて見出された独自性の高い研究成果と言える。

3. 今後の展開

上記の研究において得られたスピン配向の程度を外的に制御するための技術基盤に関する知見は、現段階ではその原理が実証された段階であり、それを実際に利用可能なスピントロニクスデバイスに適用するためには、今後どのような物質が最適であり、それに向けてどのような新たな物質開発が必要となるのか等、検討すべき事項は多い。また、さらにはそれをエレクトロニクスデバイスとして組込むときに生じる様々な制約を克服することで初めて実際のデバイスとしての動作が可能となってくる。そのため、本研究は未だ原理実証段階の黎明期であると言わざるを得ず、我々を含め多くの研究者の更なる研究と努力により、本研究で得られた成果が人類の生活において活用されるような技術に育ち展開されることを切に願っている。

4. 自己評価

研究課題を採択頂いた当初は研究室を立ち上げたばかりで、研究施設も十分とは言える状況でなく、そのような状況においてさきがけ研究は開始された。本プロジェクト研究の目的のために当初選択した物質は、1年間取り組んではみたが、あまり筋が良くなく、研究総括、アドバイザーの先生のご助言で研究開始1年後に思い切って物質を変える決断をした。薄膜成長において全く異なる物質への変更は一からのスタートを意味し、残り2年間でどこまで目的を達成することができるか不安な気持ちもあったが、結果としてこれが功を奏し当初の予測をある程度実証することができた。また、当初計画としては単にスピン偏極率の評価に利用するだけの目的で想定していた半導体量子井戸へのスピン注入に関する実験は、予想以上に大きく進展し、新しいスピン偏極率の制御法の提案、実証にまで展開することができた。このような成果を挙げることができたことは、ひとえに研究総括、アドバイザーの先生が長期的視野で研究の進展を見守り、的確なご助言を下されたことによると大変感謝している。一方で、積み残した仕事も多く、実際スピン源の原理とその実証は実現できたが、スピン源を創成しその動作を確認するまでには至っていない。このような積み残した課題やさらに本プロジェクトでの成果から波及的に得られた研究課題について引き続き研究を推進してゆきたいと考えている。また、本研究に関連して国際的な共同研究の提案を頂いたことも本プロジェクトの成果として今後の研究活動における大きな励みとなっている。研究開始当初とは異なり研究設備もかなり充実したものとなったことを付記する。

5. 研究総括の見解

谷山研究者は、外部からスピン偏極度を制御できるスピン注入源を作製しようとする独創的かつ挑戦的な課題に取り組んできました。

スピントロニクスにおいては、強磁性の金属電極からスピン偏極した電子を半導体などの磁気をもたない材料に注入するのですが、スピン偏極度はいわば作り付けで外部から制御することができませんでした。谷山研究者は、次に述べる3つの方法で外部から制御することを提案し、いずれにおいても原理的にこれらを実証することができました。

(1) まず一つは、ある温度で反強磁性-強磁性の磁気相転移を示す物質を使って、相転移点付近の電流注入で磁気相転移を誘起しようという試みです。当初、彼は、以前から研究を進めていたマンガン・ガリウム・炭素の合金で研究を進めましたが、顕著な電流注入制御の効果が検証できませんでした。それで、開始1年後になって、領域会議におけるアドバイスを受け入れ、相転移温度が高い鉄ロジウム合金に変更することを決断し、この物質上にコバルトの細線を載せた微細構造において電流注入による反強磁性-強磁性相変化を実現することに成功しました。(2) つぎに、金電極/マグネタイト/半導体量子井戸というヘテロ構造において、温度によるマグネタイトの金属・絶縁体転移を使ってスピン注入を制御する試みを行いました。詳細は、省きますが、金属相では10%程度だったスピン偏極度が低温絶縁相(5K)では44%にも達することを見いだしました。(3) さらに、鉄/半導体量子井戸において、円偏光励起光電流の円偏光依存性が電圧で大きく変化することを通じて、磁性体/半導体接合界面での電子伝導のスピン依存性が電圧により制御可能であることを実証しました。

チューナブルスピン源という難しい課題に地道に取り組み、材料の選択やプロセスの工夫・改良によって、まだ原理的・基礎的ではあるものの、基礎研究として重要な成果であると考えます。この成果を、磁気抵抗素子などに応用することは、今後の課題であると思います。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1. T. Taniyama, E. Wada, Y. Shirahata, M. Itoh, M. Yamaguchi, "Spin injection into semiconductors towards spin-based electronic devices", <i>npg asia materials</i> , submitted (2011).
2. T. Naito, I. Suzuki, M. Itoh, and T. Taniyama, "Effect of spin polarized current on magnetic phase transition of ordered FeRh wires", <i>J. Appl. Phys.</i> in press (2011).
3. Y. Shirahata, E. Wada, M. Itoh, and T. Taniyama, "Inversion of spin dependent photocurrent at Fe ₃ O ₄ /modulation doped GaAs heterointerfaces", <i>J. Appl. Phys.</i> in press (2011).
4. I. Suzuki, T. Naito, M. Itoh, T. Sato, and T. Taniyama, "Clear correspondence between magnetoresistance and magnetization of epitaxially grown ordered FeRh thin films", <i>J. Appl. Phys.</i> in press (2011).
5. E. Wada, Y. Shirahata, T. Naito, M. Itoh, M. Yamaguchi, and T. Taniyama "Spin polarized electron transmission into GaAs quantum well across Fe ₃ O ₄ : optical spin orientation analysis", <i>Appl. Phys. Lett.</i> 97 (17) (2010) 172509.
6. E. Wada, Y. Shirahata, T. Naito, M. Itoh, M. Yamaguchi, and T. Taniyama, "Inversion of spin photocurrent due to resonant transmission", <i>Phys. Rev. Lett.</i> 105 (15) (2010) 156601.
7. E. Wada, K. Watanabe, Y. Shirahata, M. Itoh, Y. Yamaguchi, and T. Taniyama, "Efficient spin injection into GaAs quantum well across Fe ₃ O ₄ spin filter", <i>Appl. Phys. Lett.</i> 96 (10) (2010) 102510.
8. E. Wada, M. Itoh, T. Taniyama, and M. Yamaguchi, "Spin polarization of electrons Injected from Fe into GaAs quantum well characterized using oblique Hanle effect", <i>Mater. Res. Soc. Symp. Proc.</i> 1183 (2009) FF06-05.
9. I. Suzuki, T. Koike, M. Itoh, T. Taniyama, T. Sato, "Stability of ferromagnetic state of epitaxially grown ordered FeRh thin films", <i>J. Appl. Phys.</i> 105 (7) (2009) 07E501.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0件

(4)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

学会発表

1. T. Taniyama, "Optically oriented electron spin transmission across ferromagnet/ semiconductor interfaces", SPIE Optics+Photonics 2011, San Diego, USA, 21-25 Aug. (2011) (Invited).
2. E. Wada, K. Watanabe, Y. Shirahata, M. Itoh, M. Yamaguchi, and T. Taniyama, "Efficient Spin Injection from Fe₃O₄ into GaAs Triggered by Verwey Transition", 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials (MMM2010), Atlanta, USA, 14-18 Nov. (2010).
3. T. Naito, I. Suzuki, M. Itoh, and T. Taniyama, "Effect of Spin Polarized Current on Magnetic Phase Transition of Ordered FeRh Wires", 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials (MMM2010), Atlanta, USA, 14-18 Nov. (2010).
4. 谷山 智康, "異種材料複合化によるナノ磁性スピントロニクス", 日本磁気学会第34回ナノマグネティクス専門研究会, 東京, 14 May (2010). (招待講演).
5. 谷山智康, "酸化物材料を利用したスピントロニクスの最近の進展", 未踏・ナノデバ

イステクノロジー第 151 委員会材料分化学会合同公開シンポジウム, 東京, 31 Aug. (2009). (招待講演).

6. I. Suzuki, T. Koike, M. Itoh, and T. Taniyama, "Stability of Ferromagnetic State of Epitaxially Grown Ordered FeRh Thin Films", 53rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2008), Austin, USA, 10-14 Nov. (2008).

著作物

1. T. Tsurumi, H. Hirayama, M. Vacha, and T. Taniyama, Nanoscale Physics for Materials Science, Taylor & Francis, New York, 2009.

研 究 報 告 書

「フェムト秒パルス・レーザによる超高速スピン制御・計測」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：塚本 新

1. 研究のねらい

現在ポスト半導体デバイスとして、電子のスピン情報を利用したスピントロニクスデバイスの研究が活発に行われ、その高集積化のみならず、高速化が極めて重要な課題となっている。磁性の超高速制御・計測法を得ることは、ハードディスクドライブ、磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)に代表される情報記録の高速化、さらなる新規高速スピントロニクスデバイスへの道を開くものと期待される。一方、従来型磁化制御法の主流である磁性体への高速交番磁界印加においては、磁化反転速度の増加に伴い磁性材料の磁気損失が増大し、磁化反転が不能となる問題がある。これは、強磁性共鳴(FMR: Ferro Magnetic Resonance)限界として知られる不可避な問題である。磁性体の共鳴現象に係る磁化の歳差運動、ダンピング特性は磁化反転速度を決定する重要な指標となるが、いまだ研究は十分ではなく、サブナノ秒時間領域での動的磁化特性の理解・進展が急務であると共に、FMR 限界をも超えるためには、詳細な超短時間現象の理解に基づく超高速磁化制御法と、高速磁化応答可能な材料の双方を研究する事が重要である。

以上の背景の下、本研究では、主に情報ストレージ分野への応用を目指し、超高時間分解磁化動特性計測に基づき、高速磁化応答可能な媒体形成・評価、超短パルス光を積極的に利用した光/熱アシスト・スピン動特性制御を軸とし、飛躍的高速化を目的とした光とスピンの新規相互作用解明とともに、超高速スピン制御法の原理確立を図るものである。

具体的には、さきがけ研究開始当初に大きく次の3つのテーマを掲げ、検討を行った。

- (1) フェリ磁性体補償点利用スピン動特性制御
- (2) 極短時間加熱利用超高速スピン制御
- (3) 光-スピン直接制御による超高速磁化反転

2. 研究成果

(O) 超高時間分解磁化動特性計測システムの構築

本提案研究を実施するに当たり、数十 nm 厚の磁性薄膜に対し、サブ ps 時間領域で磁化動特性を計測するため、高感度かつ超高時間分解計測が要求される。本研究では、半値全幅(FWHM)90fs 程度の超短パルス・レーザ光源を用い、ポンプ・プローブ法と呼ばれるストロボスコピック計測法を用い、新規に測定システムを構築した。基本測定系を図1に示す。高強度ポンプ光を照射してから、弱強度のプローブ光を用いた磁化状態検出までの遅延時間を徐々に変え、測定を繰り返すことにより極短時間磁化応答の時間領域計測が可能となる。

さきがけ研究において構築したシステムの主な仕様としては、(1)磁化状態検出用に、磁気ファラデーおよび磁気カー効果、光学応答計測用に、透過率および反射率の変化量、磁区観察のため磁気光学顕微鏡像、を同時計測でき、(2)光源として、再生増幅器を利用し数 mJ 級の光照射が可能、かつオプティカル・パラメトリック増幅器により波長変換可能、また、(3)試料環境として、電磁石により外部磁場印加可能、クライオスタット・システムにより試料温度可変、等が挙げられる。ポンプ・プローブ計測の最小遅延時間分解能は 3.3fs である。

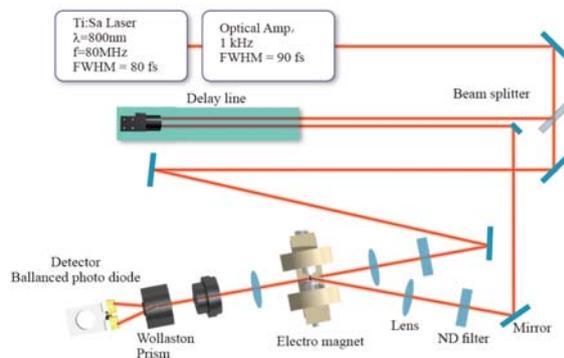


図1 超高時間分解磁化動特性計測システム

(1) フェリ磁性体補償点利用スピンド特性制御

～磁氣的補償現象による強磁性共鳴周波数/磁気ダンピング特性増大効果の実証～

高速磁化反転可能な記録媒体を実現するためには、(1)強磁性共鳴限界を引き上げるため磁気回転比 γ の増大、(2)すみやかな磁化スイッチングおよび磁化歳差運動の収束が行われるよう適切な制動特性を有する事、が課題となる。制動特性の指標となる Gilbert ダンピング定数 α に対し、臨界制動値 $\alpha=1$ で磁化反転時間は最短となり、過制動でも不足制動でも増大する。一方、フェロ磁性体において、これらの値は主に材料種で決まり、一般に、合金組成や、添加元素等により大きく変わるものではない。また、現在磁気記録媒体材料の主流である CoCrPt では約 $\alpha=0.04$ 程度と低いダンピング特性を示し、如何にして高 γ 値、高ダンピング特性を有する媒体材料を実現するかが具体的課題である。

本研究では、高い γ 値、 α 値を有する材料を得るため、フェリ磁性体の示す磁氣的な補償現象に注目した。半平行に結合した副格子からなるフェリ磁性体において、各副格子磁化の γ 値が異なる場合、正味の角運動量は打ち消し合うが、磁気モーメントは有限値をとる条件が存在し得る。これが角運動量補償状態である。この補償状態に近づくにつれ、正味の磁化の運動に対する実行的 γ 、 α 値が増大発散すること、また、大きな組成/温度依存性を生じ得る事が、Landau Lifshits Gilbert (LLG) 方程式に基づく計算により導かれ、期待される。

本効果を、前述の時間分解磁化動特性計測により実験的に検証した。対象物質には、光磁気記録用媒体材料として実績を有する事から GdFeCo を選択した。垂直磁気異方性を有し、希土類 (RE) 遷移金属 (TM) からなるアモルファス・フェリ磁性合金薄膜である。マグネトロンスパッタ法により作成した SiN (60 nm) / Gdx(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x} (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub.[x:20.5~28.0] に対し、実測した磁化歳差運動の様子を図2に、歳差運動周波数、 α 値の組成依存性を図3に示す。正味の角運動量がゼロとなる角運動量補償組成 C_A ($x \doteq 23.6$ at%) に向かうにつれ、歳差運動周波数とともに実効的 α 値が増大し、磁化運動が高速化する事を示す。GdFeCoは本組成範囲で約10倍の α 値変化($\alpha \doteq 0.04 \sim 0.31$)が得られた。同様に、副格子磁化毎の温度特性が異なる事に起因し、同等の効果が温度特性として得られる事を確認している。すなわち、同じ元素からなる合金材料において、組成、温度により動特性を大幅に調整可能である事が実証できた。高速応答材料探求においてフェリ磁性体の示す角運動量補償現象が重要な原理と成り得る事が示された。

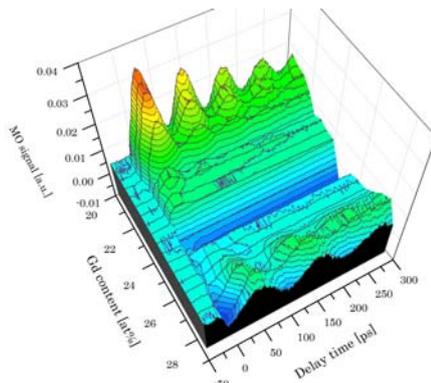


図2 時間分解磁化応答計測結果

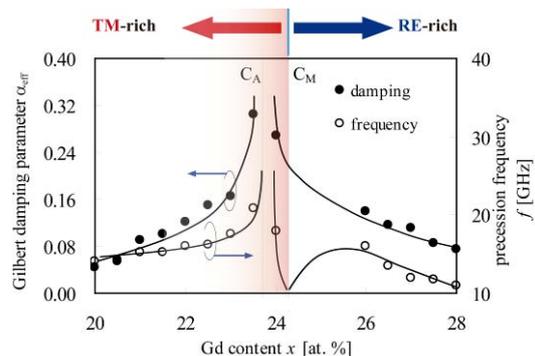


図3 歳差運動周波数 f 、ダンピング定数 α のGd組成依存性

(2) 極短時間加熱利用超高速スピン制御

2-1 光照射による磁性材料加熱速度限界の解明

本テーマでは、光照射による磁性材料加熱効果と、その速度限界につき検討を行った。

光磁気記録に代表されるよう、レーザー光照射による短時間加熱と磁性材料の温度特性を利用し磁化状態を制御する手法は実用化されている。熱磁気特性を利用する際の高速化限界、その機構を明らかにすることは、理学、工学の観点から重要かつ興味深い課題である。従来、上記熱磁気特性として、キュリー則に従う磁化の温度特性が多く用いられている。ここ

で温度とは格子温度を意味する。しかしながら、光照射時間が数 10ps を下回る時間領域となると、従来型の格子温度のみに基づく熱力学的取り扱い是不可能になる。すなわち、光子によりもたらされるエネルギーが、物質内の、電子系、格子系、そしてスピン系の間で授受、強い非平衡状態の出現、平衡化するプロセスにより各系の状態推移の時間スケールが決定され、その物質の成り立ちに大きく依存することになる。

本研究では、前項(1)で述べた、磁化動特性が大きな温度/組成依存性を有する希土類遷移金属フェリ磁性合金の熱的磁化動特性制御を目的とし、 $Gd_{20}Fe_{70}Co_{10}$ 薄膜の時間分解磁化応答計測を行った。上記プロセスの時間スケールを見積もるため、波長 800nm、FWHM 90fs のパルス光による励起後、磁気光学効果計測と同時に、電子温度の時間変化を見積もるため反射率変化量 ΔR も測定した。図4に示す通り、電子温度は約 0.5ps で最大値をとり、磁気光学応答は、同じ時間スケールで急峻に変化した後、やや緩やかに変化を続け、約 2~3ps 程度で変化が飽和、すなわち熱的準平衡状態へ移行することが分かる。上記、磁化の減磁時間スケールは、遍歴電子磁性体である 3d 遷移金属 Ni において約 0.5ps、4f 局在スピン系が主である Gd 単体では約 50~100ps との先行研究報告と比較すると、遍歴電子磁性体に近いシステムであると言える。これは、(1) 可視光域の光吸収を全体の約 80at.% を占める遷移金属の遍歴電子および Gd 原子の 5d 遍歴電子が担い、(2) Gd-Gd 間に比べ約一桁強い Gd-遷移金属間の結合が存在する事から、遷移金属の特性が律速した高速減磁効果が引き起こされたものと考えられる。

以上のように、パルス光照射により ps オーダーで熱的準平衡状態への移行が可能である事は、次世代情報記録方式の候補として精力的研究が推進されている熱アシスト磁気記録、そして本邦主導で培われた光磁気記録に関する知見を、原理的には ps オーダーにまで高速化・発展できる可能性を示すものである。

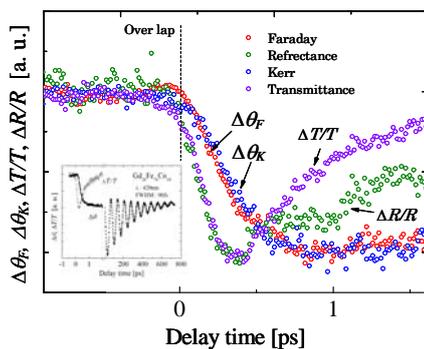


図4 極短時間磁化/光学応答計測結果

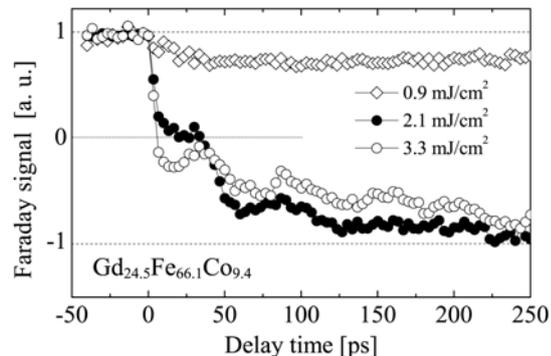


図5 超短パルス光照射による超高速プリセッションナルスイッチング過程計測

2-2 超短パルス光照射による超高速プリセッションナルスイッチングの誘起実証

前述の研究成果の集大成として、(1) 強磁性共鳴周波数が高く、かつダンピング特性の大きな温度領域へ、(2) 超短時間パルス・レーザー光照射による超短時間加熱を行うことにより、超高速プリセッションナルスイッチングが誘起可能であることを実証した。

ここで、2種類の補償現象が重要な働きを担う。高速高ダンピングな磁化のプリセッションナルスイッチングは、直流外部磁場印加中において、磁化補償温度を跨ぎ、角運動量補償温度付近へ高速加熱することにより実現する。磁化補償点を跨ぐことにより、正味の磁化と外部印加磁場の関係が、平行から反平行へと反転し、加熱後の冷却時定数に比べ十分短い時間で、磁化反転トルクが誘起される。すなわち、正味の磁化に対し、印加磁場方向が超高速反転したのと同等の効果が誘起される。そして、トルクにより磁化反転が行われる際、高 γ 値、高ダンピング特性を有するため、磁化は歳差運動を伴い高速に反転し、かつ揺り返しはすみやかに収束する事となる。図5に示すよう、比較的低い照射エネルギー(0.9mJ/cm²)においては、初期状態へ回復するが、上記条件を満たす高エネルギー照射(3.3mJ/cm²)に

においては、照射後急峻な減磁を生じた後歳差運動を開始、最初の回転において約 6ps以内に磁化の膜面垂直成分の符号が反転し(約 30GHzに相当)、約 50psで反転状態に達した後、高い減衰振動を数回繰り返して約 200ps程度で収束することが分かる。

一方、照射エネルギーを高めることにより、約 2ps 以内に完全に消磁状態とし、隣接磁化の形成する漏洩磁界による磁化反転も可能である事を確認している(図6(a)参照)。いわゆる光磁気記録におけるキュリー点記録方式が、単一超短パルス光照射により可能である事を意味する。但し、この場合には、高周波数の歳差運動は生じず、加熱後数 ns に渡る冷却過程が律速した磁化反転が行われ、媒体の熱伝導特性に大きく依存する事となる。前述のプリセッションナルスイッチングの場合には、余剰の熱エネルギーを与えず、磁化反転トルクの誘起と高速磁化応答温度への移行にのみ熱エネルギーを利用し、磁化反転自体は歳差運動を利用するため一桁以上の高速化が実現したとも言える。

(3) 光-スピン直接制御による超高速磁化反転 ～非熱的偏光依存光誘起磁化現象の実証～

ここでは、外部磁界を必要としない光のみによる超高速磁化誘起現象につき検討した。

前述の ps 時間スケールでの超短時間加熱/減磁効果は、光入射による電子系へのエネルギー移動後に、従属して生じる熱的現象に根ざし、光照射時間に比べまだ遅いプロセスであった。そこで、(1)さらなる高速化、(2)光のみによる磁化方向の任意制御、を可能とする新たな原理を見出す事が課題である。その要請は、前者に対し非熱的な光-スピン系間のより直接的な作用である事、後者に対しては、符号を有する光の自由度である角運動量(左右円偏光)に依存し、磁化反転を誘起可能な巨大作用である事、である。

非熱的な光と磁性体の相互作用の代表的なものとして、磁性体中を透過する直線偏光の偏光面が磁化に応じて回転する磁気ファラデー効果が知られている。あまり知られていないが、その逆効果である逆ファラデー効果が存在する。左右円偏光照射によりその波数ベクトルに沿ったそれぞれ逆向きの磁化を誘起するものである。これまで、反強磁性体(DyFeO₃、TmFeO₃)、磁性ガーネット(LuYBiFeGaO)等、幾つかの材料においてその効果が確認されているが、磁化反転を誘起する程大きな効果ではなく、またNi等遷移金属系金属磁性薄膜においては効果自体見られず、現実の応用への見通しは課題となっていた。

本研究では、前項同様GdFeCoを対象材料とし、偏光依存光誘起磁化現象の検討を行った。これは、光磁気記録用媒体として応用実績があり、かつ巨大な磁気光学効果(DyFeO₃の約 200 倍)を有する材料なためである。また、アモルファス構造故に組成を連続に可変、磁気、熱磁気特性の設計自由度が高い、等の利点を有する。図6(b)にGd_{26.0}Fe_{64.7}Co_{9.3} 試料表面で直線偏光と円偏光のパルス光を走査した後の磁気光学像を示す(図中、A→B 方向へ走査

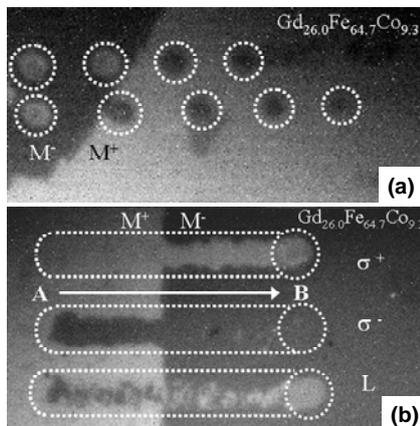


図6 磁気光学像(a)高強度パルス光照射 (b)左右直線偏光走査

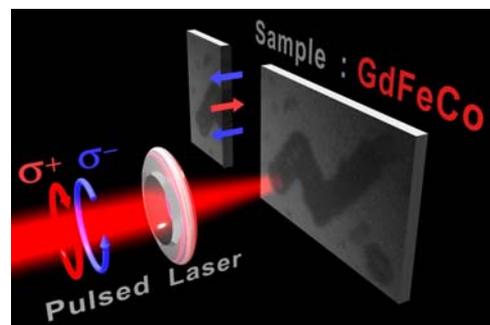


図7 偏光依存光誘起磁化現象利用 情報記録デモンストレーション

した)。直線偏光走査時(図6(b): L)、光エネルギーによる熱的効果が優位となり、形成磁区は複雑な多磁区構造となった。次に、パルス光を同じエネルギー密度の右回り円偏光(図6(b): $\sigma+$)、左回り円偏光(図6(b): $\sigma-$)とし、走査するとパルス光走査前の磁化方向に依存せず、円偏光の回転方向に一意に対応した磁化が誘起され、さらに $\sigma+$ と $\sigma-$ では互いに逆向き磁化となり、偏光に依存した磁化誘起現象を確認した。さらに、光照射条件の詳細調整により、同一の入射光エネルギーにおいて、直線偏光照射時には形成されない反転磁区が、円偏光において形成される事を確認している。

以上より、非熱的な光の角運動量に依存した磁化誘起現象が金属磁性材料において存在することが実証された。図7に示すよう(観察像中書込磁区形状は日本大学のロゴマークN.(エヌドット))、本成果は、超短パルス光照射のみで完全反転磁化を誘起可能で、かつ磁化方向を偏光により制御可能である事から、前述の要請に答えるものであり、超高速情報記録のみならず、超高速スピン制御に向けた基本原理として、スピントロニクスデバイス等多くの波及効果が期待される。

3. 今後の展開

本研究により得られた、新規光磁気光学効果、極短時間領域物性に関する知見、多角的磁気/光学応答評価システムにより、以下の事項につき検討を実施する。

- (1)非熱的光誘起磁化現象のマイクロな起源解明に向け、サブps時間領域での磁化誘起過程の詳細解明、系統的他元素材料への展開・検証・比較を実施
- (2)磁化状態初期化機構付加により、非可逆過程である磁化反転プロセスの詳細解明
- (3)微小磁性体の動特性評価・解明

4. 自己評価

「フェムト秒パルス・レーザによる超高速スピン制御・計測」と題し目標として掲げた3つのテーマにつき、核となる原理的現象を実験的に実証することができ、また、実用的記録媒体材料に対し、サブ ps 時間領域ダイナミクス計測、磁化反転誘起、光のみによる磁化誘起制御を達成した。未踏領域へ挑戦し、新たな知見を見出した事は、理学、工学領域へ少しでも貢献できたものとする。しかし、他元素系材料、系統的現象理解への展開については、手がけ始めた段階でプロジェクトの終了を迎えた。超高時間分解磁化動特性計測システムの構築に、研究期間の大部分を費やした事が主因であり、技術的問題解決の経緯につき反省する点多々あるが、超短時間現象研究に関し多角的検討を実施しうる計測システムを構築でき、本提案研究の継続展開のみならず今後の発展研究へと展開可能な拠点を形成できた。また、さきがけ研究を推進する過程で、領域内、国内外で多くの共同研究を開始し、また多くの派生したアイデアが蓄積された事は、今後に向け得られた非常に大きな成果である。

5. 研究総括の見解

塚本研究者の研究課題は、彼がオランダのグループと共同で見いだしたサブピコ秒の超高速の光磁気記録のメカニズムを解明し、次々世代の磁気記録デバイスの記録原理を確立することにあります。

外国からの脱却を図るため、当該装置と同等またはそれ以上の性能のレーザー光学系を彼の所属する日大の研究室に設置し、きちんと動作させるところからスタートするというハンディを背負っての出発でした。また、私立大学での厳しい教育業務の中で、このような意欲的研究を3年という短時間内に実施することにはかなりの困難があることは、採択の時点で予想されたことでありました。塚本研究者は、そのような厳しい状況を乗り越え、独特の粘り強さを発揮し、(1)フェリ磁性体補償点利用スピン動特性制御、(2)極短時間加熱利用超高速スピン制御、(3)光-スピン直接制御による非熱利用超高速磁化反転の3課題に取り組み、いずれも所期の成果を得ました。

塚本研究者は、希土類遷移金属の光磁気記録技術をバックグラウンドとした工学系の研究者でしたから、基礎研究的な知識と考え方には、必ずしもなじんでおりませんでした。しかし、

領域会議で、きちんとした基礎的アプローチの重要性を強く認識し、また、アドバイザーから多くの示唆をもらい、最後は、かなりの程度本領域の趣旨に沿った研究発表が行われるようになりました。その結果、当初設定された研究テーマで重要な結果が得られただけでなく、高速磁化反転時の磁気モーメントの挙動では当初予想を超える興味深い結果が得られました。とくに、超短パルス光照射によってピコ秒オーダーの超高速プリセッションスウィッチングができることを実証したことは、2Tbit/in² を超える超高密度磁気記録のキーテクノロジーである光アシスト磁気記録にひとつの方向性を与えたものと評価でき、今後、日本における超高速磁気記録技術を先導する存在になるものと期待します。今後、光-スピン直接制御による非熱利用超高速磁化反転の光波長依存性の測定など、やり残した基礎研究部分を継続して進め、理論家との共同研究などを通じて、超高速光磁気現象の学理の確立にも尽くされるよう願ってやみません。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1.	A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, "Precessional switching by ultrashort pulse laser: Beyond room temperature ferromagnetic resonance limit", J. Appl. Phys. 2011, 109., in press.
2.	K. Vahaplar, A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, D. Hinzke, U. Nowak, R. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing "Ultrafast Path for Optical Magnetization Reversal via a Strongly Nonequilibrium State", Phys. Rev. Lett., Vol. 103, 117201-(pp. 1-4) (2009).
3.	I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Durr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing and A. V. Kimel, "Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins", Nature (2011) in press.

