

ナノスケール強磁性体における スピン依存量子伝導機構の研究

平成18年度

関口 康爾

論文要旨

ナノスケール磁性体における電子スピンの伝導特性は、スピントロニクスの中核的な研究対象である。スピン電流やスピンホール効果など電子スピンの依存した輸送現象は、微小領域磁性と電子スピンの相関について新しい知見を与える。空間的に磁化方向が回転している磁壁内部や不均一な磁化分布を持つ微小領域における電子スピン輸送機構を解明することが急務である。本論文は量子伝導および巨大磁気抵抗効果に関する研究結果をまとめたものであり、二部から構成されている。

第 I 部:弾道領域の量子電気伝導

第 1 章は序論であり、弾道領域の特徴と極微細線における量子電気伝導について概説し、本研究の目的を示した。第 2 章では開発した極微細線作製装置と実験方法について詳説した。原子スケールの極微細線を数秒から数十秒間保持することに成功したが、その一定の量子化状態における電流 - 電圧特性、磁気抵抗効果の研究方法について述べる。第 3 章では強磁性金属極微細線における量子化伝導の観測および量子化伝導状態における電流 - 電圧特性の研究結果を述べる。電子スピンの依存した e^2/h 量子化と外部磁場の関係について述べる。強磁性金属極微細線では、低バイアス電圧領域 ($|V| < 100$ mV) に非線形伝導特性が存在しており、スピン偏極電流との関係について詳述する。第 4 章では強磁性金属極微細線における巨大な磁気抵抗効果 (MR) について述べる。極微細線形状の変化では説明できない巨大 MR と量子電気伝導の関係が存在し、量子電気伝導に起因する巨大磁気抵抗効果の可能性を指摘する。第 5 章では極微細線における電子輸送現象をシミュレーションし、ミクロスコピックな視点から電子輸送現象について調べた。強磁性金属極微細線ではスピン偏極した電子が伝導することを示し、スピン依存した量子化現象および非線形伝導特性が生じることを論述する。第 6 章は結論である。

第 II 部:拡散領域の量子電気伝導

第 1 章は序論であり、拡散領域の特徴と極低温における量子電気伝導について概説し、本研究の目的を示した。第 2 章では複合構造ナノリング (FeNi/Cu/FeNi) の作製方法、および極低温での電気抵抗測定法について述べる。第 3 章では複合構造ナノリングが磁化反転過程を制御した量子干渉計として有用であることを示す。又、この方法により磁壁移動について定量的に検出できることを示す。第 4 章では極低温における磁気抵抗効果の研究結果を示し、極低温における磁化反転過程も異方性磁気抵抗効果と巨大磁気抵抗効果によつ

て推定できることを述べる。第5章では複合構造ナノリングにおける量子干渉効果について詳述し、弱磁場領域において量子効果 ($h/2e$ 振動および h/e 振動) が存在することを示す。強磁性層の影響により量子効果が抑制 (デコヒーレンス) されていることを論述する。第6章では強磁場領域における Aharonov-Bohm 振動について議論し、磁化分布の変化によって振動周期が変調を受けていることを示す。第7章は結論である。

目次

論文要旨	1
第 I 部 強磁性金属極微細線における量子化伝導	8
第 1 章 弾道領域	9
1.1 強磁性金属極微細線の異常なふるまい	9
1.2 メソスコピック系における電気伝導	10
1.2.1 特性長と伝導特性	11
1.2.2 バリステック伝導と特性長	12
1.3 金属極微細線 (金属ナノワイヤー)	14
1.3.1 極微細線の存在	14
1.3.2 極微細線の電気伝導特性	16
1.4 極微細線における電子輸送	17
1.4.1 Landauer model (Landauer-Büttiker model)	17
1.4.2 コンダクタンス量子化	21
1.4.3 Maxwell model	24
1.4.4 Sharvin model	25
1.4.5 $G_{Landauer} - G_{Sharvin} - G_{Maxwell}$ の関係	26
1.5 強磁性金属極微細線における量子輸送現象	27
1.5.1 スピン依存量子化	27
1.5.2 バリステック磁気抵抗効果	28
1.6 本研究の目的	30
第 2 章 実験	32
2.1 実験装置	32
2.1.1 極微細線作製部	32
2.1.2 磁場印加部	35

2.1.3	電気伝導測定部	36
2.2	試料作製と装置への取り付け	39
2.3	Cryostat 装着および冷却	40
第3章	コンダクタンス量子化とスピン依存伝導	42
3.1	e^2/h 量子化現象	42
3.1.1	コンダクタンスプラトー	42
3.1.2	温度依存性	49
3.1.3	切断時間依存性	49
3.1.4	e^2/h 量子化に関する考察	54
3.2	非線形伝導現象	58
3.2.1	電流 - 電圧特性 (I - V 特性)	58
3.2.2	微分コンダクタンス異常	62
3.2.3	非磁性極微細線の線形 I - V 特性	66
3.2.4	非線形伝導に関する考察	68
第4章	量子化伝導領域における磁気抵抗効果	72
4.1	巨大磁気抵抗効果	72
4.1.1	異常に巨大な磁気抵抗効果	72
4.1.2	典型的な巨大磁気抵抗効果	75
4.1.3	不連続な変化を含む磁気抵抗効果	75
4.2	磁場印加によるコンダクタンス量子化	76
4.2.1	コンダクタンス量子化	76
4.2.2	巨大磁気抵抗効果に関する考察	80
第5章	電子輸送シミュレーション	84
5.1	単純な極微細線	84
5.1.1	原子鎖構造と電極の決定	84
5.1.2	電子輸送特性	88
5.1.3	非線形伝導特性の存在	92
5.1.4	非線形伝導の細線幅依存性	95
5.2	表面状態を考慮した極微細線	100
5.2.1	<001> 面上の極微細線	100

第 6 章	本研究の結論	103
6.1	3d 電子伝導チャンネルの寄与	103
6.2	巨大磁気抵抗効果	104
6.3	結論	105
	参考文献	105
第 II 部	複合構造ナノリングにおける量子干渉効果	110
第 1 章	拡散領域	111
1.1	拡散領域における量子干渉効果	111
1.1.1	Aharonov-Bohm 振動	111
1.1.2	普遍的コンダクタンスゆらぎ	112
1.1.3	位相干渉をこわすもの	113
1.2	電気伝導度の量子補正	116
1.2.1	波動性の取り込み	116
1.2.2	Cooperon と Diffuson	117
1.3	磁気抵抗振動	120
1.3.1	弱局在による振動	120
1.3.2	ゆらぎによる振動	121
1.4	量子効果の現象論的扱い	122
1.5	本研究の目的	124
第 2 章	実験	126
2.1	電子線描画法による試料作製	126
2.1.1	電子線リソグラフィー	126
2.1.2	リフトオフ法	128
2.2	希釈冷凍機による極低温測定	130
2.2.1	試料室と微細加工試料の取り付け	131
2.2.2	電気抵抗測定と磁場・温度の制御	132
第 3 章	量子干渉計の設計	134
3.1	複合構造ナノリング	134
3.1.1	試料作製	134

3.1.2	測定方法	136
3.2	巨大磁気抵抗効果と磁化反転過程	136
3.2.1	磁気抵抗効果 ($\theta = 0^\circ$)	136
3.2.2	等価回路解析	137
3.2.3	Micromagnetics シミュレーション	139
3.3	巨大磁気抵抗効果の磁場印加角度依存性	140
3.3.1	反転磁場増大と磁壁移動	140
第4章	極低温磁気抵抗効果の概略	143
4.1	複合構造ナノリング I	143
4.1.1	試料作製 (20 nm/10 nm/5 nm)	143
4.1.2	測定方法	144
4.1.3	極低温における磁気抵抗効果	145
4.1.4	巨大磁気抵抗効果と異方性磁気抵抗効果	150
4.2	複合構造ナノリング II	152
4.2.1	試料作製 (20 nm/20 nm/5 nm)	152
4.2.2	測定方法	152
4.2.3	極低温における磁気抵抗効果	152
4.2.4	巨大磁気抵抗効果と異方性磁気抵抗効果	156
第5章	弱磁場領域における量子干渉効果	159
5.1	弱磁場領域における AAS 振動と AB 振動	159
5.1.1	$h/2e$ 周期と h/e 周期の振動	159
5.1.2	振動の PowerSpectrum 解析	161
5.1.3	単層 Cu ナノリングとの比較	162
5.2	磁場 $\mu_0 H = 0$ T 近傍の抵抗極大	164
5.2.1	磁場 $\mu_0 H = 0$ T 近傍の抵抗極大	164
5.2.2	抵抗極大の温度依存性	167
5.3	複合構造ナノリングにおける量子 Coherence	169
5.3.1	振動振幅と位相相関長	169
5.3.2	磁場長と位相干渉効果 (Cooperon channel)	171
5.3.3	弱局在と磁化分布	173

第 6 章	強磁場領域における Aharonov-Bohm 振動	174
6.1	磁気抵抗振動の磁場領域依存性	174
6.1.1	磁場領域 $\mu_0 H > 1.0$ T	175
6.1.2	磁場領域 $0.5 < \mu_0 H < 1.0$ T	177
6.2	Aharonov-Bohm 振動の時間周波数解析	178
6.2.1	Aharonov-Bohm 振動の振動数変調と振幅変調	178
6.2.2	単層 Cu ナノリングとの比較	181
6.3	Cu 層による Coherence の増大	182
6.3.1	Aharonov-Bohm 振動	182
6.3.2	時間周波数解析	184
6.3.3	普遍的コンダクタンス揺らぎ	184
6.3.4	Coherence の温度依存性	187
6.3.5	反平行磁化配置における Aharonov-Bohm 振動	189
6.4	強磁性金属の電子 Coherence への影響	190
6.4.1	Decoherence 機構	190
6.4.2	Aharonov-Bohm 振幅 (Diffuson channel)	193
第 7 章	本研究の結論	194
7.1	強磁性金属の Decoherence 機構	194
7.2	結論	195
	参考文献	195
	謝辞	198
付録 A	密度汎関数法と非平衡グリーン関数法	200
A.1	密度汎関数法 (DFT)	201
A.2	非平衡グリーン関数法 (NEGF)	204

第I部

強磁性金属極微細線における 量子化伝導

第1章 弾道領域

1.1 強磁性金属極微細線の異常なふるまい

金属はどこまで小さくしても金属なのであろうか。この問いに始まった極微細線の電気伝導特性研究は20年近くにわたって集中的に行われた。その結果、原子一個の細線になっても金属的な電気伝導特性が存在し、コンダクタンスが量子化されることがわかってきた。さらに強磁性金属でできた極微細線は非磁性金属とは異なる特性を示すことが指摘された。

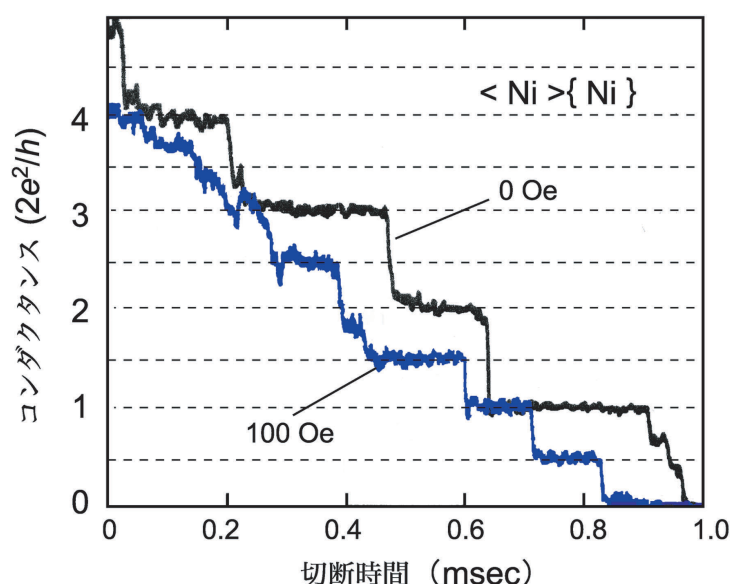


Fig 1.1: 強磁性金属極微細線における量子化異常。外部磁場印加によって量子化単位が変化する。

1999年、Ookaらは強磁性金属極微細線では外部磁場印加によって量子化単位が変化すると報告した[1, 2]。Fig.1.1に強磁性Ni極微細線を切断する過程のコンダクタンス変化を示す。無磁場では普遍単位 $2e^2/h$ の整数倍に量子化されるコンダクタンスが、磁場印加によって半奇数倍の e^2/h に量子化される。非磁性金属極微細線ではこのような変化は観測されない。一方、GarcíaらはNi線を用いた実験系において巨大な磁気抵抗効果を報告した

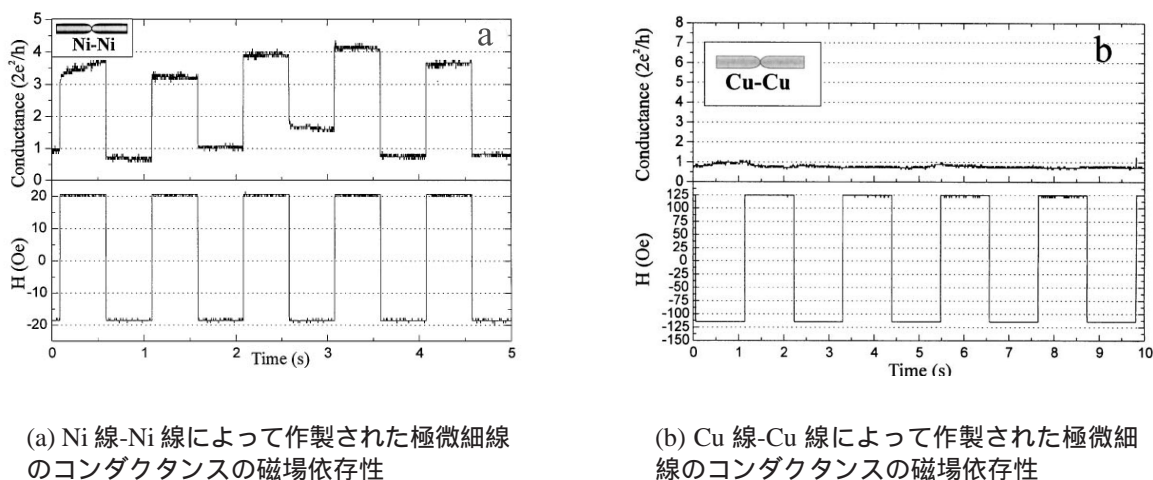


Fig 1.2: 強磁性金属極微細線における巨大なコンダクタンス変化

[3]。Fig.1.2(a) 挿入図に示すように二本の Ni 線の接点に極微細線を作製する。Fig.1.2(a) 下図に示す外部磁場を印加すると、Fig.1.2(a) 上図のようにコンダクタンスが外部変化と共に大きく変化する。磁気抵抗比は薄膜実験系に比べて大きく、室温ですら 200%を超える。非磁性金属極微細線においてこのような磁気抵抗変化は観測されない (Fig.1.2(b))。

これら興味深い二つの報告は、磁性物理学の中で極めて重要なスピン依存量子伝導機構の可能性を示す。強磁性金属における量子伝導機構は不明であり、上記の現象が量子伝導機構研究の糸口になる可能性がある。ここで問題となるのは、なぜこのような伝導特性が生じるかである。極微細線の近傍の磁気構造が不明であるため、詳細は解明されていない。この章では極微細線研究の歴史的発展と電気伝導特性の捉え方について述べ、強磁性金属極微細線における量子伝導機構研究の目的を述べる。

1.2 メゾスコピック系における電気伝導

電子線リソグラフィ、分子線エピタキシー（結晶成長）に代表される微細加工技術の進展によって、電子や励起子の波長（数十 nm）程度から原子サイズ（Å）の小さい構造を作製する事が可能になった。また、これらの構造を走査型トンネル顕微鏡（STM）、透過型電子線顕微鏡（TEM）によって原子レベルの解像度で観察できるようになるなど、実験対象が古典的世界から大きく変化した。

このような背景で、サブミクロン程度の試料における物理現象の研究が集中的に行われている。この試料スケールは、電子を波束として扱うマクロ領域と純粋な量子力学的波と

して扱うミクロ領域の中間 (meso) にあたっており、メゾスコピック系と呼ばれる。しかし物理系のスケールは物理現象を特徴づける長さ (特性長) に対して決まるため、メゾスコピック系の厳密なスケール定義はない。一般的には、電子の波動関数が系全体に Coherent に広がっている系をメゾスコピック系といい、量子力学的波としての性質を保つ距離、およそ数十 nm ~ 数百 nm 程度とされている。

メゾスコピック系では電子が Coherence を有するため、量子効果が顕在化する。たとえば、AB 効果 (Aharonov-Bohm 効果) や AAS 効果 (Altshuler-Aronov-Spivak 効果) に代表される伝導電子の量子干渉効果、クーロンブロッケードに代表される一電子効果などが知られている。メゾスコピック系における量子効果は電子系で顕著であり、電子の量子論的波動性・粒子性、多体効果を反映する現象が数多く存在し、また未知の現象も多い。

マクロスコピック導体の電気伝導はオームの法則によって記述される。任意形状の電気伝導体のコンダクタンスは断面積 S 、試料サイズ L を用いて次のように表され

$$G = \sigma \frac{S}{L}, \quad (1.1)$$

σ が物質固有の電気伝導度となる。しかしメゾスコピック導体はそのサイズのために特性長、Coherence 長との関係が重要になり、式 (1.1) では記述できない。

1.2.1 特性長と伝導特性

メゾスコピック系を特徴づけるのは位相相関長 (Coherence 長) l_φ である。 l_φ は電子の量子力学的波としての性質を保持する長さであり、これより小さい系 ($L < l_\varphi$) では量子効果が出現する。以下では、試料サイズが Coherence 長と同程度もしくはそれより短いとして系の電気伝導を考える。

弾性散乱長 l_e 電子が固体中を移動するとき、格子振動 (陽イオン) や不純物などに散乱されて状態が変化する。一つの固有状態から異なる固有状態に散乱されるまでに移動する平均的な距離が弾性散乱長 (平均自由行程) l_e である。したがって、系のスケール L と l_e の大小関係で伝導特性が変わる (Fig.1.3)。 $L \gg l_e$ のとき電子は頻繁に散乱を受けるため、拡散的 (diffusive) に伝導する。一方 $L < l_e$ のときは格子振動などの散乱を受けないため弾道的 (ballistic) に伝導する。バリスティック領域においては、電子散乱は試料境界による散乱に他ならない。そのためマクロスコピック系で見られた物質固有の伝導度 (conductivity) は存在せず、試料形状を含めた系全体の伝導度 (conductance) として扱わなくてはならない。本研究の舞台はこのバリスティック領域である。

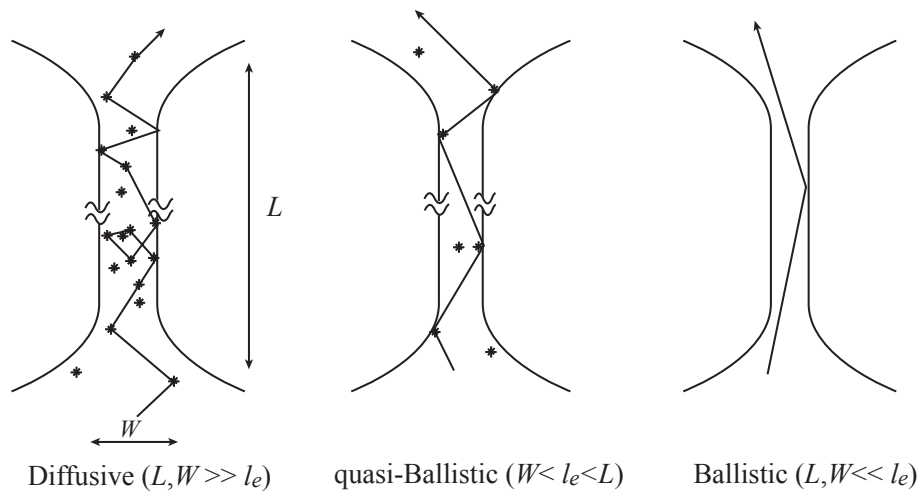


Fig 1.3: 系のスケールと弾性散乱長の関係

フェルミ波長 λ_F 伝導特性をさらに支配するのは電子系の次元であり、それを特徴づけるのがフェルミ波長 λ_F である。試料スケールが L_x, L_y, L_z と考えると、 λ_F との大小関係で次元が決まる。例えば $\lambda_F \ll L_x, L_y, L_z$ (3次元) $L_x < \lambda_F \ll L_y, L_z$ (2次元) $L_x, L_y < \lambda_F \ll L_z$ (1次元) $L_x, L_y, L_z < \lambda_F$ (0次元)。次元は電子系の状態密度を左右し、伝導電子の量子的閉じこめに効くため伝導特性を考える上で重要となる。

1.2.2 バリステック伝導と特性長

実験系 バリステック電子輸送がどの程度のスケールで観測されるかを確認するため、特性長を表 1.1 にまとめる。

表 1.1: 実験系と特性長 (文献 [10])

実験系	弾性散乱長 l_e	フェルミ波長 λ_F
半導体 2DEG (GaAs/AlGaAs)	1-10 μm	$\sim 8 \text{ nm}$
金属	1-10 nm	$\sim 0.1 \text{ nm}$

半導体 2DEG 系では、極低温にすると弾性散乱長が数 μm に達する。そのためスプリットゲートを取り付けるなど、現在の微細加工技術によってもバリステック系における実験を行うことができる。しかし金属ではその弾性散乱長が極低温でも数 nm と短いため、微

細加工を用いても得ることはできない。ここで二つの実験系の特徴をまとめると次のようになる。

1. 半導体 2DEG 系におけるバリスティック電子輸送は、試料サイズ数 μm 、極低温で得られる。
2. 金属におけるバリスティック領域は l_e が低温でも数 nm であることから、試料サイズが数 \AA 程度である必要がある。ただし試料サイズが数 \AA ならばどの温度領域でも得られる。

金属では試料サイズが数 \AA という条件があったために、バリスティック電子輸送の研究は半導体 2DEG 系が先行した [13]。

Break-Junction method サイズ条件が厳しい中、STM 探針を金属試料に突き刺し、引き上げる過程で金属の原子サイズ構造を作る試みがなされた [14]。金属を引きちぎるとき、どこかで原子一個の接合になるという発想である。

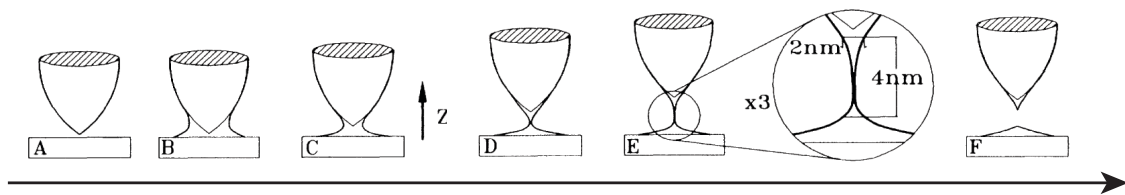


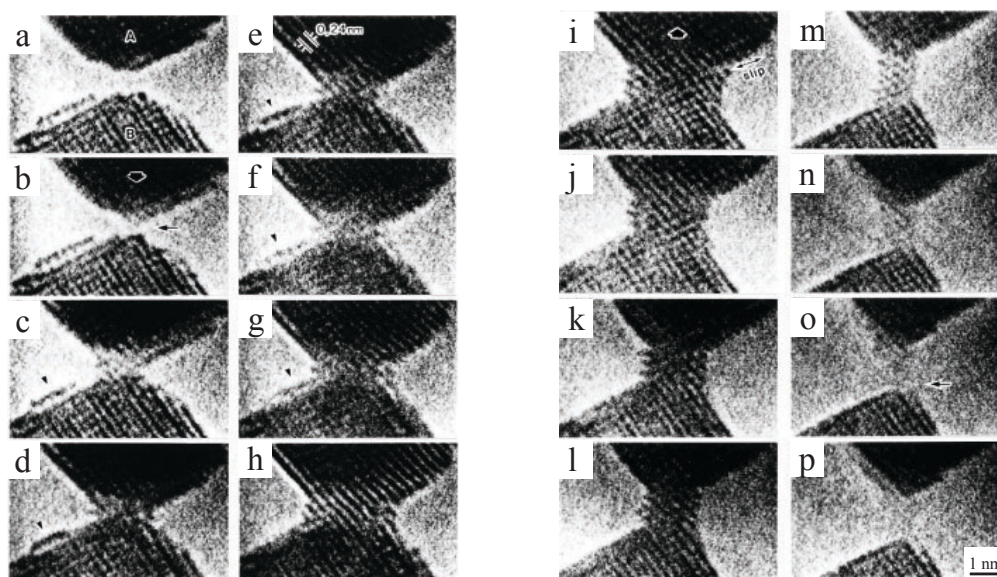
Fig 1.4: Break-junction method : Ref[14]

STM 探針を金属板の表面に接触させ、電流を流すことで融着する (Fig.1.4-A,B)。この後探針を引き上げると (Fig.1.4-C)、金属がまるで糸を引くかのように伸び (Fig.1.4-D)、 10\AA 程度の極めて細い細線が形成される (Fig.1.4-E)。この STM 探針の接触・分離に代表される方法で、原子接点・極微細線を作る方法をブレイクジャンクション法 (Break-Junction method) と呼ぶ。

1.3 金属極微細線（金属ナノワイヤー）

1.3.1 極微細線の存在

金属では原子長の構造においてバリスティック伝導が実現する。そのような原子長構造がブレイクジャンクション法で作製されるか疑問が残っていたが、近年になってその存在が確認された。Fig.1.5は走査型トンネル顕微鏡（STM）・透過型電子線顕微鏡（TEM）によって観察された、金（Au）極微細線である。



(a) Auバルク電極の接触過程:Ref[17]

(b) Auバルク電極の分離過程:Ref[17]

Fig 1.5: 金属極微細線（金属ナノワイヤー）が作製される様子

図中にあるように上部電極 A と下部電極 B を用意する (Fig.1.5(a)-a)。それを、ピエゾ素子によって接近させ原子長で接触させる (Fig.1.5(a)-b)。電極先端の原子が拡散し、下部電極との間に接点形成され (Fig.1.5(a)-c,d)。さらに上部電極を押し込んでいくと二つの接点間に原子列が滑り込んで "くびれ" 形状ができる (Fig.1.5(a)-e,f)。さらに押し込んでいくと接触領域の幅が太くなっていく (Fig.1.5(a)-g,h)。次に接触させた電極を引き離す過程に移る (Fig.1.5(b)-i,j,k,l)。上部電極を引き離すと、それにしたがって "くびれ" が伸び柱状になっていく (Fig.1.5(b)-m)。さらに電極を引き離すと、境界の原子が電極側に移動し、柱状になったくびれが徐々に細くなる (Fig.1.5(b)-n)。やがて原子が不自然につながった細線形状を経て (Fig.1.5(b)-o)、破断する (Fig.1.5(b)-p)。

このように原子鎖が連なって滑り落ちてくる “すべり” 変形や、原子が境界表面へ拡散する様子まで観測され、バルク電極の接触・分離という過程において原子レベルのダイナミクスが生じ、極微細線構造が作製されることが確認された。

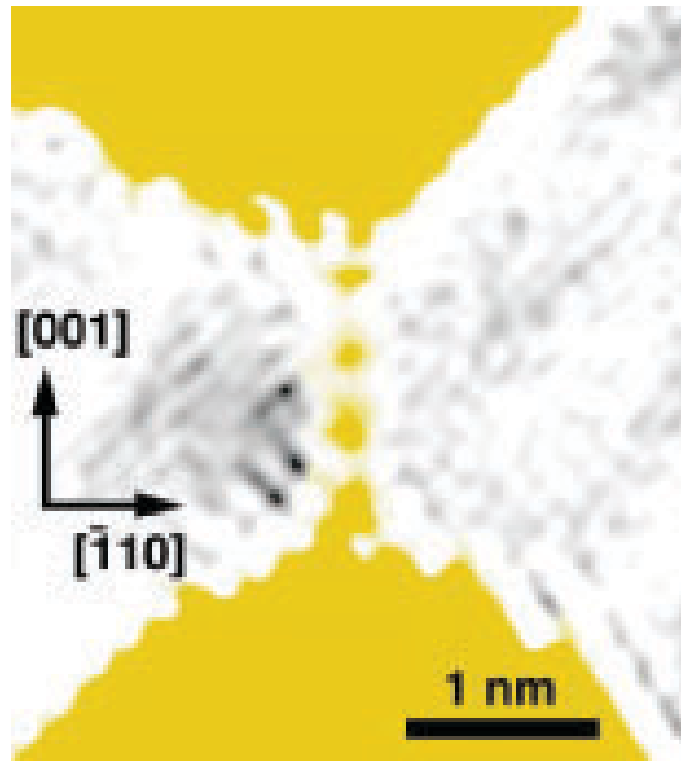


Fig 1.6: 単一原子鎖 : Ref[18]

極微細線構造の中で最も興味深いのは、Takayanagiらのグループによって確認された単一原子鎖である [18]。彼らは金線を超高真空中で切断し、切断した二片を接触させる方法をとった。彼らの得た TEM 像を Fig.1.6 に記す。上部電極と下部電極が、四個の原子からなる鎖でつながれている様子がわかる。このような単一原子鎖は、接点を引き離す最終段階で出現し、原子間距離がバルクのそれと比較して長いことが報告されている。彼らは同時に電気伝導も測定しており、そこでバルクの物性と異なった現象が生じることを報告した。

1.3.2 極微細線の電気伝導特性

極微細線形状の確認とともに、ここ十年ほど膨大な電気伝導の研究がなされてきた。その結果、金属極微細線（ナノワイヤー）における電気伝導は、普段我々が目にするバルクの電気伝導の性質とは全く異なることがわかってきた。Fig.1.7 に極微細線で観測された特徴的な電気伝導特性を示す。

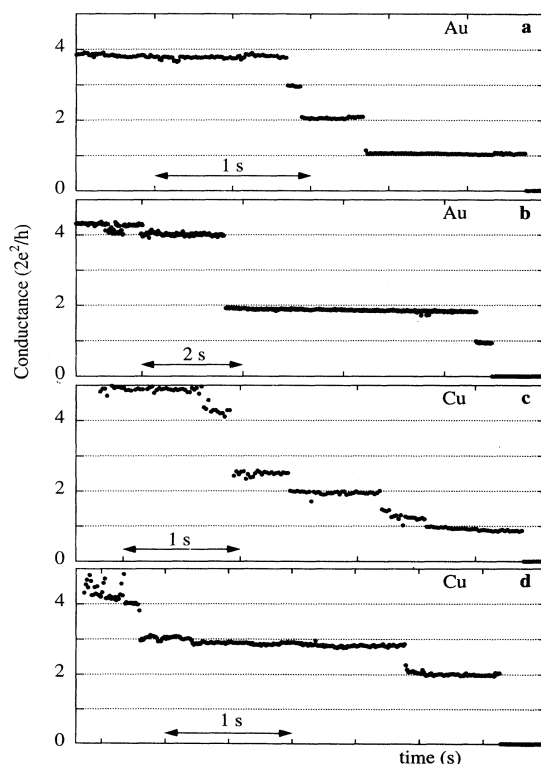


Fig 1.7: 金属極微細線の切断過程において発見されたコンダクタンスの振る舞い。縦軸のコンダクタンス値は普遍定数 $2e^2/h$ で規格化されており、横軸が切断時間に対応する。:Ref[19]

Fig.1.7 は、金属極微細線を切断するときに観測された（Fig.1.5(b) に対応）コンダクタンスの時間変化である。極微細線が細くなる過程でコンダクタンスが階段状に変化しており、しかも階段が普遍定数 $2e^2/h$ の整数倍に位置する。極微細線を切断する過程において毎回、Fig.1.7 のように明瞭な階段状の振る舞いが観測されるわけではない。しかし新しい電気伝導特性が出現することは、バリスティック領域での電気伝導特性がバルクのそれとは異なることを示す。

1.4 極微細線における電子輸送

1.4.1 Landauer model (Landauer-Büttiker model)

金属極微細線における電気伝導の議論には、量子論に立脚した Kubo の定式化と Landauer の定式化がある。測定する極微細線（メゾスコピック系）はリード線や電極を通してどこかで巨大な系とつながっており、理論的にこの「接続」を取り扱う必要がある。Kubo の定式化は全系を取り扱うため厳密で、接続を考える必要はない。しかし厳密な分、全系を取り込むという難題が残る。これに対し Landauer の定式化は適用範囲が狭いが、直感に訴え簡便である。ここでは Landauer の定式化を考える。有限の大きさを持つ系（メゾスコピック系）に電流が流れるときは、本質的に非平衡状態の取り扱いをしないといけない。しかし Landauer は試料の他に電極をモデルに持ち込むことで、これを回避する取り扱いを行った [15]。

モデル Fig.1.8 中央の sample が測定する試料で、完全導体である一次元のリード線で電子溜め（電極）につながっている。この電子溜めは十分に大きく、少々の電子の増減があってもそれぞれの化学ポテンシャル μ_1, μ_2 は変わらないものとする。

仮定

1. 一次元リード線は電子導波管となり、電極（状態分布が変わらない）から試料まで、線幅方向運動量で指定されるモードで電子を運ぶ。そのためリード線の状態分布も変化しない。（それぞれのリード線ではモード数 N_1, N_2 とする）。
2. 電極から試料へ入射する (incoming : Fig.1.8 の青と赤の太い矢印二本) 電子の状態分布は変化しない。試料から出て行く (outgoing : Fig.1.8 の t, r が添えられた細い矢印四本) 電子は電極に吸収されて、二度と試料に戻らない。

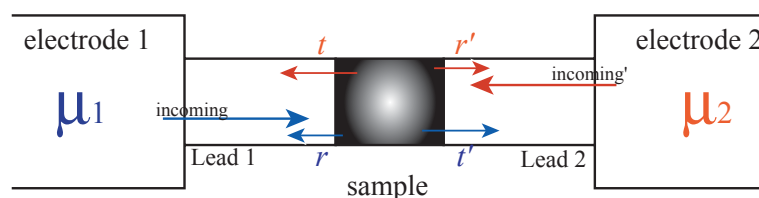


Fig 1.8: Landauer model (量子論)。図中矢印で左右の電子溜めから入射した、あるモードにある電子の散乱過程を示してある。 t, r はそれぞれ、Lead1 に透過してくる波の振幅、反射してくる波の振幅を表す。同様に Lead2 に対し t', r' とする。

熱平衡にある電極は、非平衡であるリード線との結合が十分に強くないといけない。しかし、結合するとリード線が熱平衡になるため、結合が強すぎてもいけない。

一次元散乱と Landauer 公式 一元系の試料に電子が入射して、試料によって散乱される過程を考える。この散乱過程では、試料に入ってくる (incoming) 電子と出て行く (outgoing) 電子は散乱行列 (S 行列) によって記述できる。

$$\hat{S} = \begin{bmatrix} \hat{s}_{11} & \hat{s}_{12} \\ \hat{s}_{21} & \hat{s}_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hat{r} & \hat{t}' \\ t & \hat{r}' \end{bmatrix} \quad (1.2)$$

$\hat{s}_{\alpha\beta}$ (1,2 を一般化して α, β と記す) は、両リード線におけるモード数が N_α, N_β ならば $N_\alpha \times N_\beta$ 行列となる。したがって $(\hat{s}_{\alpha\beta})_{mn}$ は、リード線 α からモード m で入射した電子がリード線 β でモード n で見いだされる、という関係を与える。

次に第二量子化法で散乱過程を記述するため、生成消滅演算子を導入する。リード線 α から試料へ、エネルギー ϵ ・モード m で入射する (incoming) 電子に対し $c_{m\alpha}^\dagger(\epsilon)$ 、 $c_{m\alpha}(\epsilon)$ 。試料からリード線 α へ出て行く (outgoing) 電子に対し $d_{n\alpha}^\dagger(\epsilon)$ 、 $d_{n\alpha}(\epsilon)$ とする。リード線 β に対しても下付文字を β に変えて定義する。これらは式 (1.2) の S 行列で関係づけられ、

$$d_{m\alpha} = \sum_n \sum_\beta (\hat{s}_{\alpha\beta})_{mn} c_{n\beta} \quad (1.3)$$

となる。さらに Landauer の仮定 1 よりリード線でのモード数は固定されるので、電極のフェルミ分布関数 $f(\epsilon)$ を用いて次の関係式が成り立つ。

$$\langle c_{m\alpha}^\dagger(\epsilon) c_{n\beta}(\epsilon) \rangle = \delta_{mn} \delta_{\alpha\beta} f_\alpha(\epsilon) \quad (1.4)$$

以上の導入を元にして、電流を評価する。両電極の化学ポテンシャルが同じであれば、左右の電極から入射する電子の数は各モードで等しく、移動が釣り合っている。従って電流は流れない。しかし実際に測定する状況では、Fig.1.8 のように化学ポテンシャルに差が生じており、各モードでの電子移動のバランスが崩れ電流が流れる。リード線 α で生じたモード m の不釣り合いは

$$I_{m\alpha} = \frac{2e}{h} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon \left[\langle c_{m\alpha}^\dagger(\epsilon) c_{m\alpha}(\epsilon) \rangle - \langle d_{m\alpha}^\dagger(\epsilon) d_{m\alpha}(\epsilon) \rangle \right] \quad (1.5)$$

と電流成分を生み出す。この電流成分を式 (1.3)、式 (1.4) を用いて書き直すと、

$$I_{m\alpha} = \frac{2e}{h} \int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon \left[\left(1 - \sum_{\beta=\alpha} \sum_n |\hat{r}_{mn}|^2 \right) f_\alpha - \sum_{\beta \neq \alpha} \sum_n |\hat{t}_{mn}|^2 f_\beta \right] \quad (1.6)$$

となる。反射振幅 r 、透過振幅 t の自乗が現れるが、通常と同じように反射率 R 、透過率 T と結びつける。この関係は、リード線 1 では各モードの和をとった $R_{11} = \text{Tr}(\hat{r}^\dagger \hat{r})$ 、 $T_{12} = \text{Tr}(\hat{t}^\dagger \hat{t})$ で与えられる。ここで電流が保存 (Kirchhoff's law) することを要請すると、当然 $T_{12} + R_{11} = N_1$ が成り立たなくてはならない。

電流はリード線 1 で評価すればよく、式 (1.6) で各モードからの寄与をすべて足しあわせると

$$\begin{aligned} I_1 &= \frac{2e}{h} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon [(N_1 - R_{11})f_1 - T_{12}f_2] \\ &= \frac{2e}{h} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon (f_1 - f_2)T_{12} \end{aligned} \quad (1.7)$$

となる。化学ポテンシャルの差が一次の寄与だけで、外部電源 V によって与えられると、 $f_1 - f_2 = (\partial f / \partial \varepsilon) \delta \varepsilon = -(\partial f / \partial \varepsilon) eV$ となり、コンダクタンス ($G = I/V$) は次のようになる。

$$G = \frac{2e^2}{h} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \left(-\frac{\partial f}{\partial \varepsilon} \right) T_{12} \quad (1.8)$$

十分低温の時、この表式がよく知られた Landauer 公式を与える。

$$G_{\text{Landauer}} = \frac{2e^2}{h} T_{12} \quad (1.9)$$

この T_{12} は電極 1 と電極 2 の間の透過率を示しており、コンダクタンスが普遍定数 $2e^2/h$ と透過率 T_{12} だけで決まるという簡単な結論になる。しかし入射する電子がどのモードなのか、どのモードからどのモードへと移り変わって伝導するか、という詳細を、この形式は陽に示していない。

チャンネル (transmission channel) Landauer 公式ではコンダクタンスが電極間の透過率 T_{12} のみによるという非常に簡単な結論を得た。しかし簡単であるがゆえに、この透過率に関してよく考察をしなければならない。 T_{12} の各要素は t_{mn} でありモード間の混じり合い ($m \rightarrow n$) を本来含んでいる。しかし、試料部分がないバリスタティック系ではモード間散乱が生じないので、各モードが独立に伝導に寄与し透過率 $|t_{ii}|^2 \equiv T_i$, ($i = 1, \dots, N_1$) の和によって決まる。このときには T_i は 0 又は 1 をとる。したがって Landauer 公式 (1.9) は次のようになる (Landauer-Büttiker 公式)。

$$G = \frac{2e^2}{h} \sum_i^{N_1} T_i \quad (1.10)$$

実は式 (1.10) はより拡張された形 [16] と同じである。なぜなら、モード間 ($m \rightarrow n$) の伝導が存在したとしても、ユニタリー変換により $\hat{r}^\dagger \hat{r}$ 、 $\hat{t}^\dagger \hat{t}$ の非対角項を消すことができるか

らである。このとき透過率が $0 \leq T_i \leq 1$ と一般化される。つまり電極1から試料に到達するモード数が N_1 、電極2からはモード数 N_2 であったとしても、存在する各モードで伝導を担わないでよく、たとえば $T_1 = 1$ (open)、 $T_j = 0$ for $j \neq 1$ (closed) のように少数のモードだけで伝導を担うことが許される。そこで伝導を担うモードのことを、特別にチャンネル (transmission channel) と呼ぶ。

1.4.2 コンダクタンス量子化

量子的閉じこめ バリスティック系では $L < l_e, l_\varphi$ の条件を満し、電気伝導特性に次元性が顕著に現れる。しかし金属極微細線は電子に対する厳密な一次元系ではないので、現実には即して三次元導体中を電子波が平面波的に z 方向へ伝導すると考える (擬一次元系: $L_x, L_y \sim \lambda_F \ll L_z$ と閉じこめられる)。 x, y 方向には導波管と同じように量子数 n (波数) をもつ波動となるので、三次元波動関数 ψ は次式 (1.11) のように表すことができる。

$$\psi(x, y, z) = \sum_n \chi_{z,n}(x, y) \varphi_n(z) \quad (1.11)$$

ここで $\varphi_n(z)$ は一次元的 (z 方向) な波動関数で、 $\chi_{z,n}(x, y)$ は位置 z において閉じこめられた x, y 面内の波動関数を表す。式 (1.11) を Schrödinger 方程式に代入し、変数分離を行い、

$$\begin{aligned} \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(x, y, z_0) \right] \chi_{z_0,n}(x, y) &= \varepsilon_n(z_0) \chi_{z_0,n}(x, y) \\ \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \varepsilon_n(z) \right] \varphi_n(z) + \sum_m \hat{P}_{nm} \varphi_n(z) &= E_F \varphi_n(z) \end{aligned} \quad (1.12)$$

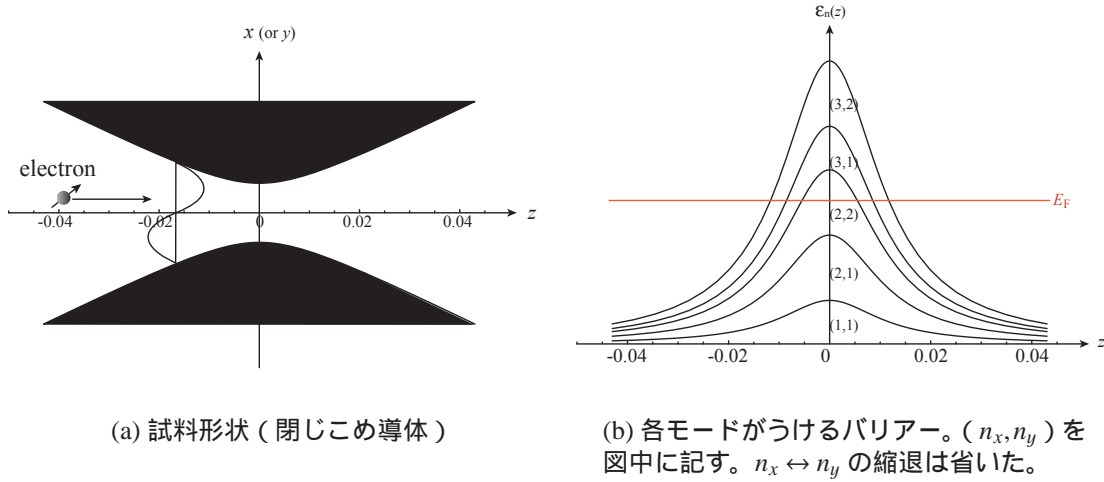
を得る (z_0 は変数でないことを示す)。ここで z 方向の伝導電子はフェルミ面付近 E_F の電子であることを用いた。また \hat{P}_{nm} は量子数 n, m を持つモードが完全に独立にならず、混じり合うことを示す演算子で、具体的な表記は次式で与えられる。

$$\hat{P}_{nm} = -\frac{\hbar^2}{2m} \left\{ \left\langle \chi_n \left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} \chi_m \right. \right\rangle + 2 \left\langle \chi_n \left| \frac{\partial}{\partial z} \chi_m \right. \right\rangle \frac{\partial}{\partial z} \right\}$$

式 (1.12) を解析的に解くことはできない。しかし x, y 面内で散乱が生じず、任意のモード m を表す波動関数 χ_m が z 方向に連続で緩やかに変化する (断熱近似: $\partial \chi_m / \partial z \ll 1$) と考えられるならば、式 (1.12) で $\hat{P}_{nm} \rightarrow 0$ 、 $V(x, y, z_0) \rightarrow 0$ とすることができる。したがって、ある位置 z における x, y 方向の系の大きさが $L_x(z), L_y(z)$ であるとき、離散数 n_x, n_y を用いて

$$\begin{aligned} \chi_{z,n}(x, y) &= \frac{2}{\sqrt{L_x(z)L_y(z)}} \sin\left(\frac{n_x \pi}{L_x(z)} x - \frac{n_x \pi}{2}\right) \sin\left(\frac{n_y \pi}{L_y(z)} y - \frac{n_y \pi}{2}\right) \\ \varepsilon_n(z) &= \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m} \left(\frac{n_x^2}{L_x(z)^2} + \frac{n_y^2}{L_y(z)^2} \right) \end{aligned} \quad (1.13)$$

