

整理番号	H26-J-055	報告者氏名	富田 知志
------	-----------	-------	-------

研究課題名

単一メタ分子での磁気カイラル異方的電気伝導

<代表研究者> 機関名：奈良先端科学技術大学院大学 職名：助教 氏名：富田知志

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：  
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

整流効果をもたらすダイオードなどに代表される電流に対する一方向素子は、計算機などの電子情報技術で重要な位置を占める。現代のダイオードは、PN接合やショットキー接合など半導体を用いている。しかし本研究では半導体を用いずに、磁性金属とカイラリティを用いて電流の一方向素子を実現することを目指す。具体的には、時間反転対称性と空間反転対称性を同時に破ることで起こる磁気カイラル異方性によって、電気抵抗が伝導方向に依存することを用いる。このような研究は金属を用いた新しい論理演算素子の可能性を示し、新たな電子情報材料を実現するものと期待される。

我々は応力誘起自己巻き上げ法を用いて、強磁性金属であるコバルト (Co) のマイクロメートルサイズのカイラル構造 (強磁性カイラルメタ分子) を作製した。まずフォトリソグラフィによってSU8レジストを短冊状にパターンニングした。アルゴンイオンスパッタリングを用いてその上にCoを50nm、更に保護層としてタンタル (Ta) を2nm成膜した。電磁石でCoを磁化した後、Nメチル2ピロリドンに浸けることで金属膜ごとSU8がめくれ上がった。それと同時に、金属膜での内部応力によって自発的に巻き上がることで、カイラルメタ分子が形成された。今回新たに準備したV字型のフォトマスクを用いることで、一つのカイラル構造に右巻きと左巻きが隣接し、測定が容易に再現良く行うことができた。

走査型電子顕微鏡 (SEM) 内でのナノプローブで、室温かつ無磁場下で電気伝導測定を行った。2端子測定の結果、I-V特性では電流がほとんど流れなかった。抵抗に換算するとMΩのオーダーであった。これはプローブと金属膜との間の接触抵抗が大きいことが原因であると考えられた。よって研究期間の延長を申請し、4端子法での測定を試みた。そして4端子法での抵抗測定に成功した。Coカイラルメタ分子では低電流側で、電流の方向に依存して電気抵抗が変化した。そしてメタ分子のカイラリティを逆転させることで、電気抵抗の変化の大小関係も逆転した。このことは対照試料である非磁性金属のAgカイラル構造では確認できなかった。よって今回の実験結果は、磁性とカイラリティが共存することによる磁気カイラル異方的電気伝導に起因することが強く示唆された。

これらの結果は2016年9月の日本磁気学会において口頭発表した。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

口頭発表

"強磁性金属のカイラル構造での非相反電気伝導の測定" (08aC-6)

村上郁、児玉俊之、富田知志、細糸信好、柳久雄

第40回 日本磁気学会 学術講演会

2016年9月8日、金沢大学・角間キャンパス（石川県金沢市）

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

## 目的

整流効果をもたらすダイオードなどに代表される電流に対する一方向素子は、計算機などの電子情報技術で重要な位置を占める。現代のほとんどのダイオードは、PN 接合やショットキー接合など半導体を用いている。しかし本研究では半導体を用いずに、時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れた系、すなわち磁性金属とカイラリティを共存させることで、電流の一方向素子を実現することを目指す。

時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れた系は、電磁波に対する屈折率が偏光に依存せず、マジックミラーのように電磁波の進行方向に依存する、磁気カイラル異方性という機能を発現する。電磁波に対する磁気カイラル異方性は、理論的には予言されてきたが、効果が小さく実験的に観測することは困難であった。しかし研究代表者らは最近、人工構造を用いることでマイクロ波に対する磁気カイラル異方性の直接観測に成功した[*Tomita et al., Physical Review Letters 113, 235501 (2014)*]

磁気カイラル異方性は、電磁気応答のみならず、電気伝導にも現れるはずである。つまり磁性とカイラリティが共存する系では、磁化に対して平行方向の電気抵抗と、反平行の方向の電気抵抗に差が現れるはずである。これを磁気カイラル異方的電気伝導と呼ぶ。これは磁気抵抗効果などスピン依存伝導とは異なる現象である。カイラリティは相反的であるので、電気伝導でも異方性は無い。しかし磁化があることで非相反性が現れる。