(2) 特許出願 なし

(3) その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

国際会議口頭発表

1. A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, "Precessional switching by ultrafast laser: beyond room temperature FMR limit", 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, Nov. 15, 2010, Atlanta, Georgia, USA
2. A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, "Laser-induced demagnetization of RE-TM GdFeCo", ISAMMA 2010 (International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications 2010), July 13, 2010, Sendai, Japan
3. A. Tsukamoto, T. Sato, T. Shimizu, S. Toriumi and A. Itoh, "Magnetic damping property near ferrimagnetic compensation points in GdFeCo", 11th Joint MMM-Intermag conference, Jan. 1, 2010, Washington DC USA
4. A. Tsukamoto, K. Kajiyama, S. Kawamura, T. Sato, A. Itoh, "Ultrafast magnetization dynamics near ferromagnetic compensation points in GdFeCo", International Conference on Magnetism 2009, July 30, 2009, Karlsruhe Germany

著書

1. 塚本新(分担), “スピントロニクス基礎と材料・応用技術の最前線”, シーエムシー出版, 2009年6月出版. (担当:第11章磁性金属における高速磁化応答と光誘起磁化反転 pp. 127-140)

研 究 報 告 書

「縦型立体構造デバイス実現に向けた半導体ナノワイヤの研究」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：深田 直樹

1. 研究のねらい

本研究では、現行の平面型 MOSFET に代わる次世代型 MOSFET として、縦型立体構造を有するサラウンディングゲートトランジスタ(Surrounding Gate Transistor: SGT)の実現に向けた研究を行う。特色としては、SGT 構造で最も重要なチャンネルに着目し、1次元構造を有する半導体ナノワイヤに重点をおいた研究を行う。SGT 構造を採用することの利点は、トランジスタの高密度化・短チャンネル化が図れるとともに、ゲートからの電場をチャンネル周りの全ての方向から制御できるため、チャンネル中のキャリア密度を効率的に制御できる点にある。したがって、相互コンダクタンスが増加し、短チャンネル効果やサブスレッショルド特性が改善した超低消費電力の FET となる。このような SGT の発想自体は既に提案されているが、その実現には克服すべき多くの課題が残っており、その解決が重要となっている。例えば、1) SGT 構造の作製法、特に SGT で最も重要な伝導チャンネルとしてのナノワイヤの形成法、2) そのサイズ・配列・構造制御、3) 機能発現のためのドーパント不純物のドーピング技術およびその評価法の確立、4) ドーパント濃度および位置の制御、5) ナノワイヤ内でのドーパント不純物の挙動の解明、6) ナノワイヤへの低抵抗コンタクトの形成等が挙げられる。特に、SGT の特性を最大限に引き出すためには、ナノスケールでのドーパント原子の制御が重要となっている。そのためにはドーパント原子の結合および電子状態等を調べる必要があり、物性評価による知見およびそれに基づく制御無しには、ナノ構造体を用いた次世代素子の構造設計は成り立たないといえる。本研究では、分光学的手法によりドーパント不純物の結合および電子状態、更には応力歪の値を詳細に調べ、それをナノワイヤの構造制御に反映させることを目的にしている。プロセスの確立から特性評価までを一貫して行うことで、上述の未解決な課題を克服し、次世代立体デバイスの産業化に繋げるのがねらいである。

2. 研究成果

以下に具体的な研究成果について紹介する。

Si ナノワイヤ

2-1. Si ナノワイヤの成長制御と機能化のための不純物ドーピング

本テーマのポイントは、高真空 CVD 装置により表面・界面およびサイズ・構造が精密に制御された半導体 Si ナノワイヤの成長技術を確立することである。Si ナノワイヤの成長を高真空 CVD 装置により行うことで、転位および積層欠陥などの欠陥がなく、不純物の影響の少ない高品質な Si ナノワイヤの成長が実現できる。この高品質なナノワイヤを用いることにより、ナノワイヤのサイズ・構造にのみ依存した本質的な特性を調べることができると期待される。ここでの第一のターゲットは、ナノワイヤの径および構造をナノスケールで制御できるようにすることである。

高真空 CVD 装置を用いることにより、成長軸方向に径の均一な Si ナノワイヤの成長を実現することができた。透過電子顕微鏡での観察を行った結果、Si ナノワイヤの中心にはっきりとした格子縞を観察でき、結晶性の優れた高品質な Si ナノワイヤが成長できていることがわかった(図 1)。当初、径の制御に関しては、金属触媒として用いた金ナノコロイドの基板表面での凝集が影響し、数ナノメートルの精度でナノワイヤの径を制御することはできなかった。そ

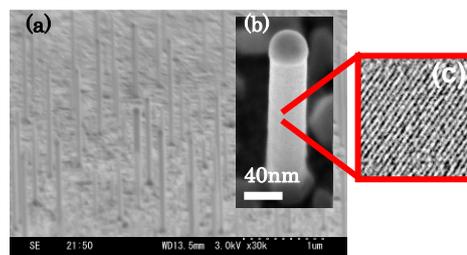


図1. CVDにより成長したSiナノワイヤの (a) SEM, (b) TEM, および (c) HRTEM像。

ここで、金ナノコロイドが凝集するまでに一気に一次元方向への成長を行えるように、現行のCVD装置に改良を加えた。その結果、金ナノコロイドの凝集を抑制し、直径の制御が可能になった。

第二のターゲットは、Siナノワイヤの成長中に不純物ドーピングを行い、p型およびn型制御を行うことである。ここで重要となるのが、Siナノワイヤ中にドーパされた不純物の結合・電子状態を評価できる手法を確立することにある。Siナノワイヤの成長中に不純物ドーピングを行った結果、Si中でn型ドーパントであるリン(P)およびp型ドーパントであるボロン(B)のドーピングに成功し、n型およびp型のSiナノワイヤを生成することができた。顕微ラマン散乱測定の結果、Bの局在振動を約 618cm^{-1} および 640cm^{-1} の位置に観測することにBをドーパしたSiナノワイヤにおいて初めて成功した(図 2(a),(b))。さらに、そのSi光学フォノンピークに、高濃度Bドーピングによる価電子帯内での連続的なレベル間での遷移と、離散的なフォノンのレベルとのカップリングによって生じるファノ効果による非対称ブロードニングも観測することに初めて成功した(図 2(a))。Pドーピングを行った試料では、電子スピン共鳴(ESR)測定の結果、伝導電子のESRシグナル(g 値 1.998)を観測することにSiナノワイヤにおいて初めて成功した(図 2(c))。以上の結果は、BおよびPがSiナノワイヤ中のSi置換位置にドーパされ、活性化していることを分光学的に初めて証明した結果となっている。

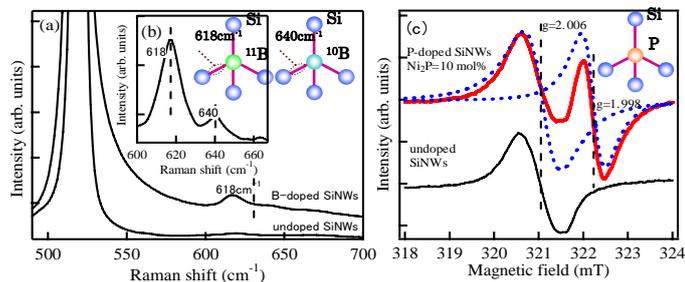


図2. (a) B-doped SiNWsおよび undoped SiNWsのラマンスペクトル. (b) その拡大図. (c) P-doped SiNWsおよび undoped SiNWsのESRシグナル.

2-2. イオン注入を利用した不純物ドーピング

ナノワイヤのトランジスタへの応用を考えた場合、不純物ドーパ量の制御は重要であり、現在の半導体プロセスを考慮すると、イオン注入によるドーピングについて調べる必要がある。

イオン注入では、ナノワイヤへの不純物ドーパ量を制御できる反面、欠陥の除去が重要な課題となる。そこで、イオン注入後のナノワイヤの結晶性回復と不純物の電気的活性化について調べた。PおよびBの注入および活性化アニール後に、低温ESR測定による伝導電子シグナルの観測、およびラマン散乱測定によるB局在振動・Fanoブロードニングの観測からSiナノワイヤにイオン注入によりドーパされたPおよびBが電気的に活性化されたことを確認できた。しかしながら、ナノワイヤ内の結晶性をTEM観察により詳細に調べたところ、Pでは $1 \times 10^{14} - 5 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$ のドーズ量、Bでは $1 \times 10^{15} - 5 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$ のドーズ量では、単結晶ではなく多結晶になっていることがわかった。これは、高いドーズで注入を行った為に元の結晶方位がメモリーされず、結晶化において重要な核発生・形成がランダムに起こってしまったためである。また、Siナノワイヤでは歪の影響により、欠陥がアニールアウトされにくいことも原因の1つとして考えている。一方、それ以下のドーズでは単結晶化が確認された。また、高温でイオン注入を行った場合にはより単結晶が得られやすいことも分かった。以上の結果から、イオン注入をナノワイヤへの不純物ドーピングに応用する場合には、低ドーズ且つ長時間注入、或いはホットインプランテーションが効果的であることが分かった。

2-3. 不純物の偏析挙動と動径分布

ここまでは、Siナノワイヤへの不純物のドーピングと状態評価に関する結果を述べてきたが、不純物の挙動についても調べる必要がある。Siナノワイヤトランジスタを考えた場合、その周りは絶縁膜で覆われており、酸化膜(SiO_2)が1つの候補であることから、酸化膜形成過程でのSiナノワイヤ中のドーパント不純物の挙動を明らかにすることは重要である。そこで、成長時にBおよびPをドーパしたSiナノワイヤにおいて、 900°C の酸素雰囲気中での熱酸化実

験を行い、BおよびP原子のナノワイヤ中での挙動について調べた。

B 原子に関しては、ラマン散乱測定で観測される B 局在振動ピーク強度および Fano ブロードニングの変化から調べた。一方、P 原子に関しては、低温 4.2K での電子スピン共鳴により観測される伝導電子シグナルの強度変化から調べた。図 3 に示されるように、B 局在振動ピーク強度は僅か 30 分の熱酸化で急激に減少するのに対して、伝導電子シグナルの強度は最初の 60 分まではそれほど変化が無く、その後減少した。この結果は、熱酸化過程において、B は P に比べて圧倒的に酸化膜中へ偏析しやすいことを示している。モデル図にも示されているように、P ではナノワイヤ中での最大固溶度を超えるまでは酸化膜側でなく、Si 側にパイルアップする傾向にあり(P-I)、ナノワイヤの径が減少し、最大固溶度を越えたところでようやく酸化膜側への析出が開始するのである(P-II)。90 分以降の熱酸化では、B および P ともに変化が見られなくなった(B-III, P-III)。これは、酸化の進行でナノワイヤ周りに形成された厚い酸化膜が中心の結晶コアにたいして圧縮の歪を与えるようになるため、酸化の進行がストップし、B および P の偏析が停止したと考えられる。この効果は、酸化の自己停止と呼ばれており、酸化が停止すると、ナノワイヤ中の不純物の偏析も停止することが分かった。

Si ナノワイヤ中において、B および P 原子が動径方向にどのように分布しているのかは非常に興味深いテーマである。なぜなら、表面・界面の割合が高いため、動径方向分布に偏りが発生する可能性があるからである。分布を評価するために、繰り返しエッチングを行った。まず、Si ナノワイヤの表面酸化膜をフッ酸で除去する。それを大気中に取りだすと、ナノワイヤの表面は再酸化される。再度、この酸化膜をフッ酸で除去し、大気中に取りだし、再酸化させるプロセスを繰り返す。ここで、自然酸化膜はおよそ 2nm の厚みで形成されるので、B 局在振動ピークおよび伝導電子シグナル強度の変化を調べれば、Si ナノワイヤ中の B および P 原子の動径方向分布に関する情報が得られる。

P の結果を図 4 に示す。繰り返しエッチングにより、伝導電子シグナル強度が減少しているのが分かる。界面付近に極端に P が分布していることは無いのだが、ナノワイヤ中の界面に近い領域に優先的に分布していることが確認できた。B についても同様の傾向を示すことが分かった。即ち、Si ナノワイヤでは、界面に近づくほど緩和の度合いが大きいいため、異種不純物の占める割合が高くなるのだと考えられる。第一原理計算で Si ナノワイヤ中の不純物原子の安定位置について調べた結果でも、界面に近いサイトがより中心の領域よりも不純物が安定に存在できるという結果が報告されており、今回の結果はその理論計算の傾向とも一致している。

Geナノワイヤへの展開

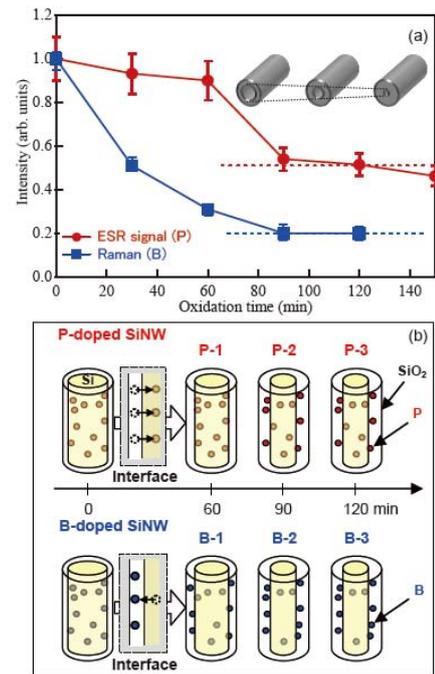


図3. (a) ラマン散乱およびESR測定により調べたBおよびP原子のSiNWs中での偏析挙動の酸化時間依存性および (b) そのモデル図。

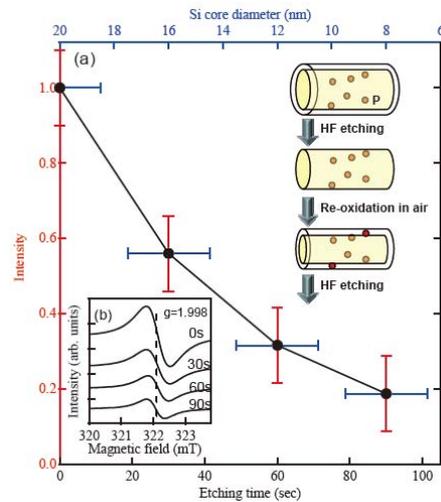


図4. (a) 繰り返し酸化エッチングによる伝導電子シグナル強度のエッチング時間依存性と (b) そのESRシグナル。

2-4. 半導体Geナノワイヤの成長および不純物ドーピング

現行の平面型Si MOSFETに対して更に素子のパフォーマンスを向上させるためには、材料の観点からも改善を考える必要があり、Siよりも高い移動度を持つ材料への変換が求められている。Ge中のキャリアの移動度(電子: $3900\text{cm}^2/\text{Vs}$ 、正孔: $1900\text{cm}^2/\text{Vs}$)は、Si中(電子: $1600\text{cm}^2/\text{Vs}$ 、正孔: $430\text{cm}^2/\text{Vs}$)よりも高いため、Geは1つの有望な材料である。したがって、1次元の構造を有するナノワイヤで、Geナノワイヤが次世代MOSFETの基幹材料になる可能性は十分にあるといえる。そこで、既述のCVD装置を利用してGeナノワイヤの成長制御実験および不純物ドーピングを行った。

成長したGeナノワイヤのSEM、TEM像を図5に示す。不純物をドーピングしない場合には、成長軸方向に径の均一なGeナノワイヤの高密度成長を実現することができた。直径の平均はおよそ20nmである。高分解能TEM観察によりGeナノワイヤ内部を調べたところ、結晶に起因する格子縞が明瞭に観測され、内部には全く欠陥が観測されなかった。

次にBドーピングの結果について説明する。Bドーピングではドーパントガスであるジボランの流量が増大、即ち、Bのドーピング量が増大するに伴って成長軸方向の径が不均一になり、テーパ構造になる。これは、成長時に添加されるBがナノワイヤ表面へのGeの堆積を促進し、成長軸方向に加えて動径方向の成長が促進されたためである。一方、Pドーピングの場合には、ドーパントガスであるホスフィン(Phosphine)の流量が増大するに伴って若干テーパ構造になるが、Bの場合ほど大きな変化を与えない。以上の結果から、成長時にBドーピングを行う場合には動径方向への成長に注意する必要があるといえる。これを回避する方法として、3段階でのドーピングを行い、径の均一化を達成することができた。その際、ナノワイヤ成長後の不純物ドーピングは成長時に比べて困難であるという、ナノ構造に特有のself-purification効果についても実証することができた。

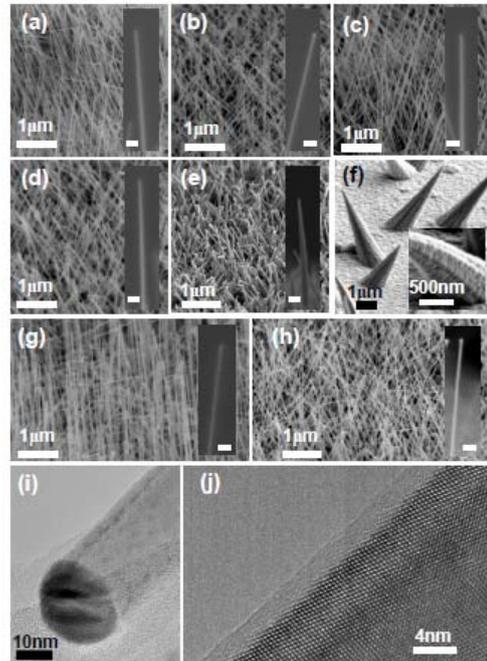


図5. GeNWsのSEM像。(a) $\text{GeH}_4:\text{B}_2\text{H}_6=10:0$ 、(b) $10:0.2$ 、(c) $10:0.4$ 、(d) $10:0.7$ 、(e) $10:1.0$ 、(f) $10:2.2$ 。挿入図のスケールは20nm。P-doped GeNWsのSEM像。(g) $\text{GeH}_4:\text{PH}_3=10:1.0$ 、(h) $10:7.0$ 。挿入図のスケールは30nm。undoped-GeNWsの(i) TEM像、(j) 高分解能TEM像。

2-5. 不純物の結合・電子状態および電気的特性評価

Geナノワイヤ中の不純物の結合・電子状態を評価できる手法を確立することは、Siナノワイヤの場合と同様に非常に重要である。Siの場合と異なり、BおよびPともに質量がGeと大きく異なるため、ラマン散乱測定を利用してそれぞれの局在振動を観測できるはずである。しかしながら、Siの場合と異なりGeでは、バルク結晶においてすら、BおよびPに関する局在振動モードの報告はこれまでなく、Geナノワイヤ中にドーピングされたドーパント不純物の検出と状態の解明は、非常にチャレンジングな重要研究課題であった。顕微ラマン散乱測定の結果、Bの局在振動を

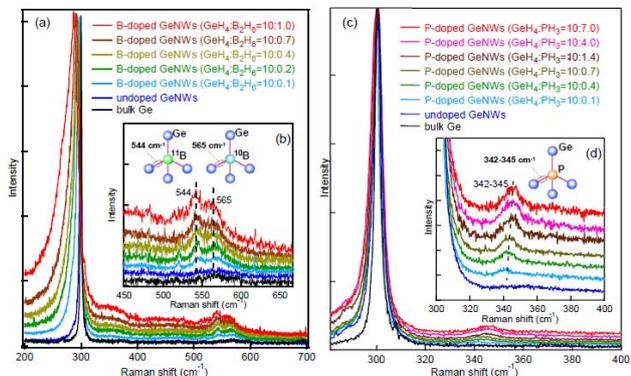


図6. (a) B-doped GeNWsおよび(c) P-doped GeNWsのラマン散乱測定結果。(b) および(c)はそれぞれの拡大図。

約 544cm^{-1} および 565cm^{-1} の位置に、Pの局在振動を約 $342\text{--}345\text{cm}^{-1}$ の位置に観測することに初めて成功した(図 6)。更に、そのSi光学フォノンピークに、高濃度ドーピングによるよって生じるファノ効果による非対称ブロードニングも観測することにも初めて成功した。以上の結果は、BおよびPがGeナノワイヤ中のGe置換位置にドーピングされ、電氣的に活性化していることを分光学的に初めて証明した結果となっている。

次に、図 7 に示すような素子を形成し、単一 Geナノワイヤの電氣的特性評価を行った。Geナノワイヤの表面酸化膜は電子ビームリソグラフィの際にダメージを受けやすく、当初、プロセス後にGeナノワイヤが消失してしまう問題があった。本研究では、Geナノワイヤの表面を Al_2O_3 で1nm皮膜することで、リソ耐性を格段に上げ、素子作製が可能になった。p型およびn型Geナノワイヤの特性をそれぞれ評価したところ、明瞭なp型およびn型ゲートバイアス依存性を確認することができた。また、移動度を評価した結果、p型の場合で約 $100\text{cm}^2/\text{Vs}$ であった。移動度が予想される値よりも低い理由としては、

1) Bドーピングによる不純物散乱、2) 表面・界面ラフネスの影響、および 3) 素子作製の問題等が考えられる。1)の問題に関しては次に解決策を示す。

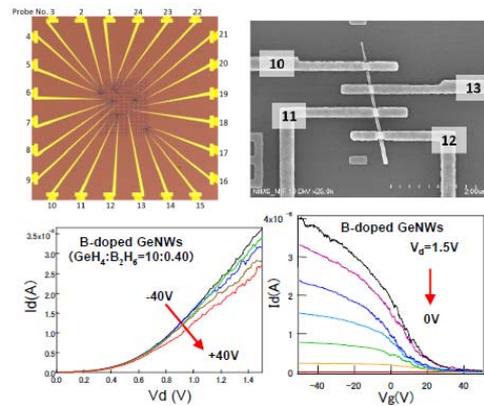


図7. GeNWの素子の作製例とI-V評価結果。

Si/Geコアシェルナノワイヤ

2-6. 不純物散乱抑制のための Si/Ge コアシェルナノワイヤの成長制御

単元素からなるナノワイヤでは、不純物ドーピングによる不純物散乱の影響は避けられず、ナノワイヤの構造を最大限に生かすことができない。そこで、SiとGeのコアシェル構造からなるナノワイヤを形成し、バンドオフセットの構造に基づいてコア或いはシェル層への位置制御ドーピングを行い、不純物のドーピング領域とキャリアの輸送領域を完全に分離した、不純物散乱を徹底的に抑制できる高移動度チャネルを形成するのが本研究の狙いである。

3種類のコアシェル構造として、電子をキャリアとして利用する Si/GeP(構造 I)コアシェルナノワイヤおよび正孔をキャリアとして利用する SiB/Ge(構造 II)、Ge/SiB(構造 III)コアシェルナノワイヤを作製した。図 9 に示す EDXの結果から、3タイプの異なるコアシェルナノワイヤが作製できているのが分かる。シェル層の結晶性を高分解能 TEM 観察により調べた結果、ヘテロエピタキシャル成長が実現できており、転位等の欠陥の無い高品質なシェル層が形成されていることが確認できた。また、ラマン散乱測定でも、光学フォノンピークにより良好な結晶性を確認できた。

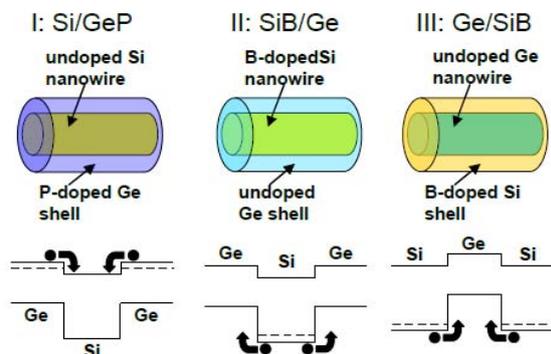


図8. Si/Geコアシェルナノワイヤのモデル図とバンド概略図。

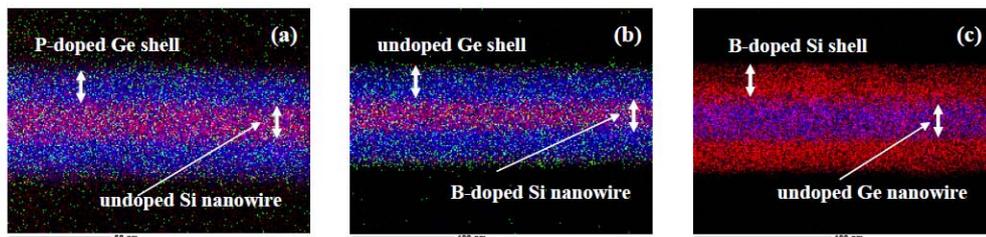


図9. (a) Si/GeP (b) SiB/Geおよび(c) Ge/SiBのEDXによる組成分析結果。

2-7. Si/Ge コアシェルナノワイヤの位置制御ドーピング効果と応力の評価

一般的に、歪はキャリアの移動度に大きな影響を与えるため、その評価と制御は重要である。コアシェル層内の歪は、コア・シェル層の組み合わせ、シェル層の厚み、シェル形成温度により変化する。コアおよびシェル各層の歪を評価するために X 線回折 (XRD) 法を用いて格子間隔の変化量を詳細に調べた結果、構造 I および構造 II では、コアには引っ張り応力、シェル層には圧縮応力が働いていることを明らかにした。不純物がドーピングされたことによるピークシフトに関しても明瞭に観測することができた。更に、ラマン測定および ESR 測定により、位置制御ドーピングが実現できていることを確認した。今後、コアシェル内の歪が移動度にどのような影響を与えるか調べる予定であり、最終的には、移動度向上においてコアシェル構造の優位性を実証する予定である。

まとめ

さきがけの研究期間で以下の成果を得ることができた。まず、縦型立体構造を有する次世代 MOSFET の基幹材料として期待されている 1 次元 Si ナノワイヤの成長制御を行い、直径 5-50nm の範囲での直径制御に成功した。更に、材料の観点からも MOSFET の性能向上を図るためにナノワイヤの成長技術を Ge にも応用し、Ge ナノワイヤの成長制御にも成功した。機能発現のためのドーピングを成長時およびイオン注入により行い、p 型および n 型制御の達成とナノワイヤ中の不純物を評価できる独自の手法を新たに確立することに成功した。具体的には、ラマン散乱測定によりナノワイヤ中にドーピングされた不純物の局在振動ピークおよび光学フォノンピークに現れる Fano 効果および ESR 測定による伝導電子シグナルの検出に初めて成功し、ナノワイヤ中の不純物の結合・電子状態を明らかにすることができた。更に、本手法を用いて、ナノワイヤ中の不純物の分布および挙動に関しても初めて明らかにすることに成功した。以上の成果に関しては成果の重要性が認められ、材料分野で権威のある Advanced Materials 誌の招待レビューを受けるとともに、MRS でも Best Poster Award を受賞している。

更に、1次元構造を最大限に生かして、不純物散乱の影響を抑制できる Si と Ge からなるコアシェルナノワイヤの成長制御技術およびコア・シェル層それぞれへの位置制御ドーピング技術も確立することができた。本成果は、今後のナノワイヤを用いた次世代高速・低消費デバイス実現のためのキーテクノロジーになると期待できる。

3. 今後の展開

コアシェルナノワイヤの電気的特性評価を行い、不純物散乱抑制による移動度の増大効果を実証する。不純物散乱を抑制するためには、Si と Ge の界面が重要であり、界面での Si および Ge のミキシング抑制、それによる界面急峻性の向上、位置制御ドーピングの精度、およびシエルの結晶性等が重要となるため、それらを総合的に研究する。更に、結晶に誘起される応力はキャリア移動度に大きな影響を与えるため、コアシェルナノワイヤ中の応力と移動度の関係についても詳細な実験を行う予定である。以上の成果を総合的にまとめることで、IV 族半導体材料で最高の移動度を達成するチャンネル材料の実現を目指す。

更に、さきがけでのナノ構造創製技術、不純物ドーピングとその評価技術を応用して、半導体ナノ構造を利用した新規高効率太陽電池材料および Li イオン電池用高容量負極材料の開発へと研究を展開していく予定である。

4. 自己評価

当初、さきがけの研究課題としては、次世代の縦型立体構造を有するトランジスタ実現において基礎・基盤技術となる Si および Ge ナノワイヤの成長制御、機能発現のためのドーピングとその状態評価手法の確立、不純物散乱を抑制できる Si/Ge コアシェルナノワイヤの形成、および電気的特性評価に代表される単一ナノワイヤの評価を掲げた。

実際、Si および Ge ナノワイヤの成長制御に関しては、既存の CVD 装置に改良を加えることで、5-50nm の範囲でナノワイヤの直径を制御できるようになった。不純物ドーピングに関しては、成長時および成長後のイオン注入により行い、p 型および n 型ナノワイヤの成長を実現できた。特に、Ge ナノワイヤ中の不純物分光に関してはバルクでも報告例は無い、チャレンジングな課題であったが、B および P 原子の局在振動ピークの観測と同様に成功できた。本研究により、直径数 nm～数十 nm という非常に微小なナノワイヤ中にドーピングされた B および P 原子の結合・電子状態を明らかにする新たな評価手法を確立できた点は大きかった。

また、ナノワイヤの 1 次元構造を最大限に生かして、不純物散乱を抑制できる Si と Ge からなるコアシェルナノワイヤの成長技術の確立とコア・シェルそれぞれへの位置制御ドーピング技術に関しても当初の目標通り達成することができた。一方、単一ナノワイヤの電気的特性評価に関しては研究の進行が遅れ、最終目標のコアシェルナノワイヤの評価まで行き着くことはできなかったが、Si および Ge ナノワイヤに関しては概ねデバイス作製プロセスを確立できたといえる。コアシェルナノワイヤにおける移動度評価に関しては今後の研究課題とする。