となる。式 (1.13) は式 (1.12) に代入することでわかるが、明らかな解である。 z 方向に運動する伝導電子にとって、式 (1.13) 第二式は有効ポテンシャルバリアーとなる。平易に言い換えると、 z 方向に自由に運動していた電子が狭い場所に閉じこめられ、これを通り抜けるのにエネルギーが必要となる、ということである。



(a) 試料形状 (閉じこめ導体)

(b) 各モードが受けるバリアー。 (n_x, n_y) を図中に記す。 $n_x \leftrightarrow n_y$ の縮退は省いた。

Fig 1.9: 伝導電子が感じるポテンシャルバリアー。横軸単位は任意だが、(a) と (b) の対応関係を明確にするため数値を残した。

ポテンシャル透過 具体的に試料 (閉じこめ導体) の形状を導入する。式 (1.15) の楕円体座標を持つ三次元導体 (Fig.1.11) を考える。このとき $L_x(z) = L_y(z) =$ (断面直径) となるから、断面 (zx 面 : Fig.1.9(a)) より $L_x(z), L_y(z)$ を定めると、ポテンシャルバリアー $\epsilon_n(z)$ が Fig.1.9(b) のように計算できる。ポテンシャルはモード数 (n_x, n_y) が大きいほどバリアーが高い。フェルミ面においてモード $n = (n_x, n_y)$ である伝導電子が、自分の受けるポテンシャル ϵ_n を乗り越える透過率を T_n とする。この試料形状ではポテンシャルが緩やかに変化し状態遷移が起こらない。電子の運動は古典的と見なすことができるのでフェルミ面が Fig.1.9(b) の位置、 $\epsilon_{(2,1)}(0) < E_F < \epsilon_{(2,2)}(0)$ であれば、モード (1,1)、(2,1) の伝導電子のみこの試料形状を通過でき (透過率が 1 に近い。チャンネル形成) 残りはポテンシャルバリアーに散乱される (量子力学的には透過できるが、透過率が 0 に近い)。したがってこの系は擬一次元系と見なすことができ、Landauer-Büttiker 公式 (1.10) を適用してコンダクタンスが次式で与えられる。

$$G = \frac{2e^2}{h} \sum_{n=1}^N T_n \quad (1.14)$$

次に、閉じこめ形状が狭くなる過程を考える。このときポテンシャルバリアー ϵ_n が大きくなるが、相対的にはフェルミエネルギー E_F が低下することを意味する。したがって、Fig.1.9(b) から明らかなように、ポテンシャルを乗り越えて伝導に寄与する状態 (チャンネル) が一つずつ離散的に減少する。式 (1.14) より、コンダクタンスが普遍定数 $2e^2/h$ の整数倍で変化することが示される (コンダクタンス量子化)。

量子化条件 楕円体座標を導入しコンダクタンス量子化が起きることを示したが、どのような細線形状でも無条件に量子化が起こるわけではない。量子化はその形状に依存すると考えられている。式(1.12)の Schrödinger 方程式を楕円体座標に直し、固有値問題を計算した結果を次の Fig.1.10 に示す [21]。

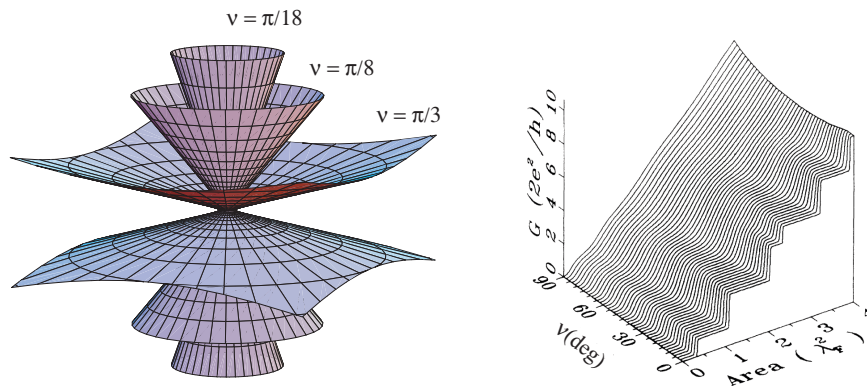


Fig 1.10: 極微細線形状と量子化。右側 Ref[21]、コンダクタンスカーブの計算

くびれが細線形状に近いほど ($v \rightarrow 0 \text{ deg}$) コンダクタンス量子化 (階段) が明瞭に現れ、点だけでつながるとき ($v \rightarrow 90 \text{ deg}$) にはコンダクタンスが連続的に変化する様子が示されている。 v に依存することは、三次元導体に Landauer-Büttiker 公式を適用する条件、「あるモードの波動関数が急激に変化しない」という (断熱近似) 条件を満たすか否かということに対応する。あるチャネルの断熱近似が成り立たないと、そのチャネルは散乱を受ける。したがって透過率が変化し、コンダクタンス変化が $2e^2/h$ の階段を示さなくなる。ブレイクジャンクション法による極微細線生成では形状制御ができないため、いろいろな細線形状が出現する。そのため、計算で示されたように形状依存が実際に観測され、伝導現象として離散的变化・連続的变化が現れる、と考えられている。

量子論を用いて、コンダクタンスの階段状変化がコンダクタンス量子化であると示され、また連続的なコンダクタンス変化をするときも、細線形状が量子化条件を満たさないためであると説明された。このように極微細線の電気伝導は本質的に量子伝導である。これを確かめるため、極微細線で観測されるコンダクタンス変化について古典論、半古典論から眺める。

1.4.3 Maxwell model

金属極微細線の電気伝導を古典的に扱う。古典的には試料に依存する伝導度 (conductivity) があり、局所的な電場 $E(\mathbf{r})$ に比例して電流 $J(\mathbf{r}) = \sigma E(\mathbf{r})$ が流れる。したがって局所的な電場 E を求めれば、電流 J そしてコンダクタンス G がわかる。そこで、Fig.1.5 の極微細線を ”くびれ” 構造としてとらえ、モデルとして Fig.1.11 のような回転楕円面形状を導入する。

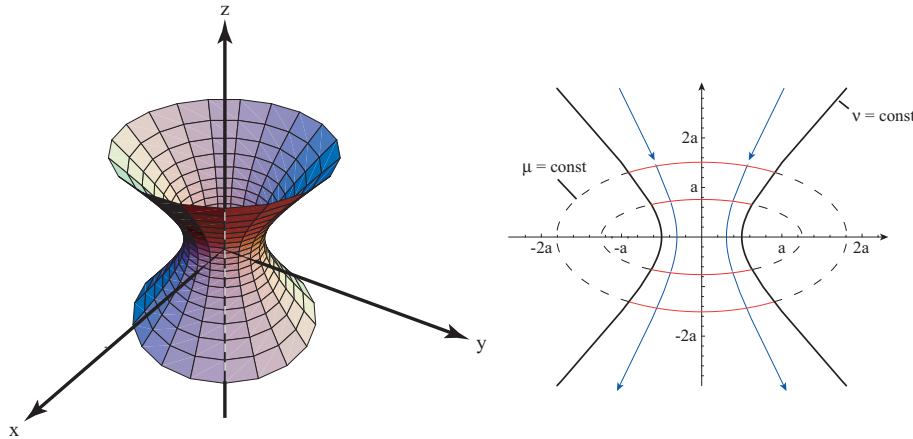


Fig 1.11: Maxwell モデル (古典論)

Fig.1.11 の回転楕円体面は、次式に示す楕円体座標 (μ, ν, φ) で指定される。

$$\begin{aligned} x &= a \cosh \mu \cos \nu \cos \varphi \\ y &= a \cosh \mu \cos \nu \sin \varphi \\ z &= a \sinh \mu \sin \nu \end{aligned} \quad (1.15)$$

但し、 $0 \leq \mu < \infty$ 、 $-\pi/2 \leq \nu \leq \pi/2$ 、 $-\pi \leq \varphi \leq \pi$ である。導体中の電場は $E(\mathbf{r}) = -\partial V(\mathbf{r})/\partial \mathbf{r}$ の関係式があるので、電位に対するポアソン方程式を導体形状の境界条件のもとで解けばわかる。いま試料上底が $V_0/2$ の電位、試料下底が $-V_0/2$ の電位であるとする。電位分布を定めるポアソン方程式は、導体が中性であることからラプラス方程式に還元され、電位 V に対し

$$\nabla^2 V(\mathbf{r}) = 0 \quad (1.16)$$

が成立する。ここで試料形状が双曲面であることを物理的に考察すると、双曲面群 ($\nu = \text{const}$) が電気力線となり、それに直交する楕円面群 ($\mu = \text{const}$) が等電位面となる。従って電位 V は μ のみの関数となり、式 (3.2) を式 (1.15) で変数変換して境界条件を満たす解を求めると

$$V(\mu) = -\frac{V_0}{2} + \frac{2V_0}{\pi} \arctan(e^\mu) \quad (1.17)$$

となる。試料を流れる電流は $I = \int dr j(r) = \int dr \sigma (-\partial V(r)/\partial r)$ であるから、試料形状全体で積分し、電位差 V_0 で両辺を割るとコンダクタンス

$$G = 2a\sigma(1 - \sin \nu_0) \quad (1.18)$$

を得る。ここで $\nu_0 = 0$ とすると単なる円柱になり、よく知られた Maxwell コンダクタンスとなる [11]。

$$G_{Maxwell} = 2a\sigma = \frac{2a}{\rho} \quad (1.19)$$

1.4.4 Sharvin model

次に半古典的に電流を求めるが、バリステック伝導であることを考慮する。Fig.1.12 に示す、微小孔を通した希薄気体の流れをモデルとして考える。

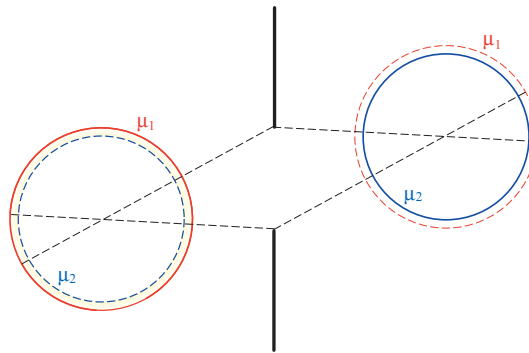


Fig 1.12: Sharvin モデル (半古典論)。厳密には化学ポテンシャル ($0 < E < \mu_1$) ではなく電気化学ポテンシャル ($eV < E < \mu_2 + eV$) であるが、伝導に寄与するのはフェルミ面付近だけなので実質的な影響はない。ここでは図示しやすい化学ポテンシャル $\mu_1 = \mu_2 + eV$ として表記する。

半古典的に電流密度は次のようにあらわされる。

$$j(r) = \frac{2e}{L} \sum_k v_k f_k(r) \quad (1.20)$$

ここで v_k は群速度で、 $f_k(r)$ は Boltzmann 方程式に従う半古典的分布関数である。フェルミ面の形状がわかっているときには $v_k = 1/\hbar (\partial E/\partial k)$ と、フェルミ面全体の和を実行すれば電流密度は求まり、あとはこの微小孔の面積をかければ電流がわかる。しかし、このフェルミ面積分 (和) が難いため、バリステック伝導の特性・自由電子近似 (フェルミ球) を

使う。散乱が無い場合 $f_k(\mathbf{r})$ はフェルミ分布になり、自由電子の分散関係もわかるからである。したがって左側の領域からは正の運動量を持った電子が入射し、右側の領域からは負の運動量を持った電子が入射する。そして、相殺されずに残ったフェルミ面上 (eV) の電子が正味の電流を担う (Fig.1.12)。フェルミ面上の群速度に平均 $\langle v_z \rangle = \frac{\hbar k_F}{2m}$ を使い、フェルミ面上の状態密度 $D(\varepsilon_F) = \frac{mk_F}{\pi^2 \hbar^2}$ を用いれば、積分計算の必要が無く

$$j = e \langle v_z \rangle D(\varepsilon_F) \left(\frac{eV}{2} \right) \quad (1.21)$$

となる。ここで微少孔を $V = 0$ 、左側が $-V/2$ 、右側が $V/2$ の電位とした。ここに微少孔の面積 πa^2 をかけ電流 I を求めると、コンダクタンス $G = I/V$ が求まる。

$$G_{Sharvin} = \frac{2e^2}{h} \left(\frac{k_F a}{2} \right)^2 \quad (1.22)$$

この式はフェルミ面上の状態数のみ (k_F) に依存することが重要である。もはや伝導度 (conductivity) は現れない。

1.4.5 $G_{Landauer} - G_{Sharvin} - G_{Maxwell}$ の関係

金属極微細線においてバリスティック伝導が実現するか否かを確認するため、量子化を示さないときに $G_{Maxwell}$ と $G_{Sharvin}$ のどちらに従うかを測定する試みがなされている。近年その実験で、 $G_{Sharvin}$ に形状補正を加えたカーブに従うことが報告され [20]、バリスティック伝導の可能性が示されている (Fig.1.13)。この $G_{Sharvin}$ に従うということは、量子化が起きないとき $G_{Landauer} \rightarrow G_{Sharvin}$ となることを示唆する。しかし半古典論ではコンダクタンスが普遍定数 $2e^2/h$ の整数倍に量子化されることは記述できないため、本質的に $G_{Landauer}$ で記述される量子伝導であることに変わりはない。これらの描像が連続的につながるかは不明である。しかし式 (1.22) は式 (1.14) とは違い、極微細線断面の見積もりを与えるため重要である。

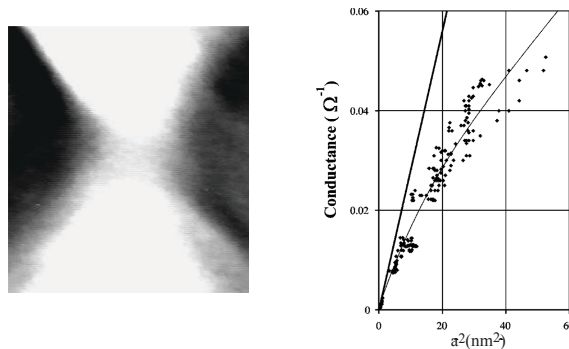


Fig 1.13: 左図：0.9 nm の金極微細線 TEM 像、右図：太線が $G_{Sharvin}$ 、細線が補正された $G_{Sharvin}$ 曲線による実験データフィッティング (Ref[20])

1.5 強磁性金属極微細線における量子輸送現象

金属極微細線におけるコンダクタンス量子化の測定は、極微細線（ナノワイヤー）の作製のしやすさから、もっぱら非磁性金属である金（Au）、銅（Cu）を用いて行われていた。ところが第1.1節で示したように、強磁性金属極微細線では一般的な Landauer-Büttiker 公式では説明できない現象が報告された。この節では、Ooka らが報告したスピンに依存した量子化および García らが報告した巨大磁気抵抗効果が、前節までに述べた実験と理論を基礎としてどのように解釈されるかを述べ、問題点を洗い出す。

1.5.1 スピン依存量子化

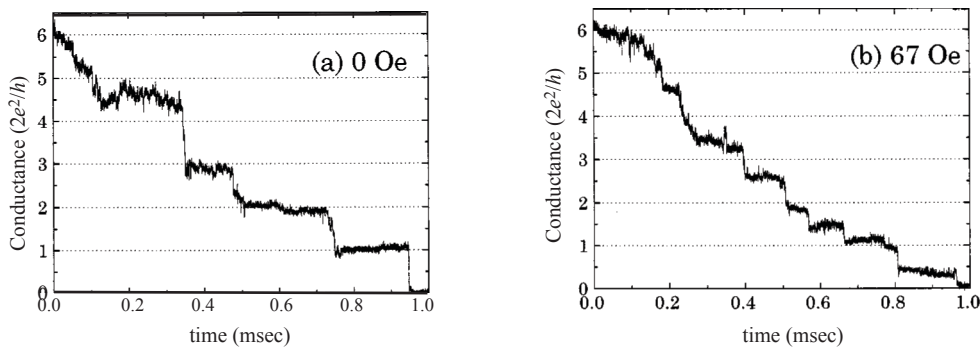


Fig 1.14: スピン依存量子化 : Ref[2]。 (a) $2e^2/h$ の整数倍にプラトーがあるが、 (b) 67 Oe 程の磁場中では e^2/h の整数倍に位置する。

強磁性 Ni 極微細線において、70 Oe 程度の外部磁場を印加すると量子化単位が $2e^2/h$ から e^2/h に変化する [1, 2]。これは次のように考えられている。Landauer-Büttiker 公式 (1.10) にあらわれる $2e^2/h$ の因子 2 はスピン縮退因子であり、外部磁場などが存在するときはスピン縮退が解けることを考慮しなくてはならない。したがって、チャネルがスピン因子を陽に含まなければならない、Landauer-Büttiker 公式は次のようになり、

$$G = \frac{e^2}{h} \left[\sum_{i=1}^{N_{\uparrow}} T_{i\uparrow} + \sum_{j=1}^{N_{\downarrow}} T_{j\downarrow} \right] \quad (1.23)$$

量子化コンダクタンス e^2/h が現れるというのである（スピン依存量子化）。この説明は簡潔で、かつスピン依存伝導が起きることを示唆しており重要である。しかし簡略化しすぎており、これだけで説明できるのか疑問が残る。問題となるのは、なぜ自発的にスピン縮退が解けている強磁性金属において、磁場を印加しなければ観測されないのかである。

これに関して極微細線近傍における磁区構造の寄与が考えられている。磁区構造の磁化方向が揃う時、揃わないときの違いによってスピン依存量子化が生じるという解釈である。しかし磁区スケールは極微細線のスケールとは全く異なる。また原子スケールの磁気構造でも電子輸送に大きな影響を与える可能性があるが、不明である。すなわち極微細線近傍、極微細線磁気構造と量子伝導特性の関係が明らかではない。

1.5.2 バリステック磁気抵抗効果

Ni 極微細線では磁気抵抗比が 300% にも到達する [3]。この磁気抵抗比は薄膜系で観測される GMR に比べて大きい。また量子化に関係なくコンタクトサイズが小さいほど巨大な効果が生じるという特徴を持つ。そこで GMR と区別して、極微細線における巨大な磁気抵抗効果のことを、バリステック磁気抵抗効果 (**Ballistic Magnetoresistance**) と呼ぶ。

この巨大磁気抵抗効果 (300% 程度) の理論的説明として、Tatara の Landauer-Büttiker 公式に基づいたモデルがある [22]。これは極微細線 (ナノワイヤー) の磁気構造を「磁壁」ととらえ、伝導電子がナノワイヤーを通過する際に散乱を受けるとしたモデルである。

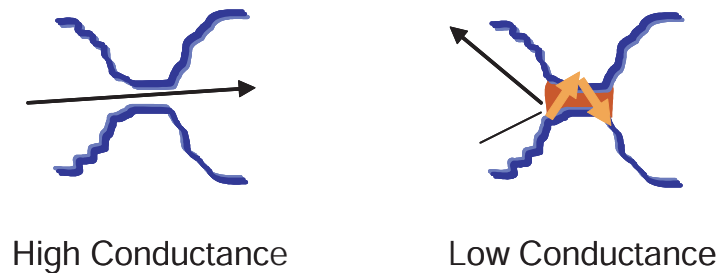


Fig 1.15: 磁壁散乱モデル。電子は極微細線に存在する急峻な磁化変化によって散乱される。

散乱問題を摂動で解いて透過率を計算し、Landauer-Büttiker 公式から散乱効果を導いている。まず交換相互作用項 H_{int} を導入する

$$H = \sum_{k\sigma} \varepsilon_k c_{k\sigma}^\dagger c_{k\sigma} - J \int dx S(x) (c^\dagger \sigma c) \quad (1.24)$$

ここで J は交換相互作用定数、 $S(x)$ は磁化、 σ は $\sigma = \pm$ で up-spin、down-spin を表す。次に厚さ λ 、個々の磁化方向が θ である磁気構造 $S(x)$ として、Bulk モデル $\cos \theta = \tanh(x/\lambda)$ 、又は線形的に変化するモデル：

$$\cos \theta = \begin{cases} 1 & (x > \lambda) \\ x/\lambda & (-\lambda < x < \lambda) \\ -1 & (x < -\lambda) \end{cases} \quad (1.25)$$

を用いる。式(1.24)と式(1.25)より透過率 $T_{\sigma'\sigma}$ を計算して、"磁気コンダクタンス ($\equiv \Delta G/G$)" を求めると

$$\frac{\Delta G}{G} = \frac{\pi^2}{4} \frac{\zeta^2}{1-\zeta^2} F(\zeta, \lambda) \quad (1.26)$$

となる。ただし簡略化して磁壁散乱因子 $F(\zeta, \lambda)$ (詳細な表式は Ref[22])、スピン分極率 $\zeta \equiv \frac{k_{F+} - k_{F-}}{k_{F+} + k_{F-}}$ を用いた。この理論は磁気構造を簡略化し伝導電子が元々スピン偏極するなど、多くの仮定を用いており、現象を正確に記述できるかは不明である。しかしながら、このモデルは式(1.26)が示すように

1. 磁気コンダクタンスにスピン分極 ζ が直接関与する
2. 磁壁による散乱因子 $F(\zeta, \lambda)$ が関与する

という可能性を示したことで、重要な意味を持つ。第1項目は極微細線における伝導電子がスピン偏極を起こすことを意味し、第2項目は磁壁を通過する際に、バルク系とは異なり電子スピンの断熱的に追従できない(散乱を受ける)ことを意味する。このモデルは高スピン偏極状態 ($\zeta \rightarrow 0.87$) で García らの実験データをよく説明できる (Fig.1.16)。

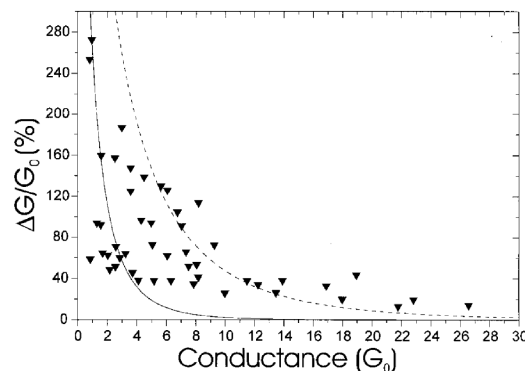


Fig 1.16: 理論式(1.26)による García らの実験データに対する Fitting

問題は、なぜ高スピン偏極状態が生じるかである。また磁化の空間変化がどれくらい急なら伝導電子の断熱条件が破綻するかである。このメカニズムは解明されていない。また初期の(300%)バリスティック磁気抵抗効果はこの理論で説明が果たしたかに見えたが、近年では300%を上回る磁気抵抗効果が報告された。上記の理論で説明するには $\zeta \rightarrow 1$ となる。つまり極微細線で完全スピン偏極が生じることになる。強磁性極微細線におけるバリスティック磁気抵抗効果のメカニズムは理論的にも実験的にも未解明である。

1.6 本研究の目的

スピン依存伝導機構 磁化方向が空間的に変化する領域を磁壁と呼ぶ (Fig.1.17)。磁壁の厚さは、交換相互作用 J と磁化を容易軸に向けようとする磁気異方性エネルギー K の競合によって $\lambda = \sqrt{J/K}$ のように定まり、微細加工したニッケルなどの細線における磁壁長はおよそ $50 \text{ \AA} \sim 1000 \text{ \AA}$ 程度である。磁壁内部を電子スピンは断熱的 (adiabatic) に通過すると考えられているが、伝導機構の詳細は実験的に解明されていない。

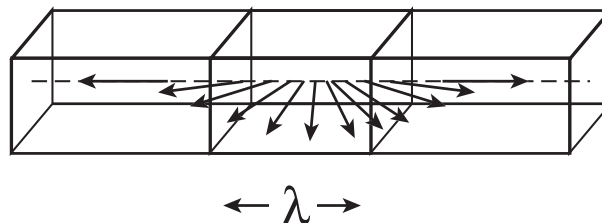


Fig 1.17: 磁壁構造 (不均一磁化分布)

一方、磁性細線の長さや線幅が原子スケールになると、磁化の空間変化は古典的磁壁とは異なり数 \AA で急激に変化することになる。このとき電子スピンの断熱的变化は保証されない。また有効質量の重い d 電子といえども伝導する可能性があり、高スピン偏極伝導が実現されうる。このように原子スケールの系ではスピン依存伝導機構が顕在化すると考えられ、量子効果の測定が有効な研究手段となる。なぜなら電子 Coherence が系全体に広がっており、量子電気伝導が断熱性と高スピン偏極伝導を支配するためである。

驚くことに強磁性極微細線における量子効果は室温ですら観測できる。これは量子伝導機構が平均化されないことを意味し、電子スピンの不均一磁化分布における伝導機構に関して新たな知見を得ることが期待される。

研究上の課題 強磁性極微細線においてスピン自由度を示す伝導現象が生じる可能性が示された。しかし、極微細線の磁気構造・近傍磁区の影響・スピン分極伝導等に関する詳細は解明されておらず、強磁性極微細線において伝導を担うのは d 電子、 s 電子なのかすらわからない。金属極微細線が原子スケールであるため、形状を完全に制御することができないのである。

量子電気伝導の存在を明らかにしてきた '極微細線切断時の' 量子化測定から踏み出す必要がある。

原子スケール制御と量子電気伝導 本研究の目的は、原子スケールの磁化分布における電子スピン輸送に関する知見を得ること、巨大磁気抵抗効果が発現するメカニズムを研究することにある。原子スケールを制御し量子化伝導状態を実現させ、その状態での伝導特性および磁気特性を調べた。

主な研究内容は以下の通りである。

1. 金属極微細線を保持できる装置を独自に設計し、製作する。
2. 強磁性極微細線の量子化伝導を調べる。
3. 量子化伝導領域における電流-電圧特性を測定する。
4. 量子化伝導領域における磁気抵抗効果を測定する。

1により極微細線を安定に生成し、極微形状の物性を測定できるようにする。2によりコンダクタンス量子化の詳細な結果を得、量子伝導に関する知見を得る。3・4の電気伝導特性・磁気伝導特性を測定することにより、強磁性極微細線における量子伝導と磁気特性の関連を調べ、スピン依存伝導に関する知見を得る。

第2章 実験

2.1 実験装置

本研究では強磁性極微細線における電気伝導特性（電流-電圧特性、磁気抵抗効果）を測定するため、極微細線作製装置を独自に作製した（Fig.2.1）。この装置は極微細線作製機構として粗動用にマイクロメータ、微動用にピエゾ素子を取り入れており、幅広い温度領域（4.2 K ~ 300 K）において使用可能である。実験装置は極微細線作製部、磁場印加部、電気伝導測定部の三つ、及び低温測定用 Cryostat から構成される。

2.1.1 極微細線作製部

極微細線作製装置 本実験の中核である極微細線作製部には、ブレイクジャンクション法 (Break-Junction Method) を導入した。金属電極の接合部に極微細線を作製するため、金属電極として高純度金属線（直径 0.1 mm）と電子線蒸着金属膜（膜厚 150 nm）を用いる。装置製作上の問題となったのは、次の二点である。

1. 試料取り付けに数 mm 程度の空間が必要
2. 極微細線作製に数 nm 程度の接近駆動が必要

この相反する条件を解決するため、マイクロメータとピエゾ素子を組み合わせた。金属試料を数 mm 離して取り付け、マイクロメータで接触する寸前まで近づける。そして極微細線を作製するときにピエゾ素子を駆動する、という方法を採用した [24]。低温測定では装置の熱収縮をカバーする必要があるため、マイクロメータは最大変位量 25 mm を持つものにした（表 2.1）。またピエゾ素子は低温下におくと急激に駆動性能が落ちるため、室温部に配置した。

表 2.1: 位置制御素子の機能

位置制御素子	公称変位量	使用温度	最大駆動電圧 (V.DC)
ピエゾ素子 (ASB340C801NP0)	$34.0 \pm 6 \mu\text{m}$	$-25 \sim +85 \text{ }^\circ\text{C}$	150
マイクロメータ (MHK-25VR)	25 mm	室温	-

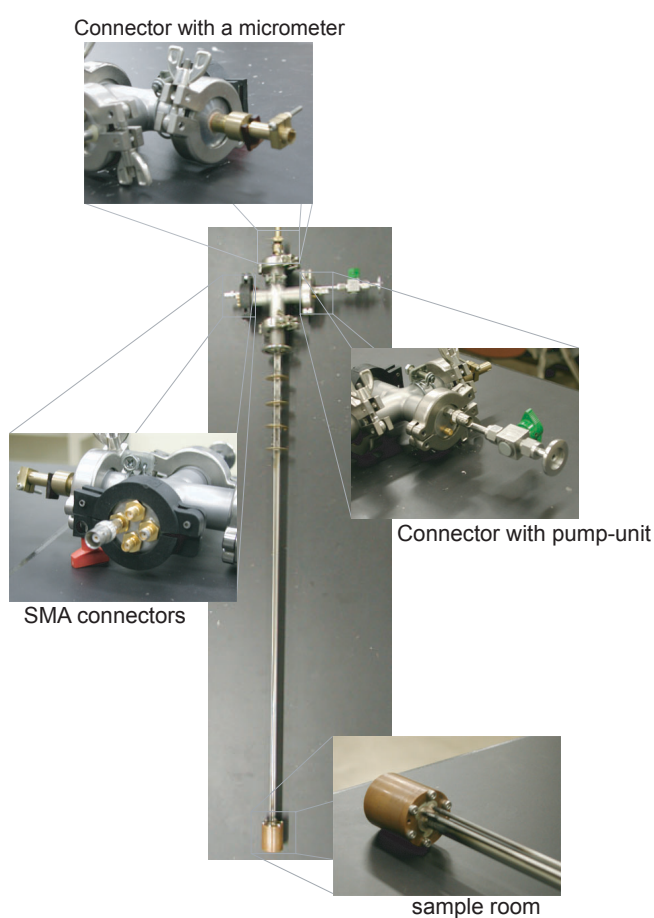


Fig 2.1: 極微細線作製装置の概略図。下部が試料を取り付ける試料室、上部管内に駆動機構としてピエゾ素子を埋め込んでいる。中央部のステンレス管内部にカーボンシャフトが配置されている。

Fig.2.1 の、真鍮製輻射シールド直上のクイックカップリングから下側が直接冷媒に浸かる。最下部にある試料室は熱伝導の良い銅で作製し、試料台座はこの銅に接触させている。信号線は中央にある三つのステンレス管のうち細い管に、より線を通した。外部端子は左側面に四つあり、四端子測定、ホール測定に対応できる。真空引きノズル、および Piezo 制御電圧端子は右側面に取り付けた。なお端子には真空対応の SMA 端子を用いている。

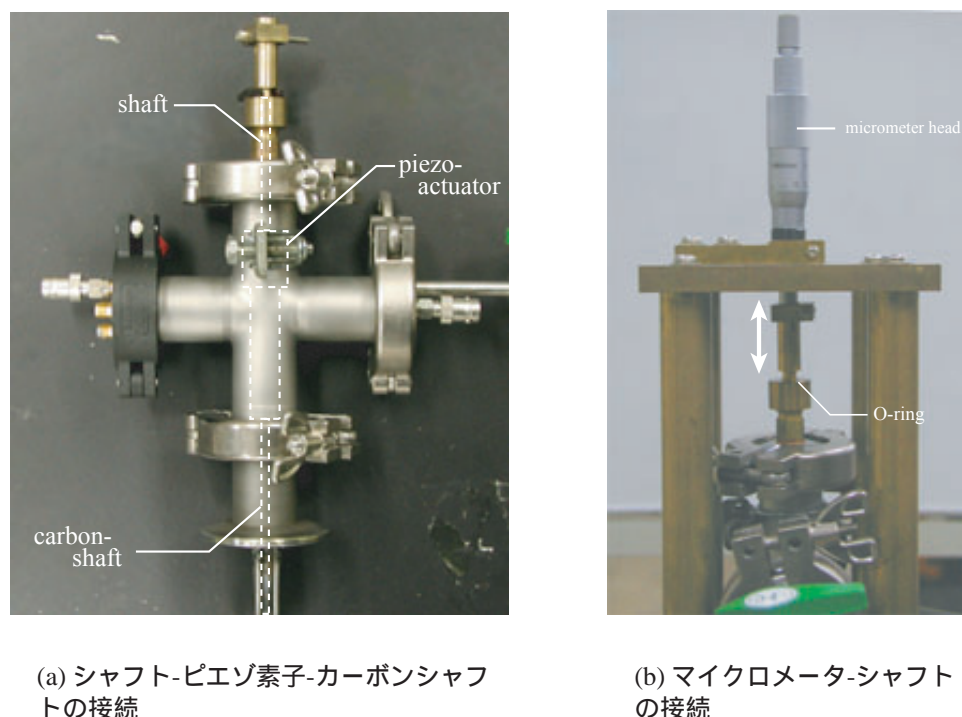


Fig 2.2: Break-junction に用いた位置制御素子

マイクロメータ・ピエゾ素子を低温下におくと駆動力が低下し、金属電極間のコンタクトが作れなくなる。そこで本装置では金属試料のみを低温部に配置し、位置制御素子を室温に配置した。ステンレス管内に配置した熱伝導の低いカーボン製シャフトを介して、駆動力を試料室に導入する (Fig.2.2(a))。最上部にピエゾ素子と直結した真鍮製シャフトを取り付けており、これがマイクロメータと接続できるようになっている (Fig.2.2(b))。シャフト部分には Oリングシールドを製作して、真空をとっている。カーボンシャフトには輻射シールドを付けてあり、これが低温測定時にはブレーキとして働く。したがって装置特性として、低温の方が極微制御能力が上がる。

2.1.2 磁場印加部

コイル 磁場印加には空芯コイルを用いた（写真は Fig.2.9(b)）。コイルに流れる電流値は、回路に直列につないだ 'ほうろう抵抗' の電圧降下を測定して計算する。実験で用いたコイルの電流-磁場特性はガウスメーターで校正した（Fig.2.3）。磁場はコイル中心部での値であり、測定時には金属膜がコイル中央に来るよう長さを測って設置する（クイックカップリングのフランジ面から金属膜まで 81.6 cm）。設置の時には数 mm 程度の誤差から、印加磁場として 0.1 mT 程度の誤差が生じる。また使用時はコイルに電圧を印加し続けられないようこまめに電源を切り、温度上昇をさける。電流計でモニターして電流値に変化がないことを確かめる。

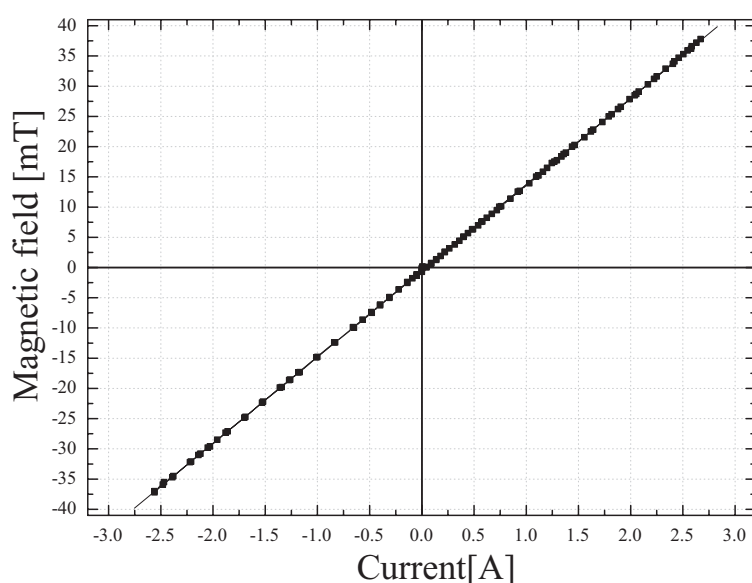


Fig 2.3: 空芯コイルの電流-磁場特性

励磁電源 磁気抵抗効果の測定には電源として ADVANTEST R6240A を使用し、出力電圧を増幅する。通常の磁気抵抗効果測定には一段増幅で、抵抗にかかる電圧（=電流）を測定すればよい。デジタルオシロスコープのレンジを電流-電圧特性のソースレンジ（-250 mV~250 mV）と同じにする必要があるときには二段増幅、電源電圧測定をする。一段増幅には Metronix BPA182A の Analog-input、Analog-output を用いた。二段目の増幅には KIKUSUI POW35-5 型を用いた。両者とも十倍増幅器として使用し、使用前に入力値が十倍になるようそれぞれ増幅率校正を行う。このようにすると印加磁場のソースレンジを最大 300 mV 程度と電流-電圧特性ソースと同じにでき、かつ $300 \text{ mV} \times 10 \times 10 = 30 \text{ V}$ と出力に十分な電

圧を得ることができる。

2.1.3 電気伝導測定部

測定器 コンダクタンス量子化・極微細線の生成状況測定には Lecroy DA1855 をローパスフィルターとして用い、電流電圧特性・磁気抵抗効果測定には DL Instruments Model 1201 をローパスフィルターとして用いた。Model 1201 型ローノイズプリアンプは直流電圧に対して誤差が生じるため、使用時には校正用抵抗 (calibration resistor) を用いて出力電圧が所定の出力値になるよう校正した。

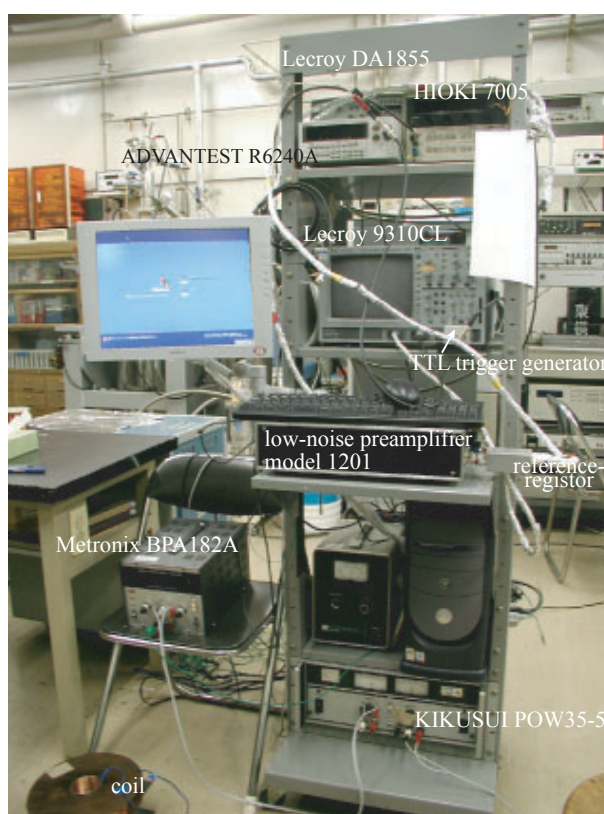


Fig 2.4: 測定装置

ピエゾ素子制御には HIOKI 7005 を用いた。最大印加電圧を 120 V に設定し、最小 10 mV 刻みでパソコンから制御する。ADVANTEST R6240A は測定回路の電圧電源、磁場発生用電源として用いた。磁場発生用パワーアンプとしてバイポーラの KIKUSUI POW35-5, Metronix BPA182A を用い、それぞれ増幅率を 10 倍にした。またデジタルオシロスコープ Lecroy

9310CLのトリガ出力信号はTTLレベルに達していない(最大振幅1V)ため、TTL trigger generatorを作製し(最大振幅5Vに増幅)オシロスコープのCAL端子に取り付けた。

測定回路 原子サイズの金属極微細線に測定端子を直接取り付けるのは、現在の微細加工技術を持ってしても不可能である。そこでFig.2.5に示す測定回路(測定装置:Fig.2.9(a))を用いた。金属極微細線と参照抵抗 R を直列に接続する。参照抵抗の電圧降下 $V_{\text{reference}}$ を測定し、次式(2.1)を用いて金属極微細線に流れる電流 I 、電圧 V_{nanowire} を計算した。

$$\begin{aligned} I &= V_{\text{reference}}/R \\ V_0 &= V_{\text{nanowire}} + V_{\text{reference}} \end{aligned} \quad (2.1)$$

これより金属極微細線のコンダクタンス G は

$$G = \frac{I}{V_{\text{nanowire}}} = \frac{V_{\text{reference}}}{R(V_0 - V_{\text{reference}})} \quad (2.2)$$

と計算される¹。

磁気抵抗効果の測定にはFig.2.6に示す測定回路(測定装置:Fig.2.9(b))を用いた。外部磁場発生用の電圧電源(V_{field})としてR6240Aを用い、POW35-5, BPA182Aで増幅した。参照抵抗 R_2 の電圧 $V_{\text{reference}2}$ を測定し、コイルに流れる電流を次式(2.3)を用いて計算した。

$$I = \frac{V_{\text{reference}2}}{R_2} \quad (2.3)$$

次に電流-磁場特性(Fig.2.3)より発生磁場に換算した。この装置で磁場を印加をする際、DCスイープではコイルのインダクタンスを考えなくてよい。パルス発生を用いるときには、コイルのインダクタンスを考慮に入れなければならない。まず自己インダクタンスの影響を確かめるため、電流計を電圧印加回路につなぎ電流値をモニターをした。すると直流パルスを入れた時も、ゆっくり掃引した時も到達電流は同じであり、自己インダクタンスの影響は少なかった。次に相互インダクタンスによる電磁誘導が生じる可能性があるが、影響は少ない。回路はより線で配線しておりコイルの発生磁場方向と平行で、さらに金属極微細線接合部もコイルが作る磁場に平行で、測定回路を貫く磁束が少ないからである。そのため電磁誘導による起電力の影響はない。実際、金属極微細線をつぶしてバルクの接触にし、校正用抵抗で回路のインピーダンスをあわせた後にパルスで磁場を発生させても測定信号に影響は無かった。

¹測定回路の電圧電源 V_0 としてADVANTEST R6240Aを用いた。

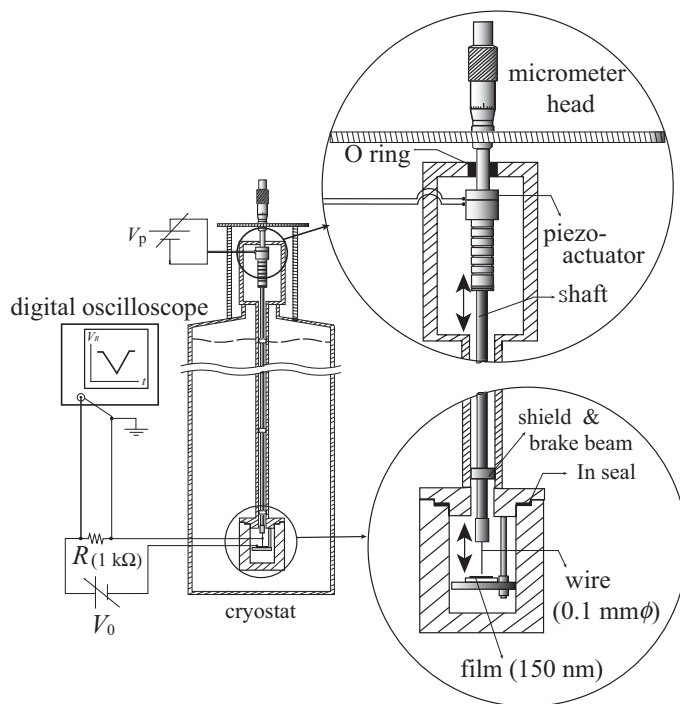


Fig 2.5: コンダクタンス量子化および電流-電圧 (I - V) 特性測定時の回路概略図

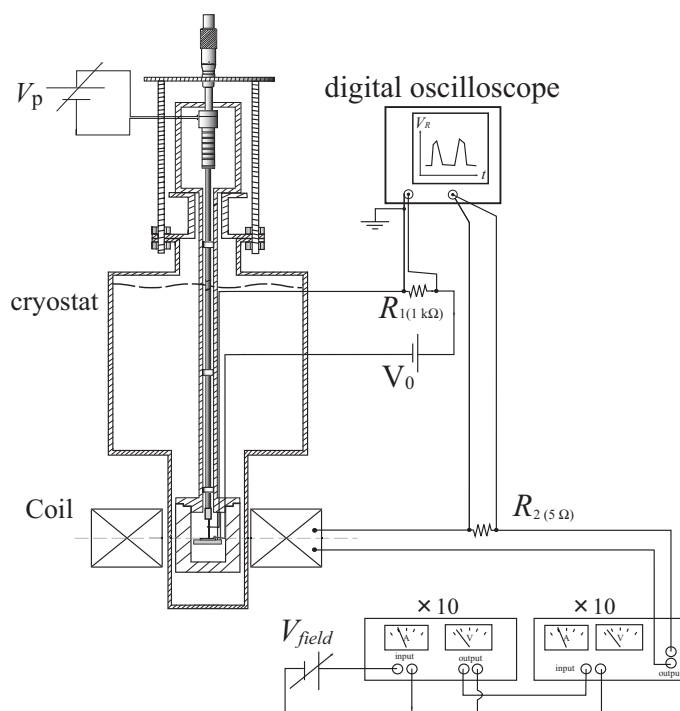


Fig 2.6: 磁気抵抗効果 (BMR) 測定時の回路概略図 (図は二段増幅のとき)

