



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Studies on Electrical Conduction Characteristics of Metal/Molecule/Metal Nanoscale Junction Device [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	三澤, 貴浩
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第12784号
Issue Date	2017-03-23
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/65430
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Takahiro_Misawa_review.pdf, 審査の要旨



学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（理学） 氏名 三澤 貴浩

審査担当者	主査	教授	日夏 幸雄
	副査	教授	村越 敬
	副査	教授	島田 敏宏
	副査	教授	西井 準治
	副査	准教授	海住 英生

学 位 論 文 題 名

Studies on Electrical Conduction Characteristics of Metal/Molecule/Metal Nanoscale Junction Device

(金属/分子/金属ナノスケール接合素子の電気伝導特性に関する研究)

近年、高度情報化社会に伴い、ハードディスクの更なる高記録密度化が要求されている。ハードディスクの記録情報を読み取る磁気ヘッドは、外部磁場によって電気抵抗が変わる磁気抵抗 (MR) 効果を利用しており、磁性体/非磁性体/磁性体の 3 層構造から成る。MR 素子の感度は、「MR 比 (外部磁場に対して抵抗が変化する割合)」と「面積抵抗 (RA: 素子の抵抗 R と面積 A の積)」によって決まり、高い MR 比と低い RA を実現するための新たな素子構成の検討が進められている。最近注目されているのは、非磁性層に分子材料を使用した MR 素子で、電子スピンの散乱が起こりにくいため、高い MR 比の実現が期待できる。その一方で、分子材料を使用するため、RA の増大が懸念されるが、これに対し著者は、量子化コンダクタンスによる RA の低減を試みた。コンダクタンスが量子化され、抵抗が劇的に低減される現象は、これまでに金属、分子ならびに磁性体ナノスケール接合において報告されていることから、磁性体/分子/磁性体の 3 層構造から成る MR 素子においても量子化コンダクタンスの発現が期待できる。

本研究では、分子と磁性体からなる MR 素子において、それらの接合面積をナノレベルに微細化するための新たな手法として、磁性薄膜エッジを利用した磁性体/分子/磁性体ナノスケール接合素子の実現を目的とした。本素子では、交差した磁性薄膜エッジ間に分子が挟まれた構造を形成することで、膜厚によって接合面積を制御することができる。このような素子は、磁性薄膜を成膜したガラス基板と別のガラスを熱圧着し、平滑に研磨した断面を十字に交差させ、その間隙に分子を挟み込むことによって形成できる。そこで、本研究の目的を達成するために、(1) ガラス基板表面への磁場中での磁性体の成膜、(2) 熱圧着によるガラス/磁性体/ガラス構造の作製と平滑断面の創製、(3) 磁性体エッジ間に分子を挟んだ磁性体/分子/磁性体ナノスケール接合素子の実現と評価、に取り組んだ。

第一章では、本研究の背景、意義、目的を記した。MR 効果、分子スピントロニクスならびにナノスケール接合の各分野における研究動向を概説した後、MR 比向上に向けた磁性体/分子/磁性体ナノスケール接合素子の重要性について議論した。また、本研究で提案する薄膜エッジを利用した素子の構成および作製手法について説明した。

第二章では、磁性体として Co を用い、磁場中での成膜による保磁力の異方性の評価、熱圧着法によるガラス/Co/ガラス構造の形成と平滑断面の形成、および磁気・電気特性について述べた。種々のガラスの中で、熱圧着に最も適していたのは B_2O_3 系低融点 (LSP) ガラスであった。鏡面研磨した圧着後の断面から Co 薄膜エッジに沿った漏洩磁場が観測され、保磁力は、圧着圧力の強さに応じて増大することがわかった。一方、マイクロマグネティクスシミュレーションの結果、2 つの Co 薄膜エッジの接合距離が 5 nm 以下、Co 膜厚が 10 nm 以上では、薄膜エッジ間に 6 kOe を超える高い漏洩磁場が発生することがわかった。しかしながら、Co 薄膜エッジの電流-電圧特性を測定した結果、オーミック特性が得られなかったことから、Co 薄膜エッジ表面が酸化されていることが示唆された。また、種々の研磨方法を試みたが、LSP ガラスよりも Co の方が研磨されやすく、ナノレベルで平坦な断面を得ることが困難であった。

第三章では、Co に代えて、大気中で酸化されにくい $Ni_{78}Fe_{22}$ を用い、熱圧着によるガラス/ $Ni_{78}Fe_{22}$ /ガラス構造の形成と平滑断面の形成、およびその評価に取り組んだ。その結果、熱圧着後の $Ni_{78}Fe_{22}$ 薄膜の保磁力は、Co の場合と同様、圧着圧力に応じて増大した。その傾向は薄膜の膜厚が薄いほど顕著であり、最大で 100 倍以上の保磁力の増大が確認された。透過型電子顕微鏡観察と X 線回折より、熱圧着後の顕著な保磁力増大は、 $Ni_{78}Fe_{22}$ 薄膜内の結晶粒成長と相関しており、このことは、ランダム異方性モデルに基づく理論計算の結果とも一致した。 $Ni_{78}Fe_{22}$ 薄膜エッジの電流－電圧特性はオーミックであり、研磨による酸化皮膜の形成や膜の選択的な研磨などの問題も発生しなかった。第四章では、前章までの知見を基に、磁性体エッジ間に分子を挟んだ磁性体/分子/磁性体ナノスケール接合の実現と評価に取り組んだ。ガラス/ $Ni_{78}Fe_{22}$ /ガラス構造体の断面にトリス (8-キノリノラト) アルミニウム (Alq_3) をスピンコートし、その上に別のガラス/ $Ni_{78}Fe_{22}$ /ガラス構造体を直交するように密着させることによってナノスケール接合素子を形成した。 $Ni_{78}Fe_{22}$ 層の厚みが 11 nm の素子について電流－電圧特性を調べたところ、電圧に対して電流が直線的に増加する結果となり、その抵抗は約 1 k Ω と見積もられた。また、オームの法則から推定される抵抗よりも 10 桁以上低く、測定結果の再現性も確認された。今後、抵抗値が著しく減少する要因を詳しく調べる必要があるが、その一因として、コンダクタンスの量子化によるバリスティック伝導が観測された可能性が考えられる。また、本研究で構築したナノ接合素子の強みを活かし、様々な接合面積の素子を作製して同様な測定を行った。その結果、接合面積と抵抗との間に、古典状態と量子状態、およびその中間状態が存在することが明らかになった。分子系において、このようなナノ領域の接合面積に対する抵抗を系統的に調べた事例はなく、本研究で構築した薄膜エッジを用いたナノ接合素子で初めて見出された現象である。第五章では、本論文の内容を総括した。本論文では磁性体薄膜のエッジを利用したナノ接合素子の作製プロセスと評価方法を確立し、これにより任意のナノ接合面積における伝導特性の測定が可能となった。これまでの分子エレクトロニクスの分野では、ブレイクジャンクション法や電着法などを駆使した分子の伝導特性の評価が主流であるが、本研究で得られたナノ接合素子に関する成果は、そのような分野にも波及するものであり、バリスティック領域における様々なエレクトロニクス素子の研究を加速することが期待される。以上の成果を要するに、本論文はナノ分子スピントロニクスを含むナノエレクトロニクス研究分野において新知見を示すものであり、ナノ材料科学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。