5. 研究総括の見解

深田研究者は、半導体集積回路のさらなる高密度化へのアプローチとして、半導体ナノワイヤを用いた縦型の電界効果トランジスタ(サラウンドゲートトランジスタ)を高密度に作製する技術に取り組んできました。本さきがけ研究では、このためのシリコンおよびゲルマニウムナノワイヤの成長制御、機能発現のためのドーピングとその状態評価手法の確立、不純物散乱を抑制できる Si/Ge コアシェルナノワイヤの形成、および電気的特性評価に代表される単一ナノワイヤの評価を研究課題に掲げました。しかし、研究室建屋における火災、CVD 成長装置の水配管事故など、多くの困難な状況に見舞われたほか、独立して一人で行っている研究体制が裏目にも出てしまい、研究の進展が遅れました。

深田研究者は、この困難な状況を克服し CVD 装置を改良して、ナノワイヤの直径制御に成功したほか、p型、n型のドーピングに成功しました。さらに重要なのは、ドーピングしたナノワイヤ中の不純物の濃度がどれくらいあるか、それらは活性化(キャリアを供給しているか)の評価です。これまで、ナノワイヤという微細空間におけるこのような微量の不純物の評価技術はありませんでした。彼は、電子スピン共鳴分光とラマン分光によって、ドーピングされた微量のホウ素およびリンの濃度や活性化を定量的に判定する技術を確立しました。とくに、ゲルマニウムにおいては、バルクにおいても研究例がなかったため、これを確立したことは、今後のナノワイヤトランジスタ開発に大きな貢献をしたと評価できます。さらに、コア・シェル構造のナノワイヤにおいて、コアとシェルのそれぞれにおける評価までも成功しました。

彼は、本領域においては、基礎にたつて半導体デバイスの評価ができるきわめて数少ない研究者で、領域会議において常に積極的に発言し、2 期生、3 期生に多い半導体研究者に対し、有益な示唆を与えてくれました。

半導体ナノワイヤ技術は、今後、集積回路だけでなく、超高効率太陽電池用途としても大変期待されている材料でもあります。深田研究者は、この分野のリーダーとして、この世界を先導してくれるものと期待します。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.	<u>N. Fukata</u> , S. Ishida, S. Yokono, R. Takiguchi, J. Chen, T. Sekiguchi, and K. Murakami: "Segregation behaviors and radial distribution of dopant atoms in silicon nanowires", NANO Lett. (in press).
2.	<u>N. Fukata</u> , K. Sato, M. Mitome, Y. Bando, T. Sekiguchi, M. Kirkham, J-I. Hong, Z. L. Wang, and R. L. Snyder: "Doping and segregation of impurity atoms in silicon nanowires", ACS NANO 4 , 3807-3816 (2010).
3.	F. Fabbri, F. Rossi, G. Attolini, G. Salviati, S. Iannotta, L. Aversa, R. Verucchi, M. Nardi, <u>N.</u>

	Fukata, B. Dierre, and T. Sekiguchi, "Enhancement of the core near-band-edge emission induced by an amorphous shell in coaxial one-dimensional nanostructure: the case of SiC/SiO ₂ core/shell self-organized nanowires", Nanotechnology 21 , 345702 (7 pages) (2010).
4.	N. Fukata: "Impurity doping in silicon nanowires ", Adv. Mater. 21 (27), 2829–2832 (2009).
5.	N. Fukata, M. Mitome, Y. Bando, M. Seoka, S. Matsushita, K. Murakami, J. Chen, and T. Sekiguchi: "Codoping of boron and phosphorus in silicon nanowires synthesized by laser ablation", Appl. Phys. Lett. 93 (20), 203106 (3pages) (2008).
6.	N. Fukata, S. Matsushita, N. Okada, J. Chen, T. Sekiguchi, N. Uchida, and K. Murakami: "Impurity doping in silicon nanowires synthesized by laser ablation", Appl. Phys. A. 93 , 589–592 (2008).
7.	J. Chen, T. Sekiguchi, N. Fukata, M. Takase, T. Chikyow, K. Yamabe, R. Hasunuma, M. Sato Y. Nara, and K. Yamada: "Comparison of leakage behaviors in p- and n-type metal-oxide-semiconductor capacitors with hafnium silicon oxynitride gate dielectric by electron-beam-induced current", Appl. Phys. Lett. 92 , 262103 (2008).
8.	S. Huang, N. Fukata, M. Shimizu, T. Yamaguchi, T. Sekiguchi, and K. Ishibashi: "Classical Coulomb blockade of a silicon nanowire dot", Appl. Phys. Lett. 92 (21), 213110 (2008).
9.	N. Fukata, J. Chen, T. Sekiguchi, S. Matsushita, T. Oshima, N. Uchida, K. Murakami, T. Tsurui, and S. Ito: "Phosphorus doping and hydrogen passivation of donors and defects in silicon nanowires synthesized by laser ablation ", Appl. Phys. Lett. 90 (15), 153117 (2007).

(2)特許出願

研究期間累積件数:5件

1. 発明者: 佐藤慶介、深田直樹
 発明の名称: ドライブプロセス装置
 出願人: 独立行政法人物質・材料研究機構
 出願日: 2009/1/16

2. 発明者: 深田直樹、佐藤慶介
 発明の名称: ドーパント元素濃度計測方法
 出願人: 独立行政法人物質・材料研究機構
 出願日: 2008/12/3

3. 発明者: 深田直樹、佐藤慶介
 発明の名称: 半導体ナノワイヤ及びその製造方法並びに縦型電界効果トランジスタ
 出願人: 独立行政法人物質・材料研究機構
 出願日: 2008/11/20
 特願 2008-296940

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

主要な学会発表

1. Doping and characterization of impurity atoms in Si nanowires: N. Fukata, N. Saito, K. Sato, J. Chen, T. Sekiguchi, M. Mitome, Y. Bando, and K. Murakami, The 3rd International One-dimensional Nanomaterials, Atlanta, USA (Dec. 2009) Oral

2. ボトムアップ手法によるシリコンナノワイヤの創製および不純物ドーピング: 深田直樹, 秋季第 70 回応用物理学会学術講演会 (Sep. 2009) 招待

3. Doping and segregation of impurity atoms in silicon nanowires: N. Fukata, M. Seoka, N. Saito, J. Chen, T. Sekiguchi, and K. Murakami, The 25th International Conference on Defects in Semiconductors, St. Petersburg, Russia (Jul. 2009) Oral
4. Phosphorus donors and boron acceptors in silicon nanowires synthesized by laser ablation: N. Fukata, M. Seoka, N. Saito, J. Chen, T. Sekiguchi, and K. Murakami, 2008 MRS Fall Meeting, Boston, USA (Dec. 2008) Poster
5. Impurity doping in silicon nanowires: N. Fukata, S. Matsushita, J. Chen, T. Sekiguchi, and K. Murakami, Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2007, Niigata, Japan (Nov. 2007) Oral, Invited

受賞

1. MRS Best Poster Award: Phosphorus Donors and Boron Acceptors in Silicon Nanowires Synthesized by Laser Ablation, Boston, USA, (Dec. 2008)

研究報告書

「デバイス応用に向けたスピン流と熱流の結合理論」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：村上 修一

1. 研究のねらい

スピン流は電流と違い特異な性質があり注目されているが、スピン流の物理は熱流の物理とは別々に論じられてきた。しかしこれらの間には隠れた関係が示唆されるため、これら2つの物理を統合することで、熱電変換材料、スピントロニクス双方の分野での物性理解を深め、新規な物性を開拓する。新原理に基づく熱電変換材料・デバイスの探索と性能の向上、またスピントロニクスデバイスにおける熱散逸の評価とその最適化への道を探る。

2. 研究成果

以下の2項目について研究を行った。

(a) トポロジカル絶縁体での熱電輸送

トポロジカル絶縁体とは、バルク(試料内部)では絶縁体であるが試料の縁(エッジ)や表面に金属的な状態がありスピン流を運ぶものである。こうしたエッジ状態・表面状態はトポロジカル保護という機構により弾性散乱を受けにくく、特異的に良い伝導性を保つことが知られている。 Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 などの物質がトポロジカル絶縁体として実験的にも観測されている。

一方でこれらの物質はよい熱電変換材料として知られているため、熱電変換とトポロジカル絶縁体との関係が示唆される。トポロジカル絶縁体では、不純物を入れた際にフォノンの熱輸送を阻害しつつエッジ・表面での電子輸送はそのまま保持されることが期待されるため、熱電変換に関しては理想的であると考えられ、こうした視点から熱電変換に関するブレイクスルーを狙うべく理論研究を行った。

ここで注目するのは(a-1)2次元トポロジカル絶縁体のエッジ状態、(a-2)3次元トポロジカル絶縁体の結晶の転位に伴う1次元ギャップレス状態、の2つである。こうした状態は非磁性不純物から弾性散乱を受けず、「完全伝導チャンネル」を形成するので、うまくデザインすればこうしたチャンネルがよい熱電特性に寄与するのではないかと予想される。研究の結果その予想が理論的に確かめられた。(a-1)のエッジ状態に関しては、nm程度の細いリボン状の系を考えると低温で熱電輸送に優勢に効くことが分かった。また(a-2)の転位上では、転位が密に走っているような系を考えると、やはり熱電輸送を向上させることが分かった。(a-1)(a-2)の結果についてはそれぞれ Physical Review B 81, 161302(R) (2010), Appl. Phys. Lett. 97, 073108 (2010)に掲載された。このように、低温においてはトポロジカル絶縁体の特異な伝導状態を利用して熱電変換性能指数を向上させることが可能であることが分かった。



図1: 2次元トポロジカル絶縁体の熱電輸送の模式図

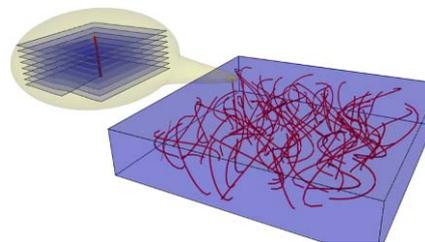


図2: 3次元トポロジカル絶縁体内の転位の模式図

(b) 磁性絶縁体でのスピン波の熱輸送

磁性絶縁体では、スピン波(マグノン)が素励起としてコヒーレンスを保ちながら物質の中を伝播する。この状態は時間反転対称性が破れており、ここにスピン軌道相互作用等が加わ

ればホール効果が期待できる。研究の結果、先行研究ではマグノンの軌道運動に関連する項が抜けていることを発見し、この項を入れることで線型応答理論に基づいた結果と、半古典理論による結果が一致することが分かった。またこの結果から、マグノンの波束は2種類の回転運動、つまり自転運動と、試料の外縁に沿って回る運動との2種の運動を両方同時に行うことが分かった。イットリウム鉄ガーネット(YIG)などの強磁性体ではマグノンの波束の運動を空間分解・時間分解で観測することができるため、これらの結果を実際に見ることができると考えられる。またこのマグノンの運動は熱ホール効果として観測することができる。この結果は、平成23年1月末現在投稿中である(R. Matsumoto, S. Murakami, preprint).

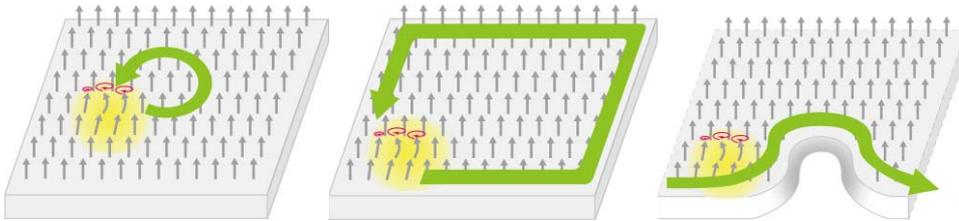


図3: 強磁性絶縁体中のマグノンの2種類の回転運動: 自転運動(左図)およびエッジ流(中図)。エッジ流はトポジカルな起源を持ち、エッジが曲がっていてもそれに沿って進む(右図)。

3. 今後の展開

(a) トポジカル絶縁体での熱電輸送

2次元および3次元トポジカル絶縁体の熱電輸送について考察を深める。これまでの研究により大まかな振る舞いは理解できたので、さらに定量化することで、実際の熱電輸送がどのような値になるか、またどのくらい性能向上の余地があるか検討する。特に、フォンドラッグ効果や細線化などは通常の熱電材料の性能向上につながる事が知られているので、これらがどの程度トポジカル絶縁体の熱電輸送に影響するか調べる。これは、電子のバンド構造をスピン軌道相互作用によってデザインすることで、不純物散乱の影響を制御するという方向性であり、広範な方向に応用可能であろうと予測される。

(b) 磁性絶縁体でのスピン波の熱輸送

YIG(イットリウム鉄ガーネット)など、マグノンのコヒーレンスがよい物質でどのような波束の運動が出るかを計算する。理論計算を実験研究へとフィードバックして共同で研究を進める。また、ジャロシンスキー守谷相互作用が効いている磁性体の具体的物質についても同様の形で研究を進める。またこれらを発展させて、周期的に試料に穴を開けてマグノンバンド構造を変える技術を積極的に用いて、マグノンのバンド構造を制御してホール効果を増大させる可能性について理論的に検討を行う。

4. 自己評価

(a)トポジカル絶縁体の熱電輸送については、計画していたことはほぼ達成できたと考えている。トポジカル絶縁体のエッジ・表面状態は低温でより優勢に寄与することを見出したが、一方で室温での良好な熱電変換にはまだ課題が残る。この点は、今後数値計算を用いたフォノン・電子伝導の計算によりある程度克服できると考えている。

(b)磁性絶縁体でのスピン波の熱輸送については、本領域の齊藤研究者の研究に触発されて生まれたものであり、「さきがけ」なくては発見に至らなかったものである。理論としてまだ解明すべき点が残っており、今後理論と実験との共同研究によりさらに研究が発展すると思っている。

5. 研究総括の見解

村上研究者は、スピンホール効果の理論を打ち立てた先駆的な研究を進めた研究者で

す。本さがけ研究では、熱流とスピン流の関係を明らかにすることを目的としています。これまで、スピン流の物理は熱流の物理とは別々に論じられてきましたが、これらの間には隠れた関係が示唆されるため、これら2つの物理を統合することで、熱電変換材料、スピントロニクス双方の分野での物性理解を深め、新規な物性を開拓できるという研究内容です。

村上研究者は、バルク自体は絶縁体であるが、試料の縁(エッジ)や表面に金属的な状態がありスピン流を運ぶ「トポロジカル絶縁体」(Bi₂Se₃, Bi₂Te₃ などが実験的にトポロジカル絶縁体であると知られる)に着目し、その熱電輸送を理論的に論じました。2次元トポロジカル絶縁体のエッジ状態、3次元トポロジカル絶縁体の結晶の転位に伴う1次元ギャップレス状態は、そのパスに非磁性不純物があっても、弾性散乱が起きない「完全伝導チャネル」を形成します。研究の結果、エッジ状態を用いると、nm 程度の細いリボン状の系において低温で熱電輸送に優勢に効くことが明らかになりました。

村上研究者は、領域会議における齊藤研究者とのディスカッションを通じて、絶縁体中のスピン波スピン流の熱輸送に着目し、先行理論の欠陥(マグノンの軌道運動に関連する項が抜けていること)を発見し、これを補完する新しい理論を打ち立てました。この理論によれば、マグノンの波束は、自転運動と、試料の外縁に沿って回る運動との2種の運動を両方同時に行うことが明らかになりました。イットリウム鉄ガーネット(YIG)などの強磁性体ではマグノンの波束の運動を空間分解・時間分解で観測することができることや、熱ホール効果として観測することができることの提案も行いました。

村上研究者は、本領域における貴重な 2 名の理論家の一人として実験家からの期待が高く、上記齊藤研究者だけでなく、塚本研究者、小林研究者の研究にも関心をもって、ミニワークショップなどを通じて議論してくれましたが、研究分野全体を牽引するような理論提案には至っていないのが現状です。今後、さがけでの研究者間のネットワークを通じて、熱スピントロニクスの先導者になることが囑望されます。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1.	R. Takahashi, S. Murakami, Thermoelectric transport in perfectly conducting channels in quantum spin Hall systems, <i>Physical Review B</i> 81, 161302(R) (2010).
2.	O. A. Tretiakov, Ar. Abanov, Shuichi Murakami and Jairo Sinova Large thermoelectric figure of merit for three-dimensional topological Anderson insulators via line dislocation engineering, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 97, 073108 (2010)
3.	G.Y. Guo, S. Murakami, T.-W. Chen, N. Nagaosa, Intrinsic Spin Hall Effect in Platinum: First-Principles Calculations, <i>Phys. Rev. Lett.</i> 100, 096401 (2008)
4.	R. Shindou, S. Murakami, Disorder effect on 3-dimensional Z ₂ quantum spin Hall systems, <i>Phys. Rev. B</i> 79, 045321 (2009).
5.	T. Hirahara, Y. Sakamoto, Y. Saisyu, H. Miyazaki, S. Kimura, T. Okuda, I. Matsuda, S. Murakami, and S. Hasegawa, Topological metal at the surface of an ultrathin Bi _{1-x} Sb _x alloy film, <i>Physical Review B</i> 81, 165422 (2010).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件

(3) その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

受賞:

- 平成 20 年 東京工業大学挑戦的研究賞
- 平成 22 年 丸文研究奨励賞
- 平成 22 年 科学技術分野の文部科学大臣表彰若手科学者賞
- 平成 22 年 本多記念研究奨励賞
- 平成 22 年 サー・マーティン・ウッド賞

主要な招待講演:

- “Spin Hall and quantum spin Hall effects”, YKIS2007 “Interaction and Nanostructural Effects in Low-Dimensional Systems”, 京都大学, 2007/11
- “Spin current in nanostructures — Spin Hall effect and quantum spin Hall effect—”, 11th Sanken International Symposium, 淡路島, 2008/2
- “Quantum Spin Hall Effect --- Surface Spin Current on an Insulator ---”, International Workshop on Spin Current, 東北大学, 2008/2
- “Universal phase diagram for the quantum spin Hall systems”, Topological Aspects of Solid State Physics, 京都大学, 2008/6
- “Spin Hall effect and quantum spin Hall effect — spin current in metals and insulators—”, Gordon Research Conference “Magnetic Nanostructures”, Aussois, France, 2008/9
- 「トポロジーに起因した新奇な表面状態」、第28回表面科学学術講演会、早稲田大学, 2008/11/14
- “Universal Phase Diagrams for Quantum Spin Hall Phases”, Novel Topological States in Condensed Matter Physics(2009), Hong Kong, China, 2009/6
- 「半導体および金属でのスピホール効果の理論」、第70回応用物理学会学術講演会、富山大学, 2009/9
- 「トポロジカル絶縁体と表面ディラック電子」、物性研究所短期研究会 “ディラック電子系の物性—グラフェンおよび関連物質の最近の研究”, 東京大学物性研究所, 2009/10
- “Spin Hall effect and Berry phase”, 5th CAS Cross-Strait and International Conference on Quantum Manipulation, Beijing, China, 2009/12
- “Physics of surface states in topological insulators”, Symposium on Surface and Nano Science, Shizuoka, Japan, 2010/1
- “Thermoelectric transport in 2D quantum spin Hall systems”, 4th International Workshop on Spin Currents, Sendai, Japan, 2010/2
- 「トポロジカル絶縁体研究の進展:理論」、日本物理学会第65回年次大会, 岡山大学, 2010/3
- “Spin Hall effects”, Progress in Spintronics and Graphene Research, Beijing, China, 2010/6
- “Edge-state transport in two-dimensional topological insulators”, The 19th International Conference on the Application of High Magnetic Fields in Semiconductor Physics and Nanotechnology, Fukuoka, Japan, 2010/8
- 「トポロジカル絶縁体での特異な熱電輸送の理論的探索」、第5回 KEK 連携研究会、つくば、2010/12
- 「トポロジカル絶縁体のエッジ状態・表面状態による輸送現象」、第15回半導体スピ工学の基礎と応用(PASPS-15)・半導体スピントロニクス of 展開、つくば、2010/12

著作物、解説記事:

- 「スピホール効果の理論」(「スピントロニクス of 基礎と材料・応用技術 of 最前線」第13章, シーエムシー出版、2009年)
- 「トポロジカル絶縁体 of 物理」、村上修一, 平原徹, 松田巖, 日本物理学会誌 65, 840 (2010).
- 「トポロジカル絶縁体とディラックコーン」、村上修一, 固体物理 45, 477 (2010).

研究報告書

「 π 共役高分子鎖内の超高速電荷輸送を利用した有機トランジスタ」

研究期間：平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月

研究者：安田 剛

1. 研究のねらい

有機エレクトロニクスは低コスト生産の可能性、大面積フレキシブルデバイスの実現を特徴とし、近年大きな注目を集めている。中でも活性層に有機半導体を用いる電界効果トランジスタ(organic field-effect transistor: 有機FET)は有機ELの実用化の後に続く開発対象として研究が進められている。本研究では、 π 共役高分子の歴史的な開発、発展経緯を踏まえ、高分子の優位性を再構築し、 π 共役高分子が現在の有機FETの主流材料である低分子系材料を遥かに超える可能性を示すことを目標とする。具体的には低分子有機半導体でのキャリア輸送の主流である隣接分子間の π 電子の重なり介してのキャリア輸送の限界(移動度 $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度)を打破するため、高度に配向した π 共役高分子集合体の主鎖方向キャリア輸送を利用し、低分子を超える有機FETの可能性を検証する。以上のことは長い歴史を有する高分子加工技術を用いた π 共役高分子の共役拡張方法と申請者により確立した有機FET作製技術を組み合わせることで検証可能である。

2. 研究成果

2. 1 溶剤可溶型ポリアニリン延伸薄膜の導電率向上

まずは本研究にて、延伸薄膜の作製法とその効果を確認するため、溶剤可溶型ポリアニリン(Pani)(出光興産提供)の延伸薄膜作製と導電率測定を行った。本研究での延伸配向薄膜の作製法は、無延伸のポリプロピレン(PP)基板上にスピンコート法によりPani薄膜を形成し、図1に示す一軸延伸機にPP基板を固定した。材料の酸化を防ぐため延伸機槽内を窒素充填し、PP基板が軟化する 170°C まで槽内を加熱し、PP基板と共にPaniを延伸した。槽内を自然冷却し延伸後の薄膜を取り出すと、配向したPP/Paniを扱い易い薄膜形状で得ることが出来た。

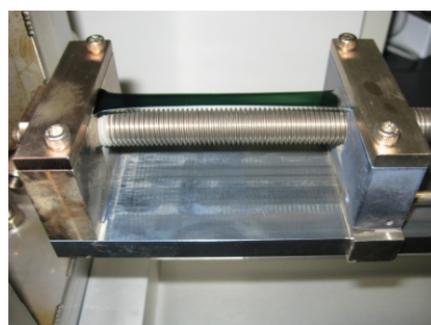


図 1. 一軸延伸機を用いて延伸した π 共役高分子、延伸前(左図)、延伸後(右図)

得られたPani薄膜に4端子測定用電極を真空蒸着により形成し導電率の測定を行ったところ、無延伸薄膜の導電率が $6.5 \times 10^{-2} \text{ S/cm}$ であったのに対し、15倍延伸薄膜の延伸方向での導電率は 71.5 S/cm にまで達し、延伸により導電率が約1100倍向上することを見出した(表1)。古くより延伸により導電率が向上すると知られてはいたが、改めて延伸により π 共役高分子薄膜の電気特

表 1. Pani 延伸薄膜の延伸倍率と延伸方向での導電率

サンプル	導電率(S/cm)
無延伸(170°C加熱)	6.5×10^{-2}
5倍延伸(170°C加熱)	2.0
10倍延伸(170°C加熱)	12.3
15倍延伸(170°C加熱)	71.5

性が大幅に向上することを再認識し、本研究を行う意義を証明した。

延伸薄膜導電率の次元性を確認するため、室温から150Kでの導電率を測定し、伝導モデルをバリアブル・レンジ・ホッピング (VRH) に従って解析を行ったところ、5 倍、10 倍延伸、いずれも3次元のホッピング伝導を示した。150K程度ではホッピングの低次元性が見られていないと考えられる。本サンプルは九州大学理学部物理学科 篠崎文重教授に興味を持って頂き、導電率の4Kまでの導電率低温測定、ゼーベック効果測定など、延伸薄膜伝導の一次元性に関する物理研究に発展している。

2.2 延伸配向薄膜作製に適した π 共役高分子の探索

まずは高分子、低分子との比較実験として、低分子で代表的なペンタセンをPP基板上に真空蒸着を行い217nm薄膜の5倍延伸を行った。そのAFM像では図2に示すように延伸前は多結晶の連続膜であったが、延伸後は海島状に結晶が点在しており、加工性という点で低分子は大きく劣っている。

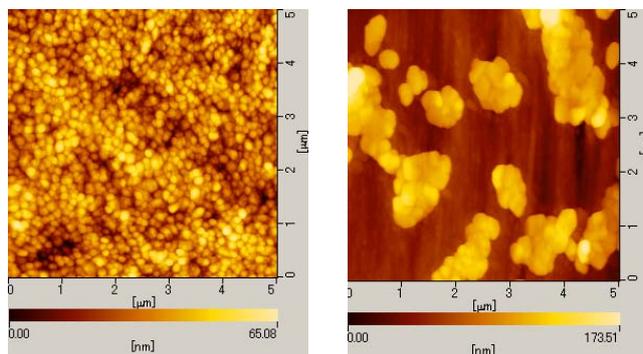


図2. ペンタセン蒸着膜の表面AFM像（左図 延伸前、右図 5倍延伸後）

π 共役高分子は、現在の有機エレクトロニクスで良く用いられている結晶性のrr-P3HT、液晶性のPFO、アモルファス性のMEH-PPVを延伸材料として試した。それぞれの材料をこれまでと同じ手法で5倍延伸した場合の偏光吸収スペクトルを図3に示す。いずれの材料においても偏光吸収の異方性を示し、延伸方向と平行に π 共役主鎖が配向していることが分かる。高分子の配向薄膜作製手法には様々な方法があるが、上記3つの結晶、液晶、アモルファス性薄膜いずれをも高度に配向させる手法は無く、延伸法が配向薄膜作製法として極めて優れていることを証明した。

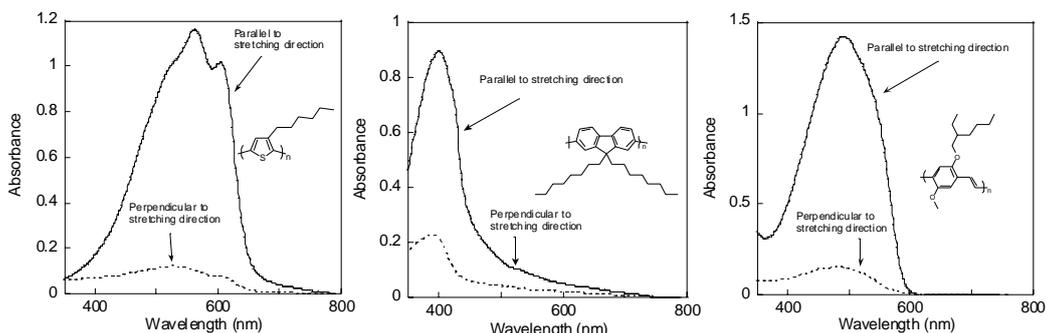


図3. 5倍延伸した π 共役高分子薄膜の偏光吸収スペクトル、左から順にrr-P3HT、PFO、MEH-PPV

唯一例外として延伸配向に適していない材料系は、薄膜中での結晶性が非常に高いチエノチオフェン構造を有するポリマー(PBTTT-C10)が挙げられる。このポリマーは有機トランジスタで最も高い正孔移動度(0.3-1.0cm²/Vs)を示す材料ではあるが、膜質が多結晶の集合体となるため(図4(a)(b))、延伸後は低いながらも偏光吸収の2色性(4.0, 561nm)を示すが、多

結晶間に大きなギャップが見られ、電気伝導には適していないことが分かる(図 4(c)(d))。

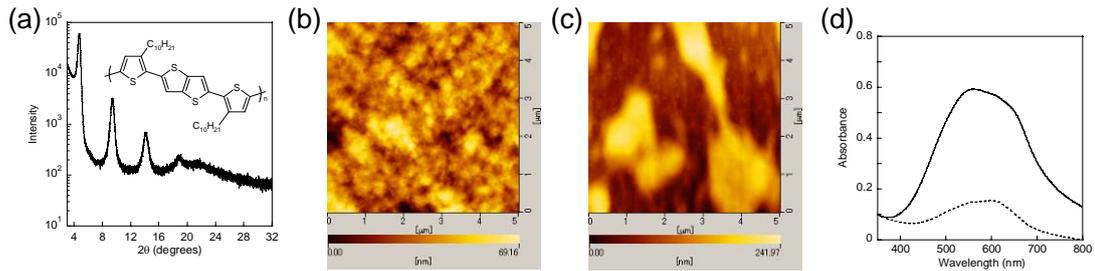


図 4. (a)PBTTC-C10 の構造式と薄膜 XRD、(b)延伸前の表面 AFM 像、(c)5 倍延伸後の表面 AFM 像、(d)5 倍延伸薄膜の偏光吸収スペクトル。

2.3 ポリチオフェン延伸膜の導電率測定とトランジスタへの応用

この配向薄膜の中で有機FET材料として一般的なrr-P3HTを用いて図 5 に示すトップゲート型の有機FETを作製した。絶縁膜には溶媒を用いないで製膜出来るパリレンCを用いている。これによりrr-P3HT配向薄膜を乱すことなくデバイス作製が可能となる。ソース・ドレイン電極の配置は延伸方向と平行(π 共役主鎖に沿って)に電流が流れる位置、及び延伸方向と垂直に電流が流れる位置になるように金電極を蒸着した。トランジスタ飽和電流より求めた平行方向での正孔移動度は $2.7 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であり、延伸方向と垂直に電流を流した場合の移動度 ($8.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Vs}$)と比較して 3.4 倍である。様々な方法により作製したrr-P3HT配向薄膜を用いた有機FETにおいても移動度の異方性が確認され、いずれの場合もπ 共役主鎖に沿ったキャリア移動度が大きいことが報告されており、延伸配向法で作製したrr-P3HT配向薄膜トランジスタも同様の傾向を示すことが分かった。しかしながら移動度の値では、絶縁膜SiO₂上にスピコート法により作製したrr-P3HT無配向薄膜において $0.1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ が報告されていることを考えると、延伸配向による共役主鎖方向の伝導が十分に活かされていない。これは今回のデバイス構造では、AFMで観察している表面(図 6、5 倍延伸では最大高低差 122nmの筋状の模様)が、絶縁膜との界面であり、その界面がキャリア伝導のチャネルである。界面にここまで大きな凹凸を有していると、絶縁膜との密着性、筋間でのキャリアトラップ等、キャリア移動度に対し様々な問題が生じていると予想される。