2.2 試料作製と装置への取り付け

極微細線（ナノワイヤー）を作製するには、金属電極の状態が重要となる。電極の状態に気を遣わないで実験を行うと、経験的に良い結果は出てこない。本実験では金属電極として、高純度金属線と電子線蒸着膜を用いている。そのため金属線先端の鋭利さ、蒸着膜表面の均一性に気を遣わなくてはならない。金属線と蒸着膜を用いる理由は、駆動する金属線のターゲットを大きくして、作製確率を上げるためである。

金属蒸着膜 金属蒸着膜には、厚さ 1 mm のガラス基板の上に金属を直径 5 mm 程度の円形状に 150 nm 電子線蒸着したものをを用いた。ガラス基板は 6 mm × 6 mm 程度にし、数回超音波洗浄を行っておく。ガラス基板上の金属膜はプリント基板上にワニスを用いて固定し、電氣的にプリント基板上のターミナルとの間を Al ボンディングワイヤによって結ぶ。金属膜はプリント基板ごと銅製台座にワニスで取り付ける、これにより直接冷却される (Fig.2.7 中、左側)。台座は普通のもの、永久磁石をガラス基板直下に据えることができるもの（金属膜上に 1.4 kOe の磁場を作ることができる）の二種類を作製しており、用途によって使い分ける。

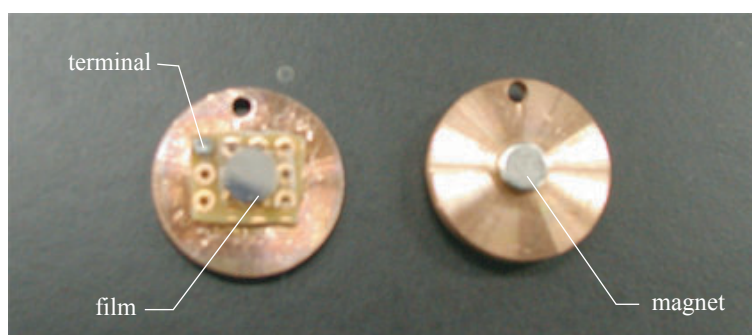


Fig 2.7: 試料台座。左が普通の円盤、右が永久磁石を埋め込んだもの。

金属線 金属線には直径 0.1 mm、純度 99.7% や 99.99% のものを使用した。数 cm の長さに切断した金属線をペンチとピンセットで引き延ばし、引きちぎった。引きちぎることで金属線先端が数 nm 単位で細くなるためである [1]。そして光学顕微鏡を用いて金属線先端の状態を確認し、引きちぎられたようなものを選ぶ。金属線はカーボンシャフト先端の銅製台座に、はんだ又は銀ペーストで取り付ける。取り付けの際、金属線先端が他のものに少しでも触れたら、その金属線は使わない。同じ作業を行って取り替える。

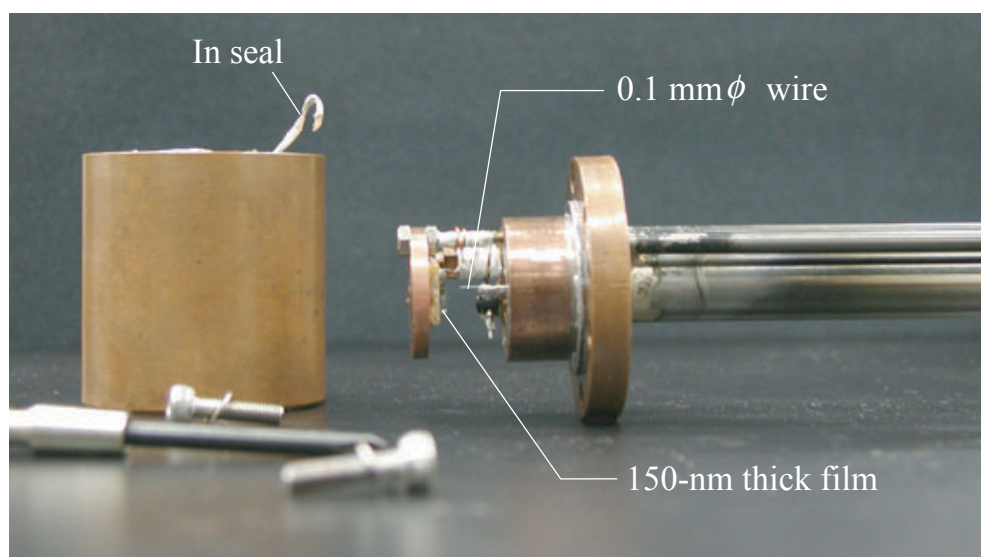


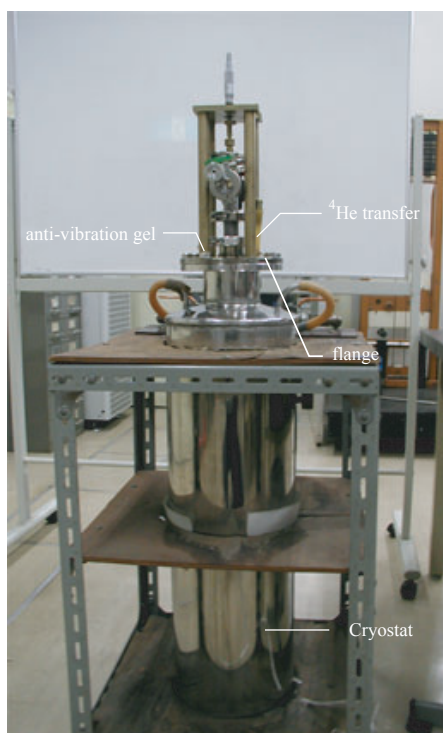
Fig 2.8: 試料取り付け

金属線と金属膜は2 mm~3 mm 引き離して取り付ける (Fig.2.8)。低温下の実験を行う際、熱収縮により金属線と金属膜が衝突し、金属線先端の細い部分が破壊されるのを回避するためである。銅製台座を所定の位置に取り付け、ターミナルに導線をはんだ付けし、測定回路をつくる。その後、銅製フォルダーにインジウムシールを取り付けて、対角締めによって封をする。そして真空引きをする (10^{-5} Torr ~ 10^{-6} Torr)。

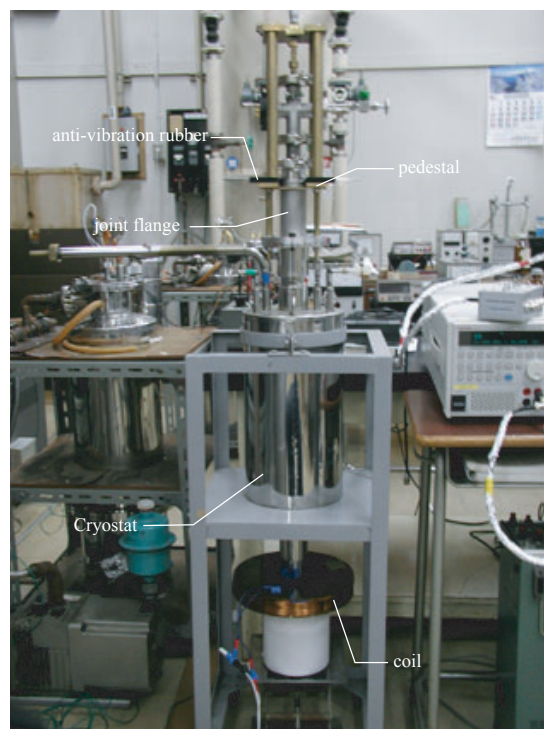
2.3 Cryostat 装着および冷却

装着 試料取り付け、真空引きの後、極微細線作製装置を Cryostat に装着する (Fig.2.9(a) と Fig.2.9(b) に専用フランジを用いて装着した状態を示す)。マイクロメータ固定台を設置し、マイクロメータ固定台の足に防震用ゲル・ゴムを取り付ける。マイクロメータのスピンドルをのばし、真鍮製シャフトと締め付け方式で固定する。

冷却 液体窒素 (77 K)、液体ヘリウム (4.2 K) を冷媒として用いる。冷媒を入れる前に回路に電圧を印加し、オシロスコープで出力信号をモニターする (回路ができていないので出力は0 V)。熱収縮によって金属線と金属膜が接触しないよう注意する。冷媒をトランスファーする過程でコンタクトが形成し、信号が出現したら (モニター画面で予兆があり、その後上限に振り切れる)、マイクロメーターで素早くコンタクトを分離する。このとき分離しないで放置してしまうと、金属線先端が破壊され極微細線ができない。



(a) 無磁場中でのコンダクタンス量子化測定、電流-電圧 (I - V) 特性測定時の装置。測定温度は 4.2 K から 300 K まで可能



(b) 磁場中実験、磁気抵抗効果測定時の装置。使用時には作製したマイクロメータ台を乗せる台座・つなぎフランジを設置する

Fig 2.9: Cryostat 装着時の極微細線作製装置

第3章 コンダクタンス量子化と スピン依存伝導

3.1 e^2/h 量子化現象

強磁性Niナノワイヤー生成・切断過程において得た結果から、無磁場においてもスピン依存した e^2/h 量子化が生じることを示し、伝導チャネルについて考察する。

3.1.1 コンダクタンスプラトー

NiナノワイヤーをNi線とNi膜の接合に作製し、それを切断する過程でコンダクタンス変化を測定した。磁場を印加しないときのコンダクタンスの時間変化（以後コンダクタンスカーブと称する）をFig.3.1–3.2に例示する。いずれのカーブにも階段（以後コンダクタンスプラトーと称する）が確認できる。プラトーは $2e^2/h$ の整数倍および半奇数倍のところに現れる。

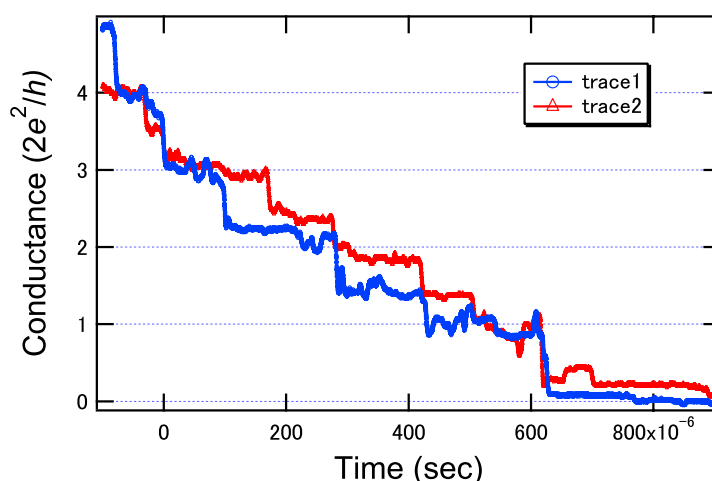
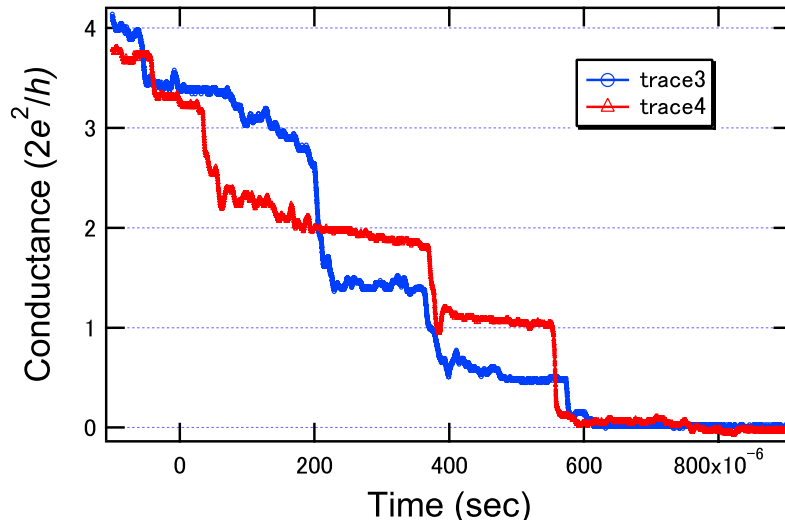
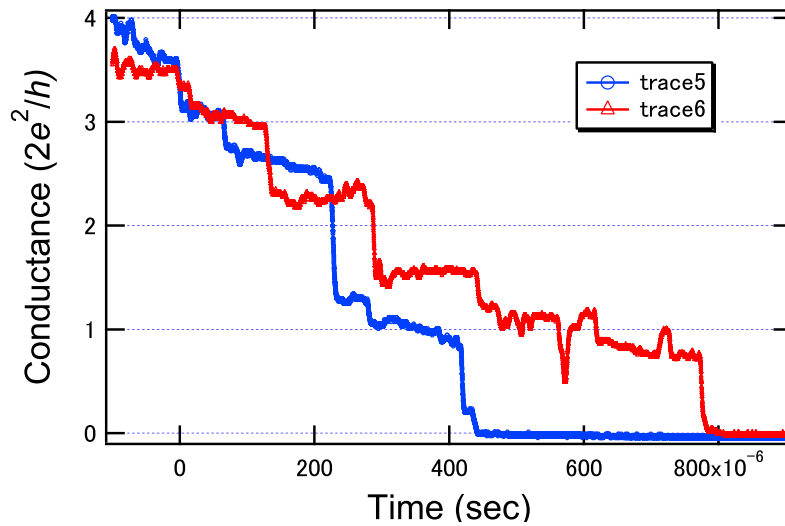


Fig 3.1: 切断過程におけるコンダクタンスカーブの測定例（測定条件は $T = 300$ K、外部磁場 $H = 0$ T、バイアス電圧 $V = 120$ mV）。階段状の変化が生じる。



(a) e^2/h プラトーが明瞭な場合 (trace3) と $2e^2/h$ プラトーが明瞭な場合 (trace4)



(b) e^2/h プラトーと $2e^2/h$ プラトーが混在する場合 (trace5, trace6)

Fig 3.2: 切断過程のコンダクタンスカーブ ($T = 300$ K, $H = 0$ T, $V = 120$ mV)

ヒストグラム解析

量子化を確かめるため、コンダクタンスカーブ 20 個を積算しヒストグラムを作成した。その結果を Fig.3.3 に示す。なお、コンダクタンスカーブは無作為に抽出しており選択則は使用していない。ピークの高さがコンダクタンスプラトートの相対的な出現確率に対応する。Fig.3.3 によって複数のピークを検出したことがわかる。Fig.3.3 中矢印 { (b)、(f)、(h) } に代表されるピーク群と、{ (a)、(d)、(i) } 及び { (c)、(e)、(g) } のピーク群である。

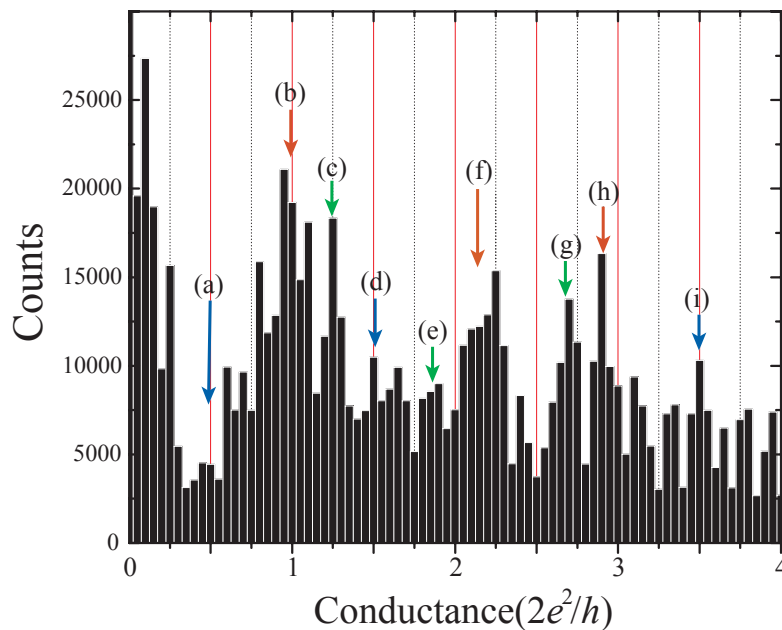


Fig 3.3: ヒストグラム (標本数 : 20 個、選択則なし)

G_0 単位量子化 (ピーク群 { (b)、(f)、(h) }) 以後 $G_0 \equiv 2e^2/h$ として表記する。Fig.3.3 において一番ピークが強いのは $1G_0$ 付近 (矢印 (b)) である。次に $2G_0$ 付近 (矢印 (f) = $2.3G_0$)、 $3G_0$ 付近 (矢印 (h) = $2.9G_0$) の強度が高く、 G_0 単位のコンダクタンス量子化が起きていることがわかる [1, 24]。 $1G_0$ は正確な量子化値であるが、 $2G_0 \cdot 3G_0$ は G_0 の整数倍になっていない。これは量子化する際のナノワイヤー形状効果と考えられる。ナノワイヤーが理想形状でないとき、波としての電子はナノワイヤーを断熱的に通過することができず散乱を受ける。後方散乱は Landauer-Büttiker 公式 (1.23) で示されるチャンネルの透過率 T_i を減少させるので、量子化値からのずれを生じさせる¹。

¹ずれに関しては、ピーク群 { (c)、(e)、(g) } の議論のところで後述する

$0.5G_0$ 単位量子化 (ピーク群 { (a)、(d)、(i) }) 矢印 { (a)、(d)、(i) } 付近のピークは G_0 単位量子化のピークに比べると強度が弱く、出現頻度が低いことを示す²。Fig.3.4 のコンダクタンスカーブが示すように、 $0.5G_0$ の整数倍のコンダクタンスプラトーは明らかに存在する。ヒストグラム (Fig.3.3) のピークはこれに対応し、 $0.5G_0$ 単位量子化を示す。

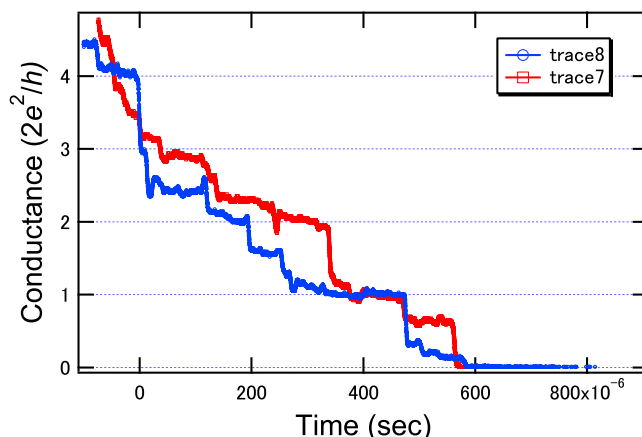


Fig 3.4: e^2/h コンダクタンスプラトーの存在 ($T = 300$ K、 $H = 0$ 、 $V = 120$ mV)。

Fig.3.1 (trace2) においても $4.0G_0 \rightarrow 3.5G_0 \rightarrow 3.0G_0 \rightarrow 2.4G_0 \rightarrow 1.9G_0 \rightarrow 1.4G_0$ の量子化は明瞭であり、無磁場で $0.5G_0$ 単位量子化が生じている。 $0.5G_0$ 単位量子化は Down-spin 電子と Up-spin 電子のエネルギー縮退が解けているときに出現する ($2e^2/h$ の 2 はスピン縮退因子)。しかし無磁場では、ナノワイヤー近傍の磁気構造が (磁化) が一様ではなく、複雑になっていると考えられる。そうするとバリスティックにナノワイヤーを通過する Down-spin 電子と Up-spin 電子のポテンシャル差は小さくなり、見かけ上スピン縮退が残る。Down-spin 電子と Up-spin 電子のチャンネルは両方同時に開くため、 $0.5G_0$ 単位量子化が無磁場で起こりにくい。これが出現頻度の低さに対応すると考えられる。この結果は、自発的にスピン縮退が解けている強磁性金属では $0.5G_0$ 単位量子化が現れることを示す。

本研究結果は、磁場中で $0.5G_0$ 単位量子化が生じるとする以前の報告 [2, 1, 24] と矛盾しない。以前の報告は「無磁場では $0.5G_0$ 単位量子化のピーク値 (出現頻度) が小さく」、「磁場中では $0.5G_0$ 単位量子化のピーク値 (出現頻度) が大きくなる」と解釈されるべきである。磁場印加によって $0.5G_0$ 単位量子化の出現頻度が上がるメカニズムとして、次の二つの可能性があげられよう。

1. ナノワイヤー磁気構造の寄与

²ヒストグラムは相対確率 (相対出現強度) をあらわす。統計的に '頻度が高い' 現象を示す解析手法であり、'頻度が低い' ことは '現象が存在しない' ことを意味しない。

2. 磁化（着磁）による機械的原因

第一にナノワイヤー磁気構造の寄与を考察する。外部磁場を印加すると、交換分裂によって Down-spin 電子と Up-spin 電子の感じるポテンシャルに明確な差が生じるため (Fig.3.5)、磁場中で $0.5G_0$ 単位量子化が生じやすくなると考えられる。

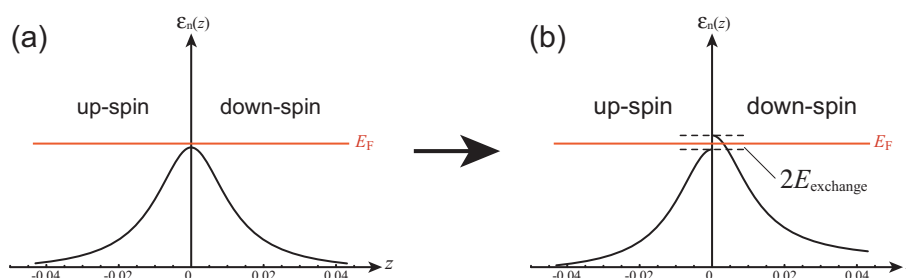


Fig 3.5: 任意モードのチャンネルにおける交換縮退の解消 (Fig.1.9(b) 参照)

ただし現在のところ、外部磁場によって 'どのように' 交換分裂するのか不明である。近傍磁区の大きさは数 μm とナノワイヤーに比べて非常に巨大であるため、ナノワイヤーにおける電子の透過率を左右するとは考えにくい。ナノワイヤー（もしくは電極との接合部）は金属表面に形成された低次元系であるため、磁気異方性の強さなどが不明である。したがって金属線と金属膜を使用したことの系の非対称性を考慮すると、外部磁場を印加したことでナノワイヤーの磁化が一方に揃うともいえない。これらを解決するには、時間分解能のよいシステムで極微領域の磁化ダイナミクスを調べる必要がある。

次に磁化（着磁）の影響を考察する。磁場を印加する実験では、無磁場での実験に比べてナノワイヤーを切断するためのピエゾ駆動量が大きかった。これは外部磁場により Ni 線と Ni 膜が磁化するために両者が引き合い、切断過程に復元力が働くことを意味する。したがって、磁場を印加すると金属線の位置制御が良好となる。極微制御によってナノワイヤーを構成する原子の磁気分極が生じやすくなり、交換分裂したチャンネルの寄与を観測する頻度が上がると考えられる³。

量子化値からのずれ（ピーク群 { (c)、(e)、(g) }） ピーク群 { (c)、(e)、(g) } は量子化値から $0.25G_0 \sim 0.3G_0$ の一定位置に分布する。これを "量子化値からのずれ" ととらえる。"ずれ" ととらえる理由を Fig.3.6 に示す。

³磁気分極によって非磁性金属 Cu ナノワイヤーにおいても $0.5G_0$ 単位量子化が生じるとの報告もある

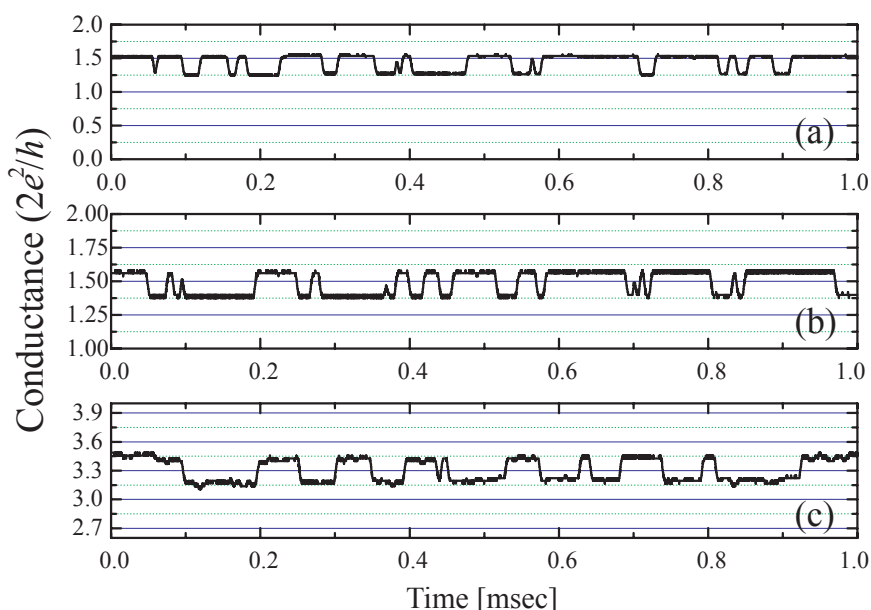


Fig 3.6: コンダクタンスカーブで観測したテレグラフノイズ (チャタリング)

Fig.3.6は、比較的長い時間 (1 sec) をかけて切断したときのコンダクタンスカーブの一部である。0.5 G_0 量子化値付近における挙動としてテレグラフノイズ (チャタリング) を観測した。コンダクタンス変化量 ΔG は (a) 0.25 G_0 (b) 0.25 G_0 (c) 0.3 G_0 となっており、変化量が 0.25 G_0 ~ 0.3 G_0 で一定である。 ΔG は Fig.3.3 のピークの位置の 'ずれ' と符合する。なお、このテレグラフノイズはバルク部分 (高純度線、蒸着膜、信号線) の寄与ではない。たとえば Fig.3.6(a) の変化は抵抗値にして 1.72 k Ω に相当しており、明らかにナノワイヤー近傍の現象である。

これは原子系の二準位揺らぎ (Two Level Fluctuation: TLF) と考えられる。TLFとは、ある一つの原子に対し二つの安定配置があり、原子がその間で揺らぐことを意味する (atomic migration)⁴。Fig.3.6 (a) - (c) に示したナノワイヤーは、コンダクタンスにして 1.5 G_0 と 3.5 G_0 でありナノワイヤー形状が異なる。形状が異なるにもかかわらず ΔG が一定であるのは、一つの原子が関与し、その原子を介する伝導チャンネルが 0.25 G_0 ~ 0.3 G_0 程度のコンダクタンスを担っていることを示す。したがって Landauer-Büttiker 描像に基づいて、原子配列が変化することにより透過率が変化し量子化値からのずれが生じた、と考えることができる。

⁴この現象は薄膜に穴をあけて数 nm 程度の狭いコンタクトを作った系 (初期ポイントコンタクト) でも報告されている [27]。TLF 現象によって、1.5 G_0 、3.5 G_0 程度のコンダクタンスを持つナノワイヤーが数 nm 以下の極微形状であると保証される。

TLFを引き起こすメカニズムは不明だが、電流が原子の振動を誘起した可能性がある。電流（電子）が原子にエネルギー（運動量）を与えることで原子が振動し、それが散乱体となる可能性である [28]。いずれにしても、この結果は伝導チャンネルが原子系（格子系）に敏感であることを示す。

以上のように、選択則を用いないで作成したヒストグラムには複数のピークが混在していた。量子化コンダクタンス $0.5nG_0$ (n :整数) は無磁場においても存在しており、原子系（形状）の効果である TLF ($\Delta G \sim 0.25G_0$) を観測した。なお、標本数を増やしてヒストグラムを作成すると徐々に平坦になる (Fig.3.7)。TLF による "ずれ" (変化量 ΔG) が存在するために、ヒストグラムが平坦になると考えられる⁵。

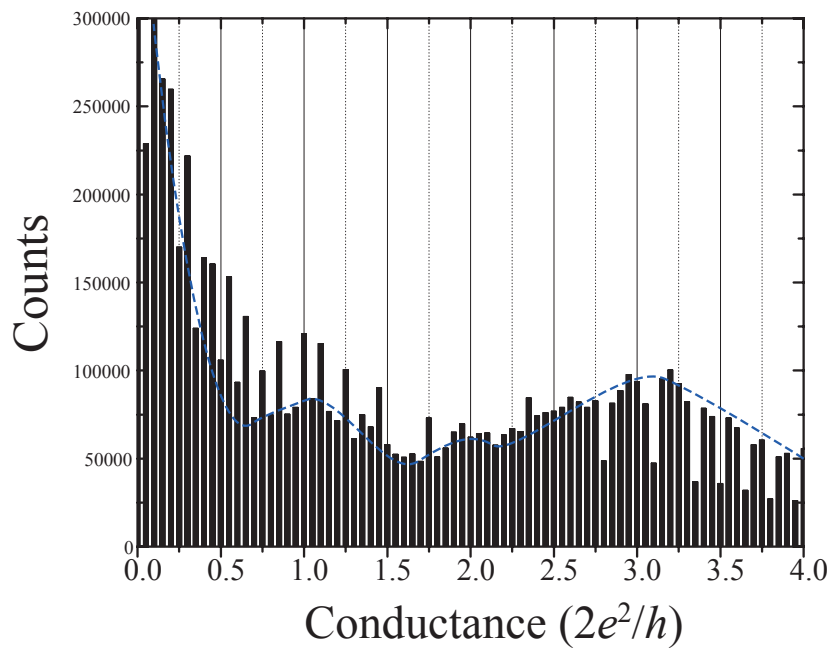


Fig 3.7: ヒストグラム (標本数 : 100 個、選択則なし)

⁵平坦性は Costa-Krämer の報告にもみられる [29]

3.1.2 温度依存性

一つの量子化状態で温度を変化させないと依存性は測定できないが、現状では温度変化を測定できるほど長時間ナノワイヤー形状を保持できない。低温にすると長時間保持できるが、せいぜい数十秒から数分である。現在のところ、300 K, 77 K, 4.2 K の温度領域における測定に関する限り、量子化状態に関して劇的な変化は観測されない。このことは次のように解釈できる。擬一次元系である金属極微細線において電子は離散状態（サブバンド）を形成する。量子化にはサブバンド間のエネルギー差 ΔE が関わってくるが、0.1 eV ~ 0.5 eV ほどになる。したがって、温度変化（熱揺らぎ）は $k_B \Delta T \sim 0.0256$ eV 程度のエネルギー変化しかもたらさず、電子系には影響を与えない。当然フェルミエネルギーに比べて微々たるものであり、電極のフェルミ分布は変化しない。

3.1.3 切断時間依存性

3.1.1 節では、磁場中では復元力が働くため $0.5G_0$ 単位量子化が観測されやすいと議論した。そこでコンダクタンス量子化に対する機械的要因を確かめるため、無磁場で切断時間を変化させて量子化コンダクタンスの発現を調べた。金属ナノワイヤー形状を長時間保持する必要があるため、4.2 K 低温実験を行った。Fig.3.8 は、一分以上保持することに成功したコンダクタンス量子化状態である。

$1.5G_0$ コンダクタンスプラトー（ $0.5G_0$ 単位量子化）が現れており、数十秒続く量子化状態においても TLF を観測した。変化量はやはり $\Delta G \sim 0.25G_0$ 程度である。長時間保持できているのでナノワイヤー形状全体は変化していない⁶。

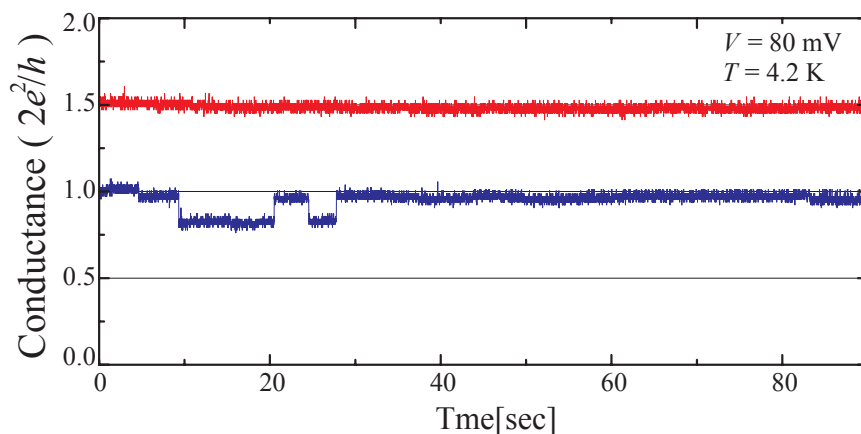
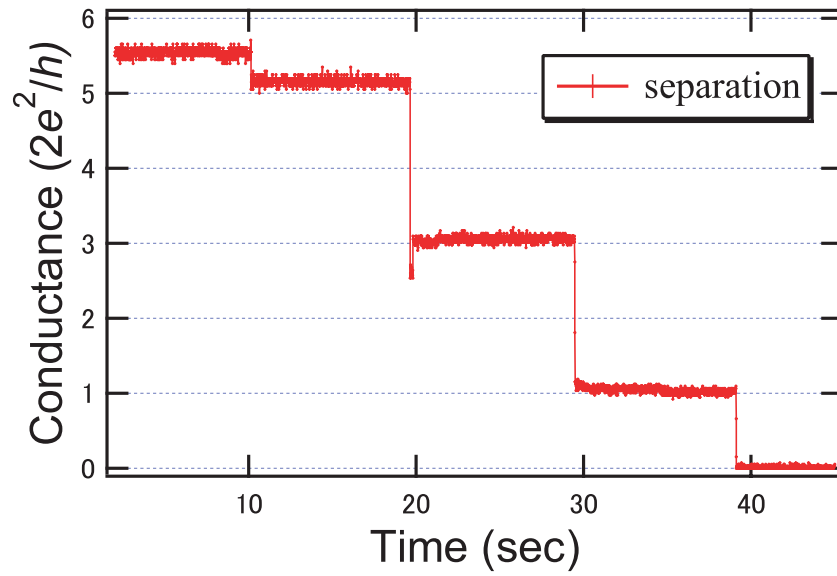
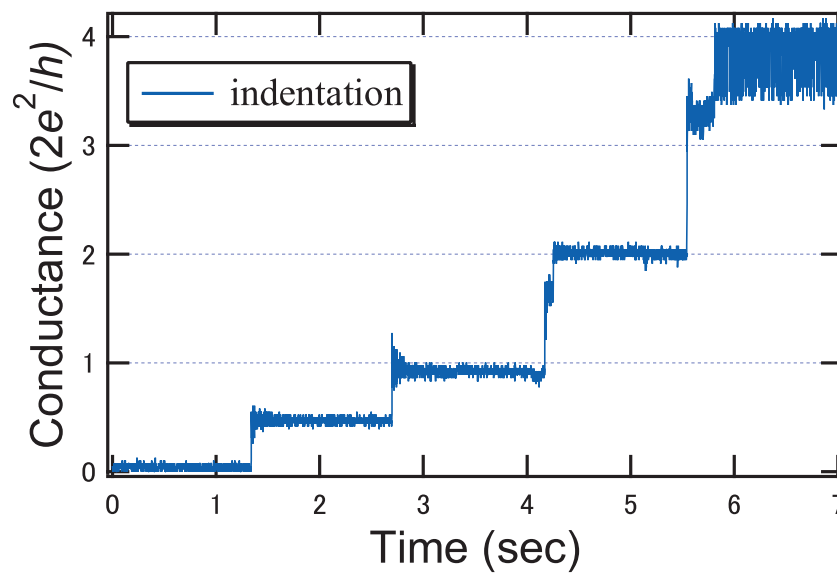


Fig 3.8: コンダクタンスプラトーの保持（このときはピエゾ素子を駆動していない）。

⁶伝導チャンネルの透過率が一つの原子の移動によっても変化するとした先の議論を裏付けている。



(a) 切断過程



(b) 接触過程

Fig 3.9: コンダクタンス量子化の切断時間依存性

$0.5G_0$ 量子化状態の存在 Fig.3.8 のようなコンダクタンスプラトー状態を作製してから、時間をかけて切断し再び接触させた。その結果を Fig.3.9 に示す。

コンダクタンスが

$$(a) : 5.5G_0 \rightarrow 5.0G_0 \rightarrow 3.0G_0 \rightarrow 0.5G_0$$

$$(b) : 0.5G_0 \rightarrow 1.0G_0 \rightarrow 1.5G_0 \rightarrow 2.0G_0 \rightarrow 3.5G_0 \leftrightarrow 4.0G_0$$

と変化し、 $0.5G_0$ 単位量子化が明瞭に発現する。コンダクタンスプラトーはそれぞれ十秒程続いている。Fig.3.9(b) では、一定速度で接触させているにもかかわらず最初の $0.5G_0$ が時間的に長く、 $1.5G_0$ や $3.5G_0$ は時間的に短い。このような現象は幾度か観測されており、無磁場では $0.5G_0$ 単位量子化が G_0 単位量子化に比べて発現しにくいことを示す。

Fig.3.9(b) では特に $4.0G_0$ は $3.5G_0$ との間でチャタリングを起こしている。ここで観測されたチャタリングは3.1.1節でみたチャタリング ($\Delta G \sim 0.25G_0$) とは異なり、変化量 $\Delta G \sim 0.5G_0$ かつ二つの量子化値を遷移する。これは1伝導チャンネルが開閉する可能性を示す。式(1.23)によってスピン依存性が表されるとすると、透過率 $T_{i(\uparrow\downarrow)} = 1 \leftrightarrow T_{i(\uparrow\downarrow)} = 0$ を意味する。このような量子化二値の遷移はたびたび観測された。Fig.3.10 には $5.0G_0$ と $4.5G_0$ の間の TLF を示す。

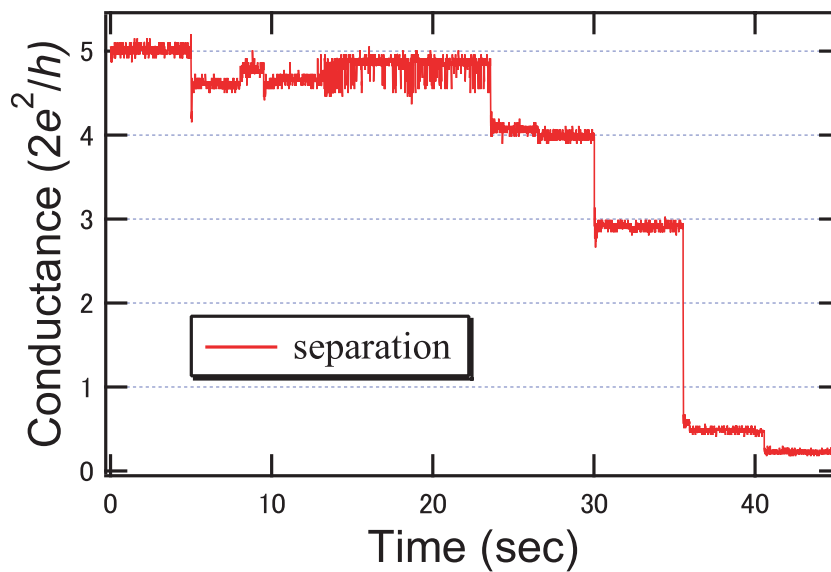
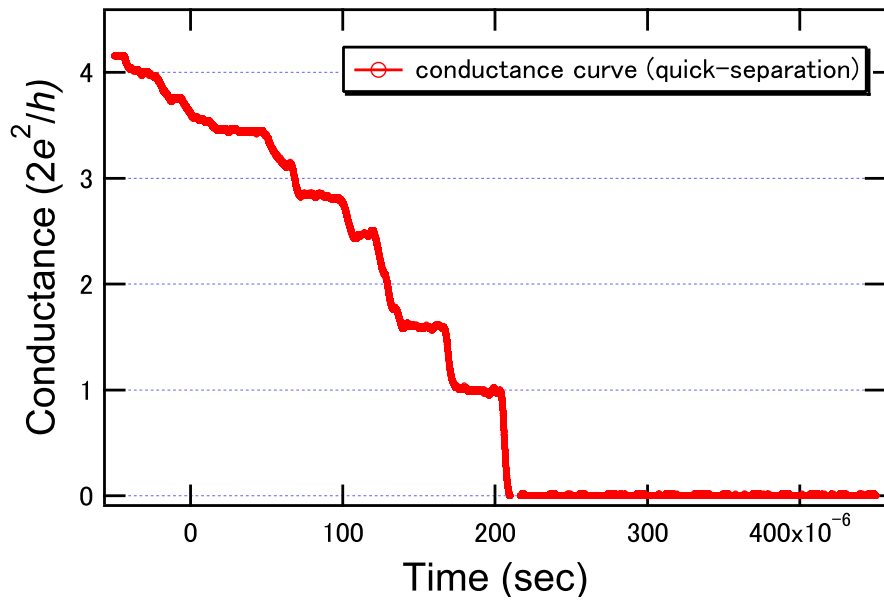
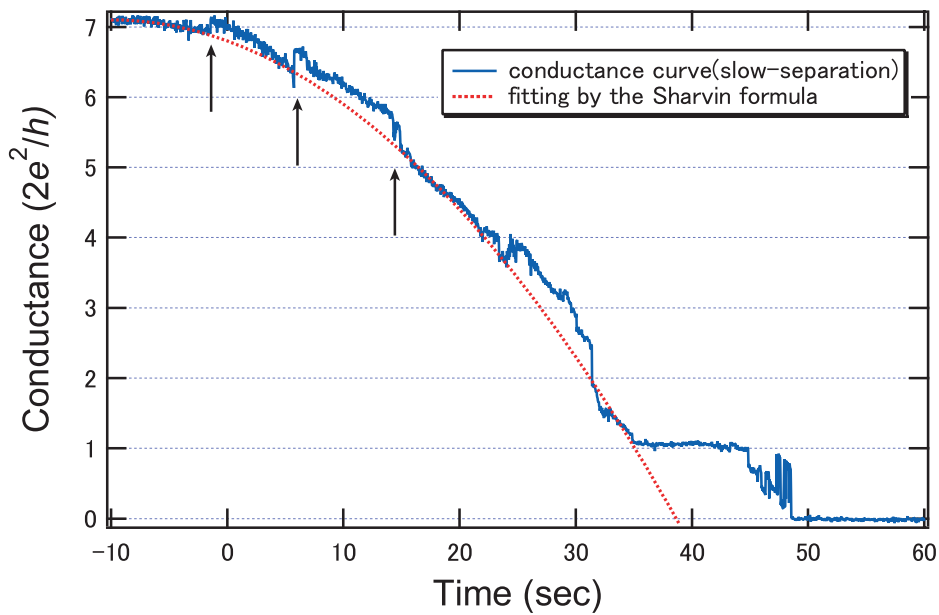


Fig 3.10: 量子化二値 ($5.0G_0$ と $4.5G_0$) の間の TLF。切断時の最終段階にはコンダクタンスプラトー $G = 0.25G_0$ が出現する。



(a) 短時間スケール (μsec) で切断したときのコンダクタンス量子化。 $V = 80$ mV、 $H = 0$ 、 $T = 300$ K。



(b) 長時間スケール (sec) で切断したときのコンダクタンス量子化。 $V = 80$ mV、 $H = 0$ 、 $T = 4.2$ K。

Fig 3.11: コンダクタンス量子化の切断時間依存性

1.0G₀ 量子化状態の安定性 Fig.3.11 において短時間で切断したときと、長時間で切断したときのコンダクタンスカーブを比較する。

Fig.3.11(a) は短時間で切断したときであり (μ sec レンジ) コンダクタンスは

$$3.5G_0 \rightarrow 2.5G_0 \rightarrow 1.5G_0 \rightarrow 1G_0$$

と変化した。Fig.3.11(b) は長時間で切断したときのコンダクタンスカーブである (sec レンジ)。7G₀ 付近からコンダクタンスが連続的に減少し、35 秒が経過したところで十数秒間も 1.0G₀ コンダクタンスプラトーを示した。この間ピエゾ素子を一定変位速度で駆動させているにもかかわらず、プラトーが壊れないことは非常に興味深い。これは 1G₀ が構造上、もしくは伝導機構上安定であることを示す。1.0G₀ が安定であることは、ヒストグラム (Fig.3.3) で $G_0 = 2e^2/h$ のピークが一番強いこと、Fig.3.7 のように標本数を多くしても $G_0 = 2e^2/h$ のピークが依然として強いという結果と一致する。

Landauer-Büttiker 描像と Sharvin 描像 Fig.3.11(b) のコンダクタンスカーブは量子化領域における '連続的' 減少を示しており興味深い。ここで Landauer-Büttiker 描像 (波動性) と Sharvin 描像 (粒子性) の接続⁷ に関して議論する。Fig.3.11(b) の矢印で示したように、コンダクタンスが連続的に減少するとき、7.0G₀、6.5G₀、5.5G₀ 程度で "曲線のずれ" が現れる。変化量はいずれも $\Delta G \sim 0.5G_0$ 程度であり、"ずれ" が生じた後の曲率はほぼ同じである。"曲線のずれ" を無視して Sharvin 公式に基づくフィッティングを行ったところ、4.0G₀ 程度までは同じ曲率でフィットした。したがって、連続的に変化する現象に不連続性をもつ現象が重畳したといえる。