研究代表者らはごく最近、図 1 に示す応力誘起自己巻き上げ法[*Smith et al., Phys. Rev. Lett. 107, 097204 (2011)*]を用いて、磁性金属のミクロンサイズの人工カイラル構造（強磁性カイラルメタ分子）の作製に成功した[*Kodama, Tomita et al., Applied Physics A 122, 41 (2016)*]。そして強磁性共鳴を調べ、特異な共鳴信号を発見した[*Kodama, Tomita et al., Physical Review Applied 6, 024016 (2016)*]。このような強磁性カイラルメタ分子では、時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れているため磁気カイラル異方的電気伝導によって、電気抵抗がスピンの依存せず、伝導方向に依存することが期待される。このような現象は、低温・磁場下でのミリメートルサイズのビスマスワイヤでは報告がある[*Rikken et al., Phys.Rev.Lett. 87, 236602 (2001)*]。しかし一方向素子として応用するには、室温で外部磁場を用いずに、より小さなカイラル構造で実現することが望ましい。よって本研究では、あらかじめ磁化したミクロンサイズの強磁性カイラルメタ分子を用いて、室温・無磁場下での電気伝導測定で磁気カイラル異方性の検出を目標にする。

本研究はスピントロニクスで注目されている強磁性金属に、カイラリティという人工構造を導入することで高度機能性材料を実現することを目指す。このような研究はスピントロニクスのみならずメタマテリアルの基礎研究としても大変興味深い。本研究は金属を用いた新しい論理演算素子の可能性を示し、新たな電子情報材料を開拓するものと期待される。

## 経過

応力誘起自己巻き上げ法（図 1）を応用して強磁性カイラルメタ分子を作製した。まずフォトリソグラフィによって SU8 レジストを短冊状にパターンニングした。アルゴンイオンスパッタリングを用いてその上に、コバルト (Co) を 50nm、更に保護層としてタンタル (Ta) を 2nm 成膜し