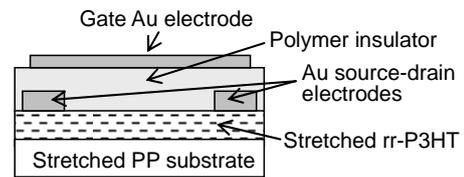


図 5. 本研究で採用したトップゲート型有機トランジスタ構造

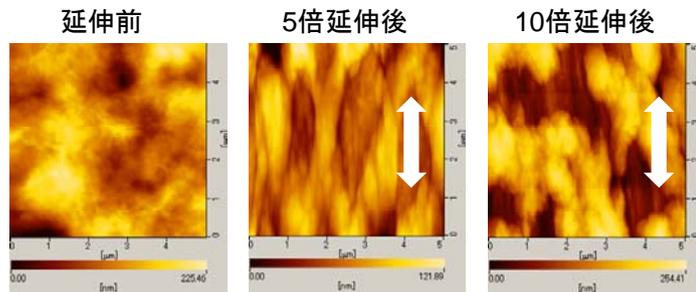


図 6. rr-P3HT薄膜の延伸前後での表面AFM像。10 倍延伸は延伸方向の結晶間に大きなギャップが観測され、この薄膜を用いた有機トランジスタの移動度は $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以下であった。

以上の rr-P3HT の表面凹凸を軽減するために、アルキル鎖の長い rr-P3DDT を用いることにした。rr-P3HT の融点は 212°C であり、アルキル鎖を長くした rr-P3DDT では融点が 166°C まで下がり、延伸時の温度としている PP 基板の軟化温度 170°C に近くなる。5 倍延伸前後の

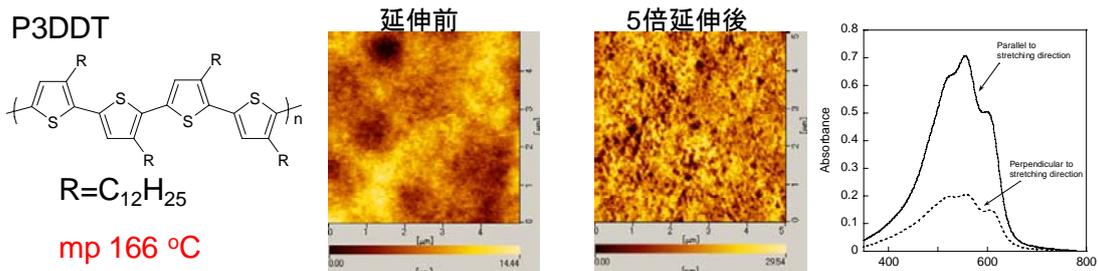


図 7. 左より P3DDT の構造式、延伸前の表面 AFM 像、5 倍延伸後の表面 AFM 像、5 倍延伸薄膜の偏光吸収スペクトル。

表面 AFM 像では狙い通り、rr-P3DDT が溶解しながら延伸された為、筋状の観測はされず表面凹凸が軽減している。しかしながら、配向も緩和されている為、偏光吸収の 2 色比は 3.4 でこれまでの材料で一番低い。これらの薄膜を用い rr-P3HT と同じ構造で有機 FET を作製し、図 8 に示すように比率と移動度で評価を行うと、延伸していない薄膜と比較して 1 桁の移動度向上に成功した。

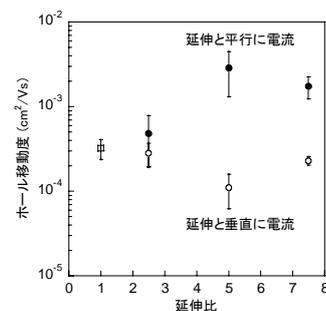


図 8. 正孔移動度と延伸比率

3. 今後の展開

研究により得られた知見や経験をふまえ、今後の実験方針や他デバイスに展開可能な知見以下に示す。

- ・有機トランジスタ作製プロセスの改良 有機トランジスタは有機半導体/絶縁膜界面が重要であり、高移動度の為にはデバイス構造・作製プロセスの更なる改善が必要である。図 6 に示すような凹凸のある有機半導体にはイオン液体を絶縁膜にすることで、有機半導体と絶縁膜の密着向上、電荷二重層による十分なゲート電圧印加が可能となると考えられる。以上は領域会議で得られたアドバイスである。また絶縁体の PP 基板と共に π 共役高分子を延伸配向しているが、この PP 基板を絶縁膜にするデバイス構造も考えられる。このデバイス構造での有機トランジスタ動作は高ゲート電圧で既に確認している。

- ・有機薄膜太陽電池への応用 現在の有機薄膜太陽電池の材料開発の主流は、太陽光の長波長側の吸収を担う材料の開発である。延伸配向した π 共役高分子は、高分子集合体中での折れ曲がり等が伸びて、実効的に共役長が延び、吸収も長波長にシフトする。実際にドナーの rr-P3HT とアクセプターの PCBM(フラーレン誘導体)混合延伸膜の吸収ピークは無延伸の薄膜に比べ 50nm 長波長側にシフトする。このように新規材料開発を行わなくても、配向という手法で有機薄膜太陽電池に有益な薄膜を提供できる可能性がある。

4. 自己評価

高分子の配向方法である古典的な延伸配向法にこだわり、高分子の持つ加工性とキャリアの主鎖伝導を利用して、 π 共役高分子が現在の有機エレクトロニクスの主流材料である低分子系材料を遥かに超える可能性を示すことを目標とし、失敗、改善の繰り返しで研究を進めてきた。延伸配向により、結晶、液晶、アモルファス性薄膜いずれにおいても偏光吸収の高い 2 色比で配向させることに成功し、延伸法が配向薄膜作製法として極めて優れていることを証明した。また延伸薄膜のバルクでの導電率は延伸前と比較して大幅に向上することも示した。例えばアクセプター F4TCNQ で正孔ドーピングした rr-P3HT と rr-P3DDT の 5 倍延伸薄膜の導電率は、延伸前と比べ 2 桁向上している。以上のように延伸法による π 共役高分子配向薄膜のバルクでの光学、電気特性を大きく向上させることに成功した。

その応用として有機トランジスタ測定で延伸と平行方向(主鎖方向)と垂直方向で移動度の異方性(rr-P3HTでは 3、rr-P3DDTでは 26)が得られ、主鎖方向に優位性が見られた。し

かし移動度向上という観点では絶縁膜SiO₂上にスピコート法で作製したrr-P3HT無配向薄膜において 0.1cm²/Vsが報告されていることを考えると、延伸配向による共役主鎖方向の伝導が十分に活かされていない。これらの問題の原因は明確となっているため、今後の展開で述べたようなデバイス構造の改善で、本研究の有用性を更に示したい。

5. 研究総括の見解

安田研究者は、高分子を薄く引き延ばして分子の向きをそろえる「延伸配向法」によって、配向π共役高分子集合体の主鎖分子内の高速キャリア移動を利用した高性能有機 FET の実現を目指しました。

彼はまず、ポリプロピレン基板にスピコートした溶剤可溶性ポリアニリンを引っ張り機で基板ごと最大 15 倍まで延伸し、延伸した膜に電極をつけて導電率を測定しました。その結果、導電率を 1000 倍にも高めることができました。これは大きな成果でしたが、延伸膜の導電率の温度変化を測定すると、すべて3次元のホッピングで説明でき、当初期待した1次元のバンド伝導にはなっていませんでした。

次に、延伸配向法に適した高分子を探索し、結晶(rr-P3HT)、液晶(PFO)、アモルファス(MEH-PPV)薄膜いずれにおいても一部の例外を除き、延伸による配向が起きることを、変更吸収の線二色性から確認しました。

このうち結晶性の rr-P3HT という高分子を延伸した薄膜について、ゲート絶縁膜として高分子を用いたトップゲート型の電界効果トランジスタを作製し、電界効果移動度を評価したところ、ホールの移動度に明確な異方性を見いだしました。しかし、移動度の値としては 0.003cm²/Vs 程度と小さなものしか得られませんでした。表面状態の凹凸など本質的でない原因で移動度が低下しているのではないかと考え、アルキル鎖の長い rr-P3DDT の 5 倍延伸をしたところ、延伸時に表面が一部融解することで改善され、これを用いた電界効果トランジスタは延伸前より 1 桁高い移動度を示しましたが、異方性は低下しました。このように、残念ながら、延伸法によっては所期の高移動度を実現できませんでした。領域会議では、延伸による移動度向上の物理的根拠が不明確であるという厳しい指摘があり、基礎に返っての研究再構築が必要ではないかと思われれます。

安田研究者は、九州大学で助教でしたが、さきがけ 2 年目に講座の教授が定年退官し、職を求めて NIMS に異動しました。このため、研究室の立ち上げ、大学時代と比べ人手がなくなったこと、さらに NIMS での任務が有機太陽電池ということなど、厳しい条件下でよく粘って研究をしたと思います。また、延伸膜は、有機トランジスタとしては道半ばですが、rr-P3HT/PCBM バルクヘテロ型有機太陽電池の効率改善につながる事がわかり、さきがけ研究の波及効果として評価できます。また、本領域の運営においては、2-3 期生の有機デバイス研究者の兄貴分的存在で、後輩研究者の有機試料の電気的評価を引き受けるなどを通じて本領域に貢献してくれたことは、大いに評価できます。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.	T. Yasuda, M. Saito, H. Nakamura and T. Tsutsui, Conjugation-length dependency of unsubstituted oligo-p-phenylenevinylens on the performance of organic field-effect transistors, Chem. Phys. Lett., 452 pp. 110-114 (2008)
2.	T. Yasuda, M. Saito, H. Nakamura and T. Tsutsui, Anisotropic carrier transport properties of highly aligned oligophenylenevinylens in organic field-effect transistors, Appl. Phys. A, 95 pp.179-183 (2009)
3.	T. Yasuda, L. Han and T. Tsutsui, Fabrication of Stretch-Oriented Regioregular Poly(3-Hexylthiophene) Film and Its Application to Organic Field-Effect Transistors, J. Photopolym. Sci. Tech. 22 pp.713-717 (2009)
4.	T. Yasuda, T. Suzuki, M. Takahashi and T. Tsutsui, Synthesis and Carrier Transport Properties of Triarylamine-Based Amorphous Polymers for Organic Field-Effect Transistors,

	Chem. Lett. 38 pp.1040–1041 (2009)
	5. T. Yasuda, T. Ishi-i and L. Han, Benzothiadiazole –Triphenylamine Derivatives as Donor Materials for Bulk–Heterojunction Organic Solar Cells, J. Photopolym. Sci. Tech. 23 pp.307–312 (2010)
	6. H. Nagashima, M. Saito, H. Nakamura, T. Yasuda and T. Tsutsui, Organic field–effect transistors based on naphthyl end–capped divinylbenzene: performance, stability and molecular packing, Org. Electronics 11 pp.658–663 (2010)
	7. K. Sugiyasu, R. M. Harrison, A. Sato, T. Yasuda, S. Seki and M. Takeuchi, A Self–Threading Polythiophene: Defect–Free Insulated Molecular Wires Endowed with Long Effective Conjugation Length, J. Am. Chem. Soc. 132 pp.14754–14756 (2010)
	8. K. Sakamoto, T. Yasuda, K. Miki, M. Chikamatsu and R. Azumi, Anisotropic field–effect hole mobility of liquid crystalline conjugated polymer layers formed on photo–aligned polyimide films, J. Appl. Phys. 109 013702 (2011)

(2)特許出願

研究期間累積件数:1 件

発 明 者: 中村浩昭、松浦正英、前田竜志、安田剛

発明の名称: 有機薄膜製造法及び該製造法を用いた有機薄膜と同該薄膜を用いた有機光電変換素子

出 願 人: 出光興産株式会社 独立行政法人 物質・材料研究機構

出 願 日: 2009/10/16

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

受賞

1. ナノ学会第六回大会 若手優秀発表賞、「有機分子配向制御による有機薄膜トランジスタの高性能化」2008年5月

2. 20th Korea–Japan Joint Forum on Organic Materials for Electronics and Photonics 2008 (KJF2008) Poster Award、「Carrier transport properties of liquid crystalline π -conjugated oligomers in organic field–effect transistors」2008年10月

3. 第19回日本MRS学術シンポジウム奨励賞、「延伸による π 共役高分子配向薄膜の作製と有機薄膜トランジスタへの応用」2010年1月

著作物

1. 有機半導体デバイス –基礎から最先端デバイスまで–(オーム社)

日本学術振興会情報科学用有機材料第142委員会 編纂

分担執筆 有機トランジスタ 4.1.4 新材料設計 2010年10月

2. 環境・エネルギー材料ハンドブック(オーム社)

物質・材料研究機構 監修

分担執筆 1.5 有機EL・TFT材料 2011年2月

研 究 報 告 書

「ナノ磁性体集結群の新奇な磁気特性の究明」

研究期間：平成20年10月～平成23年3月

研究者：山口 明啓

1. 研究のねらい

新奇な革新的デバイスだけではなく、既存回路・素子との融合・共生できる素子の基本要素となる物質創製やその物理現象の究明を行うことで、基礎研究からデバイス応用、応用から基礎研究を見直す。特に、人工的な構造を有するナノスケールの磁性体を一個から数百万個集結させた系について、その物性研究ならびに応用研究を行う。

応用上の目標は、物質を等価回路化し、屈折率などの電磁氣的物質パラメータを人工的に制御し新奇な機能性物質の創製であり、基礎研究としては人工構造に起因する物性の究明を行い、革新的な次世代デバイスへ展開できる新奇な物理現象の発見や究明を行う。

2. 研究成果

ナノスケールの磁性体を集結させたり、トポロジカルな形状操作によって発現するナノスケールの人工磁性体の物性研究を行った。集結群を作製するにあたり、構成要素となる人工磁性体の物性究明を行った。以下に、具体的な成果について概要を記載した後、その詳細について概説する。

【1】マイクロスケール、ナノスケール強磁性細線についての物性究明

- ◆ マイクロスケール、ナノスケールの人工的な構造を有する磁性体では、磁気交換長と大きさが同程度であることから、様々な量子力学的現象が出現することが期待される。特にマイクロ波を入力すると、境界条件が付与されるため、量子化されたスピン波が励起される。本研究では、ナノ磁性体集合体の基本要素となるナノ磁性体内部に励起される動的磁気挙動について電氣的分光測定を行い、その現象の物理的機構を明らかにした。
- ◆ 電氣的分光現象のモデル化を行い、スピン波励起状態にスピン偏極した電流を入力したときの磁化の動的挙動や微小な磁性体の動的磁気応答を検出する手法(以下、ホモダイン検波あるいは整流効果という。)として確立した。

【2】ナノ磁性体内部の磁気構造の動的挙動の電氣的検出

- ◆ $\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{81}$ 磁気円盤中に形成される磁気渦の動的挙動を整流効果を用いて、検出することに成功した。
- ◆ 高周波による磁気渦の励起に加え、直流電流を入力することによって、磁気渦の旋回運動を制御し、共鳴周波数等を制御できることに成功した。
- ◆ 高周波電力強度を大きくすることで、磁気渦が安定あるいは不安定な旋回軌道を描くために非線形な応答をすることで非対称な共鳴スペクトルが出現することを示した。Foldover (折りたたみ効果:ここでは複数の旋回軌道が存在することによる軌道の重ね合わせ)についても、実験的に明らかにした。
- ◆ 磁気渦状態を記述する物理パラメータが2種類存在し、それぞれ2つの状態を記述する。すなわち、4つの状態があり、それらの状態はエネルギー的に縮退しており、区別ができない。高周波励起による整流効果によって、この4つの状態を完全に区別して検出することに成功した。

【3】ナノ磁性細線の強磁性共鳴中における透磁率ならびに誘電率の測定手法

- ◆ ナノ磁性体を伝送線路に配置して、その有効透磁率ならびに誘電率を測定手法を確立し、測定を行った。結果、一様モードの強磁性共鳴状態では正の応答が支配的であることがわかった。

【4】単結晶 Fe 細線中の単一磁壁移動の究明

- ◆ 単結晶 Fe 細線中の単一磁壁の移動速度を結晶軸を選択的に変えて、測定することに成功した。
- ◆ 単結晶 Fe 細線では、結晶方向によって、磁化反転過程に経路が何通りかある場合と一通りしかない場合が存在し、経路が何通りかある場合には速度と反転磁場との関係において分裂した分散関係を示すことがわかった。
- ◆ 単結晶 Fe と多結晶 Fe の磁壁移動速度は、それぞれ外部磁場 100Oe 程度の際に、毎秒 1km と 200m 程度であることがわかった。磁壁移動速度から、磁気緩和に関係するダンピング定数を見積った。

【5】単結晶 Fe と多結晶 Fe における磁気緩和機構について

- ◆ 単結晶 Fe 細線ならびに多結晶 Fe 細線について、整流効果による強磁性共鳴測定を行い、ダンピング定数を測定することに成功した。
- ◆ 測定したダンピング定数は、磁壁移動から決定した値と比較的良く一致し、微視的にも系全体としても磁化挙動を支配している物理機構は変わらないことを示した。

【6】層間結合相互作用の空間変調構造の実現と磁化反転機構の制御

- ◆ 巨大磁気抵抗効果 (Giant Magnetoresistance effect: GMR 効果) を示す強磁性(F1)／非磁性(N)／強磁性(F2)多層膜における強磁性層間結合ポテンシャルを非磁性層の空間反転対称性を人為的に破ることによって、空間的に変調し、磁壁を量子井戸ポテンシャルを用いて制御することに成功した。

【7】ナノ磁性体集結構造の作製とその評価

- ◆ ナノ磁性体集結構造を作製して、その応答特性を評価している。これは現在も進行中の課題である。

《研究成果の概説》

【1】ミクロンスケール、ナノスケール強磁性細線についての物性究明

情報ストレージであるハードディスク・磁気抵抗メモリ(MRAM)や磁気センサーなどの分野が大きく発展して拡大するに伴い、ナノメートルからマイクロメートルサイズの強磁性体素子が形成されるようになってきた。デバイスの高動作性能を決定するのは、この微小サイズの強磁性体素子の動的挙動である。すなわち、ナノ磁性体における磁気モーメントの動的挙動を研究することは基礎的な研究のみならず応用研究においても非常に重要な意味を持っている。

また、ナノ磁性体では電流と磁気モーメントとの相互作用が引き起こす顕著な現象が多く報告されている。例えば、強磁性層／非磁性層／強磁性層の多層構造を有するナノ磁性体では、電流による磁化反転現象(スピン注入磁化反転現象)や高周波電流入力による直流電圧発生現象などの研究報告がある。また、その逆現象でスピンポンピング効果も報告されている。特に 3d 系強磁性体金属では、磁気モーメントを形成する d 電子と電気伝導を担う s 電子が混成しているため、多層膜複合構造におけるスピン注入効果による磁気状態励起現象は単層膜構造においても起こることが知られている。

本研究では、マイクロ波を単層膜構造のナノ強磁性細線に印加すると、その細線両端に特定周波数において直流電圧が発生することを発見した。磁気モーメントの歳差運動を何らかの方法で誘起すれば、強磁性体金属の磁気抵抗効果に時間依存性(周波数依存性)を与えることによって直流電圧が発生する。このとき、強磁性体中にスピン波の定在波が形成されていると考えられる。細線のように空間的に制限された構造を有するナノ強磁性体では、スピン波の量子化や細線端部のような場所から誘発される非一様な内部磁場領域でのスピン波の局在化現象が起きることが報告されている。

微小磁性体では、境界条件と交換長によって、量子化されたスピン波が励起された状態を形成することができる。スピンが空間的にねじれた状態は、伝導電子がベリー位相を獲得したり、スピントランスファー効果によって様々な励起状態への遷移が起きたりする可能性があり、非常に興味深い。

本研究では、マイクロ波をミクロンサイズの強磁性細線に入力したときにスピン波共鳴が励起

され、その際に細線長軸方向だけではなく、細線短軸方向にも直流電圧が発生する物性機構について研究を行った。また、直流電流をマイクロ波に重畳した際の直流電圧スペクトルの変化について物理機構を明らかにしただけではなく、スピントランスファートルクの強度を分光的手法によって明らかにできることを提案した。

電子線リソグラフィとリフトオフ法を用いて、MgO基板上にNi₈₁Fe₁₉細線を作製した。細線の厚みは65 nmであり、線幅は5 μmである。図1に測定回路概念図ならびに試料の光学顕微鏡写真を示す。高周波電力を印加するために短絡型のコプレーナーガイド形状の電極をFe₁₉Ni₈₁細線に接続した。電極材料は、Cr (5 nm)/Au (20 nm)/Cu (50 nm)/Au (20 nm)である。細線長軸方向に高周波電力を印加して、Bias-teeを通じて細線長軸方向に発生する直流電圧DC_Lを電圧計Vで測定した。それと同時に細線短軸方向に発生する直流電圧DC_Sを電圧計Vを用いて同時測定した。外部静磁場は、図1に示すように細線長軸方向からφだけ角度を傾けて面内に印加した。実験は、室温・大気中で行った。

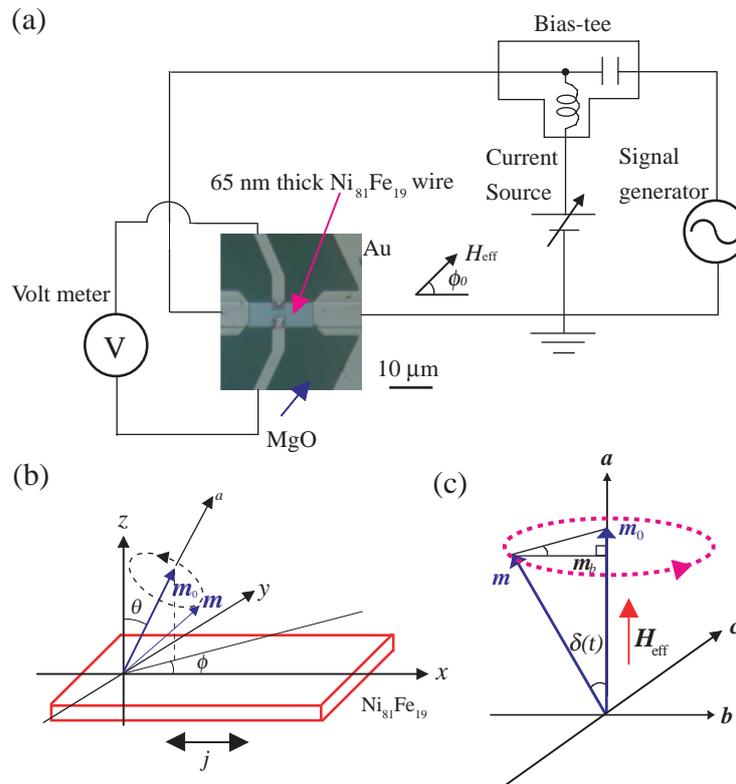


図1 (a) 高周波電流ならびに直流電流印加測定回路概念図ならびに強磁性細線と電極配置の光学顕微鏡観察像. (b)解析モデルの座標系. (c)(a,b,c)座標系での磁気モーメントの歳差運動モデル.

説明の都合上、本研究で明らかにした解析モデルを先に導入する。図1(b)と(c)の座標系で、強磁性細線に発生する電場は、

$$\mathbf{E} = \rho_{\perp} \mathbf{j} + \mathbf{m} (\mathbf{j} \cdot \mathbf{m}) \cdot (\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) + \rho_H \mathbf{m} \times \mathbf{j} \quad (1)$$

と記述することができる。ここで、 \mathbf{m} は、局所磁化の方向に沿った単位ベクトル、 ρ_{\perp} と ρ_{\parallel} は、電流 \mathbf{j} に垂直ならびに平行な電気抵抗、 ρ_H は異常ホール抵抗である。ここで、磁気モーメントが何らかの作用によって、平衡位置で時間的に振動している場合を考えると $\mathbf{m} = \mathbf{m}_0 + \delta \mathbf{m}(t)$ と記述でき、式(1)に代入して計算することができる。

磁気モーメントの動的挙動は、ランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式で記述することができる。本研究では、スピントランスファー効果も含めた形式でランダウ・リフシッツ・ギルバート方程

式を記述する。その際、スピントルクが顕著に作用すると、注目している磁気モーメントそのものの軸が回転することから、その効果も含めて回転座標系を導入して記述しなければならない。そこで、回転座標系を導入したランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式を解く。

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} + \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{m} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times (\mathbf{H}_{\text{eff}} + \mathbf{h}_{\text{rf}}) + \alpha \mathbf{m} \times \left(\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} + \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{m} \right) - (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{m} + \beta \mathbf{m} \times [(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{m}] \quad (2)$$

ここで、 $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M_s$ 、 $|\mathbf{m}| = 1$ であり、 M_s は飽和磁気モーメント、 γ_0 、 \mathbf{H}_{eff} 、 \mathbf{h}_{rf} と α はそれぞれジャイロ磁気回転比、有効磁場(交換磁場、反磁場などを含む)、高周波磁場、ダンピング定数である。さらに \mathbf{u} は電流密度 \mathbf{j} とスピン分極率 P を用いて $\mathbf{u} = \mathbf{j} P \mu_B / e M_s$ と書くことができる。式(2)の左辺は、回転座標系での磁化の時間的変化を表しており、右辺第一項から第四項は、それぞれ磁場によるラーモア歳差運動、回転座標系での減衰項、断熱的なスピントルク項ならびにスピン反転などを伴う非断熱的なスピントルク項に対応する。

詳細は省略するが、式(1)ならびに式(2)を解くことによって、強磁性共鳴時に振幅が最大になったときの面内での x 方向ならびに y 方向に発生する電場は、以下のように記述することができる。

$$\langle E_x(t) \rangle \approx j_{\text{dc}} \left[\rho_{\perp} + \Delta \rho \cos^2 \phi - \sqrt{1 + \eta^2} D_0 \Delta \rho \sin 2\phi - (1 + \eta^2) \left(D_0^2 + \frac{D_1^2 + D_2^2}{2} \right) \Delta \rho \cos 2\phi \right] - j_{\text{rf}} \left[\frac{\Delta \rho}{2} \sqrt{1 + \eta^2} D_1 \sin 2\phi - (1 + \eta^2) D_0 D_1 \cos 2\phi \right] \quad (3)$$

$$\langle E_y(t) \rangle \approx \frac{1}{2} j_{\text{dc}} \Delta \rho \left[\sin 2\phi + 2\sqrt{1 + \eta^2} D_0 \cos 2\phi - 2(1 + \eta^2) \left(D_0^2 + \frac{D_1^2 + D_2^2}{2} \right) \sin 2\phi \right] + \frac{1}{2} j_{\text{rf}} \Delta \rho \left[\sqrt{1 + \eta^2} D_1 \cos 2\phi - 2(1 + \eta^2) D_0 D_1 \sin 2\phi \right] \quad (4)$$

ここで、

$$D_0 = \frac{A_1 - B_1}{\alpha \Delta} = -\frac{1}{\alpha \Delta} \left[\Omega_0 (1 + \alpha) + (1 + \beta) u_{\text{dc}} \frac{\partial \phi}{\partial x} \right], \quad (5)$$

$$D_1 = \frac{A_2 - \alpha B_2}{\alpha \Delta} = \frac{1}{\alpha \Delta} \left[\gamma_0 (h_{\text{out}} + \alpha h_{\text{in}} \cos \phi) - (1 + \alpha \beta) u_{\text{rf}} \frac{\partial \phi}{\partial x} \right], \quad (6)$$

$$D_2 = -\frac{\gamma_0 H'_c}{\omega_k \alpha \Delta} B_2 = -\frac{\gamma_0 H'_c}{\omega_k \alpha \Delta} \left(-\gamma_0 h_{\text{in}} \cos \phi + \beta u_{\text{rf}} \frac{\partial \phi}{\partial x} \right). \quad (7)$$

$$A_1 = -\Omega_0 - u_{\text{dc}} \frac{\partial \phi}{\partial x}, \quad (8)$$

$$B_1 = \alpha \Omega_0 + \beta u_{\text{dc}} \frac{\partial \phi}{\partial x}, \quad (9)$$

$$A_2 = \gamma_0 h_{\text{out}} - u_{\text{rf}} \frac{\partial \phi}{\partial x}, \quad (10)$$

$$B_2 = -\gamma_0 h_{\text{in}} \cos \phi + \beta u_{\text{rf}} \frac{\partial \phi}{\partial x}, \quad (11)$$

である。ここで、 $\eta = |m_c|/|m_b|$ は、面内と面直の磁気モーメントの振幅の比となっており、楕円率を与える。強磁性共鳴周波数は、 $\omega_k^2 = \gamma_0^2 H'_c H'_b$ で与えられ、半値幅は $\Delta \alpha = \gamma_0 (H'_b + H'_c) \alpha$ となる。

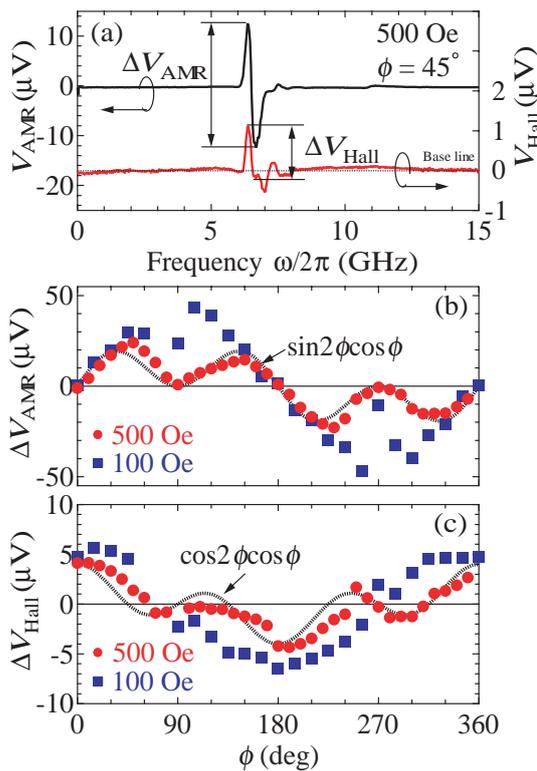
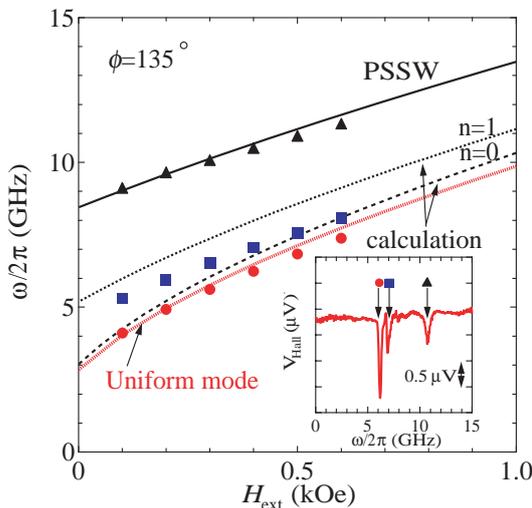