不連続性に関して、チャンネル形成・消滅に基づく Landauer-Büttiker 描像では、Fig.3.9 のチャタリング ($\Delta G \sim 0.5G_0$) を考えあわせて次のようになる。「ナノワイヤーが引き延ばされることで近傍の原子が不安定になり、ずれ変形を起こして連なった原子が接合部に滑り込む (序論 1.3.1)。そして $\Delta G \sim 0.5G_0$ を担う $T_i = 1$ の伝導チャンネルが形成され、不連続にコンダクタンスが増加した。さらに引き延ばされるとナノワイヤー幅が狭まり、ある幅になったところで形成した伝導チャンネルが消滅し、コンダクタンスが不連続に減少した。」これは Fig.3.12 に示す 3.0G₀、2.5G₀、2.0G₀、1.5G₀ 付近のプラトーも説明することができる。一方、Sharvin 描像 (粒子描像) の「原子移動によって断面積が増減する現象」とする考え方もある。この場合でもナノワイヤーで生じている現象は 'すべり変形' であり、不連続性については「電極から原子鎖が滑り込んだため極微細線の断面積が増加し、原子鎖が極微細線から滑り出たため断面積が減った」と解釈することが可能である。

⁷1.4.5 節参照

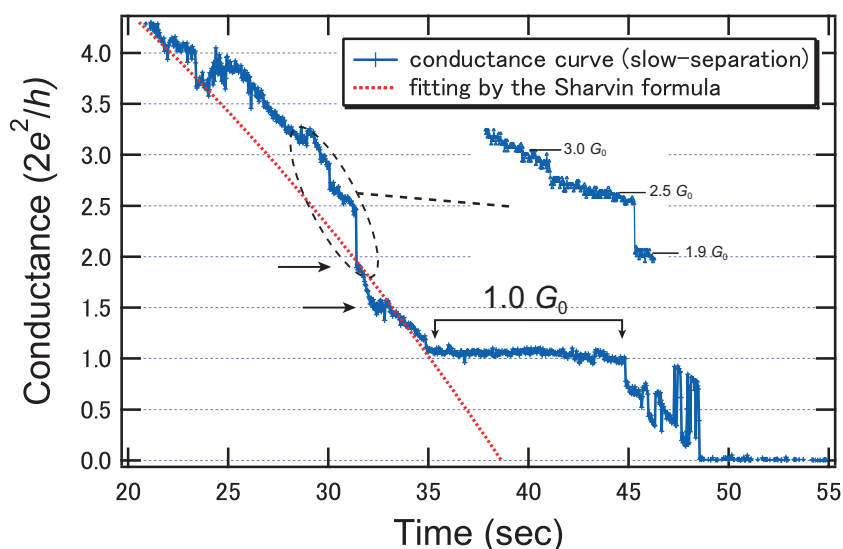


Fig 3.12: コンダクタンス量子化が顕在化する領域 ($H = 0$ 、 $V = 80$ mV、 $T = 4.2$ K)。

次にコンダクタンスの連続的減少を考える。Landauer-Büttiker 描像では透過率 $T_i \neq 1$ の伝導チャンネルが存在し、透過率が減少すると解釈できる。伝導チャンネル同士は独立に存在するため、 T_i が減少するときに $T_j = 1$ のチャンネルが形成・消滅しても不自然さは生じない。Sharvin 描像ではどうか。コンダクタンスカーブがフィッティング曲線からはずれる直前 ($G = 4.0 G_0$) のナノワイヤー半径を Sharvin 公式 (1.12) から見積もると、およそ半径 $a \sim 6.2$ Å の細線になっている (形状補正項を考慮するとより小さくなる)。Ni の金属結合半径 1.25 Å から判断すると、このサイズ領域までは断面積は連続的に変化し Sharvin 描像が破綻しない可能性はある。しかし、 $G = 3.0 G_0$ ($a \sim 5.4$ Å) 以下のスケールでは、原子移動が不連続なコンダクタンス変化を引き起こす。Fig.3.12 の Inset に拡大したように、コンダクタンス量子化プラトーが傾く (直線的に減少する) 変化は説明できない。

極微細線の原子形状が顕わになるとき Sharvin 描像が破綻し、Landauer-Büttiker 描像に移行する。

3.1.4 e^2/h 量子化に関する考察

これまでの結果によって強磁性極微細線における量子化現象の特徴を捉えた。すなわち、 $0.5G_0$ 単位量子化よりも G_0 単位量子化 (特に $1.0G_0$) の出現頻度が高く、原子レベルのワイヤサイズで顕在化する。またヒストグラムピークや TLF が示すように、 $T_i < 1$ の伝導チャ

ネルが存在する。この節では、これらに関して Landauer-Büttiker 公式 (1.23) の透過率 T_i を用いて議論する⁸。

$T_i < 1$ の伝導チャネル 量子化コンダクタンスが G_0 の整数倍からずれる原因を考察する。コンダクタンス量子化の実験が破壊現象であることを考慮すると、主要因として以下の二つが挙げられる。

1. 極微細線接合部における後方散乱
2. 原子配列 (格子) の乱れによる量子化条件の変化

極微細線形状が粗いとき、細線を伝導する電子波が断熱的に変化できないため透過率が減少する。したがってヒストグラム (Fig.3.3) の $2.9G_0$ のピーク値は $3.0G_0$ ピークが移行したものと説明できる。しかし、 $2G_0$ 付近のピークが $2.3G_0$ 付近に移行することは説明できない。ピーク位置が上方に移行する (コンダクタンスが増加する) ことを説明するには、上記 2. の原因を考慮すれば可能となる。極微細線は表面につくられた人工構造であり、原子の安定位置は作製した極微細線ごとに違う。したがって、切断過程で一原子が安定位置に移動しチャネルが開くことが考えられる。これに関連して、原子軌道 (s, p, d, \dots, etc) の重要性が指摘されている [30]。例えば、Ni では Ni 原子の基底配置は $(3d)^8(4s)^2$ であるから、 $1G_0$ を担うとき $T_s = 0.7, T_d = 0.3$ のように分担する、という考え方である。単一原子鎖に適用する場合、自然である。極微細線が数原子以上の構造になったときに適用できるか疑問は残るが、電子の性質 (s 電子、 d 電子) および $T_i < 1$ のチャネルの存在を指摘している。

電極の電子状態 電子の性質 (s 電子、 d 電子) について電極における電子状態から議論する。強磁性金属 Ni のバルクのバンド構造を Fig.3.13(a) に示す。s バンドと d バンドが混成を起こしており、電子はフェルミ面で s-like 電子 (\uparrow, \downarrow)、d-like 電子 (\uparrow, \downarrow) として存在する。有効質量 ($(m_{ij}^*)^{-1} = \partial^2 E / \partial k_i \partial k_j$) に関しては

$$m_{d-like}^* > m_{s-like}^* \quad (3.1)$$

と d-like 電子は重い。半古典的モデルで考えれば伝導を担っているのは s-like 電子である。しかし、極微細線における電気伝導では、バルクの議論と異なり d-like 電子の存在を考慮しなければならない。

極微細線は弾性散乱長 l_e よりも短いバリスティック系であり、有効質量が重いとしても伝導することは可能である。強磁性金属 Ni のフェルミ面における d-like 電子の状態密度が

⁸1.4.1 節参照。一般的な Landauer 公式では $T=0$ or 1

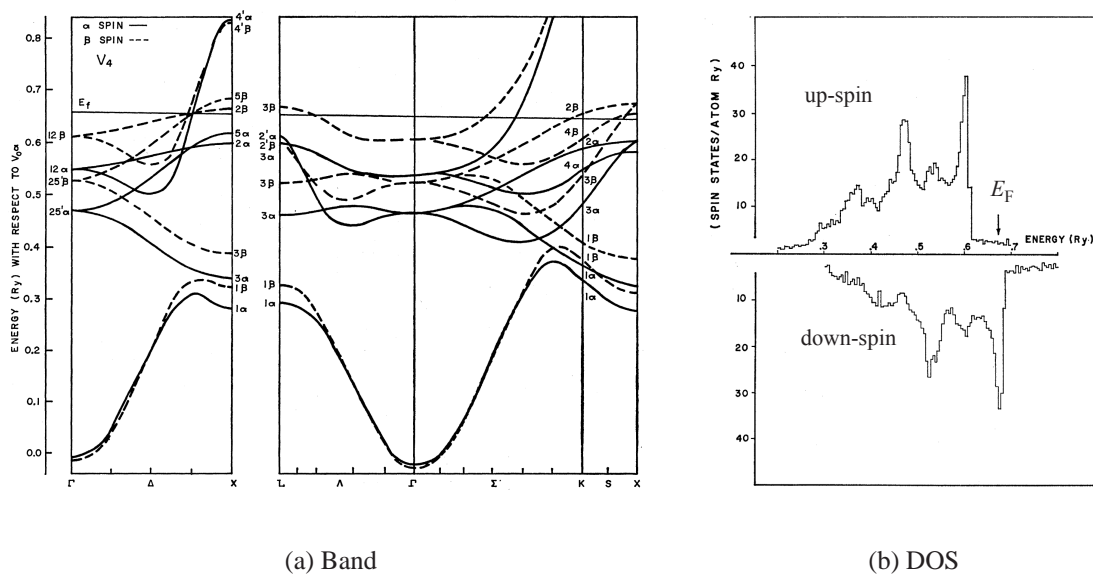


Fig 3.13: 強磁性金属 Ni の電子構造 (Ref[33])

高いことを考慮すれば、バリステック領域では s-like 電子、d-like 電子が伝導すると考える方が妥当といえる。

1.0 G_0 について s 電子、d 電子の性質を考えると以下の2点を説明できる。

1. 1.0 G_0 のピーク位置が不変、安定なコンダクタンスプラトーになる
2. 無磁場では 0.5 G_0 単位量子化よりも G_0 単位量子化の出現頻度が高い
3. $T_i < 1$ のチャネルが存在する

1. に関して、極微細線においては s-like 電子の波動関数は空間的に広がっており、d-like 電子に比べると伝導チャネルを形成しやすいと考えられる。Fig.3.13(a) より、 Δ 点と X 点の間でほぼ縮退する s-like (\uparrow, \downarrow) 電子が主に寄与すると考えると、半古典的論にも合致する。ここで 1.0 G_0 が実現している極微細線形状を考える。Sharvin 公式 (1.22) より

$$1.0G_0 = G_0(ka/2)^2$$

なので、s-like 分枝の $k_{(\Delta \leftrightarrow X)}$ を代入して⁹ 断面直径 $2a$ が 2.99 \AA と見積もることができる¹⁰。形状補正を加えるとこの値より小さくなるので、単一原子鎖が $1.0 G_0$ に対応することがわかる。したがって、s-like 電子 (\uparrow, \downarrow) のチャンネルは単一原子鎖でも確保されることになる。極微細線切断の最終段階では単一原子鎖 (単原子接点) になるので (Fig.1.6) 他の極微細線形状よりその出現頻度は高く、 $1.0 G_0$ のピーク位置はほとんど変化しない。さらに、切断されるまでは断面積が不変なので最安定なプラトーとして観測されるはずである¹¹。

2. および 3. に関して、無磁場では縮退の解けている d-like (\downarrow) 電子が $0.5 G_0$ のチャンネルを担うとして説明できる。破壊過程で作製される極微細線において、d-like (\downarrow) 電子は軌道形状が重なりにくいいため、チャンネル形成が抑制される ($T_i < 1$)。すなわち確率論的に $T_i = 1$ となる d-like (\downarrow) 電子チャンネルの出現確率は低くなる。切断時間を長くして $0.5 G_0$ 量子化が見えるようになったのは、原子が移動するのにかかる時間が長くなるため d-like 電子のチャンネルが形成しやすくなったと理解することができる (磁場が印加されたときは s-like 電子の縮退が解け、 $0.5 G_0$ 量子化が明瞭になる)。

形状以外の要因 以上の考察は、電気伝導について極微細線形状が支配的であると考えている。ここではそれ以外の要因について記述する、透過率 $T_i < 1$ のチャンネルが形成される可能性を考察する。

1. 電子 - フォノン、マグノンによる非弾性散乱
2. 電子 - 電子相互作用による非弾性散乱

まず最初にフォノンとの結合があげられる。電子が極微細線近傍でフォノンと結合すると、後方散乱を起し透過率が下がる。フォノンの影響は金 (Au) を用いたポイントコンタクト分光 (電流 - 電圧測定) で調べられているが、 $\Delta G \sim 0.01 G_0$ 程度であることが報告されている [31]。本研究で見つかった $\Delta G \sim 0.25 G_0$ 程度の変化量ではない。つぎに電子間相互作用がある。電子が擬一次元系 (ナノワイヤー) に閉じこめられるため、電子間相互作用が強まるはずである。この作用が大きければ、Tomonaga-Luttinger 流体の実現が期待できる。金属ナノワイヤー研究初期にはこのような可能性が指摘されたが、明確な証拠は見つかっていない [32]。これら二つの現象に関しては電流-電圧特性、磁気抵抗効果などを詳細に調べる必要がある。

⁹ Δ 点と X 点の間に s-like (\uparrow, \downarrow) 分枝、及び d-like (\downarrow) 分枝が存在しており、 K 点付近に d-like (\downarrow) 分枝が存在する。 $k_{(\Delta \leftrightarrow X)} \sim 1.335 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$ 、 $k_{(K)} \sim 1.827 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$

¹⁰ Landauer 公式からも $1.0 G_0$ が伝導電子の半波長モードに対応するとして、 $\lambda/2 \sim 2.35 \text{ \AA}$ と見積もることができる

¹¹ パイエルス転移が生じない範囲

3.2 非線形伝導現象

前節では、 e^2/h 量子化を引き起こすスピン依存伝導チャンネルについて調べた。本節では、強磁性 Ni 極微細線における電流 - 電圧特性 (I - V 特性) から、強磁性 Ni 極微細線には特有の非線形伝導現象が存在することを示し、スピン依存伝導との関連について考察する。

3.2.1 電流 - 電圧特性 (I - V 特性)

コンダクタンスプラトーにおける電流応答 (無磁場) 伝導チャンネルは電極の化学ポテンシャルの差によって定まり、スピン依存チャンネルの特性はバイアス電圧依存性に強く反映されると考えられる。そこでコンダクタンスプラトーにおいてバイアス電圧を変化させ、電流応答 (I - V) を調べた。長時間測定のため 4.2 K 低温測定を行った。

Ni 極微細線には Fig.3.14 に示す線形 I - V 特性に加えて、二種類の非線形 I - V 特性が存在する (Fig.3.15)。それぞれの I - V 特性は $(dI/dV_{V=0})$ の傾きを持つ直線 (ゼロバイアスコンダクタンス直線) によりフィッティングし、ラベル付けした。Fig.3.15(a) に示した非線形 I - V 特性は、バイアス電圧を上げていくと 40 mV から 80 mV に達したところでゼロバイアスコンダクタンス直線から上方に変化する (以後タイプ I と称する)。Fig.3.15(b) に示した非線形 I - V 特性は逆に、40 mV から 80 mV に達したところでゼロバイアスコンダクタンス直線から下方に変化する (以後タイプ II と称する)。

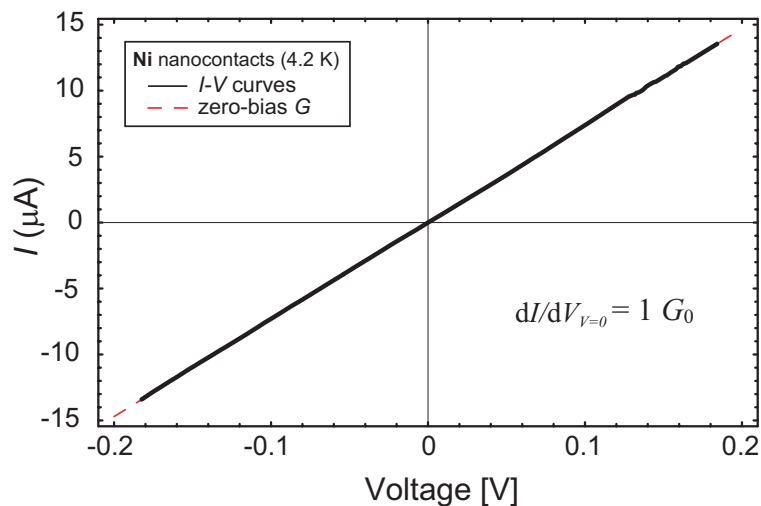
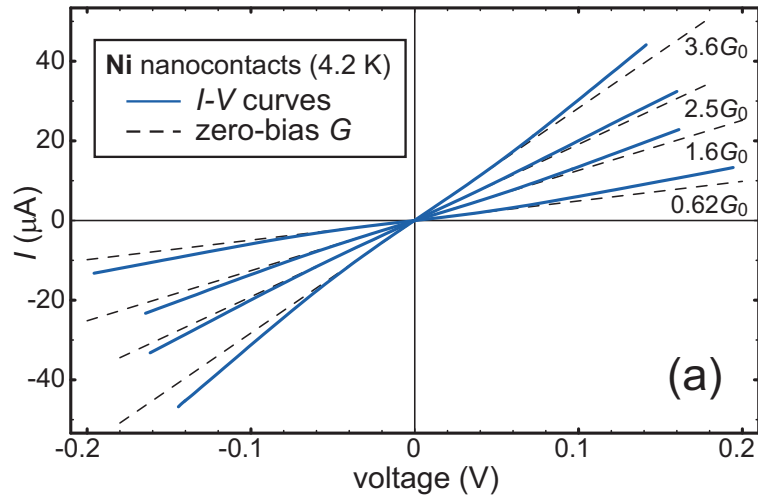
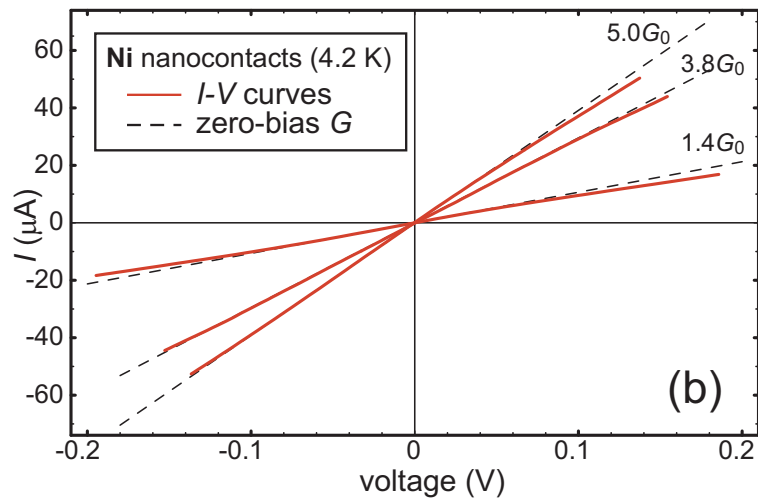


Fig 3.14: Ni 極微細線 ($(dI/dV_{V=0}) = 1.0 G_0$) における線形 I - V 特性。破線は $(dI/dV_{V=0})$ の傾きを持つ Fitting 直線 (ゼロバイアスコンダクタンス直線)。



(a) ゼロバイアスコンダクタンス直線より上方に変化する I - V 特性 (タイプ I)



(b) ゼロバイアスコンダクタンス直線より下方に変化する I - V 特性 (タイプ II)

Fig 3.15: コンダクタンスプラトーにおける非線形伝導現象

非線形 I - V 特性の特徴 Ni 極微細線における非線形 I - V 特性に対して以下の実験的事実がある¹²。

1. ゼロバイアスコンダクタンス直線からの変化量は、作製した Ni 極微細線毎に異なる。
2. I - V 特性が $V = 0$ [V] に関して非対称になる場合がある (バイアス電圧の極性依存)。
3. タイプ I の出現確率は高く (80% 以上)、タイプ II の出現確率は低い (10% 以下)。線形 I - V 特性は 10% 程度となる。
4. 外部磁場を印加した場合、タイプ II の非線形 I - V 特性は観測されない。

ブレイクジャンクション法によって作製される極微細線構造は確率的であり、その電気伝導特性は原子配列構造、磁気モーメント配列構造などによって支配される。Fig.3.15(a)、Fig.3.15(b) に示す I - V 曲線はゼロバイアスコンダクタンス直線からの変化がそれぞれ異なっており、変化量は普遍値ではなく分布を示していた。2. は極微細線構造における原子配列的非対称性、磁気的非対称性に対応すると考えられる。3. は原子配列構造、磁気モーメント配列構造には出現しやすい構造が存在すること、4. はタイプ II の非線伝導現象が磁気特性を反映することを示す。

原子スケール特有の現象 非線形伝導が極微形状に特有であることを調べるため、極微細線幅 (コンタクトサイズ) を大きくして電流-電圧特性を測定した。

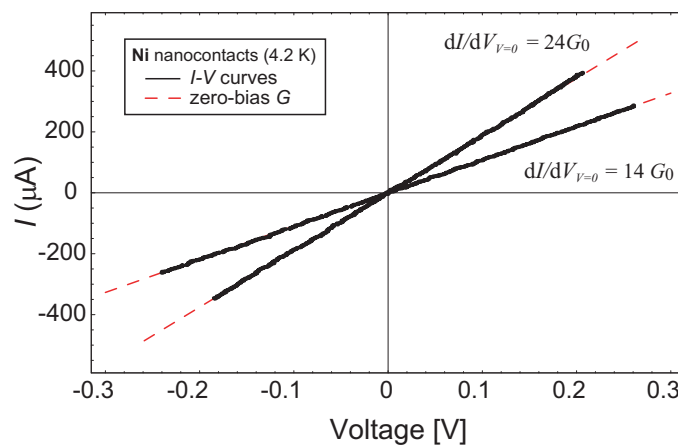


Fig 3.16: 線幅 (コンタクトサイズ) が大きい極微細線の I - V 特性

¹²測定回路系における接触電位は非線形性に影響しない。銀ペースト (or はんだ) と Ni 線、Ni 膜と Al ボンディングワイヤー間などの接触電位が影響しないことは校正用抵抗によって確認した。

Fig.3.16 はゼロバイアスコンダクタンス値 $14G_0$ 、 $24G_0$ を示す極微細線における I - V 特性である。 $14G_0$ 、 $24G_0$ の極微細線ともにゼロバイアスコンダクタンス直線と一致する線形 I - V 特性であり、非線形伝導が極微形状に特有の現象であることがわかる。無磁場なので s -like 電子が主に伝導を担っていると仮定し、Sharvin コンダクタンス (式 1.22) から極微細線幅を見積もると、

$$14G_0 \rightarrow 11.2 \text{ \AA} (= 1.12 \text{ nm})$$

$$24G_0 \rightarrow 14.7 \text{ \AA} (= 1.47 \text{ nm})$$

となった。ここで $k_{(\Delta \leftrightarrow X)} = 1.335 \times 10^8 \text{ cm}^{-1}$ を用いた。非線形性が数 nm の線幅で消滅することは、原子軌道の重要性を意味する。

形状破壊でないこと 極微形状のため、バイアス電圧が誘引する形状破壊の可能性が存在する。これを検証するため、Ni 極微細線を流れる電流の時間変化を調べた。Fig.3.17 (a) はタイプ I の非線形 I - V 特性を示すときの電流応答、Fig.3.17(b) はタイプ II の電流応答である。Fig.3.17 の挿入図は Ni 極微細線に印加したバイアス電圧 (入力電圧) をあらわす。どちらのタイプの電流応答においてもバイアス電圧掃引前の電流値と後の電流値は同じであり、バイアス電圧に対して連続的である。極微細線形状が変化した兆候 (Fig.3.11(b) に示したような "とび") は存在しない。したがって、非線形 I - V 特性の原因は極微細線の形状破壊ではない。

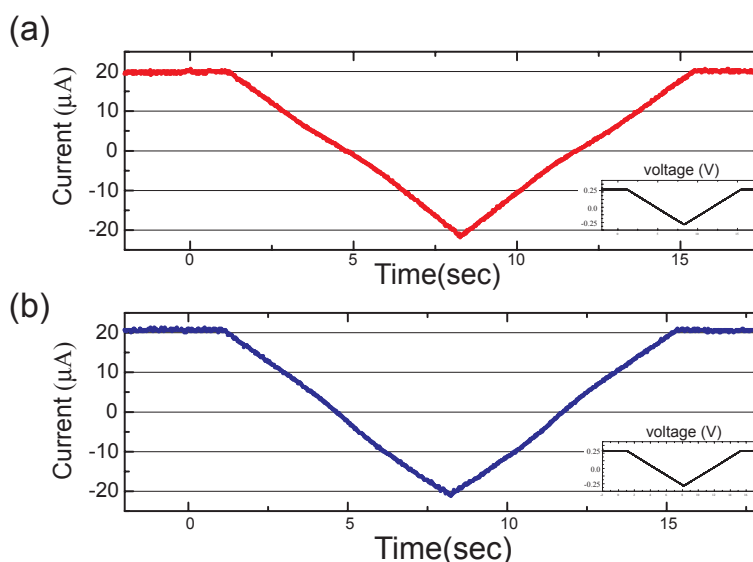


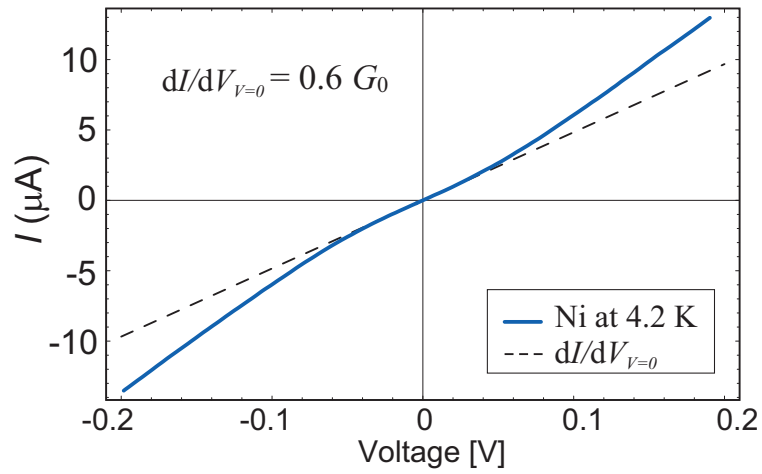
Fig 3.17: コンダクタンスプラトーにおける電流応答特性 (Inset: 入力バイアス電圧)。バイアス電圧 (250 mV) を印加した状態で極微細線を作製し、バイアス電圧を三角波状に変化させて電流応答を測定した。

タイプ I の非線形 I - V 特性が出現したとき、二度三度と連続して I - V 特性を測定しても非線形のタイプは変化しなかった。極微細線が破断するまで同一特性を示しており、これはタイプ II でも同じである。タイプ I からタイプ II への変化、あるいはタイプ II からタイプ I への変化は観測されない。これは異なった伝導特性を示す極微細線状態（原子配列構造、磁気構造、... etc）が存在することを支持する。

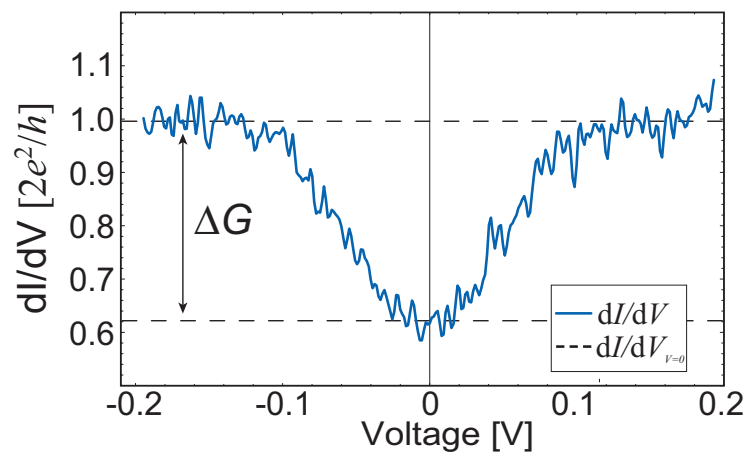
3.2.2 微分コンダクタンス異常

ゼロバイアスコンダクタンス直線からの変化について解析するため、タイプ I とタイプ II の非線形 I - V 特性について微分コンダクタンス (dI/dV) を計算した。Fig.3.18 と Fig.3.19 に計算例を示す。

Fig.3.18(b) が示すゼロバイアスコンダクタンスは $0.62 G_0$ である。微分コンダクタンスはバイアス領域 $-40 \text{ mV} < V < 40 \text{ mV}$ の範囲で一定値になっており、バイアス電圧を増大させると $40 \text{ mV} < |V| < 80 \text{ mV}$ のバイアス領域で増加する。 $|V| > 100 \text{ mV}$ において微分コンダクタンスは飽和し、量子化コンダクタンス $1.0 G_0$ になっている。Fig.3.19(b) が示すゼロバイアスコンダクタンスは $1.4 G_0$ であり、微分コンダクタンスはバイアス電圧 $-40 \text{ mV} < V < 40 \text{ mV}$ の範囲でやはり一定値になる。バイアス電圧を増大させると $40 \text{ mV} < |V| < 80 \text{ mV}$ のバイアス領域で減少する。 $|V| > 100 \text{ mV}$ において微分コンダクタンスは飽和し、量子化コンダクタンス付近 $1.1 G_0$ となる。微分コンダクタンスにおける変化量は図中 ΔG で示しており、それぞれ $\Delta G = 0.4G_0$ 、 $\Delta G = 0.38G_0$ と算出できる。

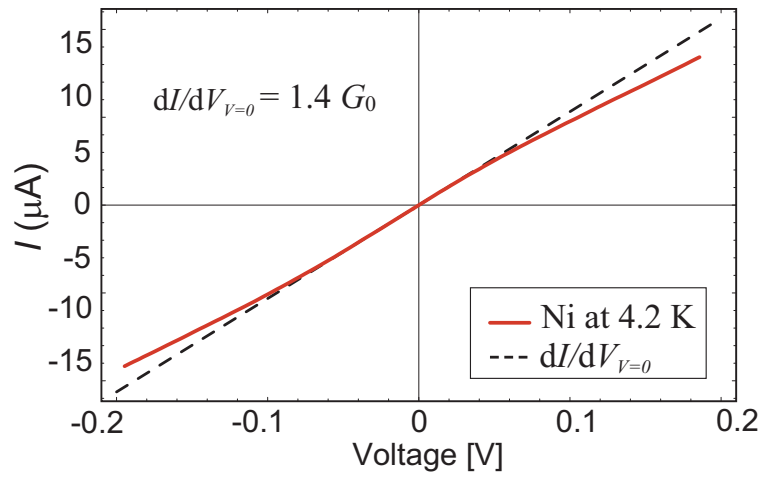


(a) タイプ I の非線形 I - V 特性

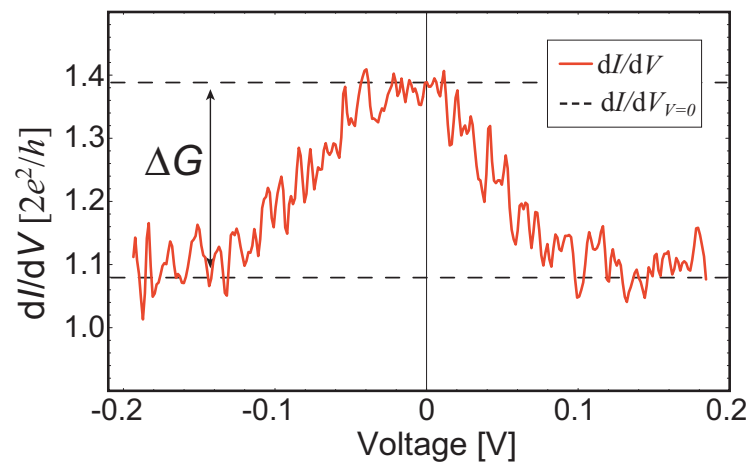


(b) タイプ I の微分コンダクタンス

Fig 3.18: 非線形 I - V 特性と微分コンダクタンス

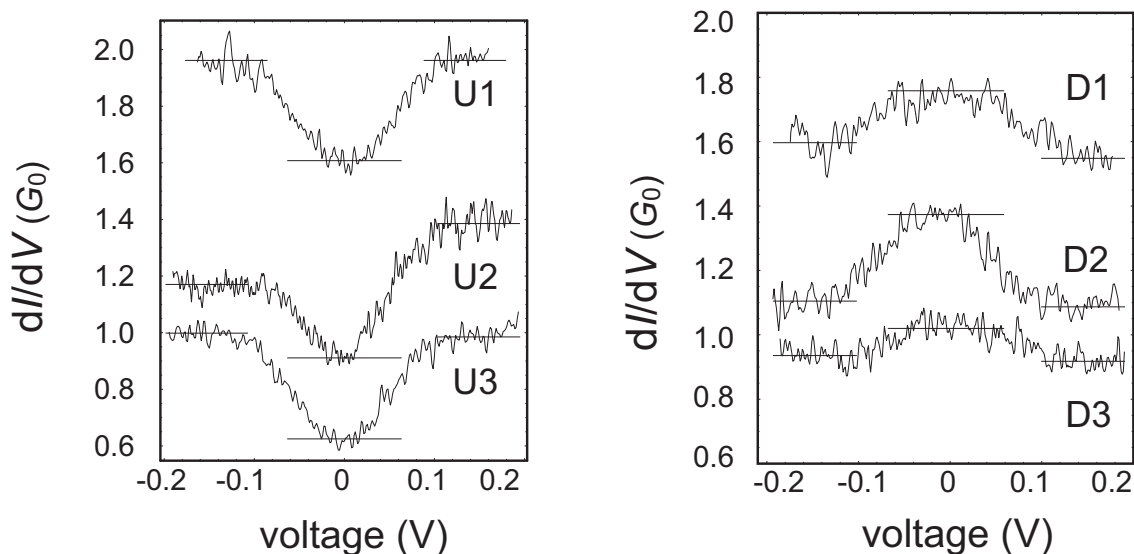


(a) タイプ II の非線形 I - V 特性



(b) タイプ II の微分コンダクタンス

Fig 3.19: 非線形 I - V 特性と微分コンダクタンス



(a) タイプ I の微分コンダクタンス

(b) タイプ II の微分コンダクタンス

Fig 3.20: 低バイアス領域 $|V| < 200$ mV における微分コンダクタンス異常。

低バイアス領域における微分コンダクタンス異常 微分コンダクタンスによって非線形 I - V 特性の特徴が明瞭となった。さらに Fig.3.20 に他の I - V 特性より計算した微分コンダクタンスを示す。Fig.3.20(a) に示すカーブ (U2 とラベル) には、バイアス電圧の極性によって変化量 ΔG が異なる場合がある。また、どちらのタイプの I - V 特性も低バイアス領域 $|V| < 100$ mV において変化がみられる (微分コンダクタンス異常)。バイアス電圧に関して非対称な増加を示した場合も、いずれの極性においても $|V| > 100$ mV の領域で飽和する (Fig.3.20(a))。バイアス電圧のエネルギースケール (40 mV $< |V| < 80$ mV) を粗く温度換算すると、 400 K ~ 800 K と強磁性 Ni の Curie 点 (660 K) と同程度になる点は注目すべきことである。非線形伝導現象が極微細線の磁氣的性質に由来する可能性が高い。

Fig.3.20 ではゼロバイアスコンダクタンス ($dI/dV_{V=0}$)、もしくは飽和コンダクタンス ($dI/dV_{|V|>100}$) が量子化コンダクタンス $0.5 n \times G_0$ (n : integer) に接近した。 I - V 特性はコンダクタンスプラトーにおいて測定しており¹³、バイアス電圧 (250 mV) を印加した状態で出現する。このことはバイアス電圧下の (非平衡状態における) 量子化には $T_i < 1$ の伝導チャンネルが大きな寄与をしており、バイアス電圧の変化によってチャンネルの開閉が頻繁に生じること示す。

¹³この段階では量子化値を意味せず、無作為出現のプラトー状態を指す

3.2.3 非磁性極微細線の線形 I - V 特性

前節までに述べたように、非線形伝導現象は極微細線における伝導チャンネルの増減を反映し、磁気特性が伝導チャンネルに強く影響することがわかってきた。極微細線の磁気特性であることを確定するため、非磁性極微細線における電気伝導特性を調べた。Fig.3.21 に非磁性 Cu 極微細線における I - V 特性を示す。

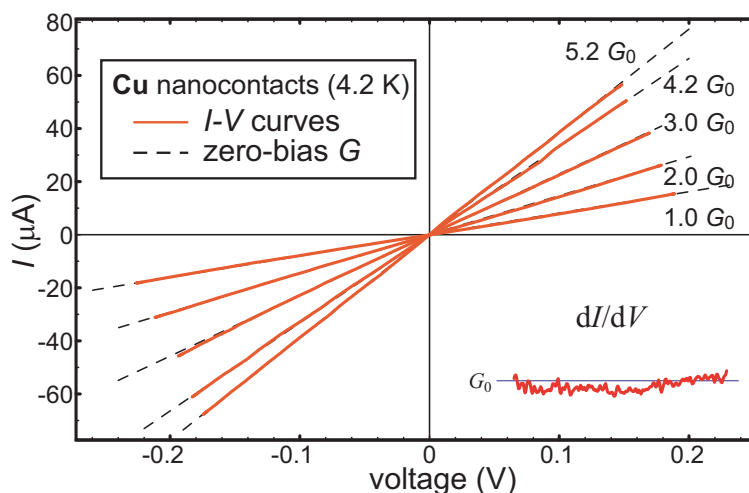
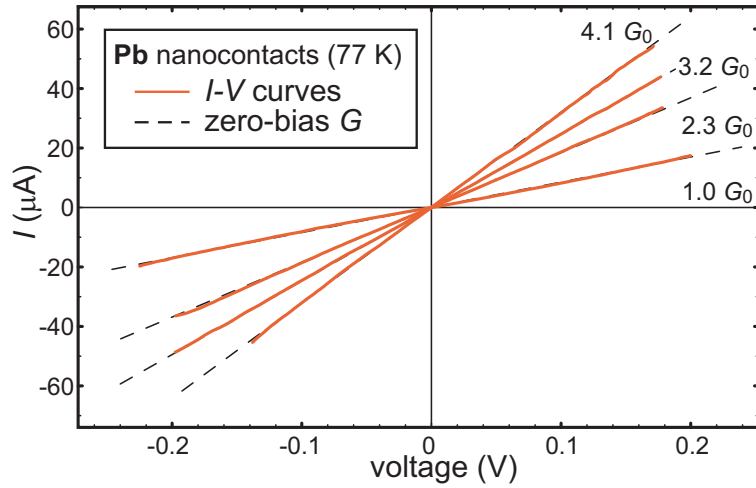


Fig 3.21: Cu 極微細線における線形 I - V 特性。挿入図は (dI/dV) の計算例

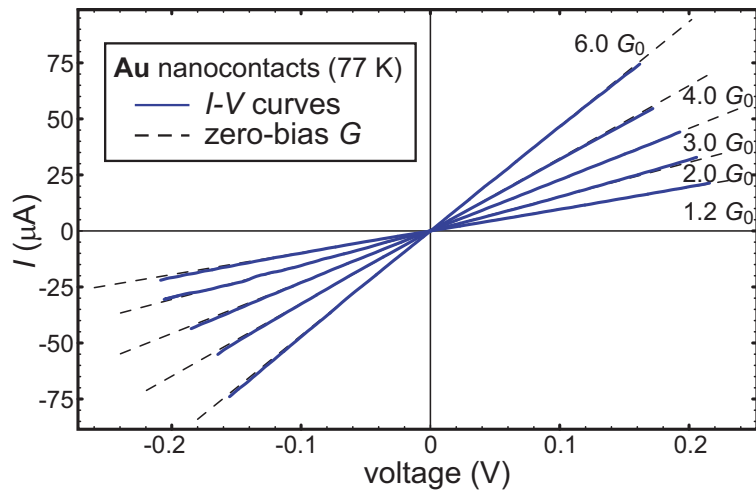
I - V 特性はゼロバイアスコンダクタンス直線に一致し、バイアス電圧領域 $|V| < 250$ mV においては線形である。 dI/dV は G_0 単位に量子化されている。図中に挿入した微分コンダクタンスの計算例から明らかのように、強磁性 Ni 極微細線で観測された非線形性は観測されない。Fig.3.22 には Pb 極微細線と Au 極微細線における電流 - 電圧特性を示す¹⁴。Pb 極微細線、Au 極微細線においても I - V 特性はゼロバイアスコンダクタンス直線に一致し、バイアス電圧領域 $|V| < 250$ mV においては線形である。

以上の結果から、非線形性が極微細線の磁気特性を反映した現象であることが確認された。最外殻電子構造が Ni ($3d^8 4s^2$)、Cu ($3d^{10} 4s^1$)、Pb ($6s^2 6p^2$)、Au ($5d^{10} 6s^1$) であることを考慮すると、これらの結果も 3d 軌道 (スピン依存伝導チャンネル) が伝導特性に強い影響を及ぼすことを支持する。

¹⁴超伝導効果 (Andreev 反射) などの付加的な効果を除くため測定は 77 K において行った



(a) Pb 極微細線の I - V 特性



(b) Au 極微細線の I - V 特性

Fig 3.22: 非磁性極微細線の I - V 特性。

3.2.4 非線形伝導に関する考察

他の報告との相違点 金属極微細線における非線形伝導は、Au 極微細線で最初に報告されている [32]。バイアス電圧 100 mV 程度から非線形伝導が生じ、 I - V 曲線が放物線型に増大するというものである。金属極微細線が擬一次元系であることから、電子間相互作用が強まって生じた Tomonaga-Luttinger 流体の効果ではないかと議論された。一方、大気中で Au 極微細線を作製する場合、突き刺しの深さが浅いと伝導特性がトンネルジャンクション型の I - V 特性になり、超高真空中では線形 I - V 特性になるという報告がなされている [45, 46]。この報告によると、非線形伝導特性は酸素原子の作る伝導チャネルの影響であると見られている。Pt を使った実験においても非線形伝導特性が報告されている。この場合 $V > 200$ mV において、本実験のタイプ II のような非線形伝導が観測され、その原因として d 電子の寄与が議論されている [46]。

高バイアス領域 $V > 100$ mV のみならず低バイアス領域 $V < 20$ mV においても非線形伝導特性の報告がある [31]。バイアス電圧 $V < 20$ mV における非線形性の微分コンダクタンス変化量は 1% 足らずであり、この変化は電子-フォノン相互作用による影響であると議論されている。

本研究で発見した非線形伝導特性は以上の報告とは次の二点から異なる。

1. エネルギースケールが $40 \text{ mV} < |V| < 80 \text{ mV}$ であること。
2. 磁気特性を反映すること
3. 微分コンダクタンス変化量が 1% 以上あること。

電流との結合について 非線形伝導を引き起こす原因として電流 I と結合した現象の可能性がある。Fig.3.20(a) に示した U2 のように、極性反転において非対称となる場合があるためである。Sharvin 公式 (1.22) から U2 のナノワイヤー線幅を 0.3 nm と見積もり、 I - V 曲線が変化するときの電流値を $I \sim 5 \mu\text{A}$ と読み取ると、ナノワイヤーの電流密度 j は

$$j \sim 7 \times 10^{13} \text{ A/m}^2$$

となる。この値は微細加工で作製するナノ磁性体 (線幅 20 nm × 厚さ 20 nm) と比較して実に数千倍にも及ぶ。このため、スピン分極電流 (Spin Current) の効果が無視できなくなる [48]。電流との結合とは高密度スピン分極電流がナノワイヤー近傍の磁気構造 (磁壁) を変えることに対応する。これらは本研究で発見した非線形伝導を次のように説明できる。「電子に対して散乱体として働いていた磁気構造がスピン分極電流により変化し、電子の透過

率が上がる(タイプI)、ある磁気構造から散乱体として働く磁気構造に変わり透過率が下がる(タイプII)、と説明できる。このような効果はマグネティックバルーン効果(Magnetic Balloon Effect: (Fig.3.23 参照))と呼ばれ、完全スピン分極が期待できるハーフメタル酸化物 Fe_3O_4 で報告されている [47]。

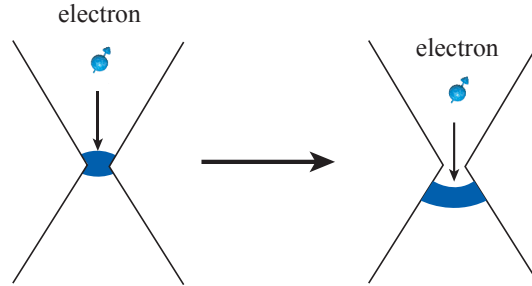


Fig 3.23: マグネティックバルーン効果の模式図。磁壁がスピン偏極電流の圧力を受ける。

さらに高電流密度による発熱の影響が考えられる。極微細線はバリスティック系であり細線本体での発熱機構は存在しない。しかし、エネルギー緩和過程が存在する極微細線と電極の間では発熱する。エネルギースケールが $40 \text{ mV} < |V| < 80 \text{ mV}$ であることは、局所的にキュリー点に達している可能性がある。この考えでは、タイプIIの伝導特性について「高電流密度によって強磁性特有のスピン伝導チャンネルが消滅する」と説明することができる。