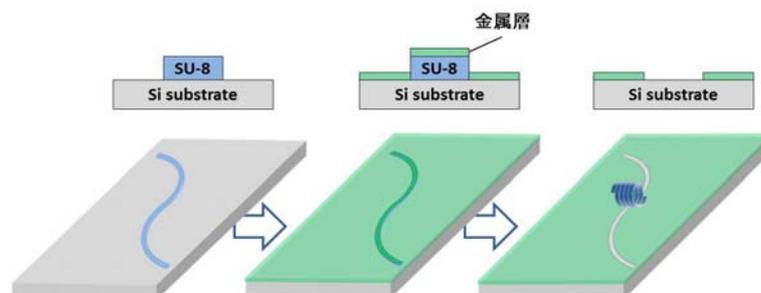


図 1 応力誘起自己巻き上げ法

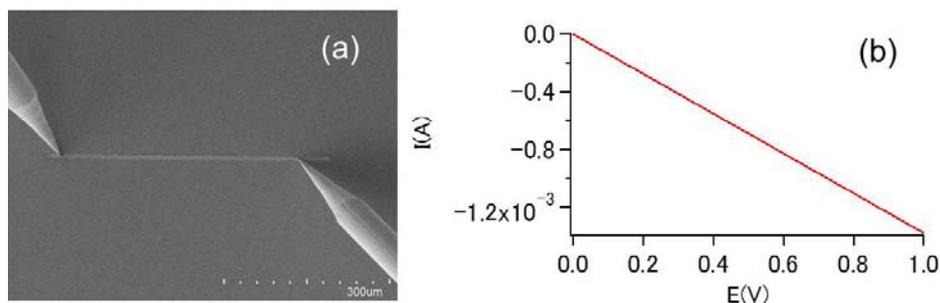


図2 直線短冊の(a)SEM 写真と(b)ナノプローブ I-V 特性

た。Nメチル2ピロリドンに浸けることで金属膜ごとSU8がめくれ上がった。それと同時に、金属膜での内部応力によって自発的に巻き上がり、カイラル構造が形成された。今回は電気伝導測定試料のために新たにフォトマスクを作製し、それによるV字型のレジストパターンを用いてカイラル構造を基板に固定することを試みた。このV字型パターンで試料を作製することで、一つの構造に右巻きカイラルと左巻きカイラルが隣接して存在し、ナノプローブでの電気伝導測定が行いやすい。電気伝導測定での対照試料として、フォトリソグラフィとリフトオフ法を用いて、Co/Taの基板に固定された直線状短冊も作製した。なおカイラル構造は、巻き上げ前に電磁石で磁化した。直径数十マイクロン、長さ数百マイクロン程度のCoカイラルメタ分子は微小なため、通常のプローバーで電気伝導特性を測定することは困難である。よって本研究ではナノプローバー（日立NE4000）を備えた走査型電子顕微鏡（SEM）を使用して、まず2端子直流電気伝導を測定した。すべての測定は室温かつ無磁場下で行った。

対照試料であるCo/Ta膜の直線状短冊のナノプローブでの電気伝導測定結果を図2に示す。図2(a)はCo/Ta膜の直線状短冊のSEM像である。短冊の両端をプローブでコンタクトし、電気伝導を測定している。プローブ間の距離は422 $\mu\text{m}$ であった。測定した電流-電圧（I-V）特性を図2(b)に示す。ほぼ線型のI-V特性が得られた。短冊幅6.8 $\mu\text{m}$ 、Co膜厚50nmを仮定すると、電気抵抗は714 $\Omega$ と計算できる。この値はコバルトの電気抵抗率（ $5.8 \times 10^{-8} \Omega \cdot \text{m}$ ）から推定される電気抵抗である約70 $\Omega$ と比較すると一桁大きい。この大きな電気抵抗の原因は、プローブと金属膜との接触抵抗と考えられた。

つぎにカイラルメタ分子の電気伝導測定を行った。図3(a)にカイラルメタ分子のSEM像を示す。メタ分子が基板に固定できていることが判る。両端にプローブでコンタクトして測定したI-V特性を図3(b)に示す。結果として電流はほとんど流れなかった。抵抗に換算するとM $\Omega$ のオーダーであった。ここでもやはりプローブとメタ分子との接触抵抗の影響が大きいと考えられた。よって測定での接触抵抗の影響を排除するべく、ナノプローブを用いた4端子法での測定を行うために2016年9月末までの研究期間の延長を申請した。