図 2(a)細線長軸(AMR)ならびに短軸(Hall)方向に発生する直流電圧スペクトル。(b)細線長軸方向と(c)細線短軸方向に発生する直流電圧スペクトルの振幅の角度依存性。



れたが、本研究ではその寄与は小さく外部磁場ならびにスピン波モードそのものが作り出す交流磁場による影響が大きいことが分かった。

図 3 共鳴周波数の外部磁場依存性。

以上の物理解析から得られた結果は、細線に発生する直流電圧の振幅ならびに振幅の角度依存性を測定すれば、磁気モーメントの動的挙動を与える成分が高周波磁場なのかスピントランスファー効果によるものかを区別し、そのトルクの大きさを定量的に測定することができる点である。これは、非常に重要な結果であり、基礎研究・応用研究をする際の指標となる。図 2(a)に直流電流を印加していないときの直流電圧スペクトルを示す。この結果から、強磁性共鳴状態において、はっきりとした直流電圧スペクトルが発生している。よく見ると微小な振動構造を持つことがわかる。これは、スピン波励起による構造である。細線長軸ならびに短軸方向に発生した直流電圧スペクトルの振幅の角度依存性をそれぞれ図 2(b)と(c)にプロットした。十分に強い外部磁場を印加すると、磁気モーメントが外部磁場方向を向くことから、上述した解析式から期待される角度依存性として、細線長軸方向では、 $\sin 2\phi \cos \phi$ と短軸方向では、 $\cos 2\phi \cos \phi$

である。図 2(b)ならびに(c)の外部磁場が 500Oe の時には、ほぼ解析モデルと一致していることが分かった。スピン波のモードを特定するために、外部磁場依存性を測定した結果を図 3 に示す。図 3 から量子化されたスピン波モードがいくつか存在していることが分かった。

スピン波が励起された状態では、スピンの空間的にねじれた状態になっているため、そこにスピン偏極した伝導電子が流れるとドップラー効果やスピントランスファー効果による新しい磁気励起が期待される。実際に、直流電流を入力したのが、図 4 である。図 4 の結果から直流電流を印加すると面内のスピン波モード(低周波側 7GHz 付近)と面に垂直なスピン波のモード(高周波側 11GHz 付近)があるうち、特に面に垂直なスピン波モードが増大していることがわかった。このモードが、スピントルクによる寄与が大きい場合には、図 5(c)に示した $\cos 2\phi$ の角度依存性を示すことが期待された。

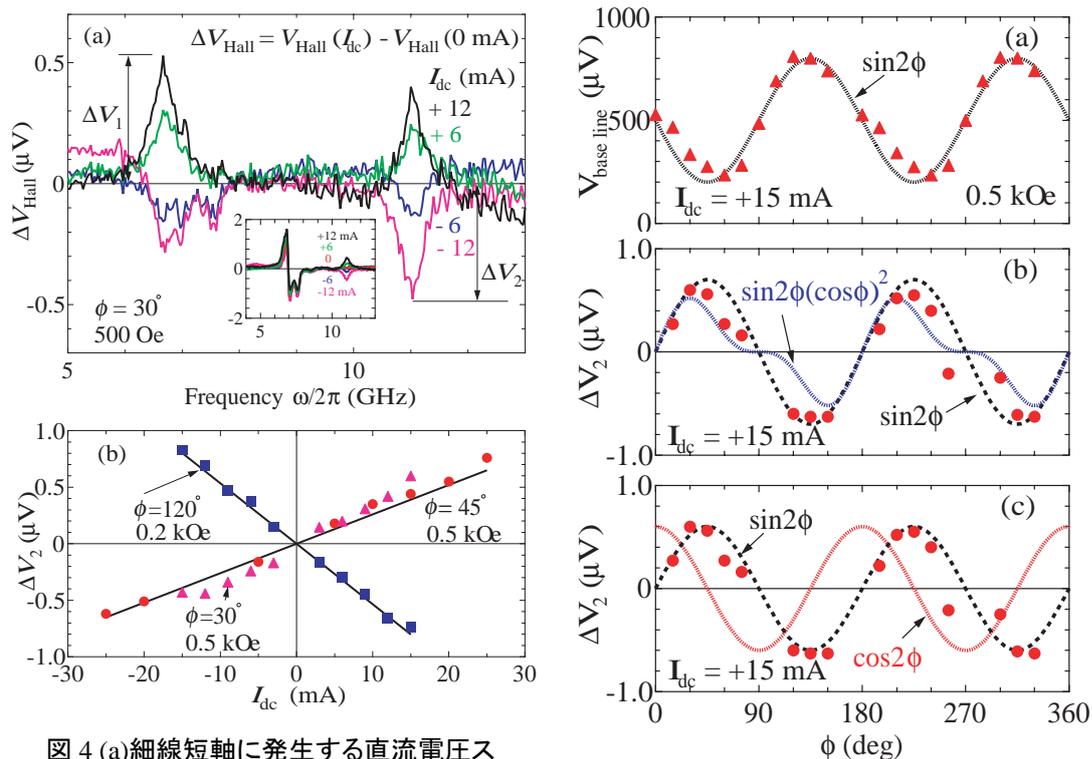


図 4 (a)細線短軸に発生する直流電圧スペクトルの直流電流依存性. (b)振幅の直流電流依存性.

たときのスペクトル依存性. 振幅の角度依存性(φ)ならびに(c)熱項に由来する成分を示した結果.

さらに、ナノ磁性体単体は非常に微小であることから、内部で起きている量子化されたスピン波状態を検出することは非常に困難である。本研究では、ナノ磁性体単体の微小スピンダイナミクスを電氣的に検出し、特に高周波磁場によって励起されるスピンダイナミクスについて研究を行った。

ここでは、高周波磁場成分のみでナノ磁性体の動的磁化挙動を励起し、その磁気応答を電氣的に検出する実験を行い、その物理機構の解明と微小磁気構造の動的挙動の超高感度検出手法としての実験技術を確立した。この実験では、特に高周波磁場をナノ磁性細線に面直・面内に人為的に印加して整流効果を測定する試料を作製し、磁気モーメントの動的挙動をランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式を用いて詳細に解析し、解析モデルを用いて実験結果を説明できることを示した。以下、詳細について簡単に記載する。

図 6 にMgO基板上に電子線リソグラフィとリフトオフ法を用いて作製したNi₈₁Fe₁₉直線形状細線とコプレーナガイド電極ならびに測定回路の概念図を示す。図 6(a)は細線面内に高周波磁場を印加するために、コプレーナガイドの上にNi₈₁Fe₁₉細線を配置した試料の模式図と実際の試料光学顕微鏡像である。図 6(b)は細線面直に高周波磁場を印加するために、コプレーナガイドの信号線とグランド線の間細線試料を配置した試料の模式図と試料光学顕微鏡像である。これらの配置によって、図 7 に示すように高周波磁場が試料に印加されることが高周波電磁波解析シミュレーターで確認した。

面内・面直磁場は高周波信号で発生させるが、このとき細線試料にも電流が流れるため、整流効果が発生するので、細線内部の磁気モーメントの挙動が解析できる。面内磁場励起と面直磁場励起それぞれの場合について、実験を行った結果を図 8 ならびに図 9 に示す。

発生した直流電圧信号 ΔV_0 の外部磁場角度依存性は面内・面直磁場励起の場合は、簡単なモデルから以下のようになる。

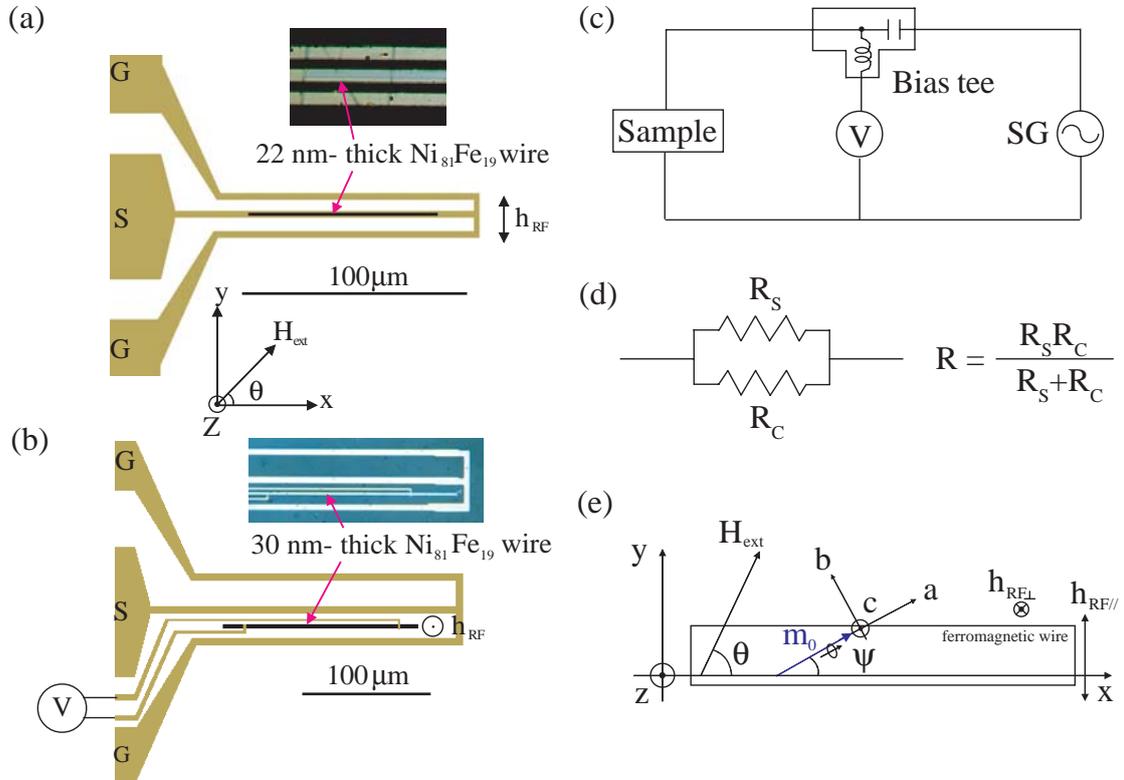


図 6 MgO 基板上に作製した試料細線と電極の光学顕微鏡写真ならびに測定回路の概念図。

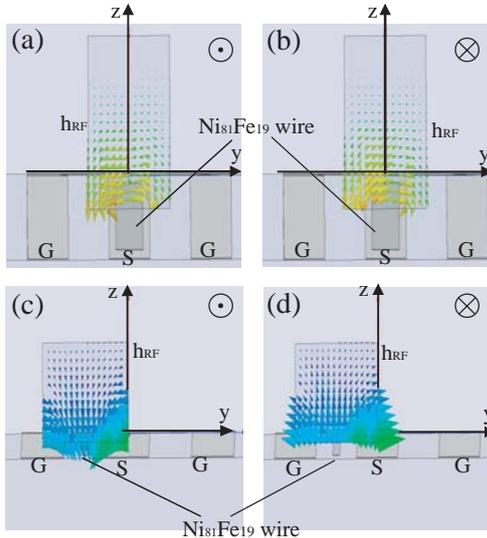


図 7 高周波磁場の空間分布
(a)(b) 面内磁場励起
(c)(d) 面直磁場励起

(i) 面内磁場励起

$$V_0(\omega) \propto \sin 2\theta \cos \theta \quad (|\mathbf{H}_{\text{ext}}| \gg |\mathbf{H}_A|)$$

$$V_0(\omega) \propto H_{\text{ext}} \sin \theta \quad (|\mathbf{H}_{\text{ext}}| \ll |\mathbf{H}_A|)$$

(ii) 面直磁場励起

$$V_0(\omega) = -B(\omega) \cdot \frac{I_s \cdot I_c \cdot \Delta R \cdot \omega^2 \cdot \alpha \cdot \Delta}{2y} \cdot \sin 2\theta$$

$$(|\mathbf{H}_{\text{ext}}| \gg |\mathbf{H}_A|)$$

面内ならびに面直磁場励起による直流電圧信号 ΔV_0 の外部磁場角度依存性の測定結果を図 10 ならびに図 11 にそれぞれ示す。それぞれの結果は、モデルとよく一致しており、細線内部の磁気モーメントの動的挙動がランダウ・リフシッツ・ギルバード方程式によって記述できることを示している。しかし、面直磁場励起の場合において、低磁場の場合についてはモデルと一致せず、高次のスピン波励起あるいは何か別の機構があると考えられる。

また、面内磁場励起の場合とマイクロ波直接励起の場合におけるスペクトル形状について、面

内磁場励起の場合は、分散型のスペクトルとなるが、マイクロ波直接励起の場合にはローレンツ型のスペクトル形状になることがわかった。これは、磁気モーメントの動的挙動を誘発するトルク方向が90度異なっているために生じていると考えられる。

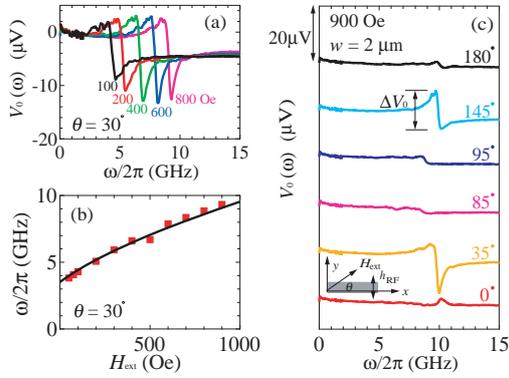


図8 面内磁場励起による細線ならびにコプレーナーガイド電極に発生した直流電圧信号の高周波周波数ならびに外部磁場依存性.

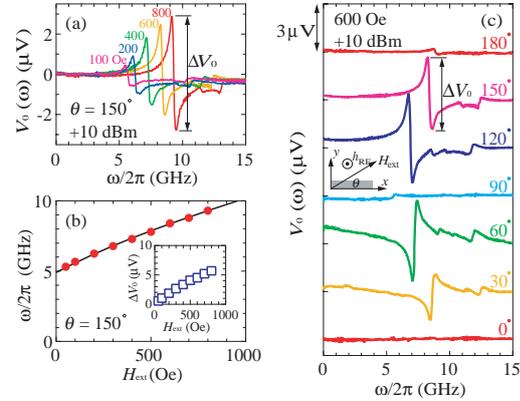


図9 面直磁場励起による細線ならびにコプレーナーガイド電極に発生した直流電圧信号の高周波周波数ならびに外部磁場依存性.

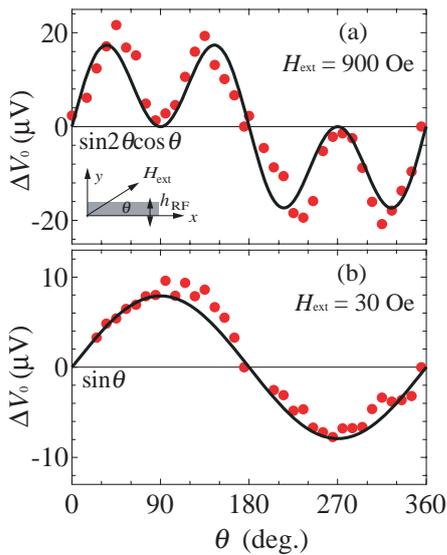


図10 高周波面内磁場励起による直流電圧信号 ΔV_0 の外部磁場印加角度依存性.

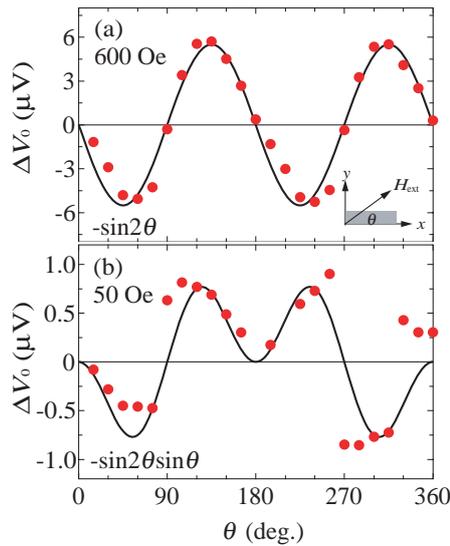


図11 高周波面直磁場励起による直流電圧信号 ΔV_0 の外部磁場印加角度依存性.

【2】ナノ磁性体内部の磁気構造の動的挙動の電氣的検出

次に、スピンの空間的な分布を大きく変えた構造を作製して実験を行った。図 12 は、 $\text{Ni}_81\text{Fe}_{19}$ で作製した半径 $3\mu\text{m}$ の磁気ドットの光学顕微鏡像、磁気構造の外部磁場依存性のシミュレーション結果ならびにプレーナーホール効果の測定結果 (図 12(b)) を示している。磁気ドットでは、静磁エネルギーを最小にするために、磁気渦が入り、スピンの空間変化が非常に大きな磁気構造を形成する。プレーナーホール効果の測定結果では、磁気構造変化に伴って大きな変化が対応して測定できることが分かる。

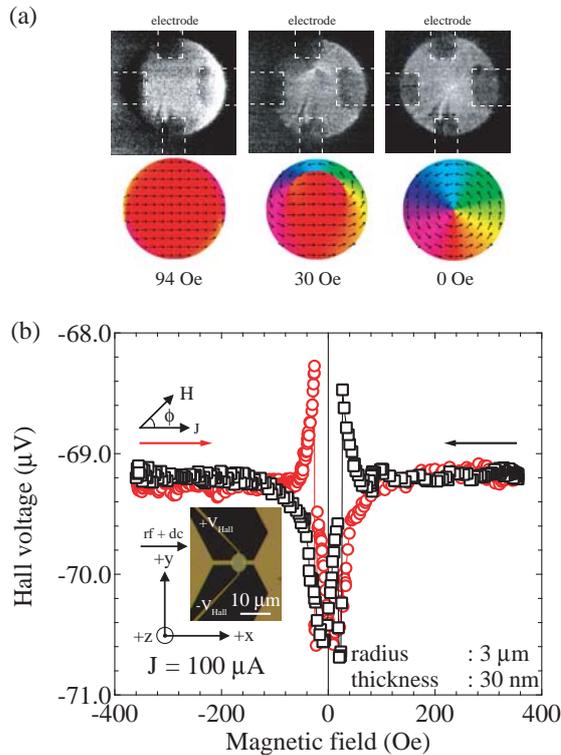


図 12 (a)磁気ドットの磁場中磁気力顕微鏡観察像とマイクロマグネティクス計算による磁気ドット内部の磁気構造の外部磁場依存性. (b) 外部磁場を電流方向に対して、面内で垂直に印加した($\phi = 90^\circ$)場合のプレーナーホール電圧の磁場依存性.

微視的には磁化の減衰成分と競合する形で寄与するため、半値幅も直流電流によって変化することが期待される。図 14(a)では、直流電流の印加に伴い、スペクトルが周波数シフトしていることがわかる。この周波数シフトをプロットしたのが、図 14(b)である。直流電流に対して直線的に共鳴周波数が変化していることがわかる。さらに振幅ならびに半値幅についても同様の結果が得られた。(図 14(c)ならびに 14(d)を参照)これらのことは、理論的に予想された現象と非常によく一致していることがわかった。非対称な形状の共鳴スペクトルは、磁気渦の非線形な旋回運動を反映していることを理論的に説明した。

直流電流によって、共鳴周波数が制御できることから周波数を直流電圧や直流電流で変調して検波する素子等に应用できることが期待される。

さらに、磁気円盤は、図 15 に示すように静磁エネルギーと交換エネルギーとの競合により、磁気モーメントが面内で回転する磁気構造を形成する。円盤の中心付近では、隣接する磁気モーメント間の相対角度が大きくなり、交換エネルギーが非常に大きくなるため、円盤中心付近で

次に、一定の外部磁場を印加して高周波電流を周波数掃引しながら、プレーナーホール電圧の直流電圧スペクトルを測定した結果を図 13(a)(b)に示す。外部磁場は、面内で高周波電流に対して垂直に印加している。図 13(b)の結果から、外部磁場が大きな場合には直流スペクトルは現れないが、外部磁場が 180e 程度になると共鳴構造が出現することがわかる。この共鳴スペクトルは、外部磁場の印加方向を反転すると反転することが分かった。さらに、外部磁場を印加すると磁気渦が移動して、磁気ドットの構造に由来するポテンシャルと外部磁場とが釣り合う位置に移動する。高周波電流を入力すると、その平衡位置を中心にして磁気渦が振動するので、磁気抵抗の振動成分が発生し、高周波電流と重ねあわされることで整流効果が起きて、前述の細線の場合と同様に直流電圧スペクトルが発生する。外部磁場の大きさによって、平衡位置がずれてくるので、共鳴周波数ならびに振動振幅が変化することになる。

ここで、直流電流を入力すると、スピンの空間的にねじれた状態が形成されているので、スピントランスファー効果が発現し、磁気渦が直流電流と垂直方向に移動することが考えられる。つまり、平衡位置を直流電流によって移動させるため、共鳴周波数ならびに振動振幅が直流電流によって変化するはずである。さらに、スピントランスファートルクは、

は磁化が吹き出す磁気渦構造を形成する。磁気渦は、この面内から吹き出す磁化の方向を示す polarity ならび面内での磁気モーメントの回転方向を示す chirality の2つのパラメータで表現

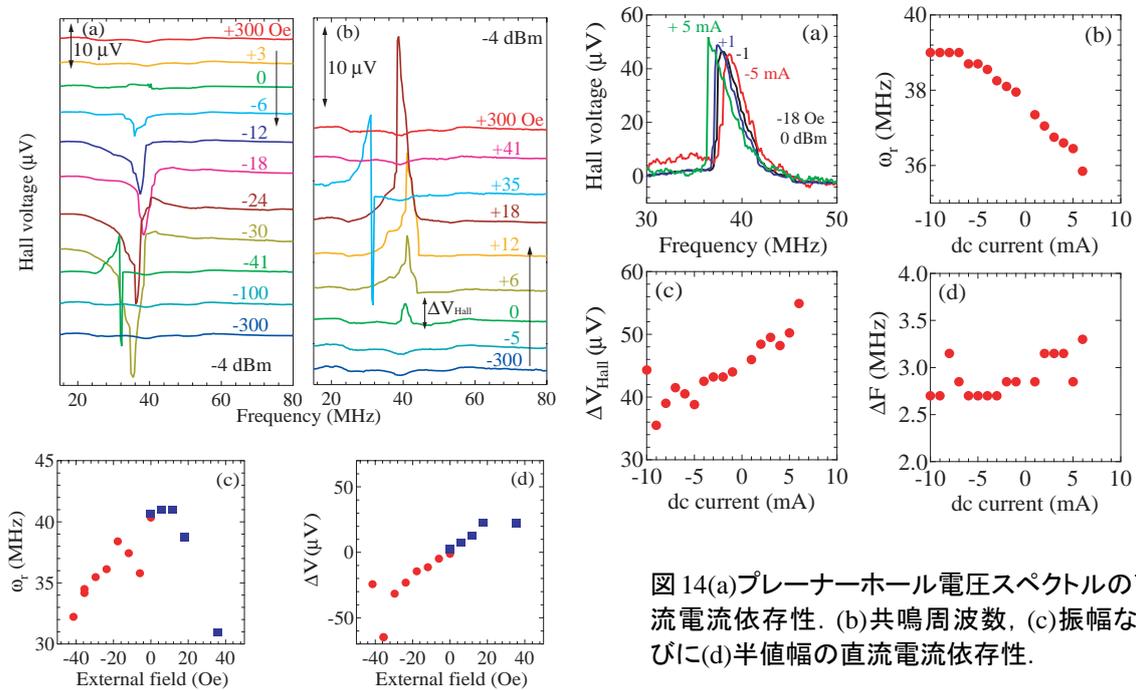


図 14(a)プレーナーホール電圧スペクトルの直
流電流依存性. (b)共鳴周波数, (c)振幅なら
びに(d)半値幅の直電流依存性.

図 13(a)(b)プレーナーホール電圧スペクトル
の外部磁場依存性. (c)共鳴周波数ならびに
(d)振幅の外部磁場依存性.

することができる。この2つのパラメータは、磁気渦中心部の磁化が磁気円盤面に対して上向きか下向きかによって、それぞれ $P=+1$ と $P=-1$ と表現され、面内の磁化の回転方向が右回りか左回りかによって、それぞれ $C=+1$ と $C=-1$ と表される。この4つの状態のエネルギーは縮退しており、見分けるのは困難である。磁気力顕微鏡を用いると polarity を明らかにすることができるが、その動的挙動や chirality に対する情報を得ることができない。本研究で明らかにした微小磁性体の高周波応答ならびに検出方法の確立によって、4つの状態を電気的に分離して検出し、その動的挙動を明らかにすることに成功した。

測定回路の概念図を図 16 に示す。面内で外部磁場を高周波入力方向に対して、角度 φ で印加する。polarity は、磁気円盤に対して、面直方向に 5kOe 以上の外部磁場を印加し、無磁場状態に戻すことで $P=+1$ と $P=-1$ を制御することができる。一方、chirality は磁気円盤にタグをつけ、タグに平行に外部磁場を印加することによって、制御することができる。本研究では、以上の方法によって Polarity ならびに chirality を制御した磁気円盤に対して、その高周波による磁気渦共鳴励起スペクトルを測定し、外部磁場の応答特性から、polarity ならびに chirality の依存性を検出した。

図 17 に、角度 $\varphi=0^\circ$ で印外部磁場を印加した際のスペクトルの polarity ならびに chirality の依存性を示す。磁気渦の動的特性は磁化の動的挙動を記述する運動方程式であるランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式から特異な構造に対して変形した Thiele の方程式で記述される。

$$G(P) \times (\mathbf{u} - \dot{\mathbf{r}}) = -\frac{\delta U}{\delta \mathbf{r}} - \alpha D\dot{\mathbf{r}} + \beta D\mathbf{u} \quad (12)$$

ここで、 $G(P) = -P \frac{2\pi M_s}{\gamma} \mathbf{e}_z$ は、面直方向にベクトル方向を持つ磁気渦の吹き出し磁化に対

応するジャイロベクトルである。スピン角運動量移行は $u = \frac{\mu_B p J}{e M_S} e_x$ と与えられる。ここで、 J は電

流密度、 μ_B はボーア磁子、 e は素電荷、 p はスピン分極率である。 a は磁気緩和を表すギルバート減衰項、 β は非断熱的なスピン角運動量移行に対する寄与を示す係数、 D はエネルギー散逸を示すダンピング・テンソルである。 U は交換相互作用エネルギー、静磁エネルギー、ゼー

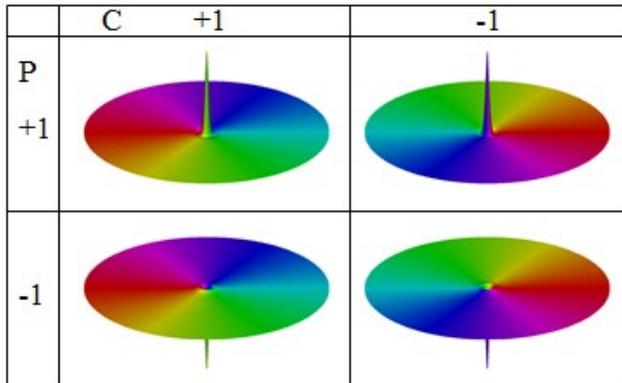


図 15 磁気渦状態.

マンエネルギーなどからなる系全体のポテンシャルエネルギーである。

ここで、高周波電流を磁気円盤に入力すると、磁気渦はpolarityに依存した旋回運動を行い、系全体の磁気抵抗が時間的に変化する。polarityは旋回運動の位相を与えることになるので、polarityが異なると、スペクトルの符号は反転することになる。図17(a)と(c)を比較すると、そのスペクトルの挙動がpolarityによって反転している。ここで、

図17(b)を(a)ならびに(c)と比較すると、chiralityはスペクトルには寄与しないことがわかる。

次に、角度 $\varphi=90^\circ$ で外部磁場を印加した際のスペクトルのpolarityならびにchiralityの依存性について図18に示す。今度は図18(a)と(b)を比較すると、chiralityの符号により、外部磁場の応答特性が変化していることがわかる。

ここで、polarityは図18(b)と(c)の比較から、スペクトルには影響を及ぼさないことがわかる。このスペクトル変化は、次のように説明が出来る。まず、chiralityが $C=+1$ のときを考えよう。外部磁場を角度 $\varphi=90^\circ$ で図19(a)のように上向き(y方向)に印加すると、外部磁場と平行な磁区が成長するように磁気渦は外部磁場印加方向に対して、垂直に移動する。このとき、電極を円盤に対して左右非対称に配列しておく、ある程度の外部磁場を印加することによ

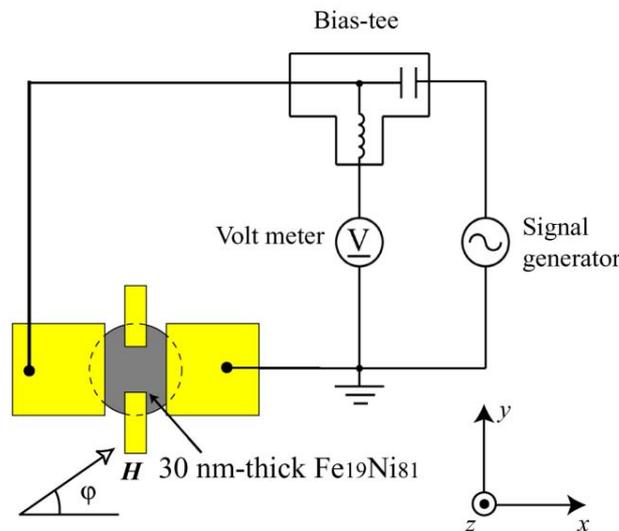


図 16 測定回路の概念図.