電圧との結合について バイアス電圧 V の変化によって、電子系のエネルギー状態が直接左右されている可能性がある。この場合 Landauer-Büttiker 公式 (1.23) に従うと、非線形伝導は伝導チャンネルの開閉 (N_{\uparrow} , N_{\downarrow} の増減) 又は伝導チャンネルの透過率変化 ($T_{i\uparrow}$, $T_{j\downarrow}$ の増減) であると説明できる。Ni 電極のフェルミ面付近の状態密度、Ni 原子の最外殻電子構造から考えて強磁性極微細線における伝導チャンネル数は非磁性極微細線に比べて多い。Down-spin 電子と Up-spin 電子のスピン依存チャンネル間のエネルギー差は実効的に小さく、 $40 \text{ mV} < |V| < 80 \text{ mV}$ 程度のエネルギースケールでも透過率は変化すると考えられる。

以上の考察より、本研究で発見した二種類の非線形伝導を統一的に説明できるのは、スピン分極電流とチャンネルの透過率変化であることがわかる。現時点ではデータ標本数と実験技術の点からこれらの二つを区別することは困難である。また、電圧か電流のどちらかに依存するというマクロな考えを適用することの妥当性が評価できない。Fig.3.20 では非線形伝導は 100 mV の電圧でスケールされているが、原子スケールでは複合的に起きている可能性が高い。

コンダクタンス変化量 ΔG の統計分布 伝導電子は電極の電子状態と極微細線内の原子軌道の影響を受ける。バイアス電圧によって化学ポテンシャルが変化するため、電子は電子状態間のエネルギー差を感じて（高いところから、低いところへ）押し出される。その際通過する原子軌道の内、透過しやすい軌道によって伝導チャンネルが形成される。40 mV < $|V|$ < 80 mV 程度のエネルギースケールでは電極の電子状態は変化しないので、バイアス依存性を敏感に反映するのは透過率 T_i と考えられる。一般に透過率 T_i は入射電子のエネルギー状態 E に依存するため、 ΔG 分布を調べることにより電子エネルギー状態に関する情報が引き出せる可能性がある。

そこでコンダクタンス変化量 ΔG に関してヒストグラム解析を行った。タイプIとタイプIIから計算したヒストグラムを作成し、Fig.3.24 に示す¹⁵。無磁場において ΔG は $0.5G_0$ 程度まで広く分布する。一方、磁場（100 mT）を印加すると、 ΔG は原点付近に集中した分布に変化する。どちらの場合も $\Delta G = 0.5G_0$ 付近に閾値が存在する。ヒストグラムに対して Poisson 分布関数 (3.2) を用いて解析した。

$$P(\Delta G) = b \exp\{-b \cdot a \Delta G\}, \quad (3.2)$$

ここで δ は平均値であり、 a, b はフィッティングパラメータを意味する。

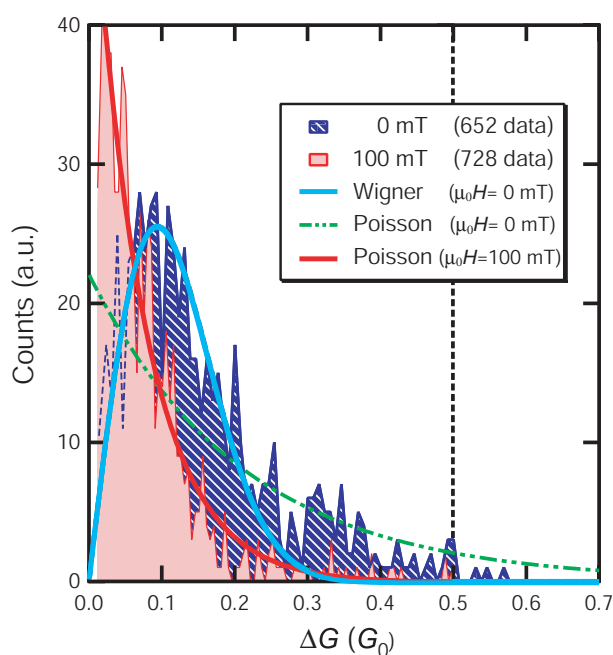


Fig 3.24: コンダクタンス変化量 ΔG のヒストグラム

¹⁵タイプIの出現確率が80%であるため、分布の変化はタイプIの変化をみているといえる。

磁場を印加したときのヒストグラムは Poisson 分布関数でよくフィットできる ($a = 0.128 \pm 0.006$, $b = 55$)。一方、無磁場におけるヒストグラムは Poisson 分布関数の特徴よりは、線形な立ち上がりと Gauss 分布関数的な減衰を持つことがわかる。この特徴は Wigner 分布関数¹⁶

$$P(\Delta G) = \frac{\pi a \Delta G}{2\delta^2} \exp\left\{-\frac{\pi}{4}\left(\frac{a\Delta G}{\delta}\right)^2\right\}, \quad (3.3)$$

とよばれる関数の特徴と一致する¹⁷。Wigner 分布関数 (3.3) によるフィッティングを行った結果、よくフィットした ($a = 0.0297 \pm 0.0013$, $b = 0.127 \pm 0.0056$)。Poisson 分布関数に従うことは現象が全くランダム (酔歩的) であることを示すため、磁場中において ΔG は全くランダムである。一方、無磁場ではランダムではなく電子系に何らかの相関が働くことを示唆している。

強磁性金属はもともと電子相関が強い系であるが、孤立原子系に近い Ni 極微細線では電子相関は強まるはずである。特にフェルミ面近傍に多数の状態を持つ 3d 軌道 (3d 電子チャネル) の影響が考えられる。ここでは不純物の効果を考慮しなかったが、O, S, P 原子など不純物の影響も否定できない。しかし磁場によって統計分布が変化することから、この場合でも例えば O 原子による p 軌道などによってスピン分極チャネルが形成され、そのチャネル間の相関が強いことが考えられる。

¹⁶Gauss 分布関数と同等の指数関数的減衰を持つ関数 [59]

¹⁷この分布関数は不規則系における準位統計理論 (ランダム行列理論) においてよく議論される。準位統計から量子状態に関する情報を引き出そうとする量子準位統計理論では電子エネルギー準位 ΔE を考慮する。空間的に重なり合う状態の間に準位間反発 (相関) が存在する場合、 ΔE に線形に依存する統計分布にもその影響が現れ Wigner 分布関数になるとされている。しかし現在の場合、準位間エネルギー ΔE とコンダクタンス変化 ΔG との対応関係が不明であるため、量子準位統計理論を直接適用するには慎重になる必要がある。

第4章 量子化伝導領域における磁気抵抗効果

本章では磁気抵抗効果の測定結果から、スピン依存伝導の影響を調べる。磁気特性長（磁壁長）にくらべ短い極微細線が示す磁気特性、特にパリストティック磁気抵抗効果（BMR）、量子伝導と磁気構造の関わり合いについて考察する。

4.1 巨大磁気抵抗効果

4.1.1 異常に巨大な磁気抵抗効果

Ni 極微細線における磁気抵抗効果（MR）の測定例を Fig.4.1 に示す。強磁場（37 mT）において $1 G_0$ 量子化値を示すコンダクタンスプラトーを作製し、 $+37 \text{ mT} \rightarrow 0 \text{ mT} \rightarrow -37 \text{ mT} \rightarrow 0 \text{ mT} \rightarrow +37 \text{ mT}$ と外部磁場を掃引したときの変化を示す。 $+37 \text{ mT}$ から減磁し磁場方向が反転して -5 mT に達したときに、コンダクタンスが $1 G_0$ から $26 G_0$ まで急激に増大する。同様に -37 mT から $+5 \text{ mT}$ に到達すると、再びコンダクタンスが増大する。

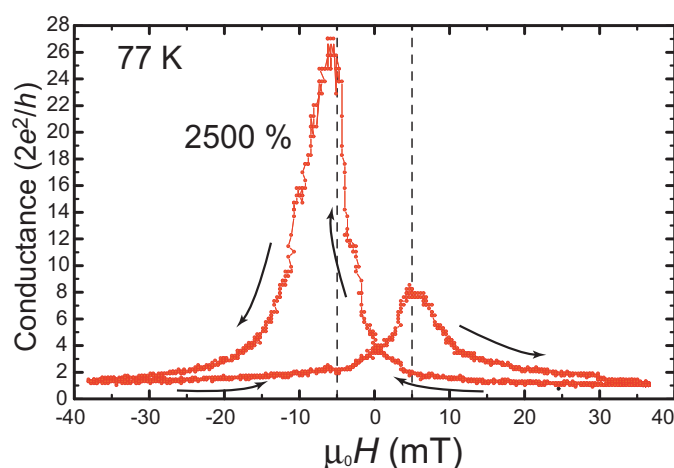


Fig 4.1: 異常に巨大な磁気抵抗効果 ($T = 77 \text{ K}$, $V = 160 \text{ mV}$)。MR 比にして 2500%

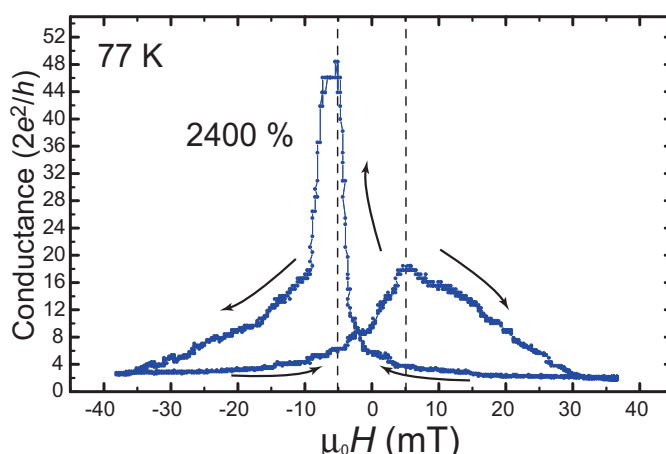


Fig 4.2: 異常に巨大な磁気抵抗効果 ($T = 77 \text{ K}$, $V = 160 \text{ mV}$)。MR 比にして 2400%

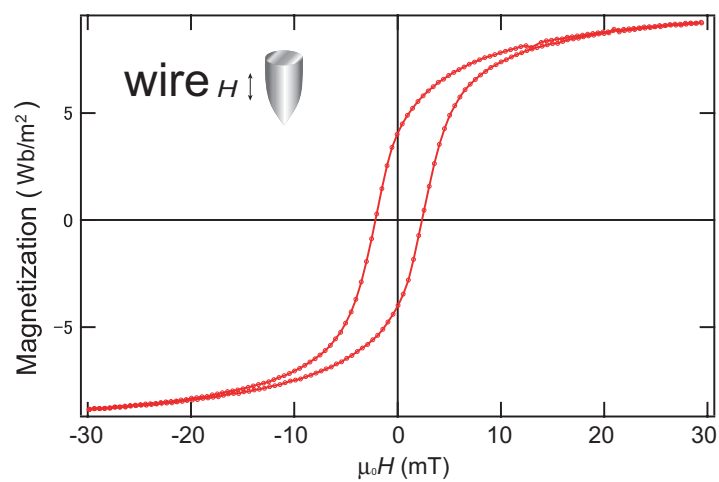
特徴について 磁気抵抗比 (MR) に換算して 2500 % という '異常' に巨大な磁気抵抗効果である。Fig.4.2 の磁気抵抗効果も同様に $\text{MR} = 2400 \%$ を示す。なおこの系では外部磁場印加と極微細線近傍磁化の平行、反平行状態の関係が明確でないため、MR 比 (正確には磁気コンダクタンス比) の定義として次式を用いた。

$$\text{MR} \equiv \frac{G_{\text{max}} - G_{\text{ini}}}{G_{\text{ini}}} \equiv \frac{\Delta G}{G_{\text{ini}}} \times 100(\%) \quad (4.1)$$

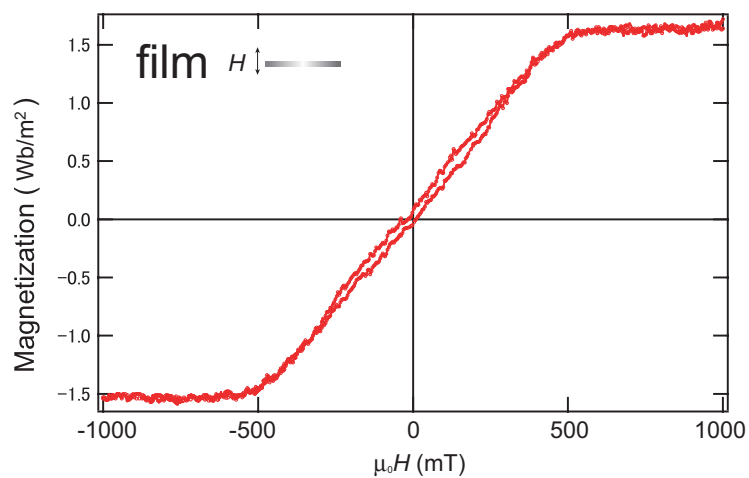
ここで G_{ini} は初期コンダクタンス値、 G_{max} は最大コンダクタンス値である。

実験的に、これらの '異常' な巨大磁気抵抗効果は G_{ini} が量子化値を持つときに観測できる場合があった。Fig.4.1 では $G_{\text{ini}} = 1 G_0$ であり Fig.4.2 では $G_{\text{ini}} = 2 G_0$ である。これらにはコンダクタンスが外部磁場を掃引した後も同じ量子化値であること、磁気抵抗曲線が外部磁場に対して非対称になる特徴がある。前者は量子化伝導との関係を示唆しており、極微細線が切断されていないことを示す。後者は Ni 線と Ni 膜という非対称な試料配置、または極微細線形状の非対称性を反映したものと考えられる。またバルク Ni 線の飽和磁場近傍 ($\pm 5 \text{ mT}$) で極大値を示すことも特徴にあげられる。測定に用いた Ni 線 ($0.1 \text{ mm}\phi$) と Ni 膜 ($t = 150 \text{ nm}$) のヒステリシス曲線は Fig.4.3 (74 ページ) に示す。

再現性について このような巨大 MR は出現確率がきわめて低い。測定技術の問題もあり、現在のところ再現性は確認できない。



(a) Ni 線の $M-H$ 曲線



(b) Ni 膜の $M-H$ 曲線

Fig 4.3: 実験試料のヒステリシス曲線 ($M-H$ 曲線)

4.1.2 典型的な巨大磁気抵抗効果

特徴について 巨大磁気抵抗効果は（磁場中において）量子化コンダクタンスを示した極微細線特有の現象ではない。Ni 極微細線では $G_{ini} \neq 0.5n \times G_0$ (n : integer) であっても、磁気抵抗比は数十% に及ぶ。Fig.4.4 に典型的に観測される巨大磁気抵抗効果を示す。磁気抵抗曲線の G_{ini} はそれぞれ $1.3 G_0$ 、 $1.8 G_0$ 、 $2.8 G_0$ 、 $3.9 G_0$ であり、MR 比は 38%、40%、24%、18% である。統計的にコンダクタンス値が低いと（したがって極微細線が細い方が）MR 比が大きい、という特徴がある。また、これらの磁気抵抗曲線は Fig.4.1、Fig.4.2 の磁気抵抗曲線の場合と同様、印加磁場 ± 5 mT で極大値を示した。

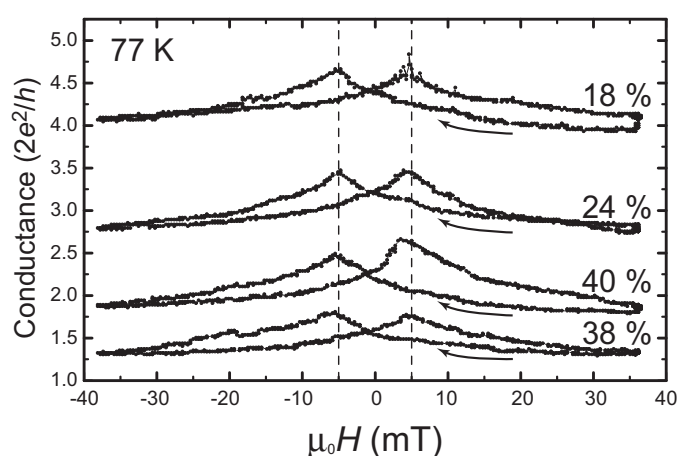


Fig 4.4: 典型的な巨大磁気抵抗効果 ($T = 77$ K, $V = 160$ mV)。 $G_{ini} \neq 0.5n \times G_0$ (n : integer) においても MR $\sim 40\%$ の巨大磁気抵抗効果が生じる。

再現性について MR \sim 数十% 程度の磁気抵抗比が得られる場合は再現性が良く、極微細線が切断されるまでは同一の磁気抵抗曲線を示した¹。

4.1.3 不連続な変化を含む磁気抵抗効果

連続的に変化する磁気抵抗曲線に不連続変化が重畳する場合がある。Fig.4.2 に示す磁気抵抗曲線は、+38 mT からの減磁過程 I において +5 mT で不連続なコンダクタンス変化を示し、続いて領域 II の -15 mT、領域 III の 0 mT、領域 IV の +10 mT で同等の不連続変化を示す。変化量 ΔG は $0.5 G_0$ であり、1 スピン伝導チャネル分の伝導度が増加したことを意味する。

¹ 金属線と金属膜を用いた本実験系では、MR 符号 (式 4.1) は常に正であった。

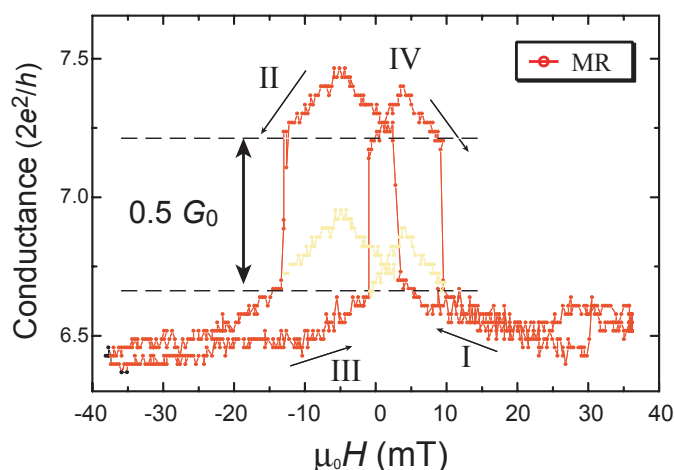


Fig.4.5: 不連続な変化を示す MR 曲線。黄色で示した曲線は、不連続変化後の曲線を $0.5 G_0$ だけ下方に平行移動させた曲線。

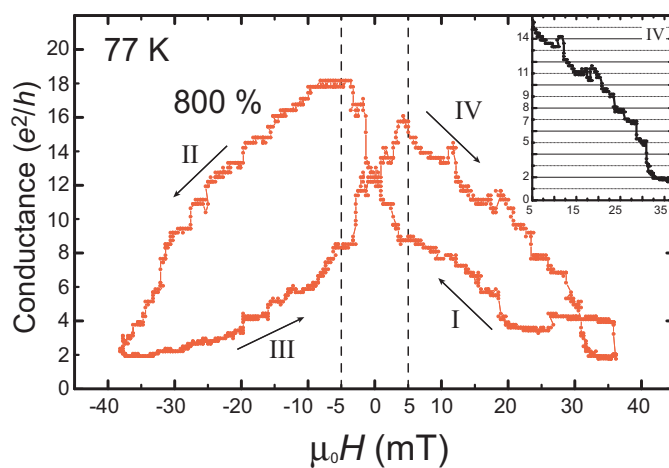
不連続変化後の曲率は変化前の曲率と同じである。Fig.4.2 には不連続変化分 $\Delta G = 0.5 G_0$ だけ平行移動させた曲線もプロットしてあるが、両者は一致する。不連続変化のある磁気抵抗曲線では $MR = 15.6\%$ であるのに対し、不連続変化が生じないと仮定した磁気抵抗曲線では $MR = 7.8\%$ と半減する。この結果は、量子化チャネルの開閉によって巨大磁気抵抗効果が生じる可能性を示す。

再現性について このような変化は観測確率が低く、再現性は確認できない。

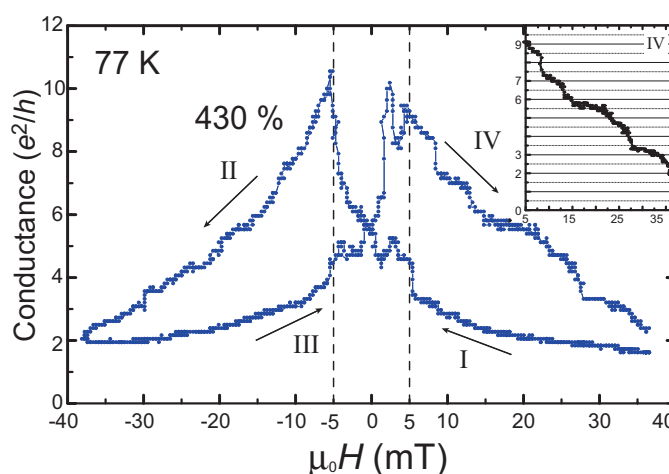
4.2 磁場印加によるコンダクタンス量子化

4.2.1 コンダクタンス量子化

前節では、Ni 極微細線における巨大磁気抵抗効果の特徴と再現状況を述べてきた。ほとんどの磁気抵抗曲線は外部磁場に対して連続的に変化しており、極微細線が切断された形跡は存在しない。4.1.3 節で示したような不連続変化が存在しても、連続的な曲線に不連続性が重畳した曲線形状であった。これらの巨大磁気抵抗効果がどのような機構によって引き起こされているのか、明確にはわからない。本節では、量子化コンダクタンスとの関係が最も明瞭に現れた測定結果を示し、伝導機構を考察する。



(a) MR= 800%を示した磁気抵抗曲線



(b) MR= 430%を示した磁気抵抗曲線

Fig 4.6: 外部磁場印加によるコンダクタンス量子化。初期コンダクタンス $G_{ini} = 1G_0$ ($T = 77$ K, $V = 160$ mV)。磁場印加過程に I-IV とラベルし、過程 IV を挿入図に拡大した。外部磁場印加によって階段状の変化が生じている。

特徴について Fig.4.6 に量子化値 $1.0 G_0$ 付近における巨大磁気抵抗効果を示す²。Fig.4.6(a) ではコンダクタンスが $1 G_0$ から $9 G_0$ へ増加し、 $MR=800\%$ を示した。同様に Fig.4.6(b) では外部磁場印加によって $1 G_0$ から $5.3 G_0$ へ増加し、 $MR=430\%$ を示した。これらの磁気抵抗曲線は $\pm 5 \text{ mT}$ で極大値を示しており、連続的に変化せず階段状に変化する。特徴的に、階段状のステップが量子化コンダクタンス $G = 0.5n \times G_0 (n: \text{integer})$ に位置する。

階段状変化について それぞれの磁場印加過程 IV ($0 \text{ mT} \rightarrow +37 \text{ mT}$) を拡大して挿入図に示した。Fig.4.6(a) では量子化コンダクタンス $G = 0.5n \times G_0 (n: \text{integer})$ 付近で不連続な減少、階段状のステップを示しており、コンダクタンスは

$$5.5G_0 \rightarrow 4.0G_0 \rightarrow 3.5G_0 \rightarrow 2.5G_0 \rightarrow 1.0G_0$$

と変化する。Fig.4.6(b) においても

$$4.5G_0 \rightarrow 3.5G_0 \rightarrow 2.8G_0 \rightarrow 2.4G_0 \rightarrow 1.5G_0$$

なるコンダクタンス変化を示す。明らかにこれは外部磁場印加によって生じたコンダクタンス量子化と考えられる。

コンダクタンス量子化であることを確かめるため、Fig.4.6(a) における磁場印加過程 I-IV についてヒストグラム解析を行った。Fig.4.7 に結果を示す。各磁場印加過程 I-IV に対応するヒストグラム Fig.4.7 (a) - (d) はいずれも、量子化コンダクタンス $G = 0.5n \times G_0 (n: \text{integer})$ に強いピークを示す。したがって、外部磁場印加によってコンダクタンス量子化が生じたことがわかった。

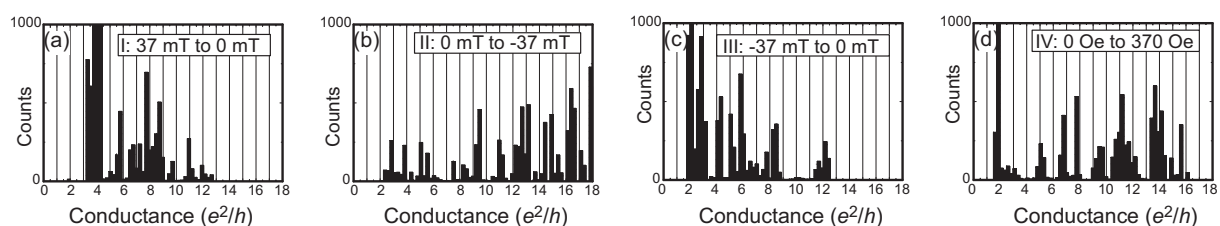


Fig.4.7: 磁場印加過程 I-IV に対するコンダクタンスヒストグラム。ヒストグラムピークが量子化値に位置する。

²Fig.4.6 の縦軸は $0.5 G_0 = e^2/h$ でスケールしてある

極微細線形状の変化 Landauer-Büttiker によるバリスティック伝導の理論的枠組みに従えば、極微細線における伝導チャンネルの数を決めているのは線幅（断面積）である。したがって、コンダクタンス量子化は外部磁場印加によって線幅が変化したことを意味する。巨大磁気抵抗効果の一因として極微細線の形状変化が存在することが明らかになった。

この原因として磁気弾性効果（磁歪: Magnetostriction）があげられる。本実験系ではNi線とNi膜を使用しているが、これまでみてきたようにNi線の飽和磁場近傍が重要な寄与をしており、Ni線の寄与が大きいと考えられる³。Niの磁歪定数は飽和磁場中で $\lambda_{Ni} \sim -3 \times 10^{-5}$ であり、負の値となる。したがって磁場が印加された状態ではNi線は縮まっており、減磁過程では伸長することが予想される⁴。このとき伸びる長さは

$$\Delta l \sim \lambda_{Ni} l \quad (4.2)$$

によって計算でき、実験で用いたNi線の長さ4 mmよりおよそ $\Delta l \sim 1200 \text{ \AA}$ と見積もられる。本実験系において「Ni線が37 mT磁場中で縮んでおり、0.0 mT磁場付近に戻すと伸びる」とすると、Ni線を突き刺した時と同様に極微細線の線幅が増大する。1 G_0 の極微細線の線幅はSharvin公式から見積もっておよそ一原子鎖に対応するため、1200 Åもの変位量なら巨大な磁気抵抗効果を説明できる。

このような形状変化の原因として、他に静磁力による影響も考えられている [56]。ただし、実験系が異なるため主要な寄与を果たすかどうかはわからない。

注意すべき点 極微細線の形状が変化する場合があるが、コンダクタンス量子化を確認して初めて極微細線の形状が変化したことが明らかになるのであり、第4.1節で示した巨大磁気抵抗効果の全てが形状変化によって生じたとはいえない。

³Ni膜の厚さは150 nmであり、バルク効果とは異なると考えられる。

⁴静磁場では一定の値となるので、伸縮は生じない。

4.2.2 巨大磁気抵抗効果に関する考察

第4.2節により、形状変化によって巨大磁気抵抗効果が生じる場合があることが明らかになった。本節では、第4.1節で示した巨大磁気抵抗効果すべてが形状変化によるものが議論する。

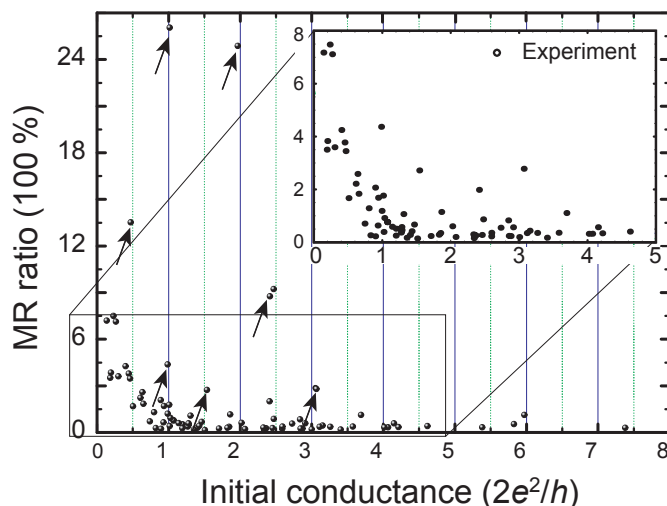


Fig 4.8: MR 比の統計分布

すべてのタイプの磁気抵抗曲線から MR 比を算出し、その統計分布を Fig.4.8 に示す。Fig.4.8 挿入図には MR ~ 200% 付近を拡大表示した。統計分布の特徴として G_{ini} が小さいほど MR 比が増加する。また、図中矢印で示したように巨大 MR はグリッド線上に位置し、 $MR < 800\%$ の領域では MR 比が振動するよう見える。

形状変化による解釈 磁歪などの形状変化によって説明できることは

1. 巨大なコンダクタンス変化
2. MR 比の符号

である。式 (4.2) で見積もった $\Delta l \sim 1200 \text{ \AA}$ が関与するのであれば、Fig.4.8 に示す MR 比の大きさは説明がつく、また MR 比の符号も矛盾しない。ただし、形状変化によっては Fig.4.8 に示す G_{ini} との関係が不明である。また観測確率の低さに関して不明な点がある。磁歪が寄与するのであれば特定のコンダクタンス値で MR 比が巨大化する必要はなく、観測確率は高くなるはずである。このことは Fig.4.9 によって理解できる。Fig.4.9 の縦軸は ΔG であり、平均値は $1.5 G_0$ である。

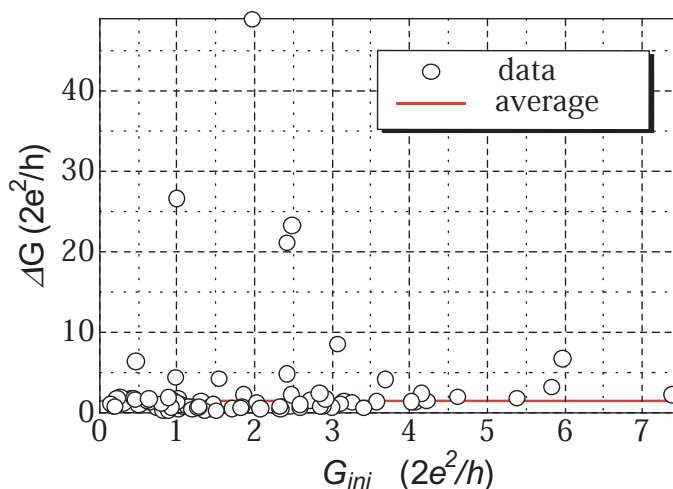
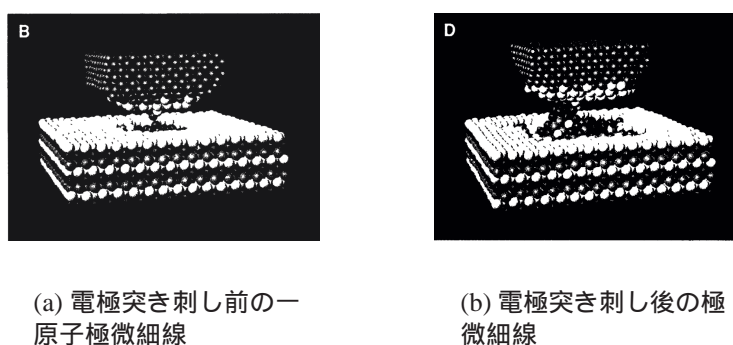


Fig 4.9: ΔG と G_{ini} の関係

G_{ini} が量子化値 $0.5n \times G_0$ (n : integer) にあるときに増大する様子がわかる。磁歪などの形状変化が支配的であると仮定すると、それは平均値を与えるものと考えるのが妥当であろう。Fig.4.1 において観測された $1.0G_0 \rightarrow 26 G_0 \rightarrow 1.0G_0$ の変化についても、形状変化では断面直径が 4.2 \AA (2 原子相当) から 21 \AA (7 原子相当) まで変化したことに対応する。ブレークジャンクション法による極微細線作製では、Fig.4.10 のようにすぐ近傍にバルク表面が存在するため、極微変位でさえも瞬時にバルクの接触になってしまうことが理解できよう⁵。 G_{ini} に対する依存性などを説明することはできない。



(a) 電極突き刺し前の一原子極微細線

(b) 電極突き刺し後の極微細線

Fig 4.10: Break-Junction 法の過程 : Ref[34] 分子動力学による原子配置計算

⁵数 nm 程度のピエゾ駆動に対して $1.0 G_0$ 状態と $5.0 G_0$ 状態を比較すると、 $5.0 G_0$ 状態の方がバルクの接触になりやすくコンダクタンス増加が著しかった。

透過率変化による解釈 伝導チャネルの透過率変化によって説明できるのは

1. 量子化値 $0.5n \times G_0$ (n : integer) との関係

である。

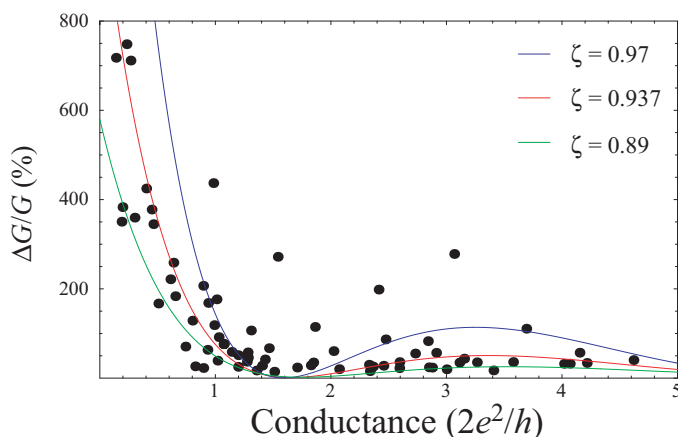


Fig 4.11: 電子散乱理論による解析 ($\beta=5$)

磁壁による電子散乱理論 (1.26) では "磁気コンダクタンス" はスピン分極率を ζ として、

$$\frac{\Delta G}{G} = \frac{\pi^2}{4} \frac{\zeta^2}{1-\zeta^2} F(\zeta, \lambda) \quad (4.3)$$

与えられる。パラメータはスピン分極率 ζ と伝導チャネル数 β である⁶[12, 22, 39]。線形磁壁 (Linear Wall; 式 (1.25)) を用いて解析すると、Fig.4.11 のようにフィッティングできる。MR が 300 % を超える数点を残してほぼ再現できていることがわかる。また半古典論に基づく理論では MR がコンダクタンスに関して振動することが予想されている [57]。

しかし実験結果を解釈するには MR の符号が不明となる。磁気異方性などを無視すれば、磁場を印加すると極微細線近傍の磁化は平行にそろはずである。つまり強磁場でコンダクタンスが増加していなければならず、これは本実験で得られた MR 符号と矛盾する。

この矛盾点に関してはもともと極微細線近傍の磁化反転過程が不明であることが大きい。電子線蒸着によって作成した金属膜に関しては、面に垂直な結晶磁気異方性が誘導されている可能性も否定できない。また、極微細線の磁気構造はバルク磁壁と異なる構造となることが理論的に報告されている [36]。数 μm 程度のくびれを作ったナノ試料では、くびれ部において複雑な磁化配置になることも報告された [35]。以上をふまえると、理論の妥当

⁶極微細線の半径、したがって G を定める

性を確認するには極微細線近傍の磁気構造（磁化反転過程）を突き止めなければならない。しかし、現時点では原子スケールの極微細線を長時間保ったうえで、原子スケールの分解能で観察を行うのは困難である。

このように形状変形と透過率変化について考察したが、実験的に困難であるためどちらが原因なのか特定はできていない。あるいはどちらも複合的に起こっている可能性がある。極微細線の磁気抵抗効果には複数のメカニズムが重畳したと考えるべきで、そのうちの一つのメカニズム（形状変化）をコンダクタンス量子化というかたちで捉えることに成功したといえる。

第5章 電子輸送シミュレーション

極微細線における量子伝導効果に対しては、量子力学に立脚した第一原理計算を適用することができる。この章では、第一原理計算（密度汎関数法、非平衡グリーン関数法）を用いた電子輸送研究を展開する¹。

5.1 単純な極微細線

5.1.1 原子鎖構造と電極の決定

単純な近似では、金属極微細線を2端子一次元系と見なすことができるので、シミュレーションモデルをc方向につながるNi一次元鎖とした（Fig.5.1）。一原子鎖構造を決定する

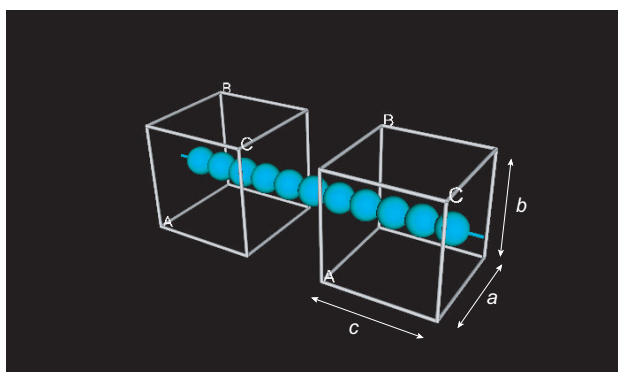


Fig 5.1: Ni 一原子鎖モデル。四角く囲われた部分が電極

ために、系のエネルギーと電極における一原子の磁気モーメントを指標とする。交換ポテンシャルにSGGAとLSDAを選択し、格子定数を変数として計算した結果をFig.5.3およびFig.5.2に示す²。

¹プログラムはATK2.0を使用。密度汎関数法と非平衡グリーン関数の基本原理は付録に示す。

²電極におけるc方向のk点サンプリング依存性も示してある。SGGAとLSDAともにサンプリング数400点で収束し、400点と600点では差がない。

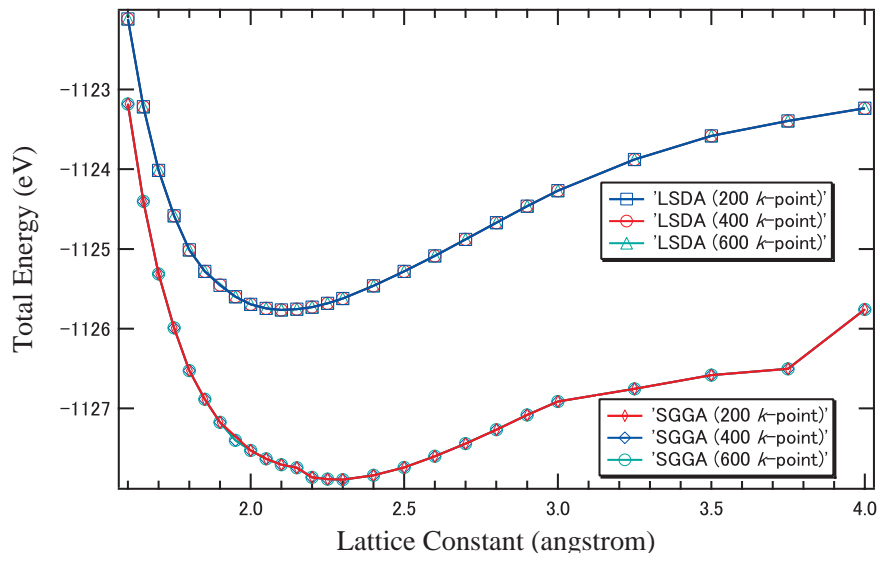


Fig 5.2: 系のエネルギー

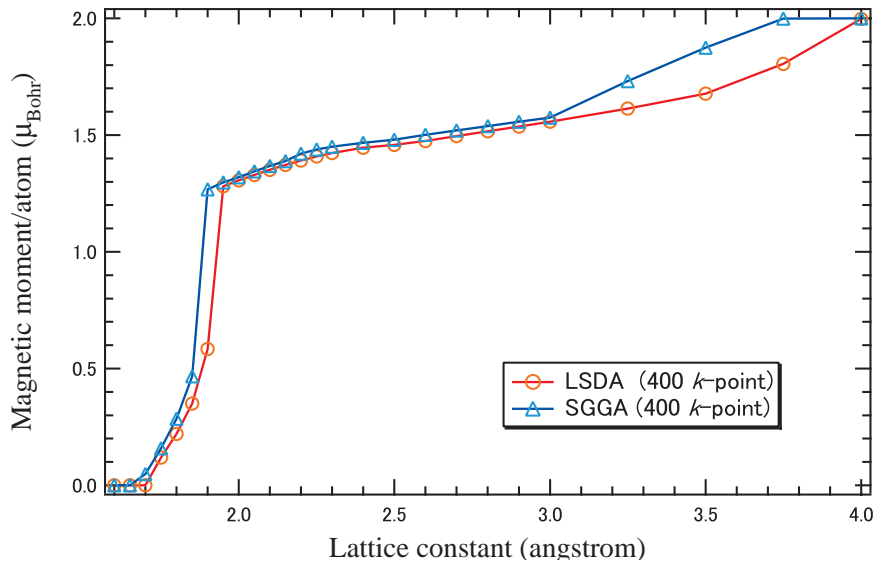


Fig 5.3: 一原子あたりの磁気モーメント

Fig.5.2 より系のエネルギー最安定状態を与える格子定数として、

$$\text{SGGA} : 2.28 \text{ \AA}$$

$$\text{LSDA} : 2.12 \text{ \AA}$$

を決定した³。これらの値は自然状態の値 1.76 Åより長い。しかし金属極微細線の原子間隔はバルクの格子定数より長くなるのが、透過型電子線顕微鏡を使った実験で確認されており [18]、定性的に一致する。Fig.5.3 より、磁気モーメントは $1.4 \mu_B$ 程度であり強磁性状態を記述できることがわかる。バルク Ni の一原子あたりの磁気モーメント $0.6 \mu_B$ に比べて大きい、一次元系では Ni 原子は孤立原子に近い状況になるため、物理的に矛盾はしない。

交換ポテンシャル SGGA、LSDA による一次元電極のバンド計算の結果を Fig.5.4 および Fig.5.5 に示す。SGGA ではフェルミ面上 ($E=0$) には、

$$\text{up-spin} : 1 \text{ channel}$$

$$\text{down-spin} : 4 \text{ channel}$$

が存在する。down-spin は Fig.5.4(b) 中、4 および 5 とラベルされたバンドがそれぞれ二度ずつフェルミ面と交わっている。down-spin 電子の有効質量 (フェルミ面と交わるバンドの傾き: $(m_{ij}^*)^{-1} = \partial^2 E / \partial k_i \partial k_j$) をバンドから見積もると、s-like 電子 (軽い) が一つと、d-like 電子 (重い) が三つ存在している。一方、LSDA ではフェルミ面上 ($E=0$) には、

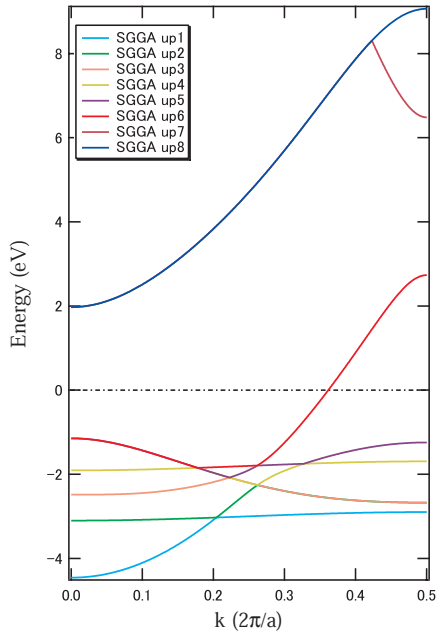
$$\text{up-spin} : 1 \text{ channel}$$

$$\text{down-spin} : 6 \text{ channel}$$

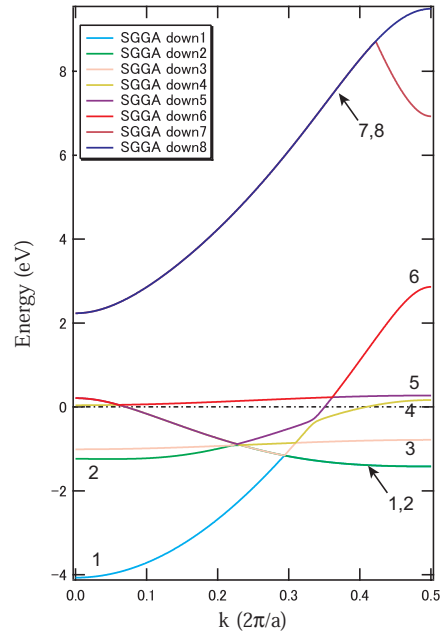
が存在する (Fig.5.5(b))。3 と 4 とラベルされたバンドがそれぞれ一度フェルミ面と交わり、5 および 6 とラベルされたバンドがそれぞれ二度ずつフェルミ面と交わっている。s-like 電子 (軽い) が一つと、d-like 電子 (重い) が五つ存在している。

LSDA 近似では密度勾配を取り入れていないため、最外殻電子が局在する傾向にある。このシミュレーションでは極微細線では最外殻 3d 電子が全て伝導に寄与することが示された。一方、SGGA 近似では密度勾配を取り入れており伝導電子の遍歴性を良く記述できており、やはり極微細線では d-like 電子が伝導に寄与することを示す。極微細線における 3d 電子は "局在" と "遍歴" の中間の性質を示すと考えられ、どちらの近似も妥当性がある。