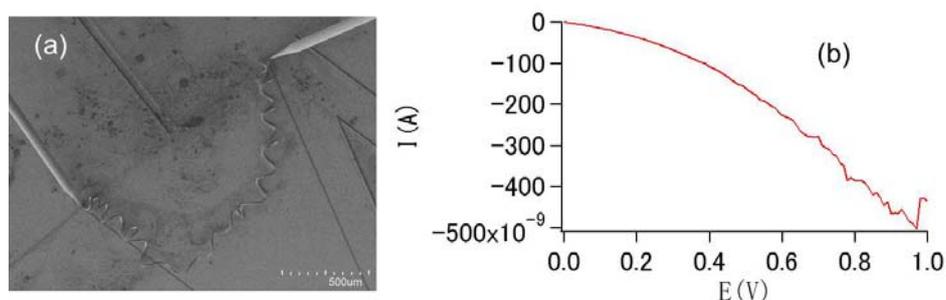


図3 Coカイラルメタ分子の(a)SEM 写真と(b)ナノプローブ I-V 特性

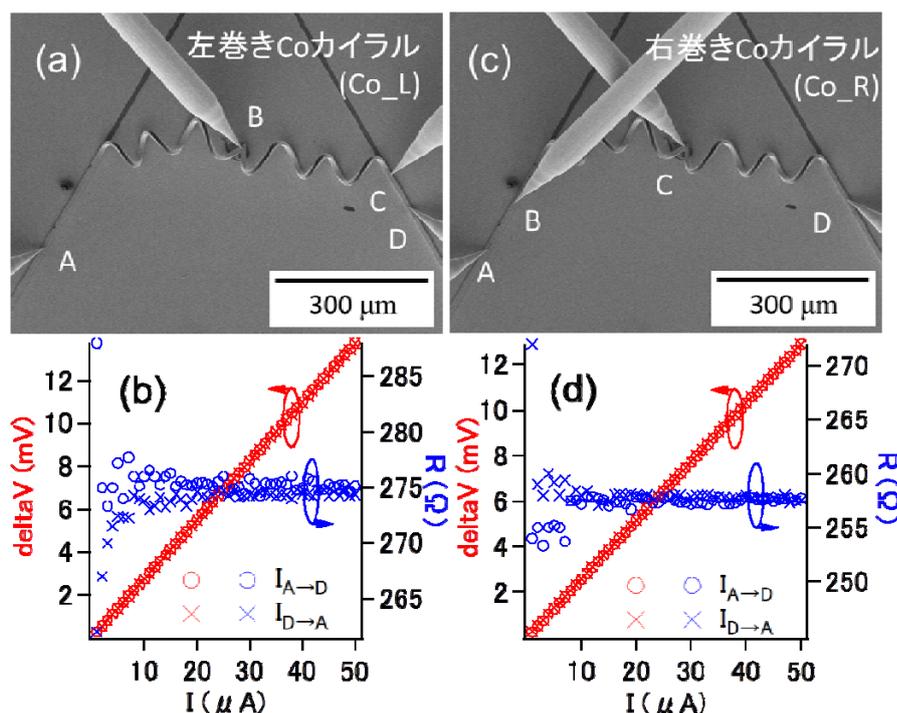


図4 Coカイラルメタ分子の4端子法での測定結果。左巻きカイラルの(a)測定時 SEM 像と(b)電気伝導特性。右巻きカイラルの(c)測定時 SEM 像と(d)電気伝導特性。

### 結果と考察

Co カイラルメタ分子のナノプローブを用いた4端子測定結果を図4に示す。図4(a)はナノプローブ中で左巻き Co カイラルメタ分子の電気伝導測定している様子の SEM 写真である。4端子測定では、プローブ A から D (もしくは D から A) に電流を流し、B と C の間の電圧を測定する。図4(b)はその測定結果である。赤色が電流-電圧特性、青色はその結果から算出した抵抗値である。○印は A から D へ、×印は D から A へ電流を流した時の結果である。線型の(オーミックな)電流-電圧特性が得られた。50 $\mu$ A 程度の電流を流した場合は、電流の向きに依存せずの抵抗値は275 $\Omega$ 程度であった。そして20 $\mu$ A 以下の低電流側では電流の向きに依存して抵抗値が変化した。例えば A から D に流した場合に比較して、D から A に電流を流した抵抗値は低かった。

プローブ位置を変え、右巻き Co カイラルメタ分子を測定した結果を図4(c)と図4(d)に示す。図4(c)は測定時の SEM 写真、図4(d)で赤色が電流電圧特性、青色が抵抗値である。○印は A から D へ、×印は D から A へ電流を流した時の結果である。50 $\mu$ A 程度の電流を流した場合は、電流の向きに依存せずの抵抗値は257 $\Omega$ 程度であった。そして20 $\mu$ A 以下の低電流側では、やはり電流の向きに依存して抵抗値が変化した。ただしこの場合は、A から D に流した場合に比較して、D から A に電流を流した抵抗値は高かった。つまり低電流側での低抵抗と高抵抗が、カイラリティに応じて切り替わっていることがわかる。

20 $\mu$ A 以下の低電流側での電気抵抗が、電流の方向に応じて変化する現象は、カイラル構造ではない単なる Co 短冊においても確認された。この起源は磁気抵抗効果などが起源と考えられるが、詳細は不明である。ただしここで重要なことは、カイラルメタ分子を作製した場合、カイラリティに依存して抵抗の大小が反転したことである。これは磁気カイラル異方性の発現を示唆する。

更なる対照実験として、非磁性体の銀 (Ag) で同様の実験を行った。まず Ag 短冊での電気抵抗は、電流の方向に依存せず一定であった。よって電流方向に応じて電気抵抗が変化することには、磁性が効いていると分かった。次に、図5に結果を示すように、Ag カイラル構造で実験を行った。図5(a)は Ag の左巻きカイラル構造の測定時の TEM 像、図5(b)は電気抵抗の測定結果である。図5(c)と5