て、磁気渦は電極間に入り、その場所で旋回運動するため、電極間の磁気抵抗は時間変化を起こす。しかし、同じchiralityで図19(d)のように外部磁場を反転させると、磁気渦は電極の下に移動し、電極間の磁気抵抗は時間変化しなくなる。chiralityを反転させた場合は、図19(b)ならびに(c)に対応する。このことは、図18に示すように、外部磁場の印加方向によって、共鳴スペクトルが検出できる場合とできない場合があることに対応する。すなわち、電極の取り付けを左右非対称にすることによって、chiralityを検出することができる。もし、電極を左右対称に取り付けられれば、共鳴スペクトルは、外部磁場の印加方向に依存せず、プラス方向($\varphi=90^\circ$)角度でもマイナス方向($\varphi=180^\circ$)で対称に出現することが期待される。実際に、対称な電極構造では図20(b)に示すように外部磁場の方向に対して対称な共鳴スペクトルが得られることがわかった。

以上のように、縮退した4つの状態を世界で初めて電氣的に完璧に検出できることを示した。

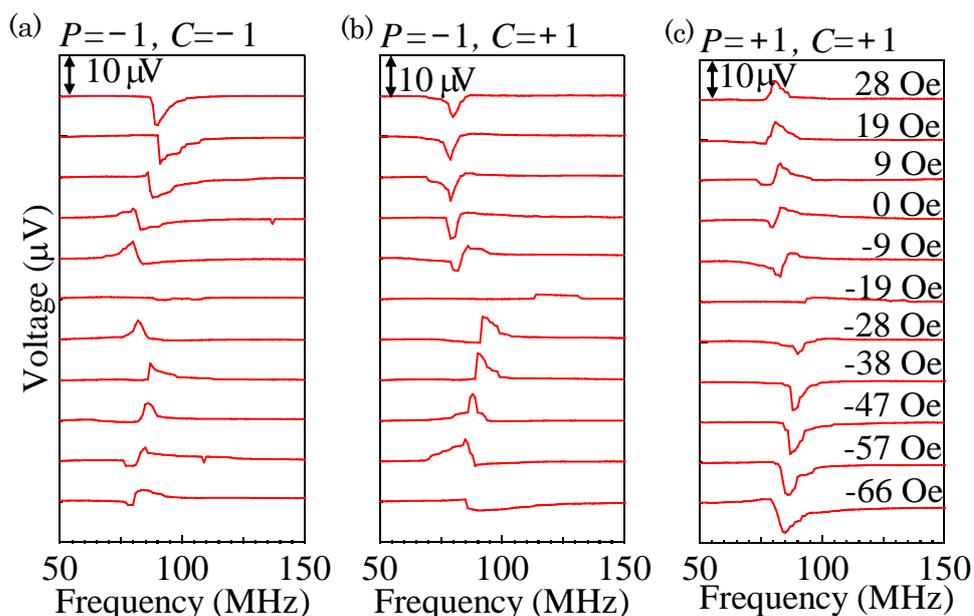


図17 外部磁場印加方向 $\varphi=0^\circ$ に対する共鳴スペクトル依存性. (a) $P=-1, C=-1$, (b) $P=-1, C=+1$, (c) $P=+1, C=+1$.

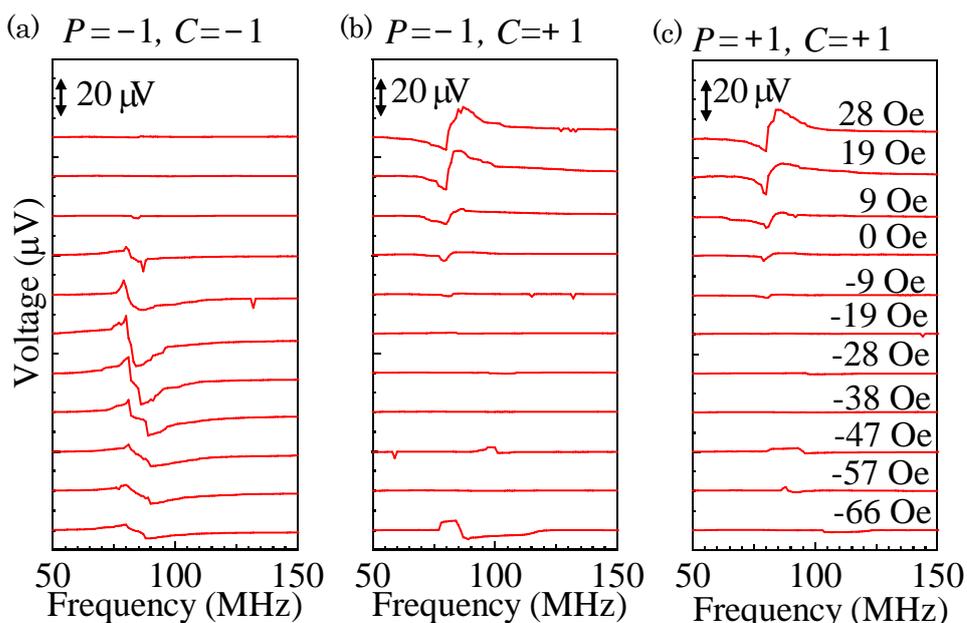


図18 外部磁場印加方向 $\varphi=90^\circ$ に対する共鳴スペクトル依存性. (a) $P=-1, C=-1$, (b) $P=-1, C=+1$, (c) $P=+1, C=+1$.

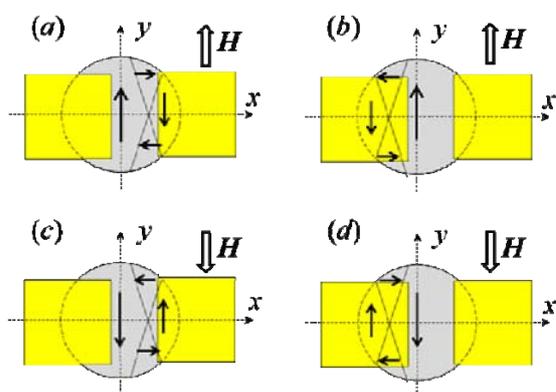


図19 外部磁場を $\varphi=90^\circ$ 方向に印加した場合の磁気渦の移動と磁状態ならびに電極構造の配置図。ここで、黒矢印は磁化の方向を示す。(a) $H_y > 0$ at $C=+1$. (b) $H_y > 0$ at $C=-1$. (c) $H_y < 0$ at $C=-1$. (d) $H_y < 0$ at $C=+1$.

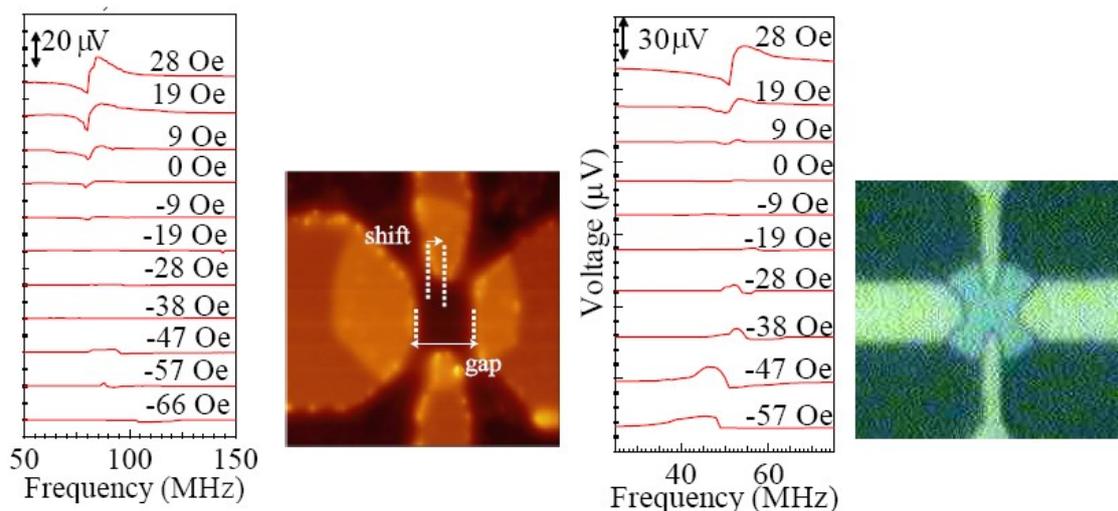


図 20 電極配置と共鳴スペクトルの外部磁場依存性(外部磁場印加方向は、 $\varphi=90^\circ$). 左:電極配置が左右非対称な場合. 右:電極配置が左右対称な場合.

その他、磁壁の内部構造に起因する共鳴スペクトルを検出することにも成功し、磁壁を生成・消滅させる度に、その共鳴スペクトルの形状が微妙に異なったパターンを出力することを明らかにした。これは、磁壁内部において、結晶欠陥や不純物によって磁壁内部の磁気モーメントの局所的な方向が変化することによって、強磁性共鳴周波数に分布が出現することによって起因すると考えられる。この現象を磁気指紋と呼び話題を集めた。これは、セキュリティの高い暗号通信の鍵として利用できる可能性がある。

【2】ナノ磁性細線の強磁性共鳴中における透磁率ならびに誘電率の測定手法

ここでは、透磁率ならびに誘電率において、負となる物質を創製する一つの試みとして、強磁性金属ナノ磁性細線を伝送路に用いた場合について、その透磁率ならびに誘電率の測定と解析手法について行った。金属細線は、マイクロ波領域では、一般に負の誘電率を呈しており、強磁性共鳴状態では共鳴によって正負に変化する透磁率を呈する周波数領域を持っている。そこで、ナノ磁性体細線を伝送路に用いると、強磁性共鳴状態において、誘電率も透磁率も負となる周波数領域があるのではないかと考え、その透磁率ならびに誘電率測定を行った。コプレーナー構造に $\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{81}$ 細線を配置し、マイクロ波応答であるSパラメータの測定を行った。図 21 に測定に用いた試料の光学顕微鏡像ならびに測定結果を示す。外部磁場は、細線長軸に対して平行に面内で印加した。図 21(a)ならびに(b)では共鳴スペクトルが観測され、その共鳴周波数と外部磁場の関係は、図 21(c)のようになる。強磁性共鳴を記述する一様モードで磁化ダイナミクスを記述できることが分かった。さて、得られたSパラメータから透磁率ならびに誘電率にするには、以下の手続きを行う。まず、ランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式から出発し、磁化の微小歳差運動成分 m が高周波磁場 h_{rf} に次のような応答を行うとする。

$$m = \hat{\chi} h_{rf}$$

ここで

$$\hat{\chi} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \chi'_{bb} & i\chi''_{bc} \\ 0 & -i\chi''_{cb} & \chi'_{cc} \end{pmatrix},$$

各係数は、以下で与えられる。

$$\chi'_{bb} = \frac{\gamma_0 H'_c + i\omega\alpha}{[\omega_k^2 - (1+\alpha^2)\omega^2] + i\omega\alpha\Delta}, \chi'_{cc} = \frac{\gamma_0 H'_b + i\omega\alpha}{[\omega_k^2 - (1+\alpha^2)\omega^2] + i\omega\alpha\Delta}, \chi''_{bc} = \chi''_{cb} = \frac{\omega}{[\omega_k^2 - (1+\alpha^2)\omega^2] + i\omega\alpha\Delta}.$$

ここで、共鳴周波数は、 $\omega_k = \sqrt{\gamma_0^2 H'_b H'_c}$ で与えられる。 H'_b と H'_c は有効磁場である。強磁性細線の透磁率とインピーダンスは、 $\mu = \mu' - i\mu'' = 1 + \chi' - i\chi''$ ならびに $Z_C = Z_R + iZ_I = [R + \omega\mu''L_0] + i\omega\mu'L_0$ となる。さらに、透磁率ならびに誘電率を求めるために、以下に示す F 行列を導入し、S 行列と対応させることで、透磁率と誘電率を計算する。系のもつ有効的な屈折率ならびに特性インピーダンスをそれぞれ、 n と Z_C とすると、それらは S パラメータを用いて $n = \frac{1}{kp} \cos^{-1} \left(\frac{1 - S_{11}^2 + S_{21}^2}{2S_{21}} \right)$ と $Z_C = Z_0 \sqrt{\frac{(1 + S_{11})^2 + S_{21}^2}{(1 - S_{11})^2 + S_{21}^2}}$ となる。結果として、有効的な透磁率 $\mu(\omega)$ ならびに誘電率 $\varepsilon(\omega)$ は、 $\mu(\omega) = \sqrt{nZ_C}$ ならびに $\varepsilon(\omega) = \sqrt{\frac{n}{Z_C}}$ と与えられる。以上の解析を用いて、評価したのが図 22 である。残念ながら、この条件では誘電率も透磁率も負になる領域がないことが分かった。基板も含めた全体の試料構造を考慮する必要があることが分かった。

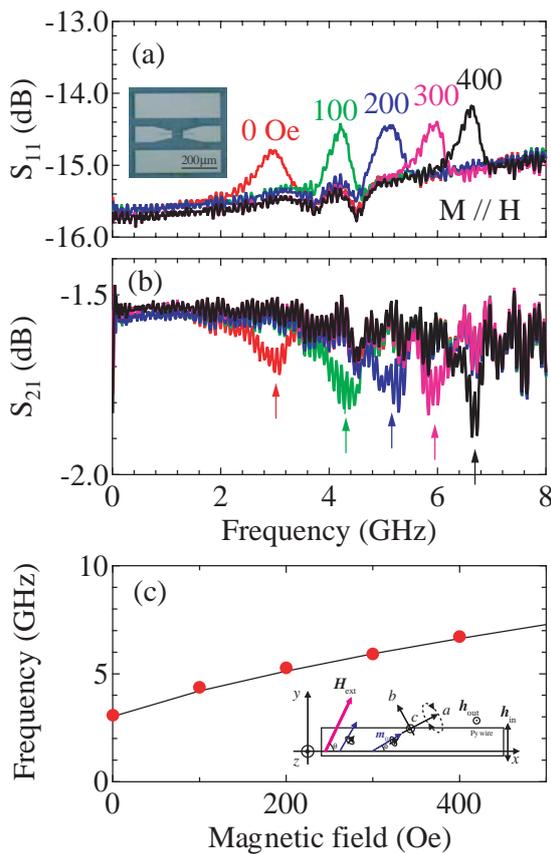


図 21 強磁性細線の(a)S11 ならびに(b)S21 パラメータと(c)共鳴周波数の外部磁場依存性。実線は一樣な強磁性共鳴から得られる関係式。

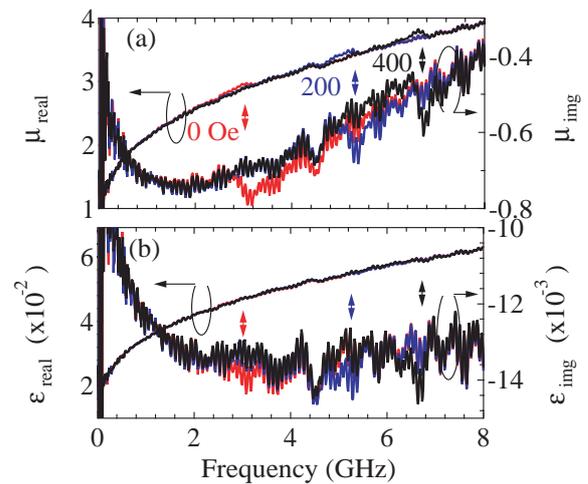


図 22 (a)透磁率ならびに(b)誘電率の外部磁場依存性。

[4] 単結晶 Fe 細線中の単一磁壁移動の究明

ナノ磁性体の基本的な磁化反転機構を究明するために、単結晶 Fe 細線に注目した。Fe は単結晶化することが比較的容易であり、結晶磁気異方性を反映した磁化反転ならびに磁化緩和機構が出現することが期待される。さらに多結晶構造との比較によって、結晶粒界などの影響を踏まえて、基礎物理機構を理解することができると考え研究を行った。

多結晶 Fe 細線の磁化反転機構は単一磁壁移動によって起こり、その速度はランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式から集団運動系として磁壁の運動を記述したモデルから、その平均速度は、外部磁場 H と磁壁移動度 μ を用いて

$$v = \mu(H - H_{sw}) \quad (13)$$

と表すことができる。 H_{sw} は磁壁生成磁場で、サンプルの形状と物質で決まる。

ここで、Slonczewski らの提唱したモデル (J. C. Slonczewski, Int. J. Magn. 2, 85 (1972); J. Appl. Phys. 44, 1759 (1973); 45, 2705 (1974).) によると、外部磁場が Walker breakdown の起きる磁場 (Walker 磁場) H_w よりも小さい時 ($H < H_w$)、磁壁移動度 μ は、

$$\mu = \frac{\gamma\Delta}{\alpha} \quad (14)$$

と表される (N. L. Schryer and L. R. Walker, J. Appl. Phys. 45 5406 (1974).)。 γ は磁気回転比、 α は Gilbert ダンピング定数、 Δ は磁壁幅である。ここで、磁壁幅 Δ は、 $\Delta = \sqrt{A/K}$ と表され、 A と K は交換ステイフネス定数および磁気異方性定数である。また、Walker 磁場は、飽和磁化 M_s と反磁場係数 N を用いて、 $H_w = \alpha N M_s$ と書き表せる。外部磁場が Walker 磁場よりも十分に大きい時 ($H \gg H_w$) は、

$$\mu = \frac{\gamma\Delta}{\left(\alpha + \frac{1}{\alpha}\right)} \quad (15)$$

となる。Walker 磁場以下では磁壁が形状変化せずに移動し、その場合には Slonczewski のモデルを用いて定量的な説明をすることができる。しかし、Walker breakdown 後の磁壁移動は Slonczewski のモデルでは定性的な説明しか与えない。 $H \gg H_w$ のときには、磁壁が移動するとスピン波が発生し、スピン系から格子系へのエネルギーの散逸が大きくなる。そこで、有効ダンピング定数 α_{eff} を導入すると、式(15)は、

$$\mu = \frac{\gamma\Delta}{\alpha_{eff}} \quad (16)$$

と書き直すことができる。式(16)を用いることにより、 $H \gg H_w$ での磁壁移動を $H < H_w$ の場合と同じように取り扱うことができる。すなわち、Walker breakdown の前後で磁壁を剛体として取り扱うことができる。式(16)より有効ダンピング定数 α_{eff} は、

$$\alpha_{eff} = \frac{\gamma\Delta}{\mu} \quad (17)$$

と書き表せる。Fe の場合、 $\gamma = 2.84 \times 10^6$ Hz/Oe、 $A = 6.14 \times 10^{-10}$ J/m である。また、形状は多結晶試料、単結晶試料ともほぼ同じであり、その形状磁気異方性は、 $K_u = E_d \approx 3 \times 10^6$ J/m³ である。したがって、式(17)から有効ダンピング定数を決定することができる。

磁化固定層が多結晶Feで構成される試料(以下、多結晶試料)および単結晶Feで構成される試料(以下、単結晶試料)をそれぞれ作製した。多結晶試料と単結晶試料はそれぞれSiO₂基板ならびにMgO基板に作製し、基板のみを変え、その他の手順はすべて同じ条件の下で作製した。ここで、単結晶試料については、基板の面方位により成長するFe層の結晶方位が異なるため、MgO(100)基板およびMgO(110)基板を用いた。作製した多結晶試料薄膜と単結晶試料薄膜の結晶性と表面情報および結晶配向性を評価するために、反射高速電子線回折(Reflection High Energy Electron Diffraction: RHEED)と面内薄膜X線回折(in-plane Thin Film X-ray Diffraction: in-plane TF-XRD)を行った。作製した多結晶試料薄膜および単結晶試料薄膜

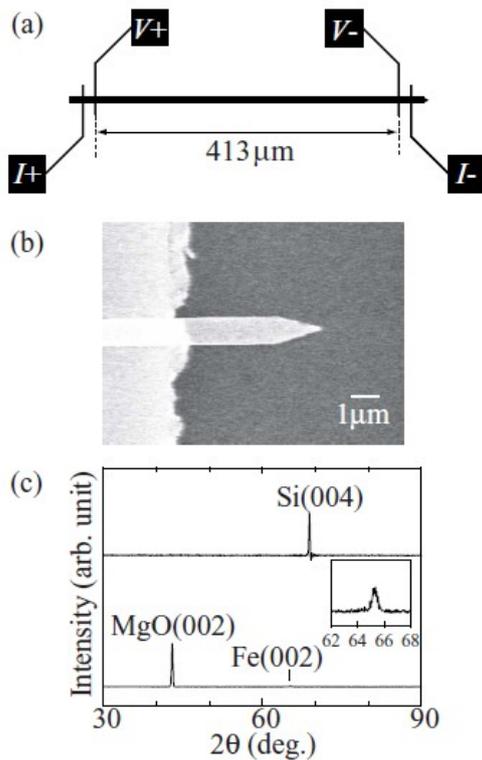


図 21 (a) 試料全体の概念図 (b) 尖った先端形状を付与した細線の一端 (c) X 線回折による薄膜評価結果.

を電子線描画装置(Electron Beam Lithography)とAr⁺ミリング(Ar⁺ milling)を用いて細線構造に微細加工した。多結晶試料細線(以下、サンプル多結晶)、単結晶試料では、細線長軸がFe(100)[001]_{bcc}に平行なもの(以下、サンプルFe[100])、Fe(100)[011]_{bcc}に平行なもの(以下、サンプルFe[110])の3種類をそれぞれ作製した。

試料概略図と走査電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)像を図 21 に示す。細線は線幅 1 μm, 長さ 500 μm である。細線構造は、図 21(b)に示すように、磁壁の生成および駆動を一方に制限するために、細線の一端を鋭くした。このような構造を付与することで、磁壁は左端(尖っていない端)で生成し、細線中を長軸方向に沿って右端(尖っている端)に向けて移動する。微細加工した細線に、電気抵抗測定用の電流電圧四端子電極を電子線描画およびリフトオフ(Lift-off)法を用いて作製した。電極は、Cr (3 nm) / Au (80 nm) で作製した。電圧端子間距離は 413 μm である。本実験で用いた単結晶 Fe(001)面の XRD 回折測定結果を図 21(c)に示す。単結晶試料は所望の単結晶構造を得て、多結晶試料は多結晶構造になっていることを確認した。

抵抗測定は 77 K で行った。まず、外部磁場を -1.5 kOe 印加し、磁化自由層と磁化固定層の磁化を細線長軸方向に飽和させ試料を単磁区状態にした。外部磁場を 1 Oe/s で掃引したときの磁気抵抗測定結果を図 22(a)に示す。ここで、MR 比は

$$\text{MR ratio (\%)} = \frac{R_{\text{AP}} - R_{\text{P}}}{R_{\text{P}}} \times 100 \quad (18)$$

と定義した。 R_{p} , R_{ap} はそれぞれ、2つの強磁性層の磁化が互いに平行なときの抵抗と互いに反平行なときの抵抗の大きさである。まず、十分に大きな外部磁場を細線長軸方向に印加し、細線の磁化を飽和させる。このとき、磁化自由層であるFe₁₉Ni₈₁合金層も固着層であるFe層も外部磁場の方向に飽和している。それから、逆方向に磁場を掃引していき、磁化反転過程を電氣的に検出する。磁化自由層は保磁力が小さいので先に磁化反転を開始し、反転したところで磁化固着層の磁化反転が始まる。この磁化反転過程は、磁壁移動によるもので磁気抵抗の値と磁壁位置は一対一に対応している。つまり、磁壁位置は磁気抵抗の値から直ちにわかる。磁気抵抗値の変化について、測定時間の分解能を図 22(b)-(d)に示すように向上させると、磁壁移動の時間変化を検出することができる。単結晶試料では、磁気抵抗の時間変化は線形的な変化をしており、磁壁移動速度が一定であることがわかる。一方、多結晶では、少し非線形な磁気抵抗の時間変化をして

いることがわかる。これらの磁気抵抗の時間変化から、磁壁が電極間を通過する際の平均移動速度を決定すると、図 23 の結果を得た。

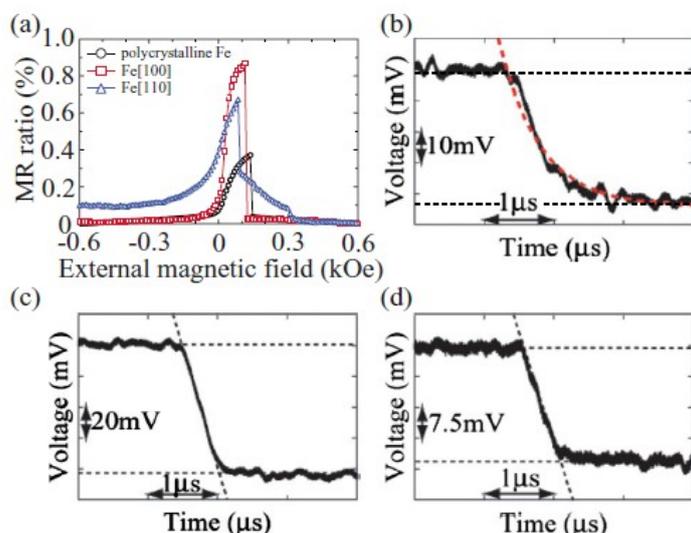


図 22 77 K での(a)磁気抵抗測定結果と(b)サンプル多結晶、(c)サンプル Fe[100]、および(d)サンプル Fe[110]の磁気抵抗の時間分解測定結果。

単結晶 Fe[110]細線では、磁化反転磁場がほぼ一様な分布をもっており、この速度分布から、有効的な磁壁移動度を見積もった。すると、 $13.3 \text{ m/s}\cdot\text{Oe}$ となった。一方、多結晶試料については、分布が狭い範囲に集中している。本研究では、試料作製過程が同じになるように行っているため、ピン留め磁場の原因となる細線端のラフネスを単結晶も多結晶も同じとして、移動度を評価すると、多結晶試料では、 $2.9 \text{ m/s}\cdot\text{Oe}$ となった。式(17)から、有効的な磁気緩和に関するダ

mping項を求めることができる。単結晶試料ならびに多結晶試料では、それぞれ $\alpha_{\text{eff_single-crystal}} \approx 0.02$,

$\alpha_{\text{eff_polycrystal}} \approx 0.09$ である。さらに、サンプル Fe[100]では速度と反転磁場の分布が2つに分裂していることが図 23 からわかるが、この理由は結晶磁気異方性を反映して、磁化反転の経路にエ

ネルギー最小の軌道が2つ存在することによるものである。

以上の結果より、多結晶 Fe 細線と単結晶 Fe 細線では、単結晶 Fe 細線の方が多結晶 Fe 細線に比べ、有効ダmping定数が小さく、磁壁がより速く移動することがわかった。さらに、系全体としては、形状による誘導磁気異方性の影響が支配的であるが、微視的な所で結晶磁気異方性の効果が無視できない寄与として磁壁移動過程に出現することがわかった。結晶性を制御したナノ構造を有しているからこそ、ここまで物理現象を明らかにすることができた。

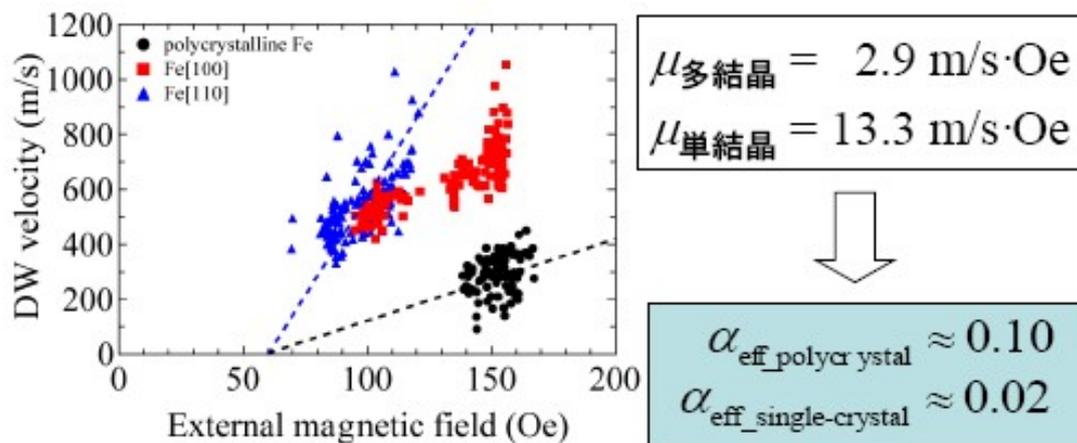


図 23 磁壁の平均移動速度の外部磁場依存性に対する結晶磁気異方性と結晶性の寄与。

[5] 単結晶 Fe と多結晶 Fe における磁気緩和機構について

次に、このように磁壁移動という局所的な磁化ダイナミクスから得られたダンピング定数が、強磁性共鳴から得られる系全体で一様な磁化ダイナミクスのダンピング定数とどのような関係があるのかを明らかにすることは、ナノ磁性体を素子として応用する場合、非常に重要な物理機構となる。そこで、本研究では、単結晶 Fe 細線ならびに多結晶 Fe 細線の強磁性共鳴を整流効果を用いて測定し、その共鳴スペクトルの半値幅から評価した。

試料作製方法は、磁壁移動測定で行った手法と基本的には同じであるが、電極構造は高周波を導入するため CPW 構造を形成し、単体の物性を評価するため GMR 構造を形成しなかった。図 24(a)に試料概念図と測定回路の概念図を示す。測定した結果を図 24(b)に示す。共鳴スペクトルが得られ、その半値幅から、単結晶試料ならびに多結晶試料のダンピング定数を 0.0345 ならびに 0.0804 と見積もった。磁壁移動からの測定結果に対応する関係が得られており、多結晶試料のほうがダンピング定数は大きい。これは、多結晶試料内には結晶粒界が多数存在するため、結晶磁気異方性の分散が大きい為、有効な半値幅が広がっており、それが一様な磁化歳差モードを観測する強磁性共鳴に反映しているためだと考えられる。