³この計算プログラムでは LS 相互作用は無視されおり、電極は一様に磁化された場合である

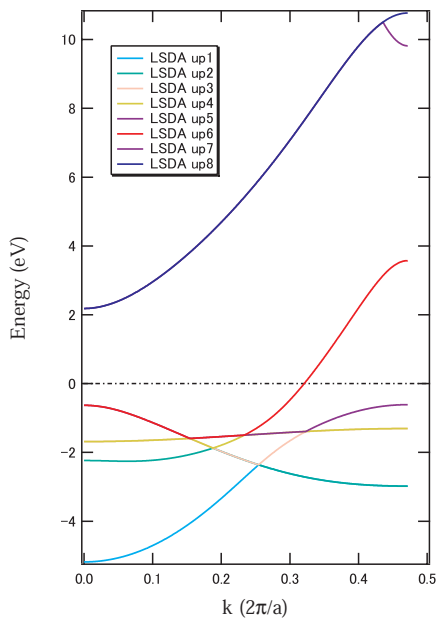


(a) up-spin Band

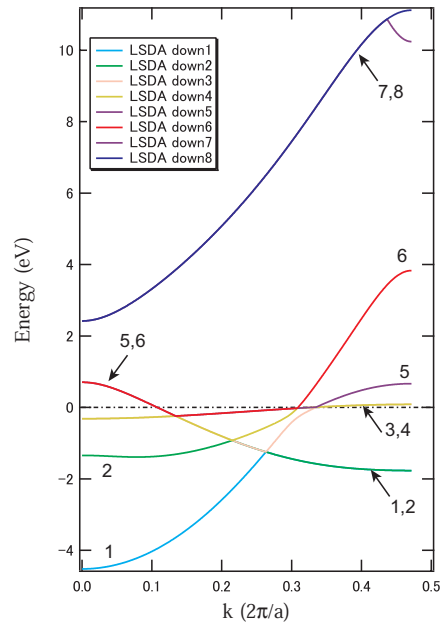


(b) down-spin Band

Fig 5.4: 一原子鎖のバンド構造 (交換汎関数 : SGGA)



(a) up-spin Band



(b) down-spin Band

Fig 5.5: 一原子鎖のバンド構造 (交換汎関数 : LSDA)

5.1.2 電子輸送特性（一様に磁化している強磁性配置の場合）

一原子構造における電流-電圧 (I - V) 特性を計算するために用いた2端子系 (2 probe system) モデルを示す。Fig.5.1 のように配置した

電極計算モデル

- ユニットセルに Ni4 原子を配置。
- セルサイズ⁴
SGGA: $a = b = c = 2.28 \times 4 = 9.12 \text{ \AA}$
LSDA: $a = b = c = 2.12 \times 4 = 8.48 \text{ \AA}$
- 基底関数 DZP (double zeta polarization)

中央領域計算モデル

- Ni3 原子を配置
- Ni 原子間距離 2.28 \AA (SGGA), 2.12 \AA (LSDA)
- 基底関数 DZP (double zeta polarization)

中央領域 Ni3 原子に電圧差を印加する。バイアス電圧を $-1.20 \text{ V} < V < 1.20 \text{ V}$ と変化させて透過率を計算し、極微細線を流れる電流およびコンダクタンスを求めた。なお、計算では up-spin 電子の寄与と down-spin 電子の寄与に分けている。シミュレーション結果を Fig.5.6–Fig.5.9 に示す。

シミュレーション結果

- Fig.5.6 交換ポテンシャル SGGA、スピン自由度毎 (up-spin,down-spin) の電流
- Fig.5.7 交換ポテンシャル SGGA、極微細線を流れる全電流
- Fig.5.8 交換ポテンシャル LSDA、スピン自由度毎 (up-spin,down-spin) の電流
- Fig.5.9 交換ポテンシャル LSDA、極微細線を流れる全電流
- Fig.5.10 交換ポテンシャル SGGA、スピン自由度毎のコンダクタンス
- Fig.5.11 交換ポテンシャル LSDA、スピン自由度毎のコンダクタンス

⁴電極には a , b 方向に周期境界条件を課すので、ユニットセル間の相互作用 (結合) によって系のエネルギーが増加しないように定める。

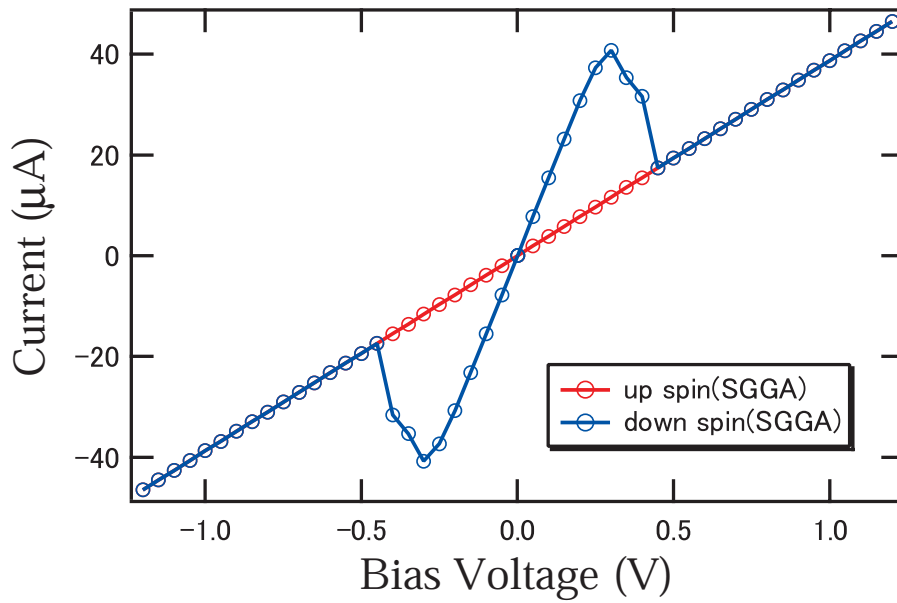


Fig 5.6: up-spin 電子と down-spin 電子の電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

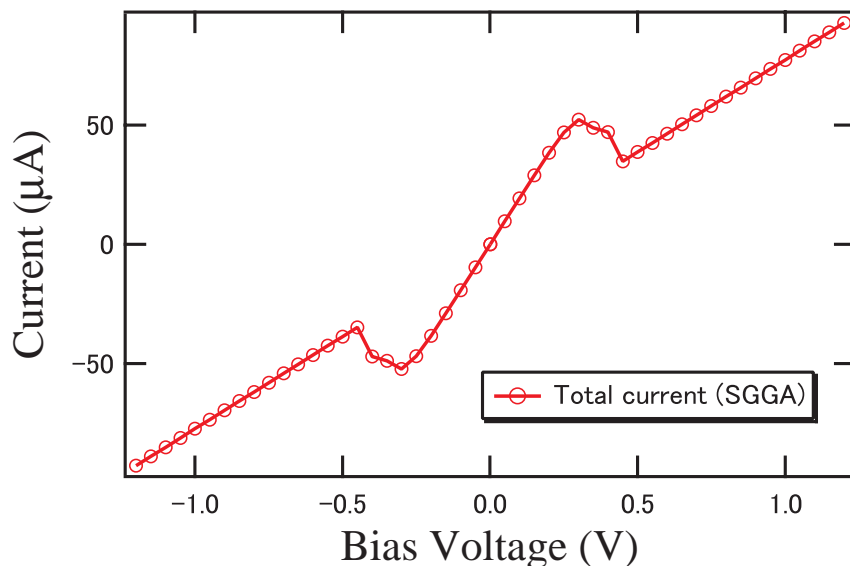


Fig 5.7: 両キャリアによる電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

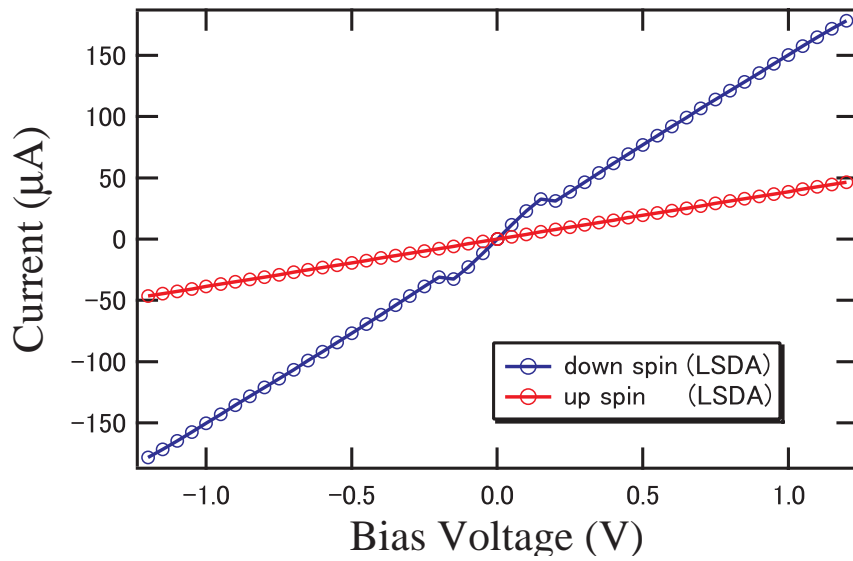


Fig 5.8: up-spin 電子と down-spin 電子の電流電圧特性 (交換汎関数 : LSDA)

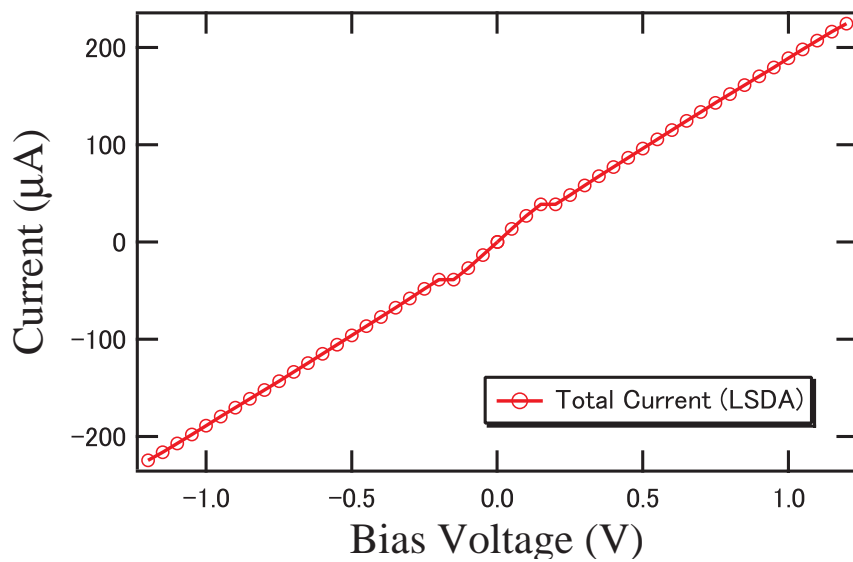


Fig 5.9: 両キャリアによる電流電圧特性 (交換汎関数 : LSDA)

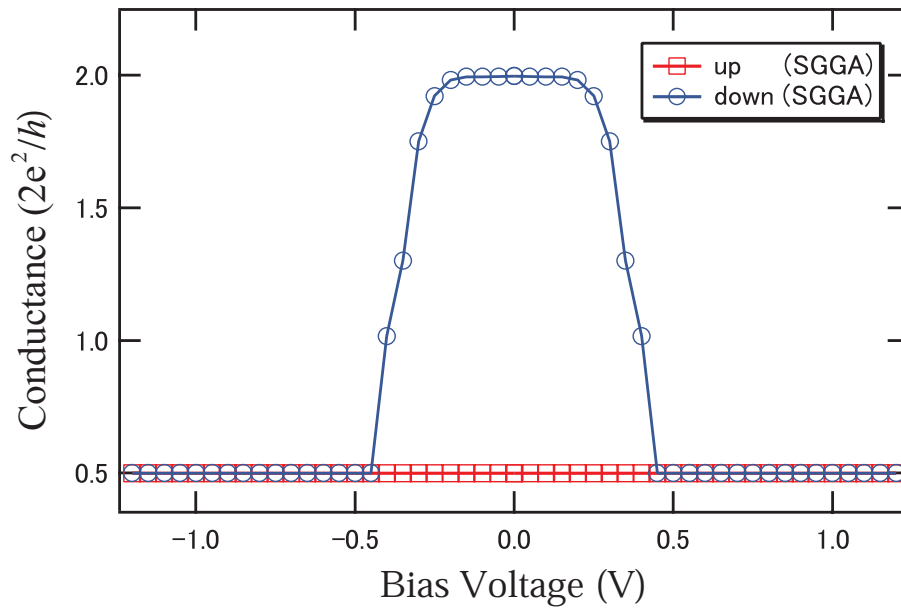


Fig 5.10: コンダクタンスのバイアス依存性 (交換汎関数 : SGGA)

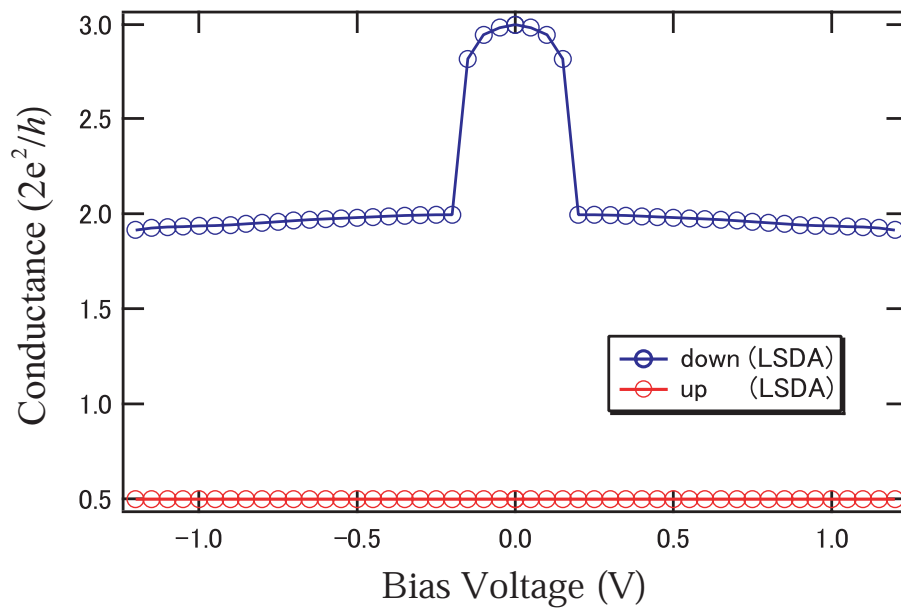


Fig 5.11: コンダクタンスのバイアス依存性 (交換汎関数 : LSDA)

5.1.3 非線形伝導特性の存在

Fig.5.6 から Fig.5.9 より、up-spin 電子は線形 I - V 特性を示すことがわかる。電流値も等価であり交換ポテンシャルによる違いはない。一方 down-spin 電子に対する I - V 特性では低バイアス領域 $|V| < 500$ mV で電流値が大きく変化しており、異常性が見られる。低バイアス領域における異常性はどちらの交換ポテンシャルにも現れているので、近似法の影響ではない。down-spin の特徴的振る舞いによって極微細線を流れる全電流にも変化が観測されている。

極微細線長に依存しないこと 中央領域の Ni を 9 原子に増やしたシミュレーションでも同様の結果を示していた。これらのシミュレーションでは電極から同じ周期構造のため、伝導方向の並進対称性が崩れないことを意味する (Fig.5.12)。等方的な s 軌道に対してはバンド間散乱などが無視できるものと考えられる。

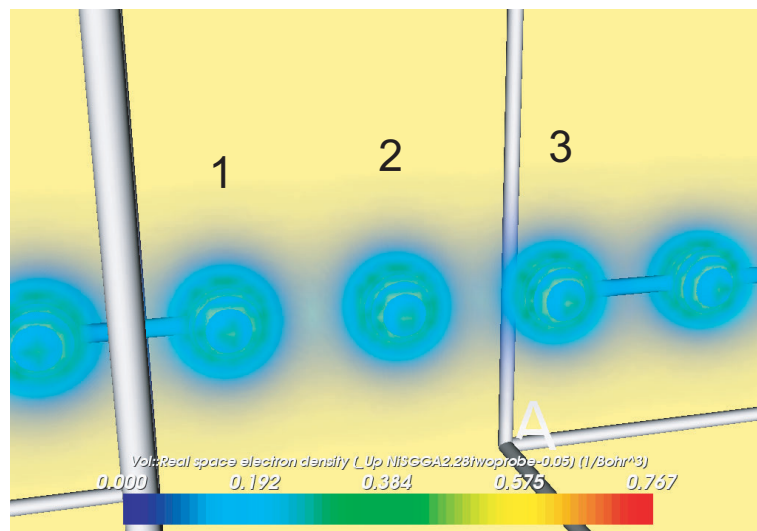


Fig 5.12: up-spin の実空間電子密度 ($V=0.05$ V 交換汎関数 : SGGA)

コンダクタンス異常 交換ポテンシャルの差は、電流の大きさと異常性が存在するバイアス電圧に現れる。これを Fig.5.10 および Fig.5.11 に示すコンダクタンスのバイアス依存性によって明確にした。up-spin 電子のゼロバイアスコンダクタンスは $0.5 G_0$ (= 1 スピンチャネル分) であり、バイアス依存性を示していない。この点は両近似法に共通であり、 s 電子系はバイアス依存性を示さないことがわかる。一方、down-spin 電子のゼロバイアスコンダ

クタンスは

SGGA : $2G_0$ (= 4 スピンチャンネル分)

LSDA : $3G_0$ (= 6 スピンチャンネル分)

である。これらのチャンネル数は電極構造 (Fig.5.4(b) および Fig.5.5(b)) に対応するが、極微細線における伝導チャンネル数は導波路描像のチャンネル数より多い点が重要である。バイアス電圧が増加するにつれて down-spin 電子チャンネルの透過率が減少するため、コンダクタンスが急激に減少する。交換ポテンシャル SGGA によるシミュレーション結果では、バイアス電圧によって down-spin チャンネルは $0.5 G_0$ にまで減少する。最後に残った down-spin チャンネルは s-like \downarrow 電子の寄与である。up-spin チャンネルは s-like \uparrow 電子のみであるから、s-like 電子はどのバイアス領域でも縮退して透過しやすい状態であることがわかる。一方 LSDA では down-spin チャンネルは $2.0 G_0$ 付近でとどまるため、伝導に寄与する電子として s-like \downarrow 電子だけでなく d-like \downarrow 電子も有限にとどまることがわかる。

両近似法に共通する結果

1. 低バイアス領域で非線形伝導特性が存在する
2. 一原子鎖で $1 G_0$ は確保される
3. d-like \downarrow 電子は伝導し、その透過率はバイアス電圧増加に対して敏感で急激に減少する
4. s-like 電子の透過率はバイアス電圧に依存しない

電子流に誘起された力 バイアス電圧を印加した状態は非平衡状態であり、非平衡系は平衡状態に戻そうとする力が存在する。極微細線では左右電極の電子密度に変化が生じているため、系に力が存在する⁵。

$$\hat{F}_i = -\frac{\partial \hat{H}}{\partial \mathbf{R}_i} \quad (5.1)$$

バイアスを印加されている原子に対する力をもとめ、Fig.5.13 に示す。図中 atom1、atom2、atom3 は Fig.5.12 の各原子に対応し、電流は 1 から 3 に流れている (電子は 3 から 1)。2 番の原子には左右電極につながった原子 (1 番、3 番) ほど力が加わっていない⁶。

⁵本研究で用いた ATK は密度汎関数法を用いているため、系のハミルトニアンは密度の関数となる

⁶各原子の位置は固定している。すなわち非平衡力を緩和するため密度の再分布が生じる

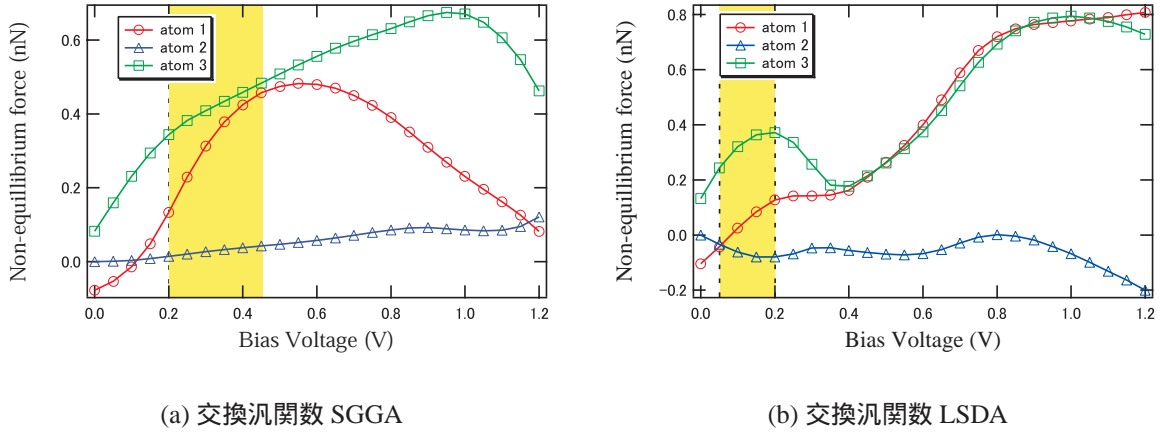


Fig 5.13: 電子流によって各 Ni 原子に誘起された力

波線で囲われた領域が、Fig.5.10 および Fig.5.11 においてコンダクタンスが急激に変化したバイアス電圧に対応する。この領域より大きなバイアス電圧ではコンダクタンスが一定になるため、atom2 と atom3 に加わる力の差が閾値を超えたときにコンダクタンスが減少することがわかる（atom1 と atom2 の力の差はこの領域より大きいところで変化する）。物理的にはこの力の差は atom2 と atom3 の軌道の重なりを支配し、atom2 と atom3 の軌道の重なりが断たれるとコンダクタンスが減少することを意味する。系のコンダクタンスを決めているのは電子を注入する電極に近い原子であり、*d*-like 電子はブロッキングされることになる。ブロッキングに関しては Smogunov らの報告とも一致する [58]。このことは中央領域の Ni を 9 原子に増やしてもコンダクタンスのバイアス依存性が変わらなかったことに一致する。電極に近い原子を通過した電子はバリスティック伝導領域であるため *d*-like 電子でも伝導に寄与する。

2 端子系の電子輸送シミュレーションにおいてこのような力は無視できると考えられているが、本研究では実験的に二準位揺らぎ（原子が動くこと）を観測しており、電子流に誘起された力を考慮するのは妥当性がある。

実験結果との対応 これら二つのシミュレーションは実験で得られた非線形伝導 typeII を再現している。実験のバイアス電圧領域と完全に一致しないものの、低バイアス領域における非線形伝導特性が再現することがわかる。興味深いことに、一次元電極におけるチャンネル数、低バイアス領域におけるチャンネル数に関しては巨大磁気抵抗効果の章で見積もったチャンネル数 β とも一致する。 ΔG 分布も *d*-like 電子の波動関数の相関（反発）として理解でき、強磁性金属極微細線の電気伝導特性を定性的に説明できる。

5.1.4 非線形伝導の細線幅依存性

非線形伝導は電子流によって誘起された力（密度勾配によって生じた電子圧）に支配される可能性が高い。そこで構造依存性（線幅依存性）を確かめるため、二原子鎖構造と三原子鎖構造をモデル化した。

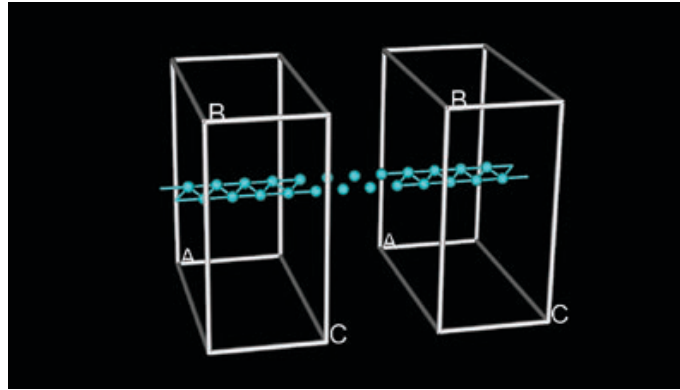
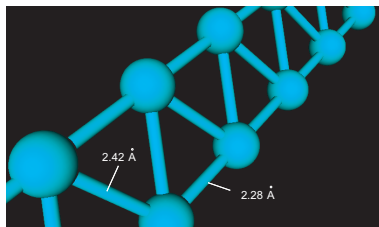
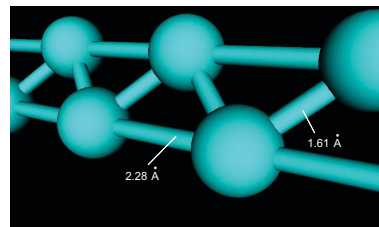


Fig 5.14: Ni 二原子鎖モデル。四角く囲われた部分が電極



(a) optimized structure



(b) constrained structure

Fig 5.15: 原子鎖構造

二原子鎖構造 シミュレーションモデルを Fig.5.14 に示す。一原子鎖同士を隣接させた後、エネルギー緩和により最適配置を決定した。一原子鎖を構成する原子の原子間距離は 2.28 Å、原子鎖距離は 2.42 Å とした (Fig.5.15(a))。二原子鎖構造では原子結合が（三原子鎖以上の構造に比べて）弱いため、ストレインがかかった構造が容易に得られる。ストレインを受けた構造は電子流の力をよく反映すると考えられるため、原子鎖距離を 1.61 Å と縮めてストレインをかけた構造を作製し、シミュレーションを行った (Fig.5.15(b))。

- セルサイズ: $a = b = 18.24 \text{ \AA}$, $c = 9.12 \text{ \AA}$
- 交換汎関数: SGGA
- 基底関数: DZP

二原子鎖構造極微細線の I - V 特性のシミュレーション結果を Fig.5.17、Fig.5.18 に示す。

三原子鎖構造 シミュレーションに使用したモデルを Fig.5.16 に示す。

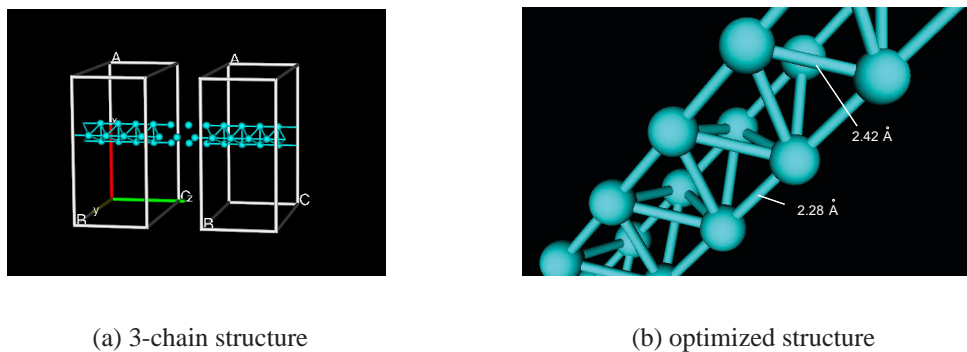


Fig 5.16: 三原子鎖構造

原子鎖構造はエネルギー緩和によって決定した⁷。一原子鎖を構成する原子の原子間距離は 2.28 \AA 、原子鎖距離は 2.42 \AA とした (Fig.5.16(b))。

- セルサイズ: $a = b = 18.24 \text{ \AA}$, $c = 9.12 \text{ \AA}$
- 交換汎関数: SGGA
- 基底関数: DZP

三原子鎖構造極微細線の I - V 特性のシミュレーション結果を Fig.5.19、Fig.5.20 に示す。

⁷三原子鎖構造にストレインをかけた場合、計算が収束しない。

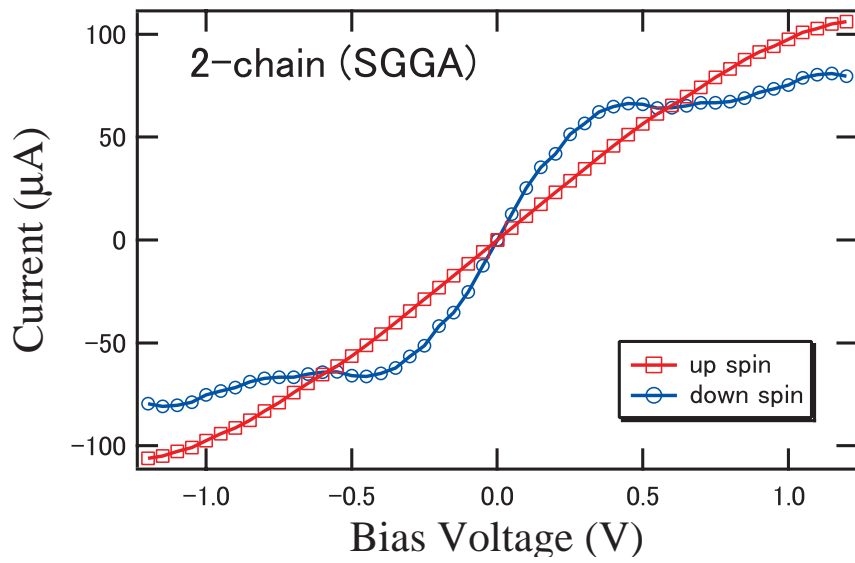


Fig 5.17: up-spin 電子と down-spin 電子の電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

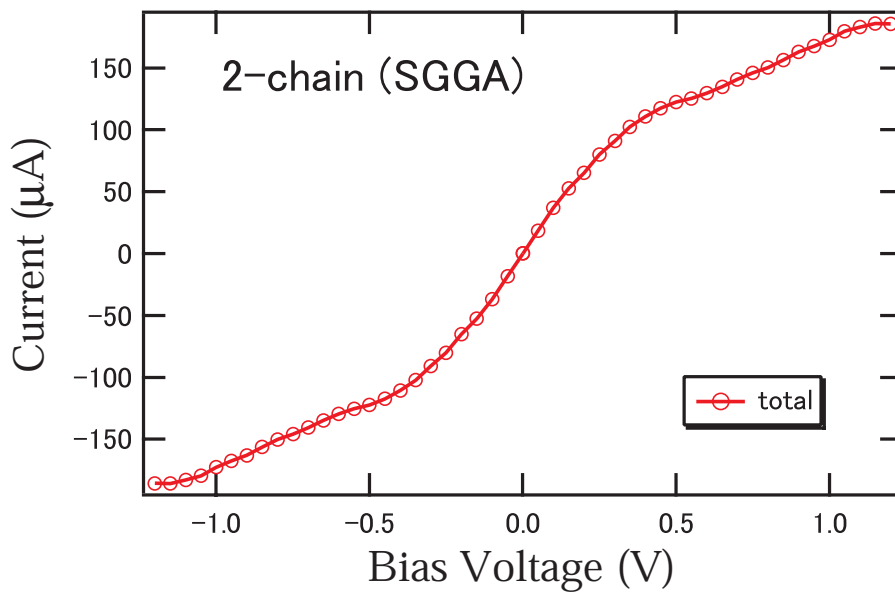


Fig 5.18: 両キャリアによる電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

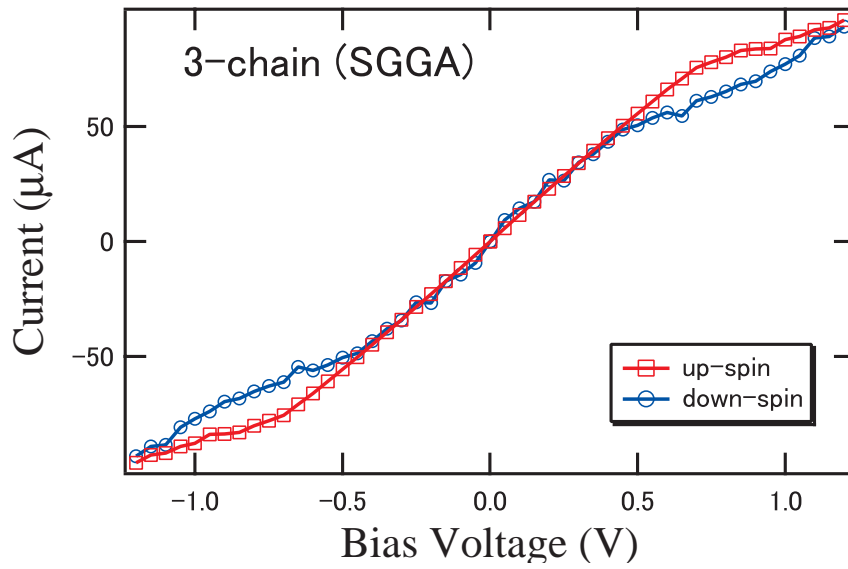


Fig 5.19: up-spin 電子と down-spin 電子の電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

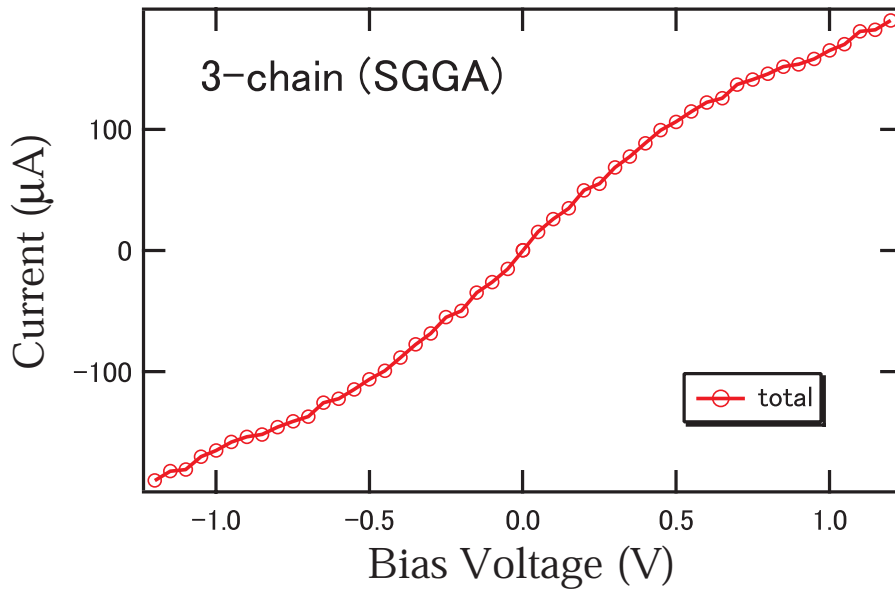


Fig 5.20: 両キャリアによる電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

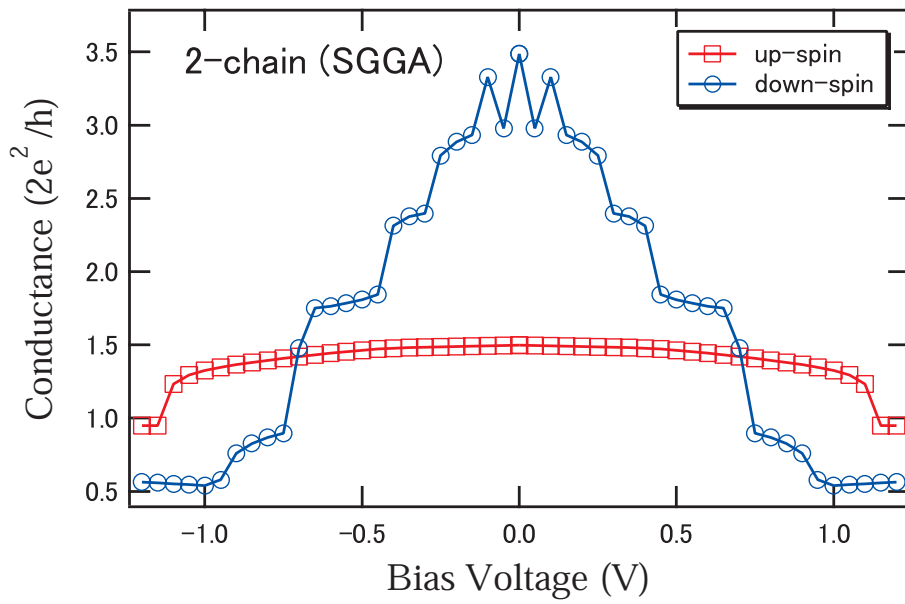


Fig 5.21: 両キャリアによるコンダクタンス (交換汎関数 : SGGA)

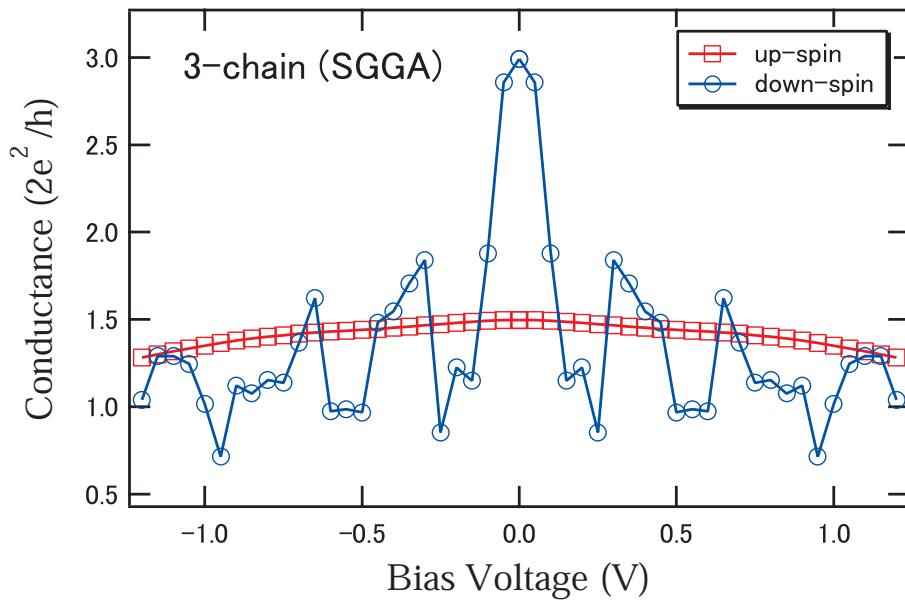


Fig 5.22: 両キャリアによるコンダクタンス (交換汎関数 : SGGA)

シミュレート結果（構造依存性） 二原子構造、三原子構造ともにバイアス電圧 $|V| < 250$ mV に対して電流電圧特性が複雑になっており、特に down-spin 電子（d-like 電子）の変化が著しい。二原子構造の場合バイアス電圧によって $0.5G_0$ のステップ状変化が観測できる（Fig.5.21）。三原子構造ではわずか 150 mV のバイアス電圧で、コンダクタンスが $2G_0$ も減少する（Fig.5.22）。このように d-like 電子の存在により構造によらず非線形伝導特性が出現し、d-like 電子の寄与の仕方は構造に強く依存することがわかった。

構造変化によって電子密度分布に対応するのならば、外部磁場印加によっても電子密度分布が変化すると考えられる。現在シミュレーションができるのは電極部の磁化が平行磁化配置の場合に限られているが、反平行磁化配置の場合、電子スピンの依存して伝導がブロッキングされるような構造が存在すると予想される。極微細線構造によっては、外部磁場印加によって数百%近い磁気抵抗比が出現する可能性がある。

5.2 表面状態を考慮した極微細線

5.2.1 $\langle 001 \rangle$ 面上の極微細線

ブレークジャンクション法により極微細線を作製した場合、電極に相当する部分は次元ではなく三次元になると考えられる。3次元性を考慮して極微細線接合部に Ni 原子を 3×3 原子を配置した。

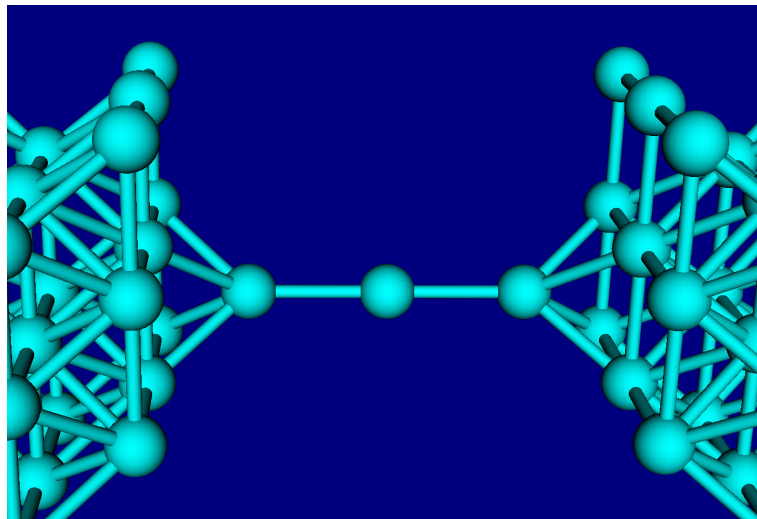


Fig 5.23: 表面電極を考慮したモデル（交換汎関数：SGGA）

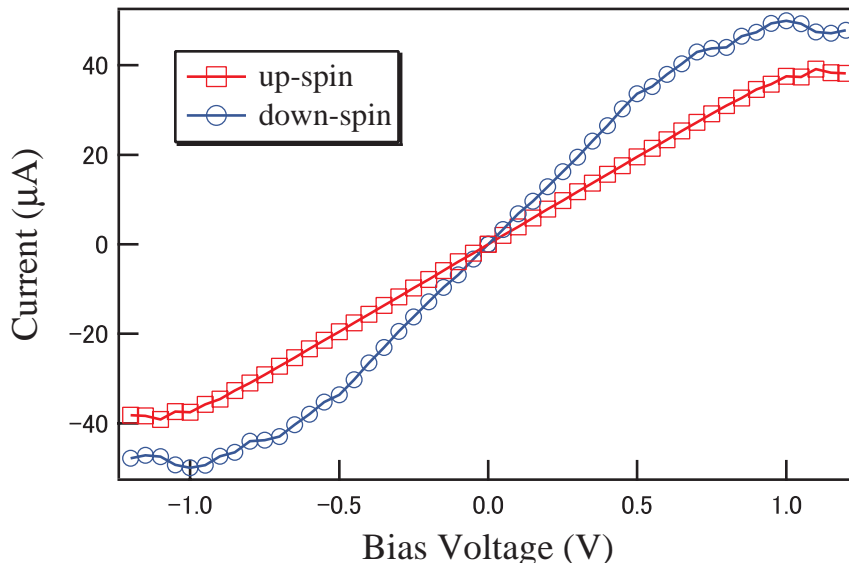


Fig 5.24: up-spin 電子と down-spin 電子の電流電圧特性 (交換汎関数 : SGGA)

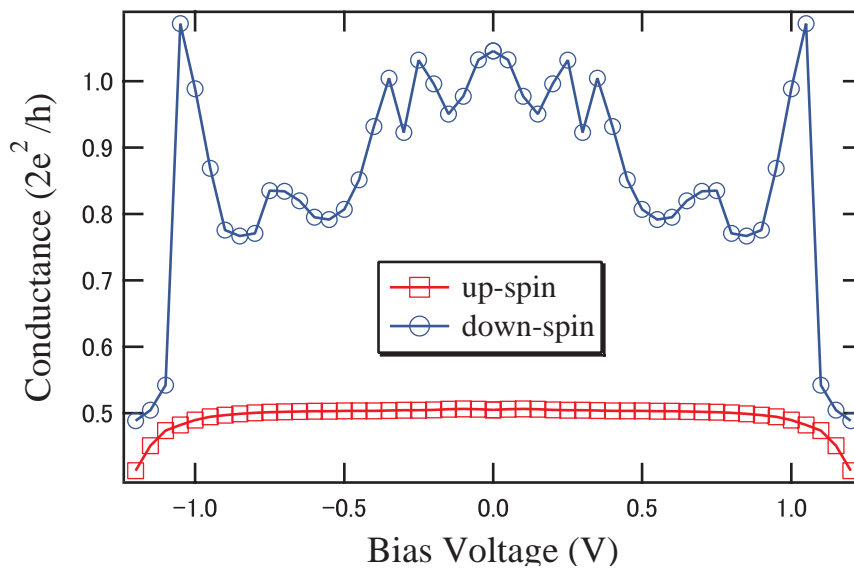


Fig 5.25: 両キャリアによるコンダクタンス (交換汎関数 : SGGA)

シミュレート結果（三次元電極の影響） 電極の3次元性を考慮した場合、第5.1節の単純構造鎖と比べると電流電圧特性やコンダクタンス変化の変化率が緩やかになる（変化量も少ない）。Fig.5.24 から up-spin 電子による電流電圧特性は単純鎖と同様に線形であり、down-spin 電子は緩やかな非線形伝導特性を示すことがわかる。down-spin 電子によるコンダクタンスへの寄与が減少するものの、down-spin 電子のバイアス依存性は依然として強く、バイアスによって down-spin 電子の伝導が減少する特徴も同じである。Fig.5.25 によると、低バイアス電圧領域 $|V| < 150$ mV ではコンダクタンスが緩やかに減少しており、この変化は実験結果（微分コンダクタンス異常、第3.2.2節）をよく再現する。バイアス電圧スケールも同等であり、コンダクタンス変化の変化量も $0.1G_0$ 程度である。興味深いことに、Fig.3.24 に示したヒストグラムの最大分布を与える ΔG と一致する。