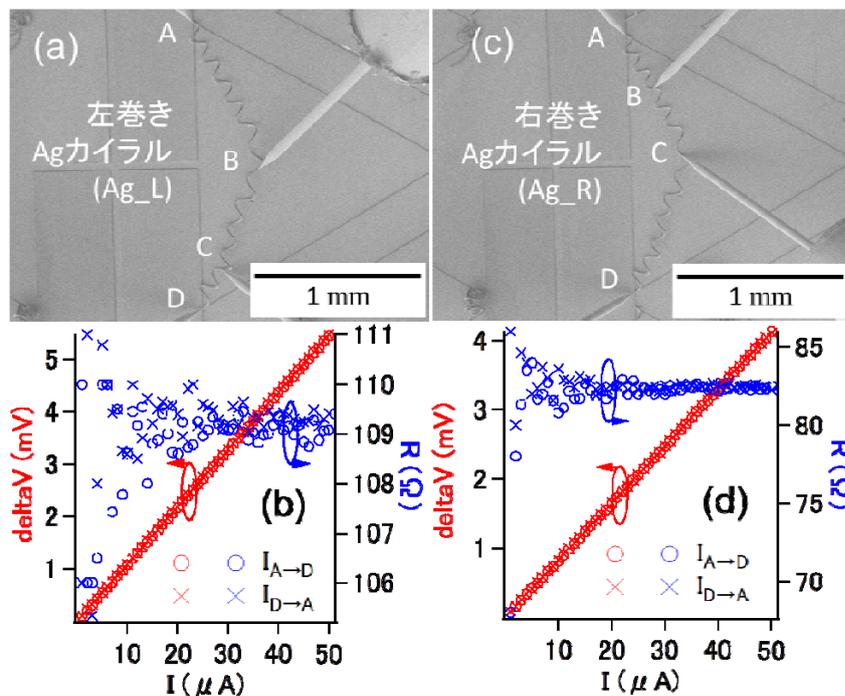


図5 Ag カイラル構造の4端子法での測定結果。左巻きカイラルの(a)測定時SEM像と(b)電気伝導特性。右巻きカイラルの(c)測定時SEM像と(d)電気伝導特性。

(d)はAgの右巻きカイラル構造での結果である。Agカイラル構造では、 $20\mu\text{A}$ 以下の低電流側では、抵抗値がふらついているものの、値はランダムであり、電流の向きに依存して抵抗値の大小関係はみられなかった。そしてその様子はカイラリティを左巻きから右巻きに切り替えても同様であった。これらの結果から図4で観測された低電流側での抵抗値の変化は、磁性とカイラリティに依存していることがわかり、磁気カイラル異方的電気伝導に起因することが強く示唆された。

### まとめ

半導体を用いずに金属のマイクロ構造を用いた電流一方向素子を実現する磁気カイラル異方的電気伝導の観測を試みた。光リソグラフィと応力誘起自己巻き上げ法を用いて、強磁性金属Coのカイラル構造(メタ分子)を作製し、室温かつ無磁場下での単一のCoカイラルメタ分子に対してSEM中のナノプローブを用いて、4端子法で電気伝導を測定した。今回新たに準備したV字型のフォトマスクを用いることで、一つのカイラル構造に右巻きと左巻きが隣接し、測定が容易に再現性良く行うことができた。Coカイラルメタ分子では低電流側で、電流の方向に依存して電気抵抗が変化した。そしてメタ分子のカイラリティを逆転させることで、電気抵抗の変化の大小関係も逆転した。この現象は非磁性金属のAgカイラル構造では確認できなかった。よって今回の実験結果は、磁性とカイラリティが共存することによる磁気カイラル異方的電気伝導に起因することが強く示唆された。

以上の結果は、2016年9月8日に金沢大学で開催された第40回日本磁気学会学術講演会において、「強磁性金属のカイラル構造での非相反電気伝導の測定」(08aC-6)(村上郁、児玉俊之、富田知志、細糸信好、柳久雄)として口頭発表した。