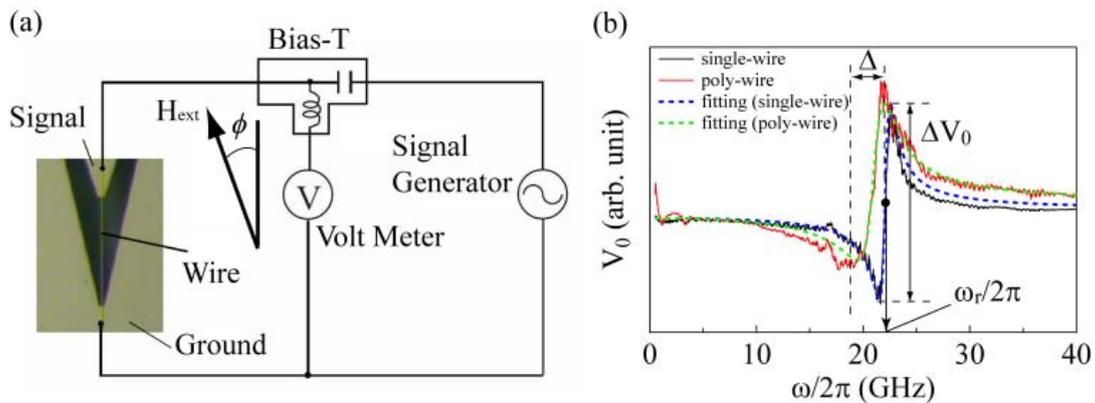


図 24 (a)単結晶 Fe[110]細線の光学顕微鏡像と測定回路概念図。(b) 単結晶 Fe[110]細線と多結晶 Fe 細線についての整流効果を用いた強磁性共鳴スペクトル。

[6] 層間結合相互作用の空間変調構造の実現と磁化反転機構の制御

ナノ構造を形成し、量子力学的な効果によってナノ磁性体の物性を制御し、それをナノ磁性体集積構造に利用する。本研究では、量子力学的効果が発現するナノ構造磁性体として、次のような系を提案した。巨大磁気抵抗効果 (Giant Magnetoresistance effect: GMR 効果) を示す強磁性 (F1) / 非磁性 (N) / 強磁性 (F2) 多層膜における強磁性層間結合ポテンシャルを空間的に変調し、磁壁を量子井戸ポテンシャルで閉じ込めたナノ磁性体を作製し、その磁化反転機構を制御し機能性素子の構成要素とする。GMR 効果は非磁性層膜厚によって結合は強磁性的あるいは反強磁性的と変化する。よって、空間反転対称性を破った非磁性層を有する多層膜細線では、空間的に強磁性層間の結合が強磁性的な領域と反強磁性的な領域が交互に出現する。F1 の磁化方向を固定して、F2 に磁壁を導入すると、図 25 のように、その磁壁位置を境にして強磁性的な結合と反強磁性的な結合ができるので、磁壁が非対称ポテンシャルに閉じ込められる。このとき、磁壁は磁気モーメントの集合体 (擬粒子) でその質量は 10^{-23} kg 程度であると期待できる。以下では、非対称ポテンシャルを導入した場合の特徴的な磁壁移動について、GMR 効果を用いて測定した結果を説明する。

図 25 は、実験に用いた試料構造の概念図を示し、非磁性層 N が空間的に変化するることによって、強磁性層間に働く結合力が空間的に振動していることを示す。強磁性層 F2 の磁化が反転する際、F2 中に磁壁移動が生じる。このとき、2 つの強磁性層には結合力が働いているので磁壁の位置によって磁化反転が進行しやすい、あるいは進行しない位置が存在する。GMR による抵抗変化は、2 つの強磁性層の相対的な磁化配置に依存する。細線は 1 次元的な構造を有するた

め、細線中における磁壁位置とGMRによる磁気抵抗変化には一対一の関係があり、磁壁位置
 F1 に対応した抵抗変化が得られ、磁壁位置
 N を特定することができる。例えば、強磁性
 F2 層F1が図25に示すように完全に左を向い
 ており、強磁性層F2中の磁壁が結合力
 によって細線内のある場所に停止してい
 る場合には、磁気抵抗が階段状に変化
 することになる。図26(a)では、磁壁を結
 合力が十分に大きな位置から導入し、外
 部磁場によって磁壁を強制的に移動させ
 ると磁壁が強く束縛されている位置から
 一気に飛び出して、磁化反転が完了する
 ことを示している。一方で、図26(b)のよ
 うに磁壁を弱い束縛位置から導入すると、
 束縛力が大きくなる位置で磁壁が停止し
 て、階段状の磁気抵抗の変化を示すこと
 がわかる。図26(b)の挿入図は磁化反転
 が進行している強磁性層中の磁化配置と
 磁壁位置を模式的に示した図である。

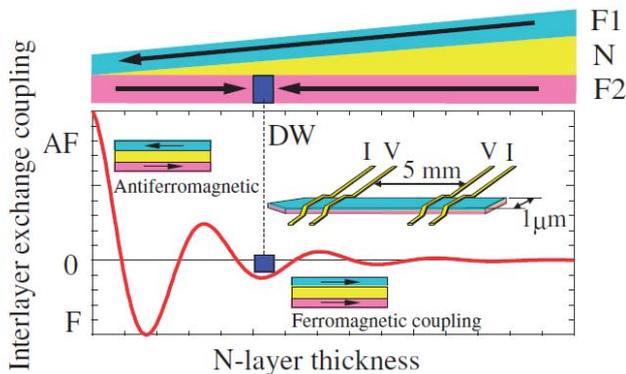


図 25 (a)非磁性層傾斜型 GMR 細線の構造図ならびに非磁性層内ポテンシャルエネルギーの空間変化。非磁性層の膜厚が勾配を持つことで非磁性層内に形成される量子井戸状態が空間的に変調され、2つの強磁性層 F1 と F2 の結合が強磁性的(平行配置:F)と反強磁性的(反平行配置:AF)とが細線長軸方向に沿って、交互に発現する。

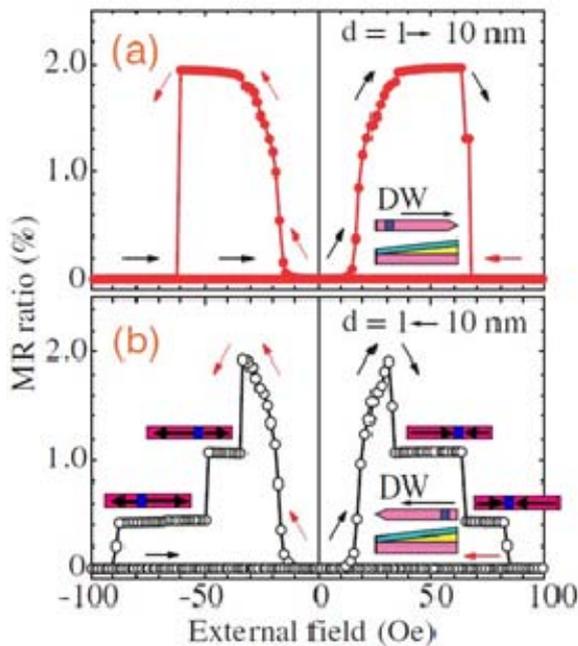


図 26 GMR効果の測定結果 (a):磁壁が左→右 (b):右→左に移動したときの磁気抵抗測定結果。ここでMR ratio(%) = $(R_{AF}-R_F)/R_F \times 100$ (%)で定義する。

3. 今後の展開

ナノ構造を形成することで、ナノ磁性体の物性、特に磁気特性と輸送現象について実験的にも理論的にも究明することが出来た。マイクロ波応答については、強磁性共鳴とスピン波励起による素励起を電氣的に超高感度に測定する技術を確認し、その解析手法を与えることができ、今後の物性研究への適用が期待できる。新奇なナノ構造体を創製し、その物性測定

を行う際に有効に活用し得られた知見をフィードバックすることで、今後のナノ構造体ならびにその集結体の創製を促進できる。さらに、巨大磁気抵抗素子中の空間反転対称性を人為的に破ることによって、室温で動作する機能性素子を提案し、それをもとに不揮発性メモリやスピントランジスタ、リプロマブルな素子や電磁マテリアルの開発の基盤を築きつつある。これによって、スピントロニクスだけではなくマイクロ波工学や光学分野で発展しているメタマテリアル分野との融合を果たし、物質科学と工学分野の新奇な展開へと発展させたい。

4. 自己評価

電磁波よりも十分に小さな構造体から電磁波程度の構造体までの範囲において、目的とする電磁波に対して特異な振る舞いを示す新奇な物質や機能性素子の基礎を築くことが目的であった。目的を達成するために、注目したのが以下の4点であった。

1. マイクロ波によるナノ磁性体の応答(整流特性)を解明すること。ナノ磁性体が検波素子として振舞う点を考慮し、単体でも集合体でも活用できる機能性物質とする。そのために、基本的な物理機構を解明する。
2. ナノ磁性体の強磁性共鳴状態での透磁率ならびに誘電率の測定を行い、基本的な電磁波応答特性を明らかにすること。これも単体でも集合体でも活用できる機能性物質となる可能性を模索するためである。
3. 結晶性の違いによる磁化過程を解明する。
4. 室温で動作する電磁気学的な新奇な効果あるいは量子力学的な効果を用いた物性制御技術を確立する。

この4点の基礎物理の究明と基礎技術の確立を行うことで、多数の要素物質を融合することで目的にあわせた物質設計技術と方法を提供し、革新的デバイスに貢献する。

実際の研究では、集合体構造に物性制御に関しては、ナノ磁性体集合体によるフラウンホーファー回折による測定系の評価とマイクロ波伝送路による左手・右手系物質の創製を行った。先行研究の再現実験までは、ある程度できたが本研究の主旨となる革新的な基盤技術までは至らなかった。

しかし、集合体構造の基本構成要素となるナノ磁性体単体については、上述した項目1を完全に解明することに成功した。新しい物性測定として、世界中で広く使われるようになり、その後のナノ磁性体中の磁化ダイナミクス測定などにも非常に効果を発揮し、磁気円盤中にできる磁気渦の挙動や縮退状態を電氣的に検出したり、トルクの大きさを定量的に分析したり出来るようになった。これは、本研究課題を行う前には全く想像できなかった点であり、大きな進展であると考えている。また、ナノ磁性体の透磁率・誘電率測定についても、方法論は確立できた。今後の素子構造作製とその評価で用いていきたい。

3点目の結晶性の違いによる磁化過程の解明については、磁壁移動による局所的な応答と強磁性共鳴による系全体での応答特性を比較し、その両者が同じ物理機構で成立していることから最初の系を記述する方程式に帰着することを改めて示すことができた。磁壁移動については、核生成に関係した問題については未解決の問題もあるが、系統的な研究を行うことができた。

最後に新奇効果について、当初はナノ磁性体を接近させて電磁気学的な効果を用いて、要素素子の特性を変調しようと考えたが、どうしても量子力学的な効果を室温で用いることが出来ないかを考えていた。その時、巨大磁気抵抗効果素子の空間反転対称性を破ることによって、非磁性層中に空間的に変調した層間結合を形成する考えにいたった。それを実施して確認するために、磁壁移動測定を行い、見事に成功するに至った。この成果は、電界効果による磁気状態制御や電磁応答の際にインダクタとして機能することが考えられ、今後の集結構造体創製に期待ができる。

研究期間内には集結構造の基本特性を解明するまでには至らない面もあったが、以上のように今後の研究に対する基盤技術となる研究成果を培うことができた。この土壌をさらに発展させて、真の成果を得たいと考えている。

5. 研究総括の見解

山口研究者は、ナノワイヤにおけるスピン注入磁壁移動、ナノ磁性体におけるマイクロ波整流効果などの研究実績のある研究者です。彼の当初の目標は、磁性体ナノワイヤの集結構造を用いて、従来型の金属スプリット・リング共振器によらない左手系のメタマテリアルを実現しようというものでした。

山口研究者は、この実現のためには、要素となる技術として、ナノ磁性体における高周波応答を明確にする必要があると考え、(1)ナノ磁性体のマイクロ波整流特性の物理機構の解明、(2)ナノ磁性体の強磁性共鳴状態での基本的な電磁波応答特性の解明、(3)結晶性の違いによる磁化過程の解明に取り組みました。その結果、それぞれについて、分厚い研究成果を得ることができました。私が注目するのは、(2)の微細円盤におけるボルテックス(磁気渦)のカイラリティとポラリティの4つの組み合わせを共鳴スペクトルを使って電氣的に明確に分離して検出することに成功したことです。また、共鳴スペクトルの形状が磁壁を生成・消滅させる度に、微妙に異なったパターンを出力することを明らかにし、磁気指紋と呼び話題を集めました。

さらに、副次的ではありますが、層間結合相互作用の空間変調構造において見られるステップ状の磁化反転の非対称性を見いだしました。この磁化反転は、非磁性層中に形成された量子井戸ポテンシャルエネルギーの空間微分である力によることを証明した世界で初めての実験結果で、大きな反響を呼びました。空間勾配を有する量子井戸制御を行なうことができれば、磁化反転機構を制御できるので、機能性素子への応用が期待できます。

しかし、当初の目標であった集合体構造の物性制御に関しては、ナノ磁性体集合体による回折の評価とマイクロ波伝送路による左手・右手系物質の創製という先行研究の再現実験にとどまり、大きな進展はありませんでした。この点について、アドバイザーから厳しい評価がありました。総括としては、当初からリスクが大きいことは織り込み済みであり、要素技術についての詳細な基礎研究成果が得られたこと、副次的な成果も得られたことを評価したいと存じます。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1	K. Hosono, Y. Nozaki, <u>A. Yamaguchi</u> and G. Tatara, "Microscopic theory of diffusive spin current with spin-orbit interaction", submitted to Physical Review B
2	Y. Kasatani, <u>A. Yamaguchi</u> , H. Miyajima and Y. Nozaki, "Broadband ferromagnetic resonance of micron-scale iron wires using rectifying effect", IEEE Trans. Magn. printing
3	M. Goto, H. Hata, <u>A. Yamaguchi</u> , Y. Nakatani, T. Yamaoka and Y. Nozaki, "Electrical detection of vortex states in a ferromagnetic disk using the rectifying effect", Journal of Applied Physics printing
4	K. Hosono, Y. Nozaki, <u>A. Yamaguchi</u> and G. Tatara, "Microscopic theory of diffusive spin current caused by spin Hall effect", Journal of Applied Physics printing
5	M. Goto, H. Hata, <u>A. Yamaguchi</u> , H. Miyajima, Y. Nakatani, T. Yamaoka and Y. Nozaki, "Detection of vortex-core dynamics using current-induced self-bistable rectifying effect", Journal of Physics: Conference Series printing
6	<u>A. Yamaguchi</u> , Y. Kasatani and H. Miyajima, "Domain wall propagation in a single crystalline iron wire", Journal of Physics: Conference Series printing
7	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, H. Miyajima, T. Uchiyama and Y. Utsumi, "High-order standing spin wave modes in Fe ₁₉ Ni ₈₁ micron wire observed by homodyne method", Journal of Physics: Conference Series printing
8	Y. Kasatani, <u>A. Yamaguchi</u> , H. Miyajima and Y. Nozaki, "Detection of ferromagnetic resonance in a single-crystalline Fe wire using a rectifying effect", Journal of Physics: Conference Series printing
9	<u>A. Yamaguchi</u> , T. Kishimoto and H. Miyajima, "Asymmetric Domain Wall Propagation in a Giant Magnetoresistance-Type Wire with Oscillating Interlayer Exchange Coupling", Applied

	Physics Express 3 , 093004 (2010).
10	Y. Kasatani, <u>A. Yamaguchi</u> , H. Yamamoto and H. Miyajima, "Magnetization reversal and wall propagation velocity in single-crystalline and polycrystalline Fe wires", Physical Review. B 81 , 224425 (2010).
11	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, H. Miyajima, T. Sato and Y. Nakatani, "Nonlinear Vortex Motion Induced by the Simultaneous Application of RF and dc Currents in a Micron-Sized Fe ₁₉ Ni ₈₁ Disk", IEEE Trans. Magn., 46 , 1994-1997 (2010).
12	<u>山口 明啓</u> , 元井桂一, 宮島英紀, 内山剛, 内海裕一, "プレナーホール整流効果を用いた人工磁性体の非線形応答の検出", 日本磁気学会誌 34 , 73-77 (2010).
13	H. Yamamoto, Y. Kasatani, <u>A. Yamaguchi</u> and H. Miyajima, "Giant Magnetoresistance Effect Detection of Magnetization Reversal in Single Crystalline Nanowires", Journal of Physics: Conference Series, 200 042028 (2010).
14	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, H. Miyajima, A. Hirohata, T. Yamaoka, T. Uchiyama and Y. Utsumi, "Current manipulation of a vortex confined in a micron-sized Fe ₁₉ Ni ₈₁ disk", Applied Physics Letters, 95 122506 (2009).
15	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, A. Hirohata and H. Miyajima, "Anomalous Hall voltage rectification and quantized spin-wave excitation induced by simultaneous application of dc and rf currents in a single-layered Ni ₈₁ Fe ₁₉ nanoscale wire", Physical Review B 79 , 224409-(1-11) (2009).
16	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, H. Miyajima and Y. Nakatani, "Magnetic field dependence of rectification radio frequency current flowing through a single layered ferromagnetic wire", Journal of Applied Physics 105 , 07D301 (2009).
17	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, A. Hirohata, N. Higashio, H. Miyajima, "DC electrical response and impedance change induced by a microwave signal in a patterned ferromagnetic wire", Proc. SPIE, Vol. 7036 , 703607 (2008).
18	<u>A. Yamaguchi</u> , K. Motoi, A. Hirohata, H. Miyajima, Y. Miyashita and Y. Sanada, "Broadband ferromagnetic resonance of Ni ₈₁ Fe ₁₉ wires using a rectifying effect", Physical Review B 78 , 104401-(1-11) (2008).
19	<u>山口 明啓</u> , 宮島 英紀 "強磁性細線におけるマイクロ波励起による直流電圧発生現象", 日本磁気学会誌 32 , 334-337, (2008).
20	<u>A. Yamaguchi</u> , H. Miyajima, T. Ono, Y. Suzuki, S. Yuasa, "The rectification of radio-frequency signal by magnetic domain wall in a single-layered ferromagnetic nanowire", Applied Physics Letters 91 , 132509-(1-3) (2007).

(2)特許出願

研究期間累積件数:2件

発明者: 山口 明啓, 岸本 智亮, 宮島英紀

発明の名称: 三端子型磁気抵抗素子

出願人: 慶應義塾大学

出願日: 特願 2010-155679, 2010/07/08

発明者: 山口 明啓, 宮島 英紀, 東尾 奈々, 元井 桂一

発明の名称: 微小磁性体複合強磁性共鳴を用いた小インダクタ

出願人: 慶應義塾大学

出願日: 特願 2008-233657, 2008/9/11

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

[1] (社) 日本磁気学会 学術奨励賞(内山賞) 受賞

”プレナーホール整流効果を用いた人工磁性体の非線形応答の検出”, *山口 明啓, 元井桂一, 宮島英紀, 内山剛, 内海裕一, 日本磁気学会誌 34, 73-77 (2010).

[2] 講演タイトル: “DC electrical response and impedance change induced by a microwave signal in a patterned ferromagnetic wire”

講演日時: 平成 20 年 8 月

講演開催地: SPIE, San diego convention center, USA

著者: A. Yamaguchi, K. Motoi, A. Hirohata, N. Higashio and H. Miyajima

内容: 高周波電流を磁性細線に入力した際に、整流特性がでる現象をインピーダンス測定が明らかにしたことについて報告した。

[3] 講演タイトル: “Direct current voltage induced by microwave signal in a ferromagnetic wire”

講演日時: 平成 19 年 10 月

講演開催地: IEEE Metallic Multilayers 2007, University of Western Australia, Perth, Western Australia, Australia

著者: A. Yamaguchi, K. Motoi, A. Hirohata, N. Higashio and H. Miyajima

内容: 高周波電流を磁性細線に入力した際に発生する整流効果について、詳しく解説し、ホール電圧の発生も可能であることを示した。

[4] 講演タイトル: “ナノ磁性体における高周波電磁応答特性について”

講演日時: 平成 20 年 11 月

講演開催地: MWE2008 マイクロウェーブ展 2008 (主催: 電子情報通信学会、後援: 総務省) パシフィコ横浜

著者: 山口 明啓, 東尾 奈々, 元井 桂一, 宮島 英紀

内容: 磁性細線のマイクロ波応答特性についてインピーダンス特性や整流特性を示し、その物理機構を概説し、素子応用として微小インダクタの提案を行った。

[4] 講演タイトル: “量子干渉効果による磁壁ラチェット”

講演日時: 平成 22 年 9 月

講演開催地: (社)日本物理学会 (大阪府立大学)

著者: 山口 明啓, 岸本 智亮, 能崎 幸雄, 宮島 英紀

内容: 強磁性/非磁性/強磁性多層膜構造において、非磁性層の膜厚について空間勾配をつけることによって、非磁性層中に形成される層間結合を変調し、磁壁移動を制御したことを示した。

学会発表

国際会議 28件

国内学会 28件

研 究 報 告 書

「計算科学手法によるナノカーボン素子の設計と物性予測」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：若林 克法

1. 研究のねらい

サッカーボール状分子 C_{60} 、そして飯島による炭素ナノチューブの発見は、その興味深い形状と多彩な電子状態から、物理、化学、工学の分野から強い関心を巻き起こし、今やナノサイエンス/ナノテクノロジー研究における代表的な物質としての地位を占めるに至っている。さらに最近、一原子層のグラファイトシート(グラフェン)からなる電子デバイスの作製が可能になってきたことから、ナノ炭素研究に新たな展開が生まれている。しかし、我々の研究から、グラフェンがナノスケールになると、端の存在とその形状が電子物性に大きな影響を与え、分散の殆んど無い特異なエッジ状態が出現すること、そして、その状態により、磁性が誘起され得る事が明らかになっている。ナノグラフェンを用いれば、炭素ナノチューブで困難である制御された微細化を行った量子伝導素子形成が実験的に可能であることから、次世代デバイスのキー材料として大きな期待が持たれている。

本研究では、ナノ構造化されたカーボン材料における特異なフェルミ面効果を解明し、その特性を積極的に生かしたデバイスの設計あるいは物性の予測が目的である。エッジ状態の物理を用いて、ナノグラフェン伝導素子を形成した際の伝導特性をモデル計算と第一原理電子状態計算を相補的に利用することによって解明する。本研究では、これらの今までの研究を基礎に、以下の課題について研究を行う。(1)原子スケールでの構造と電子状態解析を、モデル計算による数値解析と第一原理電子状態計算手法を併用することで、解明する。今までに気づかれていなかったフェルミ面効果とその制御法を明らかにする。ナノメートルスケールで実現するグラフェン上の量子電子物性の本質を捕らえることが期待できる。(2)ナノグラフェン/ナノグラファイトにおける電子状態・磁性などの電子物性、および電子・スピン伝導などの量子伝導現象を、解析的手法および計算科学手法を援用することによって理論解析し、新しい動作原理に基づく高機能電子スピン素子を設計することを目的とする。

2. 研究成果

系のサイズがナノスケールまで小さくなると、端にある炭素原子と局所的にはバルクの環境にある炭素原子の割合が同等になるため、端の存在がフェルミ準位近傍の電子状態に大きな影響を与える。グラフェンは sp^2 炭素原子からなる六角格子構造をもち、その端の形状には、アームチェア端(図 1(a))、ジグザグ端(図 1(b))と呼ばれる2種類が現れる。この周辺構造の違いが、ナノカーボン材料の物性、特に電子輸送特性に大きな影響を与えることを、本研究課題によって明らかにした。

1. ナノグラフェンリボンの電子状態

ここでは、リボン状の一次元グラフェン格子の電子状態を概説した後、端の形状とナノグラフェンの電子状態について紹介する。その後、研究成果について概説していく。

強結合模型(tight binding model)によるアームチェアリボン(図 1(c))のエネルギーバンド構造を図 2(a) に示す。アームチェアリボンの場合には、リボンの幅 N に依存して、系は金属または半導体になる。今の場合、 $N = 3m - 1 (m = 1, 2, 3, \dots)$ のときのみ金属になる。この特徴は、カーボンナノチューブの性質と良く似ている。しかし、ジグザグリボン(図 1(d))では、グラフェンシートあるいはアームチェアリボンにはない、ほとんど分散を持たない平坦なバンドがフェルミ準位($E=0$)に現れる(図 2(b))。そのため、状態密度はフェルミ準位に非常に鋭いピークをもつ。グラフェンの状態密度が $E=0$ でゼロであることから、エッジ状態がナノグラフェン

の物性に大きな影響を与えると予想される。

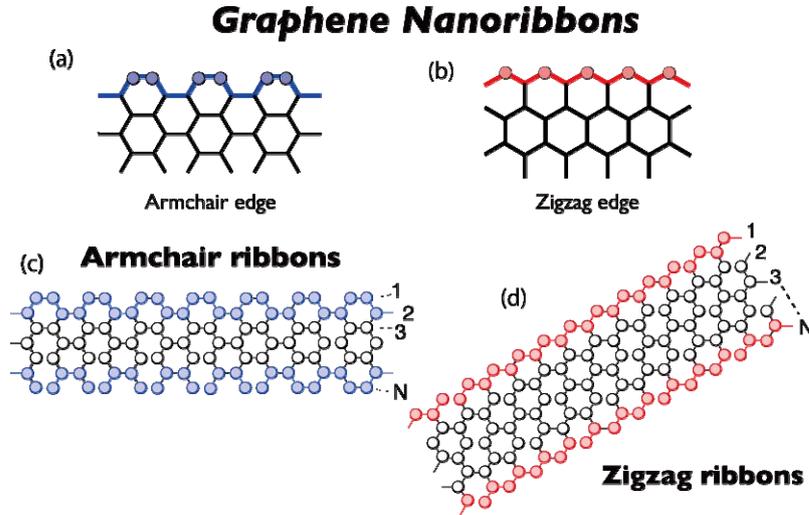


図1 グラフェンの端構造 (a) アームチェア端と (b) ジグザグ端。(c) アームチェアナノリボンと (d) ジグザグナノリボン

$E=0$ 付近に形成される特異な電子状態は、ジグザグ端をもつ半無限のグラフェンを考えると、端を起点として解析的に構築される非結合性軌道(Non-Bonding Orbitals; NBO)として理解される。Fig.3(a)-(d)は、各波数における波動関数の様子を図示したものである。 $k=\pi$ ではジグザグ端に沿って2配位のサイトにのみ完全に電子が局在し、 k が π からずれるにしたがって徐々に面内に浸透し、 $k=2\pi/3$ で完全に広がったグラフェンのK点の状態になる。したがって、平坦バンドの起源は、ジグザグ端に局在した状態(エッジ状態)である。

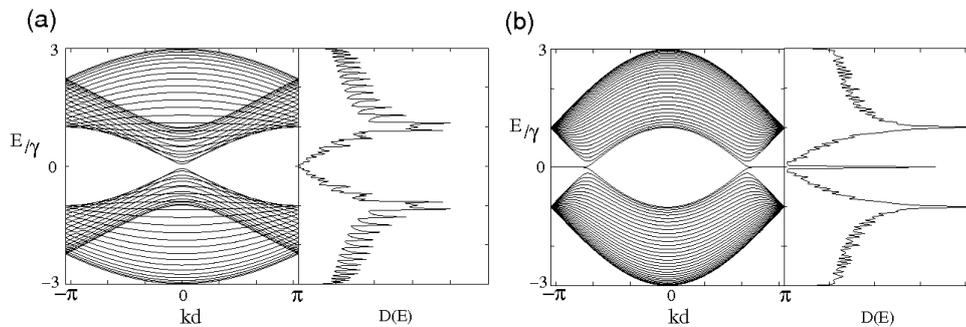


図2 グラフェンナノリボンのエネルギーバンド構造と状態密度。(a) アームチェアナノリボンと (b) ジグザグナノリボン

グラフェンの低エネルギー電子構造は、質量ゼロのディラック方程式(正確には、ワイル方程式)で記述されることが知られている。グラフェンナノリボンの場合も、フェルミ準位近傍のエネルギースペクトラムと波動関数は、このワイル方程式に適切な境界条件を課すことで得られることは知られていた。本研究課題の副産物として、強結合模型の範囲で、それぞれのナノリボンの全エネルギー固有値と波動関数を解析的に導出することができた。これは、Sci. Technol. Adv. Mat. (2010)に出版された。今後、種々の物理量がより簡便な形で計算可能になると期待される。

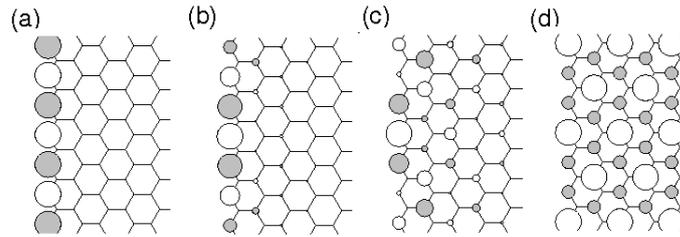


図 3 エッジ状態の波動関数。(a) $k=\pi$ (b) $k=8\pi/9$ (c) $k=7\pi/9$ (d) $k=2\pi/3$

2. ナノグラフェン接合系の電子輸送特性

グラフェンの端での格子構造に依存して、電子状態が大きな影響を受ける。当然のその影響は、電子輸送特性に現れる。ここでは、リボン幅の異なる二つのナノリボンを接合する系を考え、接合領域のエッジ構造に電子輸送特性が大きく変化することを紹介しよう。

Fig.4(a)はアームチェアナノリボン同士を、Fig.4(b)はジグザグリボン同士を接合する系の模式図である。それぞれについて、接合部分をジグザグ端でアームチェア端で切り込んでいく二通りの場合がある。Fig.4(c)と(d)に対応するコンダクタンスのフェルミエネルギー依存性を示す。コンダクタンスは、ランダウアー公式

$$g = \frac{2e^2}{h} MT \equiv g_0 MT$$

によって求められる。ここで T は、電子波が接合系を透過する確率である。電子波を散乱するものがなければ、 $T=1$ である。しかし、今の場合、電子は接合領域のリボン幅の変化するため、接合部のエッジ形状に依存して電子波の散乱がおきるため、一般に $T < 1$ である。

また、 M は入射する電子のモード数である。Fig.4(c)と(d)では、 g_0 を単位として、コンダクタンスをプロットしている。黒い破線は、リボンの幅を変化させない理想的なナノリボンのコンダクタンスである。この場合には電子散乱が起こらないため、常に $T=1$ であり、 g/g_0 はモード数 M (整数値)になる。これはいわゆるコンダクタンス量子化である。