一方、バイアス電圧領域 $|V| > 150$ mV ではコンダクタンスが振動のような振る舞いを見せる。この振動が物理的に意味を持つのか現在のところ不明である。物理的な可能性として単純二原子鎖と単純三原子鎖で示した 3d 軌道が挙げられ、物理的でない可能性として k 点サンプリングの問題点が挙げられる。k 点サンプリングは $3 \times 3 \times 200$ 点 ($a \times b \times c$) と単純一次元鎖よりも大きく設定したが、それでも不足した可能性がある。しかし k 点サンプリング $3 \times 3 \times 4$ 点で計算した電極部の電子状態密度はバルク系と同等の結果であり（Fig.5.26）、深刻な影響とも言い切れない。 $3 \times 3 \times 200$ 点設定は本研究室の計算機では上限に近い値であ

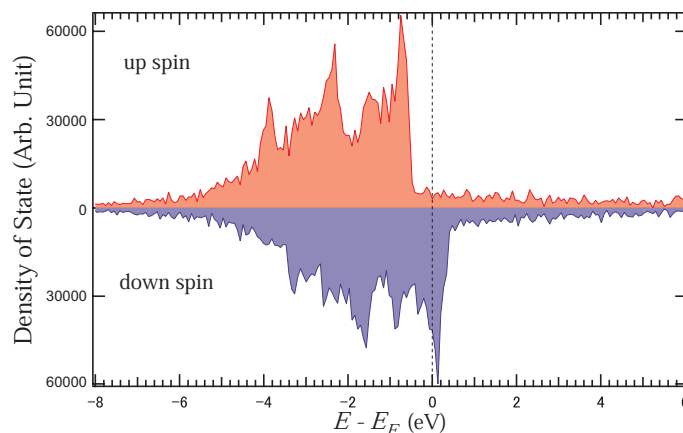


Fig 5.26: 三次元電極における電子状態密度

り、シミュレーションに二ヶ月ほど費やした。したがって、より精度の良い k 点サンプリングを行うには、本研究室で使用した計算機よりも大規模な並列計算機が必要である。

振動の原因は不明であるが、非線形伝導が down-spin 電子によって引き起こされるという描像は電極構造を考慮したシミュレーションによっても支持される。

第6章 本研究の結論

第3章と第4章では非線形伝導と異常な巨大磁気抵抗効果について量子伝導機構の観点から論じ、第5章では密度汎関数法と非平衡グリーン関数法に基づいて理論的側面から論じた。この章では、強磁性金属極微細線における量子電気伝導と巨大磁気抵抗効果について原子スケール磁性との関係からまとめる。

6.1 3d電子伝導チャネルの寄与

普遍定数 e^2/h を単位とするコンダクタンス量子化や非線形伝導特性は強磁性 Ni 極微細線に特有の現象である。二準位揺らぎに (TLF) 伴う透過率変化、微分コンダクタンスのバイアス依存性など本研究の実験結果は、金属極微細線における電気伝導チャネルが波動関数形状 (原子軌道) に左右されること、伝導チャネル間には強い相関が存在することを示す。これらは 3d 電子伝導チャネルが形成されること、電子流に誘起された力 (電子圧) によって波動関数の重なり合いが左右されるという電子輸送シミュレーションによって支持される。無論、定量性という観点からは保証されないが、 e^2/h 量子化、二準位ゆらぎに伴う e^2/h コンダクタンス変化、および ΔG 分布を一貫して矛盾無く説明するには 3d 電子の寄与以外には考えられない。

本実験研究において印加したバイアス電圧領域は、電子輸送シミュレーションによって示されたように 3d 電子伝導チャネルが残存できる低バイアス電圧領域である。理想状況を扱うシミュレーションですら複雑な変化を示しており、不純物などの影響もある実験ではより複雑な電気伝導機構が存在すると考えられる。より複雑な伝導機構が発現したものとして、実験で得た type I の非線形伝導が例として挙げられよう。これには、たとえば電子輸送シミュレーションでは無視されていたスピン軌道 (LS) 相互作用の効果があげられる。 LS 相互作用が存在する系では、伝導電子スピンのスピン角運動量 s_1 と局在スピンの軌道角運動量 s_2 の相互作用が生じることが知られており (Spin Torque)

$$\mathbf{T} = \frac{\hbar g j_e}{2e} \mathbf{s}_2 \times (\mathbf{s}_1 \times \mathbf{s}_2),$$

極微細線近傍における電流密度 j_e を考えれば無視できる現象ではない。電子流の誘起する

力（密度勾配によって生じた電子圧）によって電気伝導特性が変化する可能性を考慮すると、強磁性極微細線において Spin Torque、Spin Transfer、Momentum Transfer などが重要な役割を果たすことが考えられる。また、不純物を介したスピン分極チャンネルの影響も考えられる。

6.2 巨大磁気抵抗効果

量子化伝導領域には、薄膜系で得られる磁気抵抗比を超える巨大磁気抵抗効果が存在した。本研究では磁気抵抗曲線に e^2/h 量子化が存在することを示し、強磁性金属極微細線の形状が変化する可能性があることがわかった。ブレイクジャンクション法による系で磁気抵抗効果を測定する場合、形状変化の影響が存在するものと見なす必要がある。しかし、実験的には巨大 MR の量子化コンダクタンス依存性など形状変化では説明できない現象も存在する。

電子輸送シミュレーションによって示したように、強磁性金属極微細線のコンダクタンスは波動関数の重なりが生じたときに増加し、重なりが断たれるときに減少する。したがって極微細線形状が変化しなくても巨大磁気抵抗効果は出現しうる。またストレインなどの依存性が強いため、スピン量子化軸がそろったときコンダクタンスが増加するとは限らない。量子化伝導領域は原子領域である。MR 符号に対する一般論の適用に関しても再考をする必要がある。

3d 電子の寄与は強磁性金属極微細線の特徴であり、特に $0.5G_0$ 量子化伝導状態は 1 スピンチャンネル伝導なので完全スピン偏極状態の可能性が存在する。ナノスケール磁性体に対して二流体モデルが妥当性を持つことに対して際立っており¹、この影響が巨大磁気抵抗効果に波及することは十分に考えられる。興味深いことに巨大磁気抵抗効果の実験解析と電子輸送シミュレーションの一致も見られ、第4章 (p.82) で見積もったチャンネル数 β と第5章 5.1.3 節のゼロバイアスにおけるチャンネル数はほぼ一致する。勿論、有限バイアスの効果を考慮しなくてはならず、標本数が少ないため単なる偶然の可能性もある。これらについてはやはり原子スケール磁性の解明が必要となる。非平衡状態における極微細線近傍の磁化反転過程などが明らかでない現状では、量子電気伝導が複雑に絡んだメカニズムの可能性を考える必要がある。

¹3d 金属強磁性体 Ni のスピン偏極率として 40% 程度が報告されている。

6.3 結論

本研究では極微細線作製装置を製作することで数十秒間極微形状を保つことに成功し、量子化伝導領域における電気伝導特性・磁気伝導特性を調べた。本研究で得られた主な結論は以下の通りである。

1. e^2/h 単位のコンダクタンス量子化を無磁場でも観測し、コンダクタンス変化量 e^2/h の二準位揺らぎ (TLF) を観測した。長時間切断によって量子化二値間の TLF が明らかになり、無磁場では $2e^2/h$ 単位量子化が出現しやすいことを示した。これらは $3d$ 電子伝導チャンネルの形成が抑制されていることを意味する。無磁場における e^2/h 量子化の観測確率を下げる原因として波動関数の広がり (軌道形状) があり、この点は電子輸送シミュレーションによって定性的に支持された。
2. 強磁性金属極微細線の電流 - 電圧特性において二タイプの非線形伝導特性を発見した。これらは非磁性極微細線では観測されない。非線形伝導特性は低バイアス領域 $V < 100$ mV で出現し、数 nm の線幅になると消滅する。原子スケールにおける $3d$ 電子伝導チャンネルの寄与であることを意味していた。 $3d$ 電子伝導チャンネルの寄与に関しては電子輸送シミュレーションと一致し、一つのタイプの非線形伝導特性は再現した。もう一方の非線形伝導特性に関しては磁化配置、Spin Torque、不純物を介したスピン分極チャンネルの影響などを考慮する必要があった。
3. 最大で 2500 % に及ぶ磁気抵抗効果を観測した。磁気抵抗曲線の詳細な議論から極微細線形状が変化する場合があることがわかった。異常に巨大な磁気抵抗効果は磁歪の寄与による形状変化で説明できる。しかし、数十%から数百%の磁気抵抗効果に関しては形状変化だけでは説明できない点 (量子化コンダクタンス依存性など) があった。外部磁場印加によってどのように伝導チャンネルが形成されるのか、波動関数スケールで検証する実験が必要であった。

参考文献

- [1] 大岡 豊, 修士論文「強磁性極微細線における量子伝導現象」
- [2] T. Ono, Y. Ooka, H. Miyajima, and Y. Otani, Appl. Phys. Lett. 75, 1622 (1999).
- [3] N. García, M. Munoz, and Y.-W. Zhao, Phys. Rev. Lett. 82, 2923(1999).
- [4] 川畑有郷, 「メゾスコピック系の物理」(培風館, 1996)
- [5] A.M. ザゴスキンの著, 樺沢宇紀訳「多体系の量子論」(シュプリンガーフェアラーク東京、1999)
- [6] N. W. Ashcroft and D. D. Mermin, 「個体物理の基礎」 (吉岡書店)
- [7] H. Hukuyama, T. Ando 「Transport Phenomena in Mesoscopic Systems」 Springer-Verlag
- [8] 近角聡信, 「強磁性体の物理(上), (下)」裳華房
- [9] 宮島英紀, 「メゾスコピック系の磁性」(ふえらむ 2000)
- [10] 高垣雪彦, 蒲生健次, 難波 進, 邑瀬和生, 固体物理 vol25, 950(1990)
- [11] J. C. Maxwell, 「A Treatise on Electricity and Magnetism, Vol. 1」 Dover Publ., inc., New York (1954) .
- [12] 多々良 源, 日本応用磁気学会誌 vol27, No.7, 803 (2003).
- [13] B. J. van Wees, H. van Houten, C. W. J. Beenakker, J. G. Williamson, L. P. Kouwenhoven, D. van der Marel and C. T. Foxon, Phys. Rev. Lett. 60, 848850 (1988).
- [14] J. I. Pascual, J. Méndez, J. Gómez-Herrero, A. M. Baró, and N. García, V. T. Binh, Phys. Rev. Lett. 71, 1852(1993).
- [15] R. Landauer, IBM J. Res.Dev.1, 223(1957).

- [16] M. Büttiker, Phys. Rev. Lett. 57, 1762(1986).
- [17] T. Kizuka, Phys. Rev. Lett.81, 4448(1998).
- [18] H. Ohnishi, Y. Kondo, K. Takayanagi, Nature 395, 780(1998).
- [19] C. J. Muller, J. M. Krams, T. N. Todorov, M. A. Reed, Phys. Rev. B53, 1022(1996).
- [20] D. Erts, H. Olin and L. Ryen, E. Olsson, A. Thölén, Phys. Rev. B61, 12725(2000).
- [21] J. A. Torres, J. I. Pascual, J. J. Sáenz, Phys. Rev. B49, 16581(1994).
- [22] G. Tatara, J. Phys. Soc. Jpn. 69, 2969 (2000).
- [23] S. Z. Hua and H. D. Chopra, Phys. Rev. B 67,060401(2003).
- [24] 清水正義, 修士論文「強磁性極微細線におけるコンダクタンス異常」
- [25] N. Agraït, A. L. Yeyati, J. M. van. Ruitenbeek, Phys. Rep. 377, 81(2003).
- [26] J. L. Costa-Krämer, N. García, P. García-Mochales, P. A. Serena, M. I. Marqués and A. Correia, Phys. Rev. B 55, 5416 (1997).
- [27] K. S. Ralls and R. A. Buhrman, Phys. Rev. Lett. 60, 2434 (1988).
- [28] T. N. Todorov, Phil. Mag. B 80, 421 (2000).
- [29] J. L. Costa-Krämer, Phys. Rev. B 55, R4875 (1997).
- [30] E. Scheer, N. Agraït, J. C. Cuevas, A. L. Yeyati, B. Ludoph, A. Martín-Rodero, G. R. Bollinger, J. M. van Ruitenbeek and C. Urbina, Nature 394, 154 (1998).
- [31] N. Agraït, Carlos Untiedt, Gabino Rubio-Bollinger, and Sebastián Vieira, Phys. Rev. Lett. 88, 216803-1(2002).
- [32] J.L. Costa-Krämer, N. García, P. García-Mochales, P.A. Serena, M.I. Marqués, and A. Correia, Phys. Rev. B 55, 5416 (1997)
- [33] J. W. D. Connolly, Phys. Rev. 159, 415(1967).
- [34] Uzi landman, W. D. Luedtke, N. A. Burnham, R. J. Colton, Science 248, 454(1990).

- [35] W. Y. Lee, C. C. Yao, A. Hirohata, Y. B. Xu, H. T. Leung, S. M. Gardiner, S. McPhail, B. C. Choi, D. G. Hasko, and J. A. C. Bland, *J. Appl. Phys.* 87, 3036(2000).
- [36] P. Bruno, *Phys. Rev. Lett.* 83, 2425(1999).
- [37] U. Ebels, A. Radulescu, Y. Henry, L. Piraux, and K. Ounadjela, *Phys. Rev. Lett.* 84, 983(2000).
- [38] A. Nait Abdi, J. P. Bucher, *Appl. Phys.. Lett.* 82, 430(2003).
- [39] G. Tatara, Y. W. Zhao, M. Munoz, N. García, *Phys. Rev. Lett.* 83, 2030(1999).
- [40] N. García, H. Rohrer, L. G. Saveliev, and Y. W. Zhao, *Phys. Rev. Lett.* 85, 3053(2000).
- [41] N. García, M. Munoz, G. G. Qian, H. Rohrer, I. G. Saveliev, and Y. W. Zhao, *Appl. Phys.. Lett.* 79, 4550(2001).
- [42] S. H. Chung, M. Munoz, N. García, W. F. Egelhoff, and R. D. Gomez, *Phys. Rev. Lett.* 89, 287203-1(2002). H. D. Chopra and S. Z. Hua, *Phys. Rev. B* 66, 020403(2002).
- [43] A. García-Martín, M. del Valle, J. J. Sánchez, J. L. Costa-Krämer, and P. A. Serena, *Phys. Rev. B* 62, 11139(2000).
- [44] H. Mehrez, A. Wlasenko, B. Larade, J. Taylor, P. Grütter, and H. Guo, *Phys. Rev. B* 65, 195419(2002).
- [45] K. Hansen, S. K. Nielsen, M. Brandbyge, E. Lægsgaard, I. Stensgaard, and F. Besenbacher, *Appl. Phys. Lett.* 77, 708 (2000).
- [46] S.K. Nielsen, M. Brandbyge, K. Hansen, K. Stokbro, J.M. van Ruitenbeek, and F. Besenbacher *Phys. Rev. Lett.* 89, 066804 (2002).
- [47] J. J. Versluijs, M. A. Bari, and J. M. D. Coey, *Phys. Rev. Lett.* 87, 026601(2001).
- [48] J. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mat.* 159(1996)L1.
- [49] G. E. Blonder and M. Tinkham, *Phys. Rev. B* 27, 112(1983).
- [50] C. W. J. Beenakker and H. van Houten, *Phys. Rev. Lett.* 66, 3056(1991).

- [51] A. W. Kleinsasser, R. E. Miller, W. H. Mallison, G. B. Arnold, *Phys. Rev. Lett.* 72, 1738(1994).
- [52] N. van der Post, E. T. Peters, I. K. Yanson, and J. M. Ruitenbeek, *Phys. Rev. Lett.* 73, 2611(1994).
- [53] M. J. M. de Jong and C. W. J. Beenakker, *Phys. Rev. Lett.* 74, 1657(1995).
- [54] E. Scheer, P. Joyez, D. Esteve, C. Urbina, and M. H. Devoret, *Phys. Rev. Lett.* 78, 3535(1997).
- [55] B. Ludoph, N. van der Post, E. N. Bratus, E. V. Bezuglyi, V. S. Shumeiko, G. Wendin, J. M. van Ruitenbeek, *Phys. Rev. B* 61, 8561(2000).
- [56] W. F. Egelhoff, Jr., L. Gan, H. Ettetdgui, Y. Kadmon, C. J. Powell, P. J. Chen, A. J. Shapiro, R. D. McMichael, J. J. Mallet, T. P. Moffat, M. D. Stiles, and E. B. Svedberg, *J. Appl. Phys.* 95, 7554(2004).
- [57] L. R. Tagirov, B. P. Vodopyanov, and K. B. Efetov, *Phys. Rev. B* 65, 214419(2002).
- [58] A. Smogunov, A. Dal Corso, E. Tosatti, *Surface Science* 507-510, 609(2002).
- [59] 長谷川 洋著, 「量子系の準位統計」(物理学最前線 28 所収、共立出版、1991)

第II部

複合構造ナノリングにおける 量子干渉効果

第1章 拡散領域

1.1 拡散領域における量子干渉効果

本研究で扱う系は拡散領域と呼ばれ、電子は頻繁に散乱され拡散的に伝導する。弾性散乱長 l_e と系のスケール $L(L_x, L_y, L_z)$ の間には $L \gg l_e$ の関係が成り立っている。第 1.2 節 (10 ページ目) で記述したように、メソスコピック系を特徴づけるのは位相相関長 (Coherence 長) L_φ である。 L_φ は電子の量子力学的波としての性質を保持する長さであり、これより小さい系 ($L < L_\varphi$) では量子干渉効果が保持される。室温では、 $L_\varphi \sim l_e$ であるため拡散領域において量子干渉効果は観測されない。しかし十分低温ではフォノンなどによる非弾性散乱 (電子 - 格子散乱) が抑制されるため、位相相関長 L_φ は増大し、拡散領域においても量子干渉効果が観測される。

伝導する電子の状態数が多数存在する場合、十分低温になったとしても量子干渉効果は平均化されて消えてしまう。この現象はフェルミ面近傍のエネルギー分布 ΔE (フェルミ面のぼやけ) に支配される。 $L \times L$ の拡散領域は拡散係数 D 、非弾性散乱時間 τ によって特徴づけられ、拡散に要する時間は $\tau = L^2/D$ である。不確定性関係より $\Delta E = \hbar D/L^2$ が拡散伝導のエネルギースケールとなる。一方、有限温度では $\Delta E = k_B T$ となるので、

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}} \quad (1.1)$$

が与えられる。この L_T を熱拡散長と呼ぶ。すなわち $l_e < L < L_T, L_\varphi$ の条件であれば量子干渉効果は保持される。

1.1.1 Aharonov-Bohm 振動

固体中における Aharonov-Bohm 振動を初めて観測したのは、IBM の Webb らの研究グループである。彼らは直径 862 nm 程の Au リングを作製し、磁場を試料面に垂直に印加したときの電気抵抗の磁場依存性を測定した。

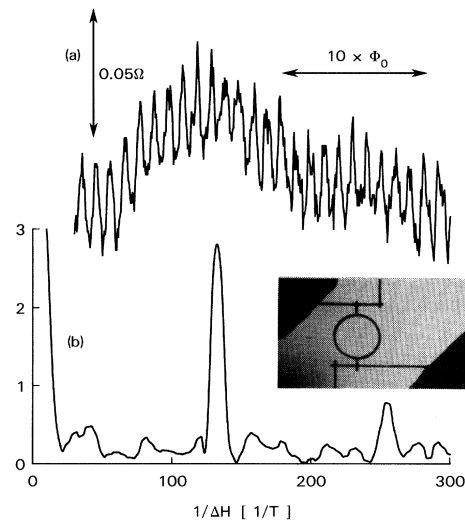


Fig 1.1: (a)Au リング (内径 784 nm, 線幅 41 nm) で観測された磁気抵抗振動、(b) 磁場についてのパワースペクトル (Ref[7])。

その結果、電気抵抗が周期的に振動することが観測され、振動周期がリングを貫く磁束に換算すると h/e であることを発見した (Fig.1.1)。これらは電子波がベクトルポテンシャル A によって生じる量子位相を獲得し、位相干渉するために生じると理解される¹。

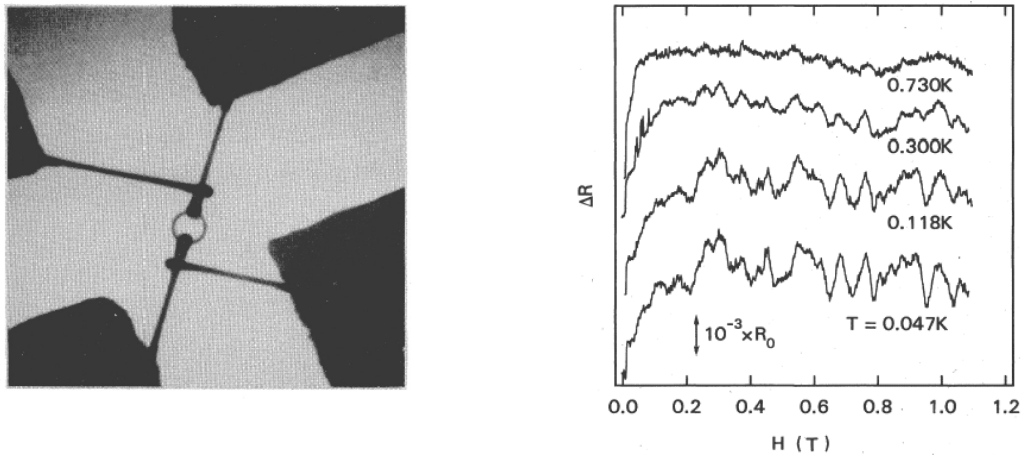
1.1.2 普遍的コンダクタンスゆらぎ

Umbach らは直径 320 nm 程の Au リングを作製し (Fig.1.2(a))、磁場を試料面に垂直に印加したときの電気抵抗の磁場依存性を測定した。その結果 Fig.1.2(b) に示すような不規則な抵抗変化があることを観測し、不規則な変化には以下のような特徴があることを発見した。

1. 同一試料であれば、温度変化に対して磁気抵抗のゆらぎは再現性を持つ (磁気指紋)。
2. 試料が異なれば、ゆらぎのパターンは異なる (不純物配置による)。
3. 十分低温ではゆらぎの振幅はコンダクタンスに換算して普遍定数 e^2/h 程度になり、試料形状によらない。

位相干渉は微少領域で生じるため、金属細線の電気伝導度は小さな領域の総和として定まると考えることができる。低温では電子の Coherence が行き渡り、様々な位相干渉過程の間に相関が生じるためと理解される。

¹ "ナイーブ"な描像であり、1.2.2 節で示すように注意が必要



(a) Au ナノリング

(b) 抵抗の磁場依存性

Fig 1.2: Au リング (直径 320 nm, 線幅 50 nm) で観測された抵抗のゆらぎ (Ref[11])

1.1.3 位相干渉をこわすもの

Aharonov-Bohm 振動や普遍的コンダクタンス揺らぎは量子位相を獲得するために現れる現象であるが、リング上部と下部を通過した電子波が干渉するという描像は正しくない。拡散領域における位相干渉効果に対しては、時間を逆にした散乱過程こそが本質なのである²。時間反転対称性が破られると量子干渉効果は消失する (Decoherence)。

磁場長 L_B の見積もり 磁場が系に印加されると電子移動の時間反転対称性が破られるため、量子干渉効果が抑制される。すなわち、古典的には電子軌道が曲げられ順路を逆にたどれず、量子論的にはベクトルポテンシャルによって獲得する位相がずれるため干渉性が破壊される。たとえば、Fig.1.3 のような領域で電子が不純物によって後方に散乱されるとき、領域を貫く磁束は $\phi \sim BL^2$ となる。磁束 ϕ があるとき、順路と時間反転過程の二つの電子波の間に位相差

$$2 \times 2\pi \frac{\phi}{\phi_0}$$

が生じる。この位相差が 1 程度のオーダーになれば電子波の干渉性は破壊されるから

$$L_B \sim \sqrt{\frac{\hbar}{2eB}} \quad (1.2)$$

²歴史的には弱局在理論の発展によって理解されるようになった。

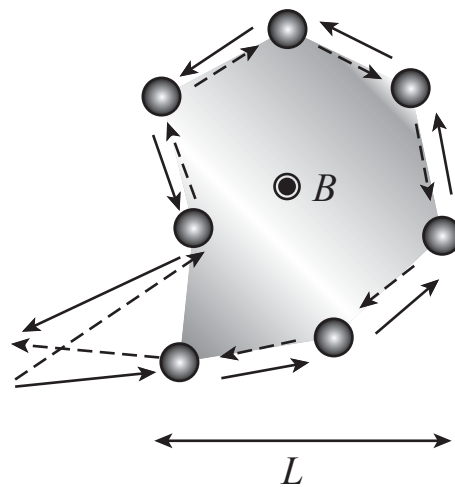


Fig 1.3: 時間反転対称性と磁場効果

という距離スケールが位相相関を決める距離になる。この長さスケールを磁場長 L_B とい、位相相関長 L_φ とともに量子干渉性を定める特性長となる。式 (1.2) より外部磁場 1 T における磁場長はおよそ 18 nm となる。逆に、 $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ の領域で位相相関長を確保するには印加する外部磁場が 3×10^{-4} T 程度でなくてはならない³。

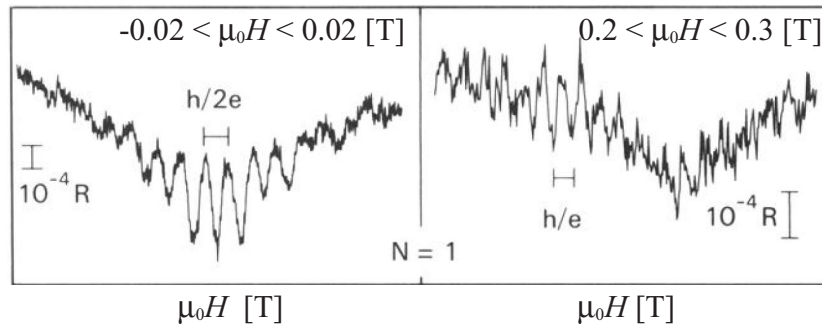
磁場領域と振動周期 以上の評価から、Webb らによる Aharonov-Bohm 振動の観測そのものに問題の本質が含まれていることが理解されるだろう。磁気抵抗振動が強磁場領域 $\mu_0|H| > 1$ T ですら観測されるのである。

この磁場領域の問題点を認識してなされた Umbach らの研究がある。実験的に Ag リングにおける磁気抵抗振動の磁場領域依存性が報告された [11]。試料の磁気抵抗効果には、すべての磁場領域において Fig.1.4(a) 右図のような AB 振動周期 h/e が観測される。しかし、磁場領域 $-0.02 < \mu_0 H < 0.02$ T では Fig.1.4(a) 左図のように振動周期 $h/2e$ が明瞭となる (Altshuler-Aronov-Spivak 振動: AAS 振動)。これらは Fig.1.4(b) のパワースペクトルによって確認され、弱磁場付近では AAS 振動の振幅が AB 振動振幅よりも大きくなり、強磁場領域では AB 振動の振幅が支配的になることが明らかにされた。すなわち AAS 振動は磁場によってこわされ、AB 振動は強磁場まで生き残ることを示す。

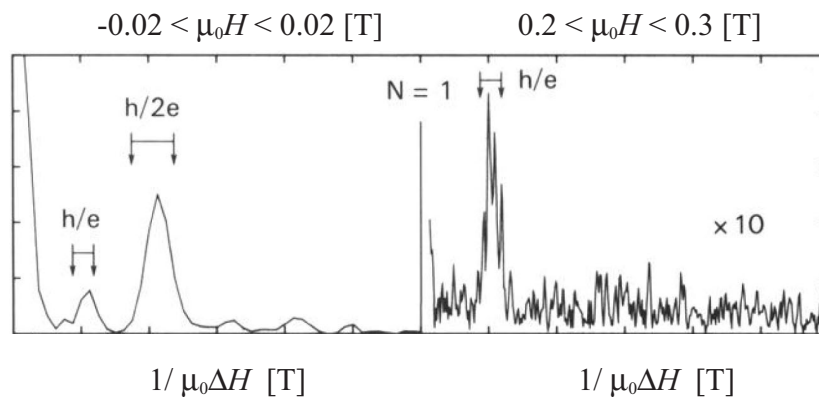
³リング形状 (線幅 a) などを考慮した場合、

$$L_B \sim \sqrt{12}(\hbar/eaB) \quad (1.3)$$

のように与えられる [24]



(a) Ag リングの磁気抵抗振動 (直径 $1 \mu\text{m}$, 線幅 75 nm , 膜厚 20 nm)



(b) 磁気抵抗曲線のパワースペクトル

Fig 1.4: 磁気抵抗振動の磁場依存性 ($T=320 \text{ mK}$, Ref[11])

その他の **Decoherence** 機構 時間反転対称性を破る機構として、スピン-軌道相互作用、スピントリップ散乱、非弾性散乱などが存在する。特に強磁性金属の内部磁場がどのような Decoherence 機構となるのかは不明であり、強磁性金属には課題が存在している。

1.2 電気伝導度の量子補正

磁場領域によって量子効果（AAS 振動と AB 振動）が異なることを理解するには本節で展開する微視的理論が必要となる。しかし本節では Green 関数の詳細には立ち入らず、概略を述べる。

1.2.1 波動性の取り込み

波動性（位相干渉性）によって生じる Aharonov-Bohm 振動や普遍的コンダクタンスゆらぎ（UCF）は Boltzmann 輸送方程式

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} + \frac{e\mathbf{E}}{m} \frac{\partial f}{\partial \mathbf{v}} = - \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} \quad (1.4)$$

では記述することは出来ない（波束を古典粒子とみなす描像であり、いろいろな波数の状態にある電子が、異なる波数の状態に散乱されるという描像）。Boltzmann 輸送方程式に対する補正が必要となり、波動性（Coherence）を取り入れるため線形応答理論（Kubo 公式）が必要となる。Kubo 公式によれば電気伝導度は

$$\sigma(\omega) = -\frac{1}{i\omega} [G^R(\omega) - G^R(0)] \quad (1.5)$$

$$G^R(\omega) = \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \theta(t) \langle [J_x, J_x(t)] \rangle e^{(i\omega - \varepsilon)t} \quad (1.6)$$

によって与えられる。式（1.5）–（1.6）の物理的意味は次のようになる。系に電場が印加されるとその電場を感じて電子–正孔対の励起が起きる（電荷ゆらぎ）。この対励起が空間を伝播するため、それが電流として観測される。

電子が不純物から散乱を受ける系において単純化する近似を用いれば、数学的に式（1.6）は温度 Green 関数（松原振動数 $\omega_\nu, \varepsilon_n$ ）

$$G^R(i\omega_\nu) = -e^2 \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{\hbar k_x}{m} \right)^2 K_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}(i\omega) \quad (1.7)$$

$$K_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}(i\omega_\nu) = k_B T \sum_{n=-\infty}^{+\infty} G(\mathbf{k}, i\varepsilon_n) G(\mathbf{k}, i\varepsilon_n + i\omega_\nu) \quad (1.8)$$

から求めることができる。ここで $K_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}$ は 2 粒子 Green 関数となる。

これらは量子論的・熱的に攪乱される非可逆過程すらも Green 関数のような力学的描像で記述できることを示す。したがって位相干渉などの量子力学的ランダム過程は数学的に

導出され、Feynman ダイアグラムに対応させて視覚的（物理的）にとらえることが可能となる。この方法によって、拡散領域における量子干渉効果の物理的描像が次第に明らかになったのである。

1.2.2 Cooperon と Diffuson

不純物散乱と Coherence 電子が不純物を含む微小領域を通過するときを考える。Boltzmann 描像では状態 k_i で入射し不純物 1 に弾性散乱され状態 k_f で領域を通過する⁴。不純物 2 の存在は関係がない。ところが、 $L < L_\phi$ のような場合には電子の Coherence が不純物 2 を包みこみ、不純物 2 を介した量子的散乱過程（相関）が存在する。このような過程が量子補正となる。

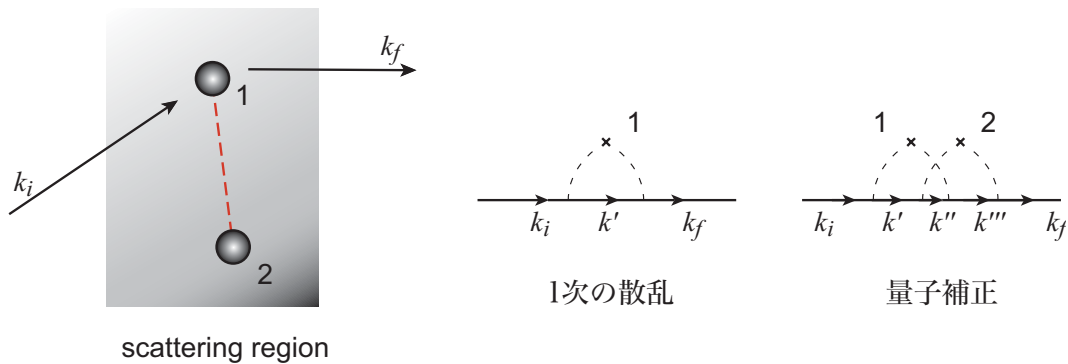


Fig 1.5: 散乱過程に対する量子補正

不規則な系 不純物が不規則に配置された系における伝導度補正について、不純物 3 個の例、Fig.1.6 で考察することができる。Kubo 公式が示すように電流は電子-正孔対の励起によって伝播する。不純物間における対励起は Fig.1.6 のようになる（見やすくするため微小運動量 q をつけた）。この系における量子補正の例は Fig.1.6(a) や Fig.1.6(b) のようになり、不純物を介したキャリア間の散乱過程（相関）となる。Fig.1.6(a) は空間的に異なる位置との散乱過程であり、Fig.1.6(b) は空間的に同位置での散乱過程となる。

⁴Boltzmann 描像は $\lambda_F \ll \ell_e$ であり波動性は効かない

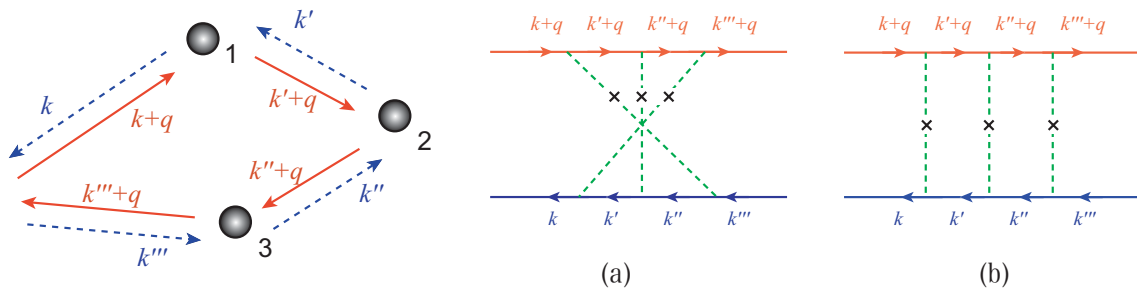


Fig 1.6: 不規則系における量子補正の例 (実線:電子、破線:正孔)

弱局在による量子補正 不規則な系では散乱過程に何個の不純物が関与してこようと、Fig.1.6(a)のような効果は平均化されず伝導度補正として小さくなることはない⁵。Fig.1.6(a)のような不純物を介した散乱過程は、不純物 1 個、2 個、...と存在するので、微少領域の伝導度補正には無限次まで足し合わせた (式 1.8 における和に対応)

$$C(\mathbf{q}, i\omega_\nu) = \frac{1}{\tau} \frac{1}{Dq^2 + i\omega_\nu + 1/\tau_\epsilon} \quad (1.9)$$

が寄与する。式 (1.9) は電子と正孔の間でエネルギー (周波数 ω_ν) と運動量 q を媒介する ' 粒子 ' のように見えるため、Cooperon と呼ばれている。ここで $D (= 2\epsilon_F\tau/3m^*)$ は拡散定数、 τ_ϵ は Cooperon の寿命を意味する。したがって $L_\epsilon = \sqrt{\tau_\epsilon D}$ は電子が微少領域を通過するときに Cooperon を介することができる範囲を意味する。

式 (1.5)–式 (1.9) によって電気伝導度に対する量子補正として

$$\Delta\sigma = -\frac{2e^2D}{\pi\hbar} \sum_q \frac{1}{Dq^2 + i\omega_\nu + 1/\tau_\epsilon} \quad (1.10)$$

が得られ、微少領域 $L \sim L_\epsilon$ では直流伝導度に $q \rightarrow 0$ で寄与することがわかる。

電子と正孔の散乱過程では物理的描像がつかみにくい。ところが正孔に関して電荷を負とし運動方向を逆にとれば電子と等価であるから ($-e \leftrightarrow e, k \leftrightarrow -k$) Fig.1.6(a) は Fig.1.7 のように電子–電子の散乱過程と等価になる⁶。

⁵有限温度では電子間相互作用などの非弾性散乱が存在するが、それは数学的に温度 Green 関数に繰り込むことで対処できる。 τ_ϵ が非弾性散乱の効果に対応する

⁶Cooperon とは $(k, -k)$ 電子対が超伝導 Cooper 対と同様の特徴を持つことに由来する

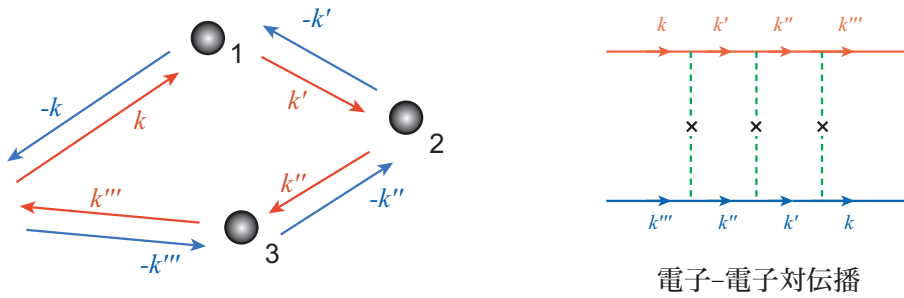


Fig 1.7: 電子-電子対伝播

すなわち、電子波が不純物領域に入射したとき複数の不純物によって散乱（後方散乱）されるが、不規則な系ではちょうど時間を逆にした過程が存在することを意味する。これら二つの '電子' 波は同位相になり干渉して強め合い、後方散乱の確率が増大する（位相干渉散乱：Coherent Backscattering）。これらは定在波として局在した波となり電流を輸送しなくなる（弱局在）。不純物散乱の時間反転対称性が重要な役割を果たしており、Aharonov-Bohm 効果などを捉える時の「電子波がリングを伝播してきて干渉する」という描像は、Cooperon で記述される場合であることがわかる。

拡散過程の量子補正 Fig.1.6(b) のような散乱過程も量子補正に寄与する。伝導度には不純物を介した正孔との散乱過程の和

$$D(\mathbf{q}, i\omega_\nu) = \frac{1}{\tau} \frac{1}{Dq^2 + \omega_\nu} \tag{1.11}$$

が寄与する。式 (1.11) もエネルギー（周波数 ω_ν ）と運動量 \mathbf{q} を媒介する '粒子' のように見えるが、拡散過程を記述するものなので Diffuson と呼ばれる。粒子数保存則によって寿命に当たるものがなく、長距離、長時間にわたって生き残る。形式上は電子-正孔間の位相干渉散乱であるが、物理的描像は Cooperon と全く異なる⁷。

電子間相互作用による量子補正 伝導電子の波動関数が局在する傾向を持つと、その効果が電子間相互作用にも波及する。これは電気伝導率に弱局在効果と同じオーダーの寄与をする。この過程は局在によって遮蔽効果が抑制され電子間相互作用が強まることに対応する。Cooperon と Diffuson によって記述されるが、単純な物理描像を持つことは難しい。

⁷厳密には量子干渉とは同一粒子位相干渉を意味する [4]

1.3 磁気抵抗振動

金属ナノリングにおいて観測された Aharonov-Bohm 振動や普遍的コンダクタンスゆらぎ (UCF) は、拡散領域における電気伝導の量子的振る舞いを捉えたものであり、外部磁場による変調が著しい。量子補正は Cooperon や Diffuson によって記述されるが、両者の物理機構が全く異なるため外部磁場に対する応答も異なる。本節では、磁気抵抗効果に関して述べる。

1.3.1 弱局在による振動

磁場効果について Cooperon や Diffuson は伝播関数としてある拡散方程式にしたがい、あたかも粒子のように振る舞う。ところが最も単純な近似で考えると、Cooperon (式 (1.9)) の q は二つの電子の波数 k 、 $-k$ の差であるから $q = k - (-k)$ である。弱い磁場 B (ベクトルポテンシャル A) が存在するとき $k \rightarrow k + \frac{e}{\hbar}A$ であるため

$$q \rightarrow q + \frac{2e}{\hbar}A$$

という変調をうける。一方、Diffuson (式 (1.11)) の q は電子の波数 $k+q$ と正孔の波数 k の差であるため、弱い磁場が存在しても変化がない。Diffuson には磁場効果 (B 、 ϕ) が現れない。

微視的理論 リング形状を考慮するためフーリエ変換した Cooperon 関数 $C(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$ を用いる。 $C(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$ は以下の方程式に従う [6, 15, 22]。

$$\left[D(-i\nabla - 2eA)^2 + \frac{1}{\tau_\epsilon} \right] C(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \quad (1.12)$$

ここで D 、 τ_ϵ はそれぞれ拡散定数、Cooperon 寿命をあらわす⁸。スピン軌道相互作用などを考慮したときの式 (1.12) の解が Tataru によって与えられており [24]

$$C_{interference}(0) \simeq \frac{1}{2abD} L_1 \frac{\sinh \frac{L}{L_1}}{\cosh \frac{L}{L_1} - \cos\left(4\pi \frac{\phi}{\phi_0}\right)} \quad (1.13)$$

となる (以下表記は文献 [24] に従う)。ここで Cooperon はリングを一周回って来たときの干渉効果に対応する (時間反転対称) ことを考慮しており、 a はリング幅 (リング径 R 、外径 $R+a/2$ 、内径 $R-a/2$)、 b はリング試料膜厚、 L はリング円周長、 L_1 は磁場やスピン軌

⁸厳密にはこの Cooperon 寿命によって定められる距離 L_ϵ を位相相関長という

道相互作用などによって変化した Cooperon 到達距離 (位相相関長) をあらわす。ただし L_1 は (B_0) の関数であり外部磁場によって短くなる。式 (1.13) から明らかなように、外部磁場によって振動する成分 $\cos\left(4\pi\frac{\phi}{\phi_0}\right)$ が存在する。リングのコンダクタンスは $\phi = \phi_0/2$ 変化する毎に振動する (Altshuler-Aronov-Spivak 振動: AAS 振動)。

1.3.2 ゆらぎによる振動

ゆらぎ 磁場効果はゆらぎにも振動成分を引き起こす。コンダクタンス揺らぎは、ある磁場 (B_0) におけるコンダクタンスと異なる磁場 $(B_0 + b_0)$ におけるコンダクタンスとの相関関係で与えられるため [5]、

$$\langle \Delta G(B_0) \Delta G(B_0 + b_0) \rangle \simeq \frac{48e^2}{\pi^3} \frac{Dab}{R} [C_f(0) + D_f(0)] \quad (1.14)$$

となり、Cooperon と Diffuson が寄与する。 B_0 と $B_0 + b_0$ における相関を表す $C_{fluctuation}$ 、 $D_{fluctuation}$ は以下のように与えられる。

$$C_{fluctuation}(0) \simeq \frac{1}{2abD} L'_1 \frac{\sinh \frac{L}{L'_1}}{\cosh \frac{L}{L'_1} - \cos\left(4\pi\frac{\phi + \Delta\phi/2}{\phi_0}\right)} \quad (1.15)$$

$$D_{fluctuation}(0) \simeq \frac{1}{2abD} L''_1 \frac{\sinh \frac{L}{L''_1}}{\cosh \frac{L}{L''_1} - \cos\left(4\pi\frac{\Delta\phi/2}{\phi_0}\right)} \quad (1.16)$$

ここで $\Delta\phi = b_0\pi R^2$ 、 L'_1 は Cooperon の到達距離、 L''_1 は Diffuson の到達距離に対応する。

振動 式 (1.15)–式 (1.16) はともに振動成分を含んでおり、リングのコンダクタンスは $\Delta\phi = \phi$ で振動する (Aharonov-Bohm 振動)。ただし、 L'_1 は (B_0, b_0) の関数であり外部磁場によって短くなる。一方、 L''_1 は (b_0) のみの関数であり外部磁場によって変化しない。磁場領域によって振動を引き起こす物理機構が異なるのである。

金属ナノリングにおける磁気抵抗振動は弱局在による振動とゆらぎの振動からの寄与として理解されなければならない。これら二つの機構がどの程度の磁場スケール (磁場領域) でどのように変化するのか、不明な点は多い。

1.4 量子効果の現象論的扱い

拡散領域における Aharonov-Bohm 振動や普遍的コンダクタンスゆらぎは量子効果であるが、電子波がリング上下を同時に通過して干渉するという描像ではない。しかし、現象論的には Cooperon と Diffuson を区別せず "位相効果" と捉え、サンプルサイズ L にたいして量子効果が発現するような長さを "位相相関長" L_φ とする。

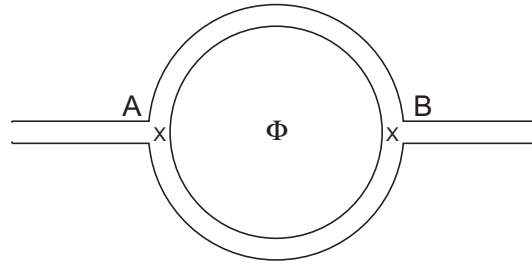


Fig 1.8: AB リング

位相効果について Fig.1.8 に示す A 点から B 点へ到達する路 (チャンネル) は無数にある。チャンネル α を通る、あるエネルギー状態の電子は位相差 ξ_α を獲得する。磁束 Φ のもとでは次式で示すような振動成分となる [2]。