次にリボン幅を変化させる接合系でのコンダクタンスを見てみる。Fig.4(c)では、赤線は接合部分をジグザグ端に切り込んだ場合、青の破線がアームチェア端に切り込んだ場合である。この二つの場合を比較すると、ディラック点($E=0$)近傍での振る舞いが大きく異なることがわかる。ジグザグ端で切り込むと、ディラック点近傍で電子が完全に反射され、コンダクタンスがゼロになる。このことは、ゲート電圧によってフェルミエネルギーを変化させれば、電流の on/off 制御が可能になると示唆している。他方、アームチェア端で切り込んだ場合には、コンダクタンスの落ち込みがほとんど起こらず、ナノグラフェンの電流特性がエッジの形状に強く依存することを物語っており、大変興味深い。これらのエッジ形状に依存したナノグラフェンの電子伝導特性を利用することで、ナノグラフェンからなる電子デバイスの設計が可能になると期待される。Fig.4(d)は、ジグザグナノリボンに、アームチェアおよびジグザグ端で切り込みを入れた場合である。特に、ジグザグ端で切り込むと、ディラック点近傍以外にも、完全反射状態が現れる。またこの完全反射状態付近でのエネルギーをもつ電子は、接合部分で渦電流状態を形成することがわかっている。本節の成果は、Appl. Phys. Lett.(2009)に出版した。

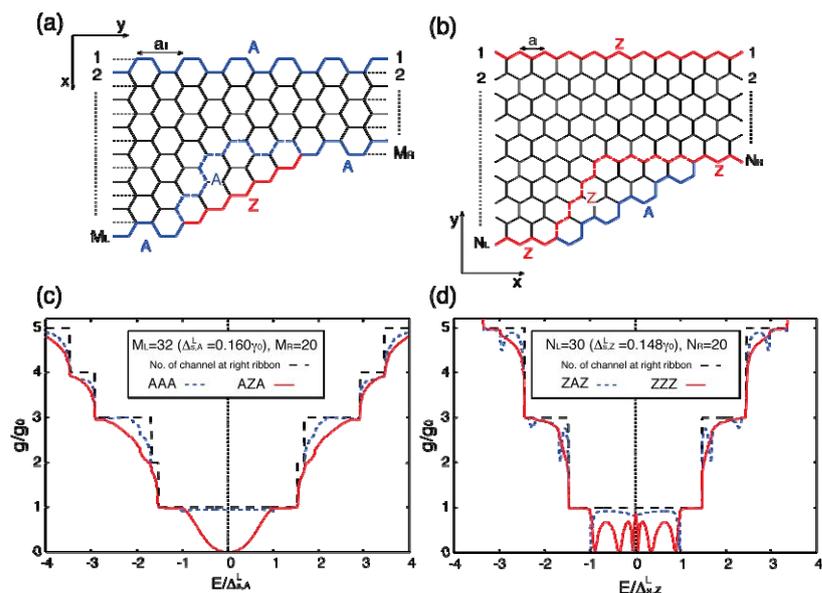


図 4 (a) アームチェアナリボンからなる接合系。(b) ジグザグナリボンからなる接合系。(c) 接合系(a)に対応するコンダクタンス。アームチェアの切れ込みを入れた場合(AAA 接合)には、ほとんど反射が起こらない。(d) 接合系(b)に対応するコンダクタンス。ジグザグエッジの切れ込みを持つ場合(ZZZ)には、反共鳴状態が現れる。

3. 量子細線としてグラフェンナリボンの伝導特性

グラフェンは、数千から数万 cm^2/Vs という非常に高い電子移動度を持つことが実験的に知られている。これは、グラフェンでは不純物による後方散乱が起こりにくいことに起因している。後方散乱消失の物理的な起源は、電子の波動関数がディラック点周りでベリー位相を π 有することに起因している。物理的な起源は異なるが、ジグザグナリボンでも、図 5(a)に示すように、長距離不純物がランダムにばらまかれたナリボンを介した電子伝導を考えると、一つの伝導モードが完全伝導となり、絶縁化しないことを示した。

ジグザグ端があると、エッジ状態がフェルミ準位近傍に形成され、ほとんど分散のない平坦なバンドが現れる。エッジ状態は、非結合性分子軌道であるため、伝導そのものには関与しない。しかし、エッジ状態に起因するサブバンドに由来して、ジグザグナリボンは、通常の量子細線とは本質にことなつた電子構造をもっている。図 5(b)に、グラフェンナリボンのバンド構造を示す。波数 $k=2\pi/3$ と $k=-2\pi/3$ の近傍に、二つのバレー構造が現れる。バレー間散乱が抑制される状況では、これら二つのバレーは、独立に電子輸送に寄与する。そこで各バレーにおける右向きおよび左向きにチャンネルの数に着目すると、左側のバレーでは、 $1 > E > 0$ の領域で、右向きチャンネルの数が一つ多くなる。一方、右側のバレーでは、左向きのチャンネルが一つ多くなっているおり、左右のチャンネルの数に非対称性をもつ。従って、電流をリボンの左側から入射させることを考えると、常に右向きのチャンネルが一つ余分にある「一方通行チャンネル」系になっている。したがって、長距離型不純物をランダムにばらまいたサンプルに対してコンダクタンスの振る舞いを数値計算によって確認すると、一つのチャンネルは電子散乱の影響を受けにくく、常に一つのチャンネルが完全に伝導することを示した(図 5(c))。これは、ジグザグナリボンは準一次元系にも関わらず、アンダーソン局在を起こさないことを示しており、学術的にも興味深い。さらに、グラフェンナリボンが、配線材料として優れたポテンシャルを有していることを示した。

Perfect conducting channel in zigzag nanoribbons

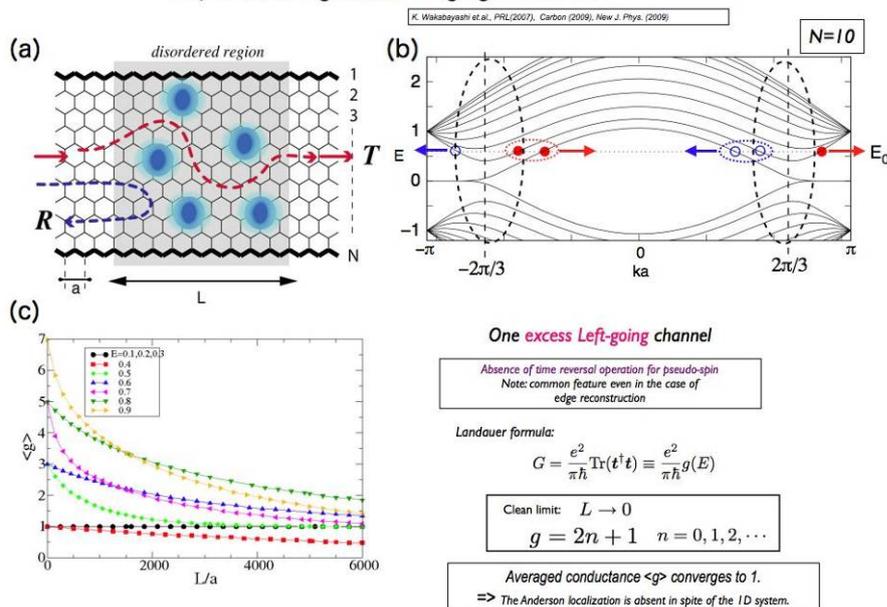


図 5 (a) 長さ L にわたって不純物がランダムにばらまかれたグラフェンナノリボンの模式図。 a は格子定数。(b) グラフェンナノリボンのエネルギーバンド図。赤丸(青丸)は、右向き(左向き)チャンネルを表す。(c) 平均コンダクタンスの不純物領域の長さ L 依存性。

アームチェア型のエッジを有するナノリボンでも、低エネルギー領域で、不純物散乱がほとんど電子輸送に影響を与えない特異な性質を有することを見いだした。これは、ディラック型分散関係に由来する線形バンドに関して、長距離型不純物による散乱では、Born 近似の範囲で後方散乱の行列要素が消えることから理解できることを示した。

不純物効果および完全伝導チャンネルについて、CARBON(2010)および New J. Phys.(2009)に公表した。また、New J. Phys.(2009)の論文は、Best of 2009 に選出された。

4. カイラル形状のナノリボンの電子状態と伝導特性

グラフェンナノリボンは、半導体微細加工技術によるトップダウン手法および、化学的合成によるボトムアップ手法によって可能になってきている。しかし、トップダウン的な手法では、端の構造制御は極めて困難な状況であり、エッジの乱れの問題が電子輸送特性に与える影響を理解することは重要な課題となっている。

図 6(a)に示すような、ジグザグ端とアームチェア端が混ざった任意角度のナノリボンの電子状態および電子伝導の考察を行った。図 6(b)と(c)に、エネルギーバンド構造を示す。アームチェアナノリボン以外では、常に二つのバレー構造が現れ、それらの波数空間での距離は、ナノリボンのカイラル角度に依存する。また、二つのバレー間を結ぶように、エッジ状態に由来した平坦バンドが出現し、各バレー内において右向きおよび左向きチャンネルの数に差を生み出す。したがって、バレー間散乱が抑制されれば、カイラルナノリボンにおいても、完全伝導チャンネルが一つ現れる。

Graphene Nanoribbon with Generic Edge Structures

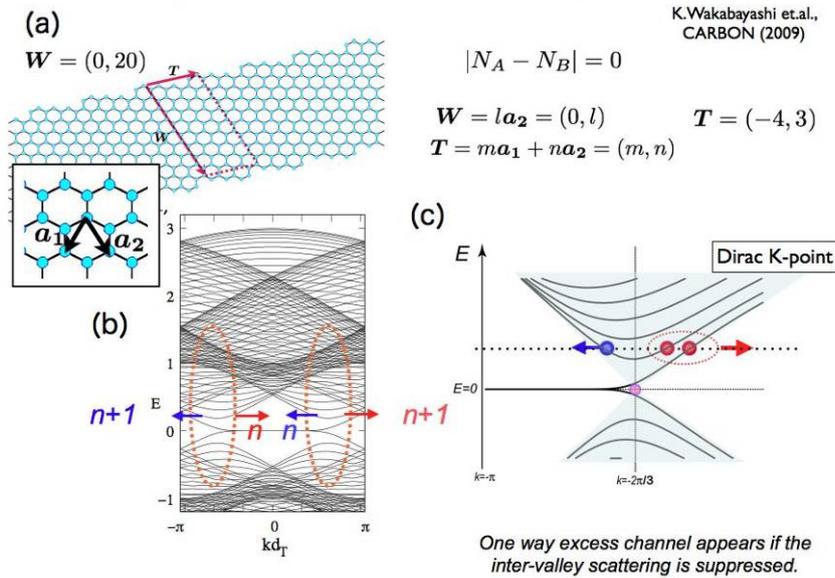


図 6 (a) 一般的な端構造をもつナノリボンの模式図と (b) エネルギーバンド構造。 (c) エネルギーバンド構造における特徴。

任意のエッジ形状での伝導特性についても解析を行い、グラフェン結晶軸と伝導度の相関を数値的に明らかにした。図 7 の模式図に示す接合系に対して数値解析を行った。結晶軸がジグザグ方向に近くなると、完全伝導チャンネルのために、電気伝導は金属的になる。しかし、アームチェア方向に近づくにつれて、絶縁化していくことを示した。

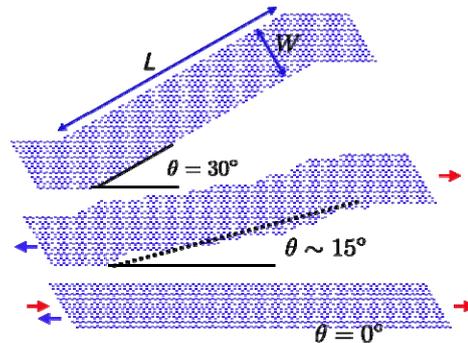


図 7 任意角度をもつナノリボン接合系。

5. 端の構造修飾と機能発現

ナノカーボン材料の優れている点は、サイズやエッジ形状を変えることで、様々な物性を示すところにある。ジグザグ端に出現するエッジ状態は、フェルミ準位近傍に大きな状態密度を形成するため、僅かな電子間相互作用でもフェルミ不安定性を誘起し、スピンのフェリ的に変極した状態が現れる。そこで、我々は、ジグザグ端以外においても、端構造修飾を行うことで、平坦バンドを有し、磁性状態を出現させることができないかを、モデル計算および密度汎関数理論に基づく第一原理計算によって考察を行った。

平坦バンドを構成させるアプローチとして、最も単純には、A 副格子とB 副格子との間に数の差をつけることであるが、通常そのような系はエネルギー的に不安定になるため、除外した。しかし、磁氣的に異常を起こさないアームチェア型エッジにおいても、エッジ近傍でA 副格子とB 副格子との間に、図 8(a)に示すように、強いポテンシャルに違いを作り込めれば、平坦バンドが現れることを示した。さらに、図 8(b)に示すように、表面再構成がおきても、フェルミ準位近傍に部分平坦バンドが残るため、強いフェルミ不安定性の原因となる。実際に、第一原理計算による考察においても、スピン分極が示唆されている。

本節の研究内容については、J.Phys.Soc.Jpn.(2010)に出版された。

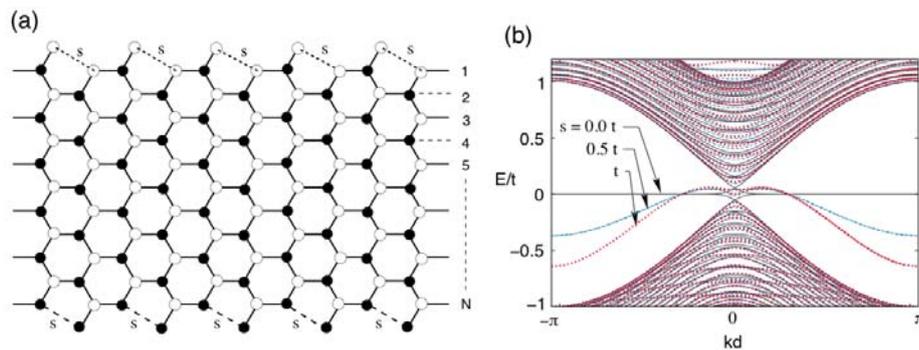


図 8 (a) 構造修飾したアームチェアナノリボンと (b) エネルギーバンド構造。

3. 今後の展開

グラフェンは、高い電気伝導性、熱伝導性を有することから、次世代デバイスのキーマテリアルとして、今後重要な位置を占めると考えられる。また、一原子層という薄さから、光の透過性が良く、レアメタルフリーの透明電極材料としても重要視されるだろう。またカーボンナノチューブも、トップダウン技術との整合性にまだ課題はあるものの、次世代デバイスを目指す上で重要な材料である。このようにグラフェンおよびナノカーボン研究の世界的な大きな潮流の中でも、研究代表者らが中心となっておこなってきた、グラフェンナノリボンおよびナノグラフェンの理論研究は、先駆的なものとして認知されていると自負する。

さきかけ研究課題の遂行を通して、ナノリボンにおける電子輸送特性に関する基礎理論の整備が格段に進んだ。特に、通常金属における量子細線とは、その特性は鮮明に異なっており、系は一方通行チャンネルシステムとして記述され、完全伝導チャンネルが出現するなど、極めて特異な伝導機構を解明した。さらに、接合系などにおける、格子の幾何構造と伝導特性の関係も多彩であり、本研究課題を通して、その分類もおこなった。今後我々の研究成果を基に、ナノカーボン材料を利用した配線材料あるいは、カーボンエレクトロニクス素子あるいは分子エレクトロニクス素子の設計と実現を期待したい。また、ナノカーボン配線材料へ応用展開に向けて、現在産学官連携の可能性へと広がりつつある。

端構造修飾による磁性状態の制御などは、カーボンスピントロニクス素子やカーボン磁性材料を設計する上で重要である。その中で、従来磁性に対して沈黙であったアームチェア端についても、ある種の条件化では磁性状態を発現させる可能性を指摘しており、今後の研究に端緒を与えたと言えよう。また、ナノグラフェンについて解析的な考察と理解も、格段に進んでおり、今後グラフェン以外のディラック電子系物質群への適用を含め、基盤理論の整備が進んだことは大きな成果の一つである。

4. 自己評価

さきがけ研究を通して、グラフェンの電子状態、電子輸送特性、磁性におけるナノスケール効果について、理論整備が格段に進んだと評価している。今後は、得られた知見を基に、グラフェン以外のディラック電子系への適用を目論んだ理論整備を行う方向、さらにナノカーボン材料を実際の素子応用へ適用するための理論整備を、さらに進めて行きたい。格子構造やナノスケール効果によって、物性が多彩な顔を見せるのはナノカーボン系のおもしろさであると同時に、応用への障壁にもなっている。このような状況で、輸送現象については、ある一定の交通整理が達成できたのではないかと考えている。一方で、提案しながらも手をつけられなかった課題、あるいは領域会議や研究者同士の交流を通してインスピレーションを得た課題もあるが、積み残した課題があるのも事実ではある。たとえば、スピン依存伝導については、深く切り込む時間がなかった。これは、当初想定したよりも、輸送現象の問題や端修飾の問題が、深い物であり、徹底した考察の必要があったためである。しかし、応用に向けた問題だけでなく、基礎物理の観点からもまだまだすべき問題が残されていると実感している。

5. 研究総括の見解

若林研究者は、ずっと以前からグラフェンの特異な電子構造に着目した先駆的な理論研究を行ってきた力のある研究者です。本さきがけ研究は、ナノグラフェンの電子状態を明確にして、ナノグラフェンの電子物性を積極的に利用した電子デバイスの構築に貢献しようというものです。

グラフェンのナノ構造では、エッジの形状が大きくなはたらきをします。ジグザグ端があると、エッジ状態がフェルミ準位近傍に形成され、ほとんど分散のない平坦なバンドが現れます。エッジ状態は、伝導そのものには関与しませんが、エッジ状態に起因するサブバンドに由来して、ジグザグナノリボン、通常の量子細線とは本質に異なった電子構造をもち、常に一つのチャンネルが完全に伝導することを示しました。アームチェア型のエッジを有するナノリボンでも、低エネルギー領域で、不純物散乱がほとんど電子輸送に影響を与えない特異な性質を有することを見いだしました。

任意のエッジ形状での伝導特性についても解析を行い、グラフェン結晶軸と伝導度の相関を数値的に明らかにしました。接合系に対して数値解析を行ったところ、結晶軸がジグザグ方向に近くなると、完全伝導チャンネルのために、電気伝導は金属的になる一方、アームチェア方向に近づくにつれて、絶縁化していくことも示しました。また、カイラルナノリボンにおいても、完全伝導チャンネルが現れることが明らかになりました。エッジの存在とその形状が、グラフェンの電子物性にどのように影響するかを具体的に明らかにしたことは大いに評価できます。若林研究者は、本領域の貴重な2人の理論家のうちの1名です。領域会議、ミニワークショップでは、積極的に質問し、意見を述べて領域を活性化してくれました。3期生に多い分子系の研究者の理論的な柱として、終了後もネットワークを通じて実験研究との連携が進むものと期待します。

ノーベル賞受賞に見られるようにグラフェンおよびナノカーボン研究は世界的な大きな潮流となっています。若林研究者らが中心となっておこなってきたグラフェンナノリボンおよびナノグラフェンの先駆的な理論研究は、今後とも世界をリードするものと確信しています。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1.	K. Wakabayashi, Y. Takane, M. Yamamoto, and M. Sigrist, Edge Effect on Electronic Transport Properties of Graphene Nanoribbons and Presence of Perfectly Conducting Channel, CARBON (Elsevier), vol. 47, 124–137 (2009)
2.	M. Yamamoto, Y. Takane, and K. Wakabayashi, Nearly Perfect Single-Channel Conduction in Disordered Armchair Nanoribbons, Phys. Rev. B vol. 79, 125421 (2009).
3.	Y. Takane, and K. Wakabayashi, Conductance Fluctuation in Disordered Wires with

	Perfectly Conducting Channels, J. Phys. Soc. Jpn. vol. 77, No.5, 054702(1)–054702(6) (2008).
4.	K. Wakabayashi, and M. Sigrist, Enhanced conductance fluctuation due to the zero-conductance Fano resonances in the quantum point contact on graphene. J. Phys. Soc. Jpn. (Letters), vol. 77, No. 11, 113708 (2008).
5.	Y. Takane, S. Iwasaki, Y. Yoshioka, M. Yamamoto, and K. Wakabayashi, Conductance Distribution in Disordered Quantum Wires with a Perfectly Conducting Channel, J. Phys. Soc. Jpn. vol.78, No.3, 034717 (2009).
6.	K. Sasaki, M. Yamamoto, S. Murakami, R. Saito, M. S. Dresselhaus, K. Takai, T. Mori, T. Enoki, K. Wakabayashi, Kohn Anomalies in Graphene Nanoribbons, Phys. Rev. B80, 155450 (2009).
7.	M. Yamamoto and K. Wakabayashi, Control of electric current by graphene edge structure engineering, Applied Physics Letters vol. 95, 082109 (2009).
8.	K. Sasaki, Y. Shimomura, Y. Takane, and K. Wakabayashi, Hamiltonian decomposition for bulk and surface states, Phys. Rev. Lett. vol. 102, 146806 (2009).
9.	K. Wakabayashi, Y. Takane, M. Yamamoto and M. Sigrist, Electronic transport properties of graphene nanoribbons, New Journal of Physics, vol.11, 095016 (2009).
10.	K. Sasaki, R. Saito, K. Wakabayashi and T. Enoki, Identifying the Orientation of Edge of Graphene Using G Band Raman Spectra, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 044603 (2010).
11.	K. Sasaki, K. Wakabayashi, and T. Enoki, Berry's Phase for Standing Wave Near Graphene Edge, New Journal of Physics, 12, 083023 (2010).
12.	K. Wakabayashi, S. Okada, R. Tomita, S. Fujimoto, and Y. Natsume, Edge States and Flat Bands of Graphene Nanoribbons with Edge Modification, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 034706 (2010).
13.	K. Wakabayashi, K. Sasaki, T. Nakanishi, and T. Enoki, Electronic states of graphene nanoribbons with analytic solutions Sci. Technol. Adv. Mater. 11 (2010) 054504.

(2)特許出願

研究期間累積件数：0件

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

受賞

平成22年度 文部科学大臣表彰 若手科学者賞

著作物

1. Katsunori Wakabayashi, Electronic properties of graphene nanoribbons, Graphene Nanoelectronics, Springer Series in Materials Science, Edited by Hassan Raza, Springer-Verlag
2. Koichi Kusakabe, and Katsunori Wakabayashi, Nano-carbon systems: Nanotubes and graphene, Handbook of computational materials design, Edited by H. Katayama-Yoshida et.al, Pan Stanford Publishing, Singapore
3. 若林克法, 草部浩一, グラフェンシートの電子物性 - ナノグラフェン - 日本物理学会誌解説 63 巻 p. 344-352 (2008 年 5 月)
4. 若林克法, ナノグラフェンの特異な電子物性, 炭素(TANSO), no. 243, 116-120 (2010).
5. 若林克法, グラフェン電子状態の理論的側面、日経エレクトロニクス別冊、グラフェン・イノベーション、日経 BP 社(2011)
6. 塚越一仁, 若林克法, 新たな世界を作り出した物質“グラフェン” - 流れを引き寄せた洞察力 -, 岩波書店 科学 2011 年1月号

主たる招待講演

1. (招待講演) Joint International Conference “Advanced Carbon Nanostructures” combining the 10th Biennial Workshop “Fullerenes and Atomic Clusters” and the 4th International Symposium “Detonation Nanodiamonds Technology, Properties, and Applications”, July 4-8, 2011, St. Petersburg, Russia
2. (基調講演) Graphene 2011 -IMAGINENANO-, Apr. 11-14, 2011, Bilbao Exhibition Center, Bilbao, Spain
3. (招待講演) Graphene Workshop 2011 in Lancaster, UK, Feb., 2011, Lancaster University, UK
4. (招待講演) K.Wakabayashi, Quantum Electronic Transport and Magnetic Properties of Nanographene Systems, Graphene Workshop 2011 in Tsukuba, Jan. 17-18, 2011, Okura Frontier Hotel Tsukuba
5. (招待講演) K. Wakabayashi(NIMS/MANA, JST/PRESTO), Electronic and Transport Properties of Nano-Graphene Systems, International Conference on Quantum Effects in Solids of Today (I-ConQuEST), Dec. 20-23, 2010, National Physical Laboratory, New Delhi, India.
6. (招待講演) K. Wakabayashi, Electronic and Transport Properties of Graphene Nanoribbons and Nanojunctions, Solid State Device and Materials (SSDM2010), Area 9, F-1 Graphene Structures and Transport, The University of Tokyo, 2010, Sep. 22

7. (招待講演) K. Wakabayashi, Peculiar Electronic and Transport of Graphene Nanoribbons, MANA Symposium 2010, 2010, Mar. 3, Tsukuba, Japan
8. (招待講演) K. Wakabayashi, Electronic Transport of Nanographene: Effect of Geometry and Edges, Indo-Japan Conference on “Graphene”, 2009, Nov. 17-19, Jawaharlal Nehru Center for Advanced Scientific Research, Bangalore, India
9. (招待講演) K. Wakabayashi, Electronic Transport of Nanographene: Effect of Geometry and Edges, ICCMSE2009, 2009年9月30日, Rhodes, Greece.
10. (招待講演) K. Wakabayashi, Electronic Transport of Nanographene: Effect of Geometry and Edges, KIAS Workshop on Physical Properties of Graphene, Korea Institute for Advanced Science(KIAS), Seoul, South Korea, Jun. 29-Jul.2, 2009.
11. (口頭発表) K. Wakabayashi, Edge Shape and Magnetic Field Effects on Electronic Transport Properties of Graphene Nanoribbons, 15th International Symposium on Intercalation Compounds, Beijing, China, 10-14 May 2009.
12. (招待講演) K. Wakabayashi, Electronic Transport Properties of Graphene Nanoribbons, Okazaki Conference 2009, From Aromatic Molecules to Graphene: Chemistry, Physics and Device Applications, Okazaki Conference Center, Okazaki, Japan, Feb. 21-23, 2009.
13. (招待講演) K. Wakabayashi, Peculiar Quantum Transport Properties of Graphene Nanoribbons, International Symposium on “Graphene Device: Technology, Physics and Modeling”(ISGD2008), University of Aizu, Fukushima, Japan, Nov. 17-19, 2008.
14. (口頭発表) K. Wakabayashi, Y. Takane, and M. Sigrist, Perfectly Conducting Channel of Disordered Nanographene Ribbons, 29th International Conference on Physics of Semiconductor, Rio de Janeiro, Brazil, July 27- Aug. 1, 2008.
15. (招待講演) K. Wakabayashi, Electronic transport properties and perfectly conducting channel of disordered graphene nanoribbons, Jun. 19, 2008, Aspen Center for Physics, Aspen, Colorado USA.
16. (シンポジウム講演) 若林克法(物材機構), 応用物理学会シンポジウム「革新的デバイス創成を指向した物理とテクノロジーの探索」, 計算科学手法によるカーボン素子の設計と物性予測(25分), (2010年9月15日 長崎大学文教キャンパス工学部1号館1F-12)
17. (招待講演) 若林克法(物材機構), MNC2010(23rd International Microprocess and Nanotechnology Conference, Nov.9-12,2010) 技術セミナー「グラフェン」, “理論計算からの興味 何が期待されるか”(45分), (2010年11月9日 リーガロイヤルホテル小倉)
18. (招待講演) 若林克法(物材機構), ナノグラフェンの電子物性と輸送特性, 物性研究所短期研究会「ディラック電子系の物性ーグラフェンおよび関連物質の最近の研究」(2009年10月22-24日 東京大学物性研究所)
19. (依頼講演) 若林克法(物材機構), ナノグラフェンの電子物性と輸送特性, 新世代研究所第2回ナノカーボン研究会, (2009年9月11日 新世代研究所)

20. (シンポジウム講演)若林克法(広大院先端物質), 領域7シンポジウム「グラフェン研究の焦点 ー新しい挑戦ー」日本物理学会(2008年9月 岩手大学)
21. (依頼講演)Katsunori Wakabayashi (NIMS-MANA), ナノグラフェンの特異な電子物性, 東京大学物性研究所理論セミナー, 2010年6月4日, 東京大学物性研究所.
22. (依頼講演) Katsunori Wakabayashi (NIMS-MANA), Peculiar Low-Energy Physical Properties of Nanographenes, MANA Seminar, 2010年1月29日, NIMS-MANA.
23. (依頼講演)若林克法(物材機構), グラフェンナノリボンにおける特異なナノスケール効果と電子物性, 電子情報技術産業協会セミナー, 2010年1月15日, 慶應義塾大学日吉キャンパス.
24. (依頼講演) 若林克法(物材機構), グラフェンにおける特異なナノスケール効果と電子物性, 物質・材料研究機構有機デバイスクラスターセミナー, 2010年1月6日, 物質・材料研究機構並木地区共同研究棟 4F.
25. (依頼講演) 若林克法(物材機構), グラフェンにおける特異なナノスケール効果と電子物性, 奈良女子大学凝縮系物理セミナー, 2009年12月15日, 奈良女子大学理学部.
26. (依頼講演) K. Wakabayashi, Electronic Transport of Nanographene: Effect of Geometry and Edges, The 1st MANA/NIMS-CEMES/CNRS Joint Workshop on the Fusion of Theory and Experiment, 2009年10月13日. Thoulouse, France.
27. (依頼講演) K. Wakabayashi, Electronic Transport of Nanographene: Effect of Geometry and Edges, NIMS CMS Seminar, 2009年6月10日.
28. (依頼講演) 科学技術未来戦略ワークショップ「次世代を拓くナノエレクトロニクス」, 計算科学に基づくナノカーボンの電子物性, JST 研究開発戦略センター, 2009年3月9日, 若林克法(広島大学, JST さきがけ)
29. (依頼講演) ナノグラフェンにおけるエッジ状態が担う特異な電子物性, 東北大学理学部物理教室物性コロキウム, 2008年9月4日, 16:30-18:00, 若林克法(広島大学)
30. (依頼講演) Electronic Properties of Nano-Graphene Ribbons, K. Wakabayashi (Hiroshima Univ. and PRESTO/JST), 2007年10月23日. ETH-Zurich, Klaus Ensslin Group.