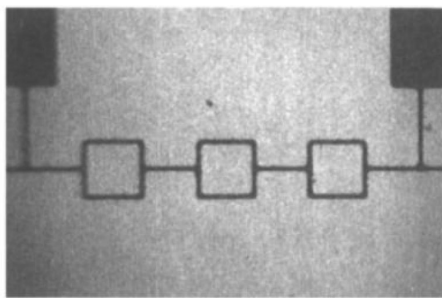
$$A_\alpha \cos\left(\xi_\alpha + 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \quad (1.17)$$

コンダクタンス g は有効的に残るチャンネル数 N_c の和であらわされ⁹、

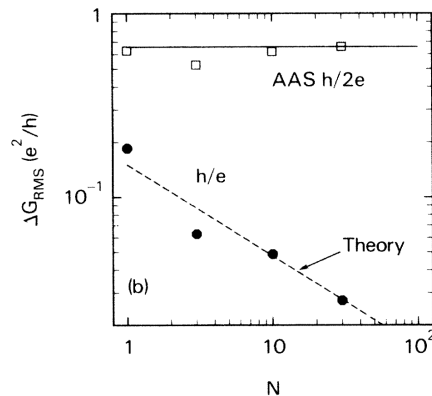
$$\begin{aligned} g &= g_0 \sum_{\alpha}^{N_c} \left[1 + \cos\left(\xi_\alpha + 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \right] \\ &= g_0 \left[N_c + c_1 \sqrt{N_c} \cos\left(\zeta + 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \right] \\ &= \bar{g} \left[1 + \frac{c_1}{\sqrt{N_c}} \cos\left(\zeta + 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \right] \end{aligned} \quad (1.18)$$

となる。ここで $A_\alpha \sim 1$ とし $\bar{g} = g_0 N_c$ をコンダクタンス平均値とした。なお微視的理論との対応から $g \sim e^2/h$ 程度の大きさとする。バルクのようにチャンネル数 N_c が大きくなると振動成分は $\frac{1}{\sqrt{N_c}}$ で小さくなる。

⁹電子のとりうる全チャンネル数を N とすれば $N > N_c$



(a) 直列につないだ Ag リング直径 1 μm , 線幅 75 nm, 膜厚 20 nm)



(b) AB 振動と AAS 振動のリング数依存性

Fig 1.9: 磁気抵抗振動 (Ref[11])

伝導チャンネル数に関して、UmbachらはFig.1.9に示すようにリングを直列につなげることで伝導チャンネル数を増やす実験を行った。位相相関長は隣り合うリングまで到達しないため、個々のリングが独立に寄与する。すなわちリング数 N 増加がチャンネル数増加に対応する。その結果 $\mu_0 H = 0.2$ T 付近で観測される AB 振動の振幅が、リング数 N に対して $N^{-1/2}$ 減少することが実験的に示された（一方、低磁場領域 $-0.02 < \mu_0 H < 0.02$ T において観測される AAS 振動は振幅が変化しない）。

さらに普遍的コンダクタンス揺らぎを説明するため、これら伝導チャンネル間に位相効果による相関が生じると考える。

温度、サンプルサイズに関する依存性 今までの議論は $L < L_\varphi$ であったが、ここで一般の場合を考慮する。第 1.1 節で示したように、位相効果を弱める原因として主に

- フェルミ面のぼやけ（熱拡散長 L_T ）
- Coherence の到達距離（位相相関長 L_φ ）

の二つがある。“フェルミ面のぼやけ”があると、複数のエネルギー状態に属する電子が伝導に寄与する。これにより伝導チャンネルが増え、式 (1.18) にしたがって減衰する。またサンプルサイズ L が大きくなると Coherence が到達しないので、急速に位相効果が弱まる。これらを考慮して現象論的パラメータ G_1 、 G_2 を導入し

$$\Delta G_{h/e} \sim G_1 \frac{e^2}{h} \left(\frac{L_T}{L} \right) \exp \left[-\frac{L}{L_\phi(T)} \right] \quad (1.19)$$

$$\Delta G_{UCF} \sim G_2 \frac{e^2}{h} \left(\frac{L_T}{L} \right) \left(\frac{L_\phi(T)}{L} \right)^{3/2} \quad (1.20)$$

と与えられる [13]。 G_1 、 G_2 は0から1までの値であり、試料形状や不純物配置などによって定まる。

1.5 本研究の目的

強磁性金属と Decoherence 機構 強磁性金属には内部磁場、磁壁、磁区構造など非磁性金属にはない多彩な磁気構造があり、これらと量子干渉効果がどのように相関するのは未解明である。一般に内部磁場は外部磁場と同様、弱局在による量子干渉効果をこわすと考えられている (Decoherence)。強磁性金属 Ni を例にとり、飽和磁化 M_s に起因する内部磁場を 1 T と評価する。すると外部磁場 $\mu_0 H = 0$ T ですら $L_B \sim 18$ nm となるためである。また、磁壁が電気伝導の量子補正に及ぼす影響も議論されている [22, 16]。磁壁は磁化が空間的にねじれている構造であり、電子スピンにとってはゲージ場になる。ゲージ場による量子位相 (Berry Phase) は量子干渉パターンを乱す。磁壁の存在が電子の干渉性を弱め、弱局在領域では電気抵抗が減少することが理論的に示されており、強磁性金属特有の磁気構造は Decoherence 機構として働くと考えられている。しかし、実際に Decoherence 機構が存在するのか、どのように位相干渉効果を破壊するのかということは実験的には捉えられていない。

単一磁壁の量子ダイナミクス 量子効果が観測できる極低温環境では、磁壁そのものが量子的振る舞いを示すと考えられる。単一磁壁における磁化のねじれ方 (Chirality) は細線の容易軸方向にたいして右回り、左回りの二つの状態が存在する。この二つの状態はエネ

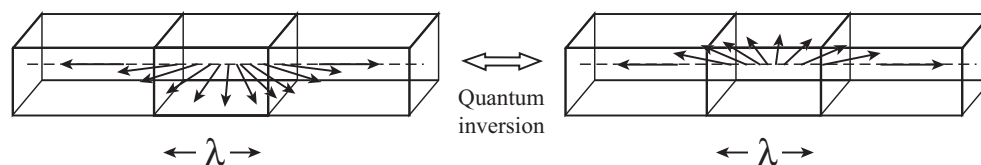


Fig 1.10: 磁壁 Chirality の量子遷移

ルギー的に縮退するため、量子遷移（巨視的量子トンネル効果）が可能である。量子干渉効果は単一磁壁の量子ダイナミクスを量子干渉パターンの変調として観測できるものと期待できる。

複合構造ナノリング 本研究の目的は、強磁性金属における Decoherence 機構や単一磁壁の量子ダイナミクスなどの量子伝導機構を研究することにある。そのため複合構造ナノリングにおける量子効果（Aharonov-Bohm 振動）の観測を試みる。複合構造 FeNi/Cu/FeNi の三層構造とすることで非磁性金属 Cu 層における量子 Coherence を残存させ、磁性層による磁化の平行配置、反平行配置によってスピン依存散乱などの変調を与える。磁性層の磁化状態は巨大磁気抵抗効果の検出によって推定できるため、強磁性層の磁化状態と量子伝導機構の相関関係を捉えられると期待できる。

主な研究内容は以下の通りである。

1. 直径 500 nm 程度の複合構造ナノリングを作製し、その磁気抵抗効果を測定する。三層構造に起因する巨大磁気抵抗効果から磁化反転過程を推定することで、複合構造ナノリングが磁化過程を制御した量子干渉計として有力であることを示す。
2. 複合構造ナノリングの極低温における磁気抵抗効果を測定し、Aharonov-Bohm 振動や普遍的コンダクタンスゆらぎ等の量子干渉効果を研究する。強磁性層の磁化状態と磁気抵抗振動の関係を明らかにする。
3. 磁気抵抗振動の周波数解析などにより Aharonov-Bohm 振動と磁壁の相関関係を研究する。

拡散領域における量子効果は Cooperon の寄与であれ Diffuson の寄与であれ、スピン軌道相互作用、スピン反転散乱などに支配されるスピン拡散過程を感知できる。複合構造ナノリングにおける量子干渉効果の研究によって、不均一磁化分布における電子スピン輸送現象の新たな知見を得ることができると期待される。スピン偏極した系に対しては、電子スピンの量子干渉効果により永久電流が流れると指摘されており [15]、新奇現象が発現する可能性もある。

第2章 実験

2.1 電子線描画法による試料作製

2.1.1 電子線リソグラフィー

電子線リソグラフィーは試料基板に塗布した有機物の膜（レジスト）を感光させて、パターンニングする方法である。電子線は光よりも波長が短いため感光領域が小さく、微細な構造を作製することができる。本研究では理工学部中央試験所に設置されている電子線描画装置を用いた。この装置は日立製作所の S-4300 特 SE 型走査型電子顕微鏡に、東京テクノロジーの描画システム（Beam Draw）を組み合わせたものである。この装置は電子銃としてショットキーエミッション型のチップを用いている。ショットキーエミッション型電子銃は冷陰極電界放出型電子銃に比べて大きな電流を得ることができ、安定性が高い。

描画パラメータ 本研究では量子効果を観測するため、 $1\ \mu\text{m}$ 以下の微細な構造が必要となる。そのため電子線描画の段階で以下のパラメータを制御する必要がある。

1. 加速電圧

一般に加速電圧が大きいほどより細いビームを得ることができる。同時に浮遊磁場に対する強度が向上するので微細な構造を作製することができる。

2. Working Distance

Working Distance は電子銃と試料ホルダーとの距離を表す。短いほど電子銃は外部の電磁波の影響を受けにくい。描画偏向アンプの状態によって変化する。

3. ビーム電流

ビーム電流は電子銃から打ち出されている単位時間あたりの電子数として定義される。したがってビーム電流を減らせばビーム径が細くなる。

4. ドーズ量

ドーズ量は $1\ \text{cm}^2$ の領域に打ち込む電子量として定義されている。この値が大きい

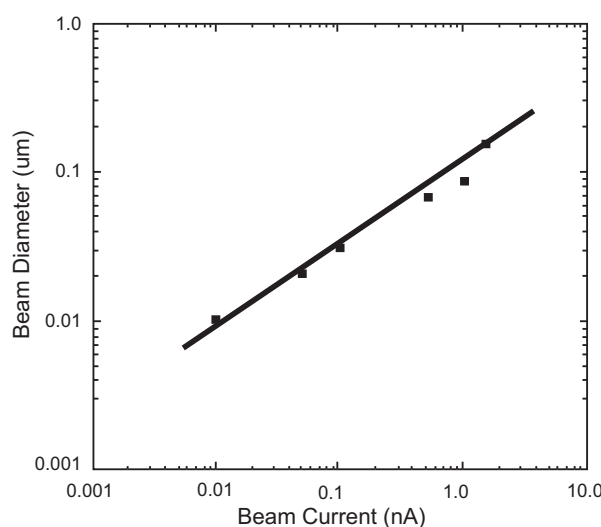


Fig 2.1: ビーム電流とビーム径の関係

とレジストが感光しすぎて設計値よりもパターンが太くなる（オーバードーズ）。一方、レジストが感光する閾値よりも小さいと、パターンが作製されない。従って、設計と実験ごとに条件（最適値）を探す必要がある。ドーズ量は以下のように定義されている。

$$Dose [\mu C/cm^2] = \frac{I[A] \cdot T[\mu s/Pixel] \cdot LP[Pixel/Line] \cdot L[Line] \cdot N}{H[cm] \cdot V[cm]}$$

I [A] はビーム電流、 T [$\mu s/Pixel$] はドーズ時間、 LP [Pixel/Line] は一ラインあたりのピクセル数、 L [Line] は走査するライン数、 H [cm] は描画領域の横寸法、 V [cm] は描画領域の縦寸法、 N はラインの多重回数を表す。

5. レジスト膜厚

電子線描画法の中でレジストの状態が最も重要なパラメータとなる。本研究ではポジ型のレジスト（日本ゼオン製 ZEP-520A）を使用する。ポジ型レジストでは電子線が照射された部分の高分子結合が分断される。このため未照射部分に比べて溶媒に対する溶解速度が速く、照射部分が微細構造パターンとなる。パターン構造の出来を左右するのがレジスト膜厚であり、一般にレジスト膜厚が薄い方が細かいパターンを描画しやすい。膜厚はレジスト粘度とスピンの回転数によって決まる。本研究ではシンナー液（ZEP-A）で希釈したレジストを用い、二段階でスピンコートする。

2.1.2 リフトオフ法

リフトオフ法の作業過程を Fig.2.2 に示す。

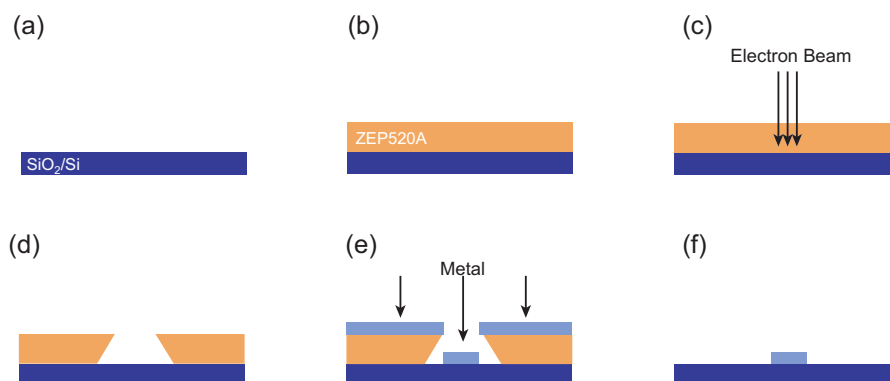


Fig.2.2: リフトオフ過程:(a) 表面熱酸化 Si 基板の洗浄、(b) レジストのスピコートおよびベーク、(c) 電子線露光、(d) レジストの現像、(e) 金属の蒸着、(f) リフトオフ

レジスト膜付き基板の作製 Fig.2.2(a) に示すように、熱酸化膜付き Si 基板をダイヤモンドカッターで 12 mm×12 mm の大きさに劈開させ、超音波洗浄器でアセトン、メタノールの順に 3 分ずつ洗浄した。エアーガンで洗浄液を吹き飛ばして乾燥させた。次にスピコーターを用いてレジストを塗布した。電子線リソグラフィーの最高分解能を引き出すため、希釈率は 1:1 とした（希釈レジスト作製時によりシンナーの蒸発レートが異なるため、希釈率は適宜変化させた）。なおスピコートは以下の二段階で行った。

1. 回転速度 1000 rpm [4 s ~ 10s]
2. 回転速度 4000 rpm [50 s]

レジスト塗布後、シンナーを蒸発させるため 180 C° に安定させた電気炉で 20 分加熱した (Fig.2.2(b))。

電子線露光とレジストの現像 レジストを塗布した基板に対して電子線描画装置によって所望のパターンを描画する (Fig.2.2(c))。次に現像液 (ZED-N50) に浸して露光部分を溶解させ、リンス液 (ZMD-B) に浸して現像液ごと洗い流す (Fig.2.2(d))。現像時間、リンス時間はそれぞれ 3 分 30 秒、50 秒である。現像をしないレジスト膜は安定であり、これ以降の作業を数日後に行っても支障を来さない。

金属膜の蒸着 作製したレジストマスクに対して、金属膜を蒸着する (Fig.2.2(d))。蒸着には超高真空蒸着装置 (アールデック製 i-Quick 005) を用いて所望の膜厚を蒸着した。成膜室チャンバーのベースプレッシャーは 3×10^{-8} Pa である。4 元 E 型電子銃を備えており、試料面内回転機構により真空を破ることなく異種金属を蒸着できる。本研究では強磁性金属/非磁性金属/強磁性金属の三層構造を作製するため、この回転機構を利用した。回転後の停止位置により斜め蒸着の効果が生じるので、最適な位置を把握しておく必要がある。蒸着レートは真空度を落とさない点と、ターゲットの母材が酸化しやすいか否かの二点を考慮して定める。

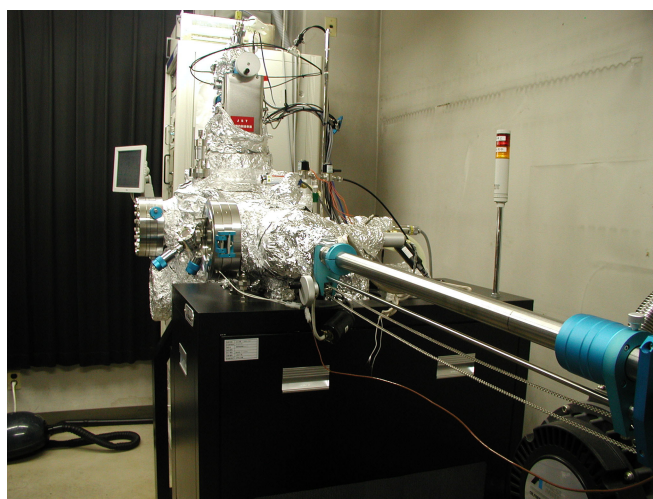


Fig 2.3: 超高真空蒸着装置 (i-Quick 005)

リフトオフ 薄膜を蒸着した基板を 2-ブタノンまたは ZDMAC(主成分 Dimethylacetamide) に浸してレジストを溶解させ、パターン以外の不要な金属ごと剥離する (Fig.2.2(e))。なお、 SiO_2 基板との結合が強く薄い金属膜のとき、斜め蒸着の効果で剥離しにくいときはアセトン、エタノールによる超音波洗浄を行う。洗浄時、超音波パワーをできるだけ落として 2 分ぐらい行った。膜厚が厚いときには超音波洗浄は行わない。

2.2 希釈冷凍機による極低温測定

拡散領域における量子効果を観測するには極低温環境が必要となる。本研究では1 K以下の極低温を作製するため ^3He - ^4He 希釈冷凍機 (Dilution) を使用した。

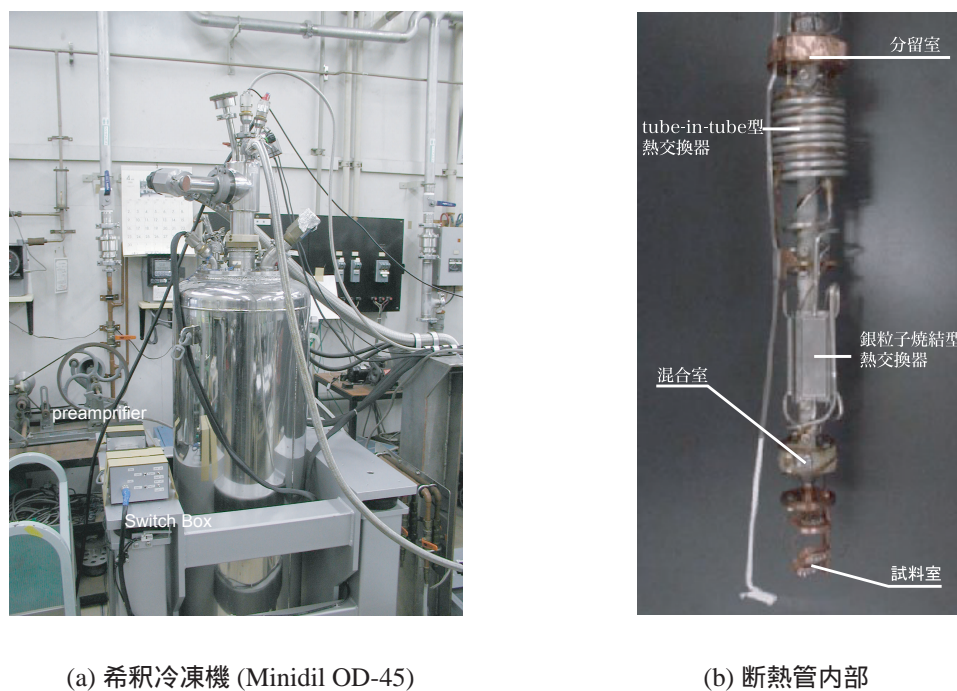


Fig 2.4: 希釈冷凍機 (Minidil OD-45)

^3He - ^4He 希釈冷凍機は ^3He - ^4He 混合液の潜熱吸収 (相転移) によって数 mK~ 数十 mK の極低温環境を作り出す。本研究で用いた Minidil OD-45 (AirLiquid 製) は冷凍能力 $20 \mu\text{W}$ であり、最低到達温度およそ 10 mK である (Fig.2.4(a))。クライオスタット全体を圧縮空気式除震台の上に配置しており、振動によって温度が上昇するのを抑制している。Fig.2.4(b) には Minidil OD-45 の断熱管内部を示す。Tube-in-Tube 型熱交換器と銀粒子焼結型熱交換器が用いられており、試料室は熱伝導の良い銅 Cu で作製されている。温度計は分留室、試料室に取り付けている。

2.2.1 試料室と微細加工試料の取り付け

Fig.2.5(a) に試料室の模式図を示す。混合室と試料ホルダーの間にヒーター抵抗を配置しており、温度制御ができるようになっている。温度計は試料ホルダーの裏面（銅）に配置した。

試料台は試料基板を回転させるため、二本の支持棒に取り付ける。試料基板の取り付け台としてCu製とセラミックス製のホルダーの二種類を用意した。Cu製試料台を用いると磁場を印加する時にうず電流の影響を受けるが、最低温度に到達する時間が早い（約3時間）。一方、セラミックス製ホルダーでは最低温度に到達するのに時間がかかるが（およそ9~10時間）、磁場印加時うず電流の影響をほとんど受けない。

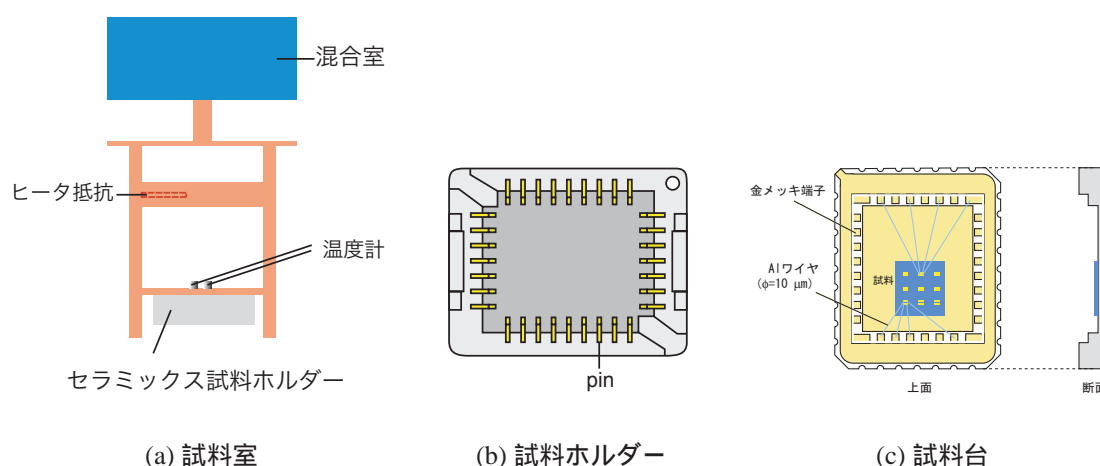


Fig 2.5: 試料取付

Fig.2.5(b) にセラミックス試料ホルダーを示す。試料台 Fig.2.5(c) の表面には $150\ \mu\text{m}$ の厚さの金メッキが施されており、Si 試料基板と熱接触がとれる。Si 試料基板の固定にはGEワニスを使用し、Si 試料基板上の測定端子と試料台の金端子は超音波ボンディング（Alワイヤー、 $\phi = 10\ \mu\text{m}$ ）によって結線する。ボンディングを行うときには全端子を同電位（グランド）に落として、微細試料の破損を防ぐ。また試料台を試料ホルダーに取り付ける際にも、Fig.2.4(a) に示したスイッチボックスを使って全ての測定端子を同電位（グランド）に落とす。

2.2.2 電気抵抗測定と磁場・温度の制御

電気抵抗測定系の概略図を示す。

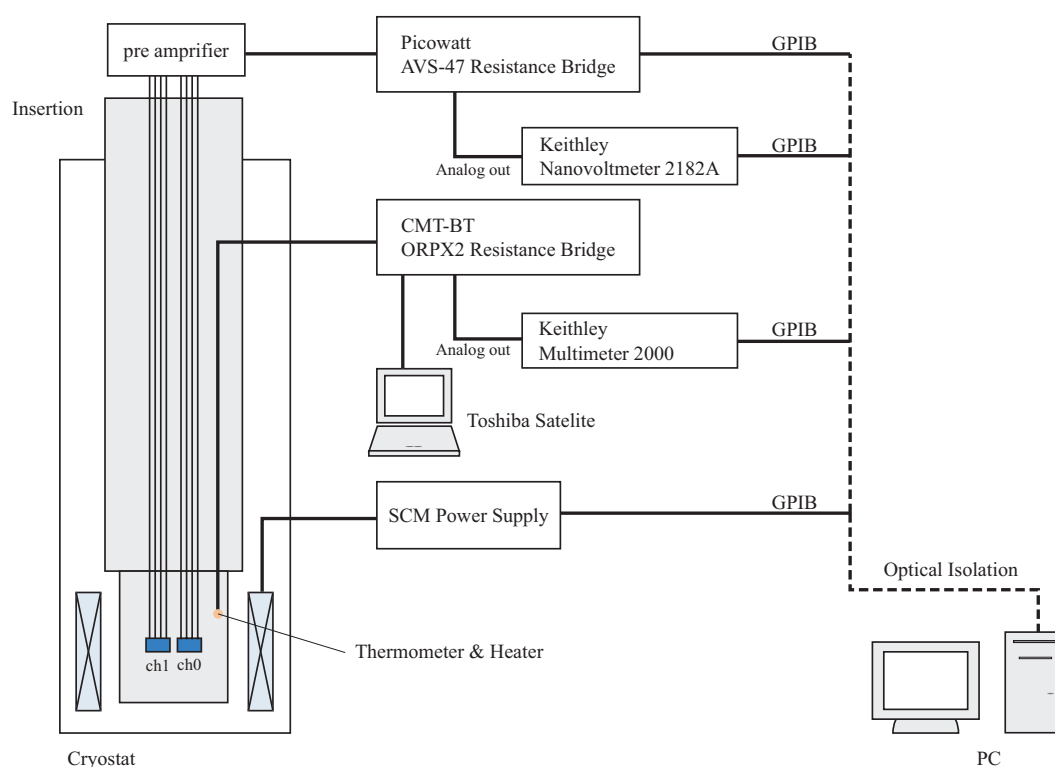


Fig 2.6: 電気抵抗測定系

電気抵抗はレジスタンスブリッジ (Picowatt 製 AVS-47) によって測定する。極低温試料室に対する熱流入を最低限に抑えるため 8 チャンネルのうち 2 チャンネルを用い、一回の測定では 1 チャンネルのみ使用する。Dilution 内部の測定信号線に関しては、熱流入を防ぐため熱伝導度の低い (したがって電気抵抗が比較的高く、 $56 \Omega/\text{m}$ である) $0.1 \text{ mm } \phi$ のマンガニン線で配線している。マンガニン線自体も断熱管の数箇所を熱アンカーをとり冷却している。

AVS-47 はコンピュータから AVS-IB(GPIB コントローラー) を介して制御しており、チャンネル、励起電圧、レンジ、レファレンス値の設定、デジタルフィルターの有無を設定できる。AVS-47 の測定信号は AVS-IB によるデジタル出力と、背面のアナログ出力両方を同時に測定した。アナログ出力は桁落ちと丸め誤差がなく最も信頼でき、Nanovoltmeter (Keithley 2182A) で測定する。

温度計には RuO₂ および Cernox という半導体温度計を用いる。それぞれ温度領域によって使い分け、Cernox は 4.2 K ~ 300 K、RuO₂ は 4.2 K 以下の低温で使用する。抵抗値はレジスタンスブリッジ (CRT-BT 製 Ohmmetre Regulateur PX2: ORPX2) により測定し、制御コンピュータ (Toshiba Satellite) を介して出力する。制御コンピュータによって

$$V(V) = 1/R(\Omega) \times 10^n$$

なるアナログ信号に変換されているので、出力値を Multimeter (Keythley 2000) により取得する。なおコンピュータ側からのノイズ混入を防ぐため、全 GPIB 通信には光アイソレーションケーブル (Omron 製) を用いている。

磁場と温度の制御 超伝導マグネットも GPIB を介して制御する。測定コンピュータの設定にしたがって印加最大電流、電流掃引レートなどが制御できる。超伝導マグネットによって印加される磁場は

$$\mu_0 H(T) = 0.0716 \times I(A),$$

という校正式によって換算する。

Minidil OD-45 は混合室との熱接触で冷却するシステムなので、小電力ヒーターによって試料に対する冷却効率を変えることができる。混合室と試料の中間位置にヒーター抵抗 (500 Ω) を埋め込んで、ORPX2 を用いて温度制御を行う。ORPX2 は極低温における温度制御器も兼ねており、試料室の温度計の値を読み取ってヒーター抵抗への出力にフィードバックさせることができる (PID 制御、P : Proportional (比例), I : Integral (積分), D : Differential (微分))。P 値は目標への操作量であり、値が離れているほど大きく、接近すると小さくなる。P 値が小さくなると目標に接近するが到達しないため (残留偏差)、I 値で埋め合わせを行う。D 値は温度に変化が生じたときに、その変化量に応じて操作する量を定める。

表 2.1: PID 設定値 (セラミックスホルダー使用時)

目標設定温度	P	I	D	PID unit [μ W]	Max Power [μ W]
250 mK	15	10	2	10^0	7.0×10^0
500 mK	10	8	10	10^2	1.2×10^2
1000 mK	16	10	1	10^2	2.3×10^2

本研究で使用した測定温度と PID の各種設定値を表 2.1 に示す。なお温度調節を行う際、最低温度に到達してから行った。

第3章 量子干渉計の設計

本章では直径 500 nm ほどの複合構造ナノリング（強磁性金属/非磁性金属/強磁性金属からなる三層構造リング）を作製し、磁化反転を制御した量子干渉計となりうるか調べた。磁化分布は形状磁気異方性によってリング円周方向に沿った方がエネルギー的に安定となるが、線幅がサブミクロン程度のリングでは多磁区構造になる可能性もあるため [17]、線幅を 50 nm とした。二つの磁性層の相対的磁化配向を変化させ、これを巨大磁気抵抗効果（GMR）で検出し磁化反転過程を調べた

3.1 複合構造ナノリング

3.1.1 試料作製

複合構造ナノリングはリングおよびリングに接続する細線（アーム）からなる（Fig. 3.1）。電流端子幅、電圧端子幅、リング細線はすべて三層構造（FeNi/Cu/FeNi）とし¹、線幅 50 nm で設計した。リングの外径・内径はそれぞれ 500 nm、400 nm、電圧端子間距離は 3 μm である。試料は電子線リソグラフィーおよびリフトオフ法を用いて作製した。

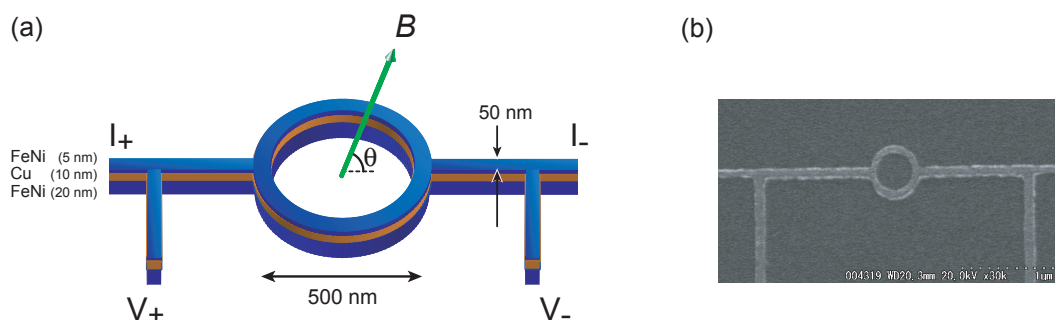


Fig 3.1: 複合構造ナノリング。(a) 模式図と (b)SEM 像。

¹ 巨大磁気抵抗効果および量子効果は界面状態が重要となるため、電子線二層描画時のバークによる損傷をさけ電子線一層描画とした。

レジスト膜付き基板作製条件

- 希釈率: ZEP520A : ZEP-A = 1 : 1
- スピンコート回転数, 回転時間: 1000 rpm (10 s) + 4000 rpm (50 s)

上記の条件によりシリコン熱酸化基板上に電子線レジスト (ZEP520A) を塗布し、スピンコート (膜厚 ~ 130 nm) ベークを順に行った。

電子線描画条件 レジストのパターニングは 20 keV 電子線を用いて三度に分けて行った。まず、最も微細なリング部分とアーム部分をフィールドサイズ 100 μm で描画した。つぎに測定用の電流端子、電圧端子部をフィールドサイズ 100 μm で重ねて描画した²。最後に、微細な精度を必要としないボンディング接合端子部をフィールドサイズ 500 μm で短時間描画した。描画条件は以下の通りである。

表 3.1: 複合構造ナノリング作製条件

—	スピンコート時間	描画電流	ドーズ時間	フィールドサイズ
一回目	1000rpm(10s)+ 4000rpm(50s)	48 pA	2.0 μs	100 μm
二回目	—	48 pA	1.8 μs	100 μm
三回目	—	720 pA	1.5 μs	500 μm

超高真空蒸着およびリフトオフ FeNi/Cu/FeNi の三層膜構造を超高真空蒸着装置によって作製した。FeNi/Cu/FeNi の三層膜厚は 20 nm/10 nm/5 nm である。その後、剥離液 (ZDMAC, 2-ブタノン) によってレジストを剥離した。蒸着条件は以下の通りである。

表 3.2: 複合構造ナノリング作製条件

—	蒸着金属	膜厚	蒸着時真空度	蒸着速度
一層目	FeNi	20 nm	8×10^{-10} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$
二層目	Cu	10 nm	9×10^{-9} Torr	0.1 $\text{\AA}/\text{s}$
三層目	FeNi	5 nm	2×10^{-9} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$

²CADソフトのレイヤーで分けているので、この時点で非点収差補正をする必要はない。500 μm フィールドに切り換えるときに調整する。

3.1.2 測定方法

磁気抵抗効果を測定する前に強磁場 (>300 mT) を面内に印加して複合構造ナノリングの磁性層の磁化を一方向にそろえた。その後、相対的な磁化配向を平行から反平行にするために、外部磁場をアーム軸と角度 θ 傾けて印加した (Fig. 3.1)。測定は 77 K で行い、電気抵抗は Picowatt 製 AVS-47 を用いて交流四端子法によって測定した (励起電圧 1 mV)。外部磁場の掃引速度は 0.1 mT/sec である。

3.2 巨大磁気抵抗効果と磁化反転過程

3.2.1 磁気抵抗効果 ($\theta = 0^\circ$)

Fig.3.2 に磁場印加角度 $\theta = 0^\circ$ における磁気抵抗効果の測定結果を示す。初期抵抗値は $R_{(H=0, 77K)} = 227.66 \Omega$ であり、巨大磁気抵抗比 (MR 比) を $(R_{(AP)} - R_{(P)})/R_{(P)}$ と定義し MR 比に換算した。

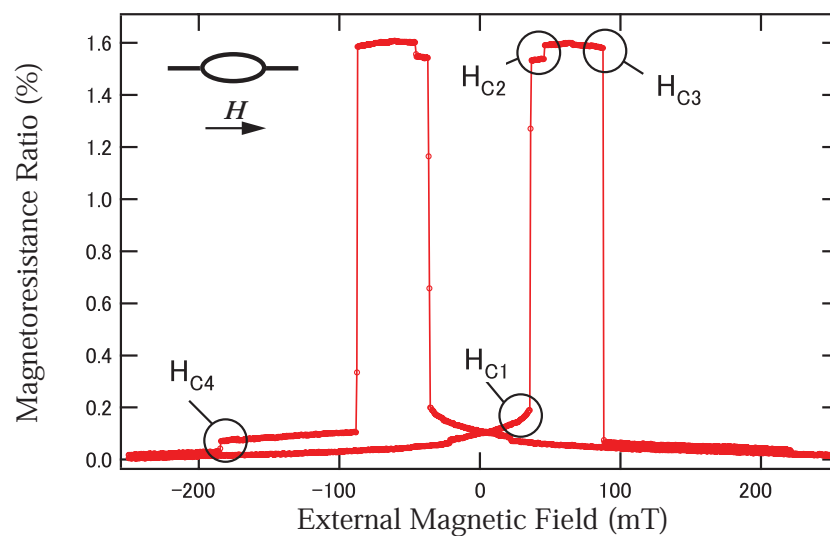


Fig 3.2: 角度 $\theta = 0^\circ$ における巨大磁気抵抗効果 ($T=77$ K、 $R_{(H=0,77K)} = 227.66 \Omega$)。

Fig.3.2 の矢印のように、抵抗値は外部磁場 (5 mT) から徐々に増加して H_{c1} (=39 mT) 付近で急激に増加する。 H_{c2} 付近で比較的小さい抵抗変化を示した後、 H_{c3} (=88 mT) において抵抗値が急激に減少して最小値となる。これは H_{c1} 付近から二つの磁性層のうち一方の磁化反転が開始し、 H_{c2} において試料の二磁性層の磁化配向が平行状態から反平行になり、 H_{c3} において反平行から平行状態になるために生じたものと考えられる。MR 比にし

て1.5%、磁気抵抗曲線は $H = 0$ mT に対してほぼ対称であり、 H_{c2} 、 H_{c4} における不連続な抵抗変化は等しい。

3.2.2 等価回路解析

等価回路 GMR 効果は、磁性層の磁化が反平行状態になっている部分の長さに比例するので、等価回路解析によって定量的に磁化反転を考察することができる。磁化反転部分は主にリングの上半分と下半分（長さ l_1 ）および二本のアーム（長さ l_2 ）に分けられ、リング部分を並列回路とみなすことができる (Fig.3.3)。

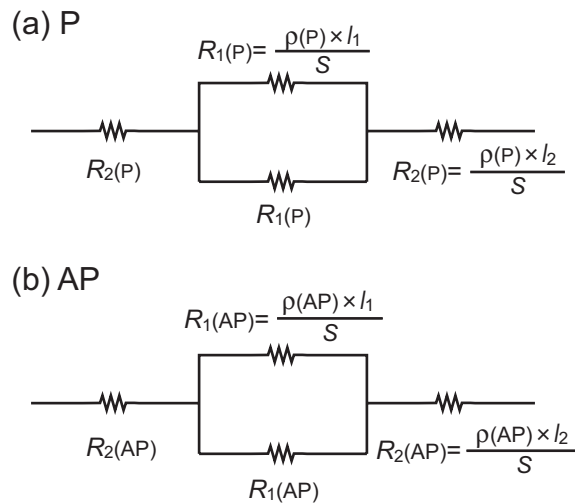


Fig 3.3: 等価回路モデル (a) 磁化が平行配置のとき、(b) 磁化が反平行配置のとき。

リング部分の抵抗 R_1 とアーム部分の抵抗 R_2 を用いて、複合構造ナノリングにおける磁性層全体の磁化が平行配置 (P) になるときと反平行 (AP) になるときの抵抗は以下のように与えられる。

$$R(AP) = 2R_2(AP) + \frac{R_1(AP)}{2} = \frac{\rho_{AP} l_1}{S} \left(\frac{2l_2}{l_1} + \frac{1}{2} \right) \quad (3.1)$$

$$R(P) = 2R_2(P) + \frac{R_1(P)}{2} = \frac{\rho_P l_1}{S} \left(\frac{2l_2}{l_1} + \frac{1}{2} \right), \quad (3.2)$$

ここで S は細線の断面積であり、リングとアームの線幅は 50 nm で等しいとする。 ρ_P と ρ_{AP} は三層分の電気抵抗率をあらわす。

磁化反転による抵抗変化 式(3.1)と式(3.2)により、複合構造ナノリングの各部分が磁化反転したときの抵抗変化を見積もる。主な磁化反転過程は、1. リング全体の磁化反転、2. リング半分の磁化反転、3. アーム一本の磁化反転、4. アーム二本の磁化反転であり、そのほかの磁化反転過程はこれらの組み合わせで与えられる。

$$\Delta R_{ring} = \frac{1}{2} \{R_1(AP) - R_1(P)\} = \frac{(\alpha - 1)}{2} R_1(P) \quad (3.3)$$

$$\Delta R_{half-ring} = \frac{(\alpha - 1)}{2(\alpha + 1)} R_1(P) \quad (3.4)$$

$$\Delta R_{onearm} = (\alpha - 1)\beta R_1(P) \quad (3.5)$$

$$\Delta R_{twoarms} = 2(\alpha - 1)\beta R_1(P). \quad (3.6)$$

ここで $\alpha \equiv \rho_{AP}/\rho_P = R(AP)/R(P)$ と $\beta \equiv l_2/l_1 = R_2(P)/R_1(P) = R_2(AP)/R_1(AP)$ は実験値から求まり、本測定試料ではそれぞれ 1.015 と 1.59 である。それぞれの磁化反転過程における抵抗変化 ΔR (式 3.3 - 式 3.6) を計算して、表 3.3 にまとめた。

表 3.3: 各部分の磁化反転による抵抗変化

part	ring	half of ring	one arms	two arms
$\frac{\Delta R}{R_1(P)}$	$\frac{\alpha-1}{2}$	$\frac{\alpha-1}{2(1+\alpha)}$	$(\alpha-1)\beta$	$2(\alpha-1)\beta$
ratio	2	1	6.36	12.7

この解析により、リング上半分(または下半分)の磁化反転による抵抗変化 $\Delta R_{half-ring}$ とアーム二本の磁化反転による抵抗変化 $\Delta R_{twoarms}$ はおよそ 1:13 となることがわかる。Fig.3.2 の H_{c2} 、 H_{c4} における不連続な抵抗変化を 1 とすると、 H_{c1} おける抵抗変化が 13、 H_{c3} における抵抗変化が 14 (= 1+13) となる。すなわち H_{c1} ではアーム二本の反転が生じ、 H_{c3} ではリング半分とアーム二本が同時に反転するとわかる。

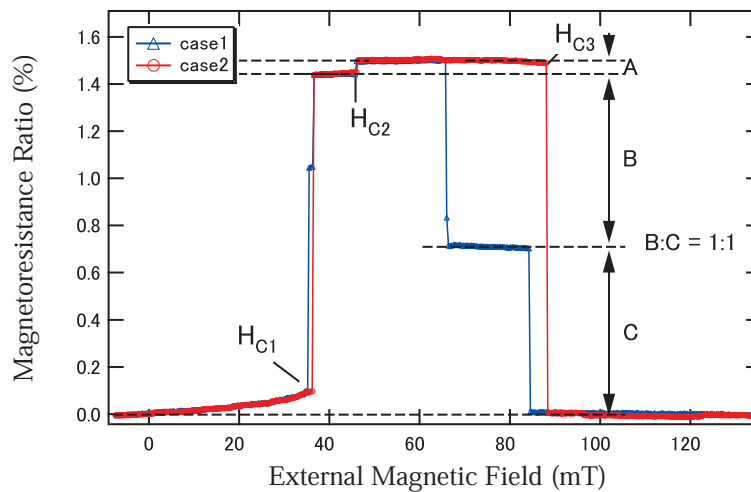


Fig.3.4: 角度 $\theta = 0^\circ$ における二パターンの磁気抵抗効果 ($T=77\text{ K}$, $R_{(H=0,77\text{K})} = 227.66\ \Omega$)。

角度 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線には Fig.3.4 に示すように二つのパターンが測定された。 H_{c3} における抵抗変化が一段階のときと二段階になる場合である。二段階になる場合 (Fig.3.4 中 case1)、B および C とラベルした抵抗変化が 1 : 1 となるところに階段が生じる。Fig.3.4 中 case2 の H_{c3} における抵抗変化がリング半分とアーム二本の磁化反転に対応するため、アームがそれぞれ独立に反転して B と C で分離したことがわかる。

3.2.3 Micromagnetics シミュレーション

角度 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線だけでは複合構造ナノリングのうち 20 nm 層と 5 nm 層のいずれが先に反転したかはわからないが、本実験では 5 nm 層が先に磁化反転を始めたものと考えられる。 H_{c1} での抵抗が徐々に増加するのに対し、 H_{c3} での抵抗が急激に減少するのは 5 nm 層が 20 nm 層に比べ表面粗さの影響を受けやすいためと考えられる。そこで磁化反転過程に関して Micromagnetics シミュレーションを行った。Cu 層が 10 nm であるので Py 層間の結合は考えず、20 nm 層および 5 nm 層それぞれ独立にシミュレーションした。

Fig.3.5 にシミュレーション結果を示す。磁化曲線より 5 nm 層が 20 nm 層より早く反転することがわかる。20 nm 層ではリング下半分と二本のアームの磁化が一斉に反転する。一方、5 nm 層ではリング部分の磁化反転は磁壁移動によって段階的に進行した。磁壁移動ならば表面粗さや欠陥の影響を受けやすく、5 nm 層が先に磁化反転するとした先の考察と矛盾しない。また等価回路の解析の結果と一致する。更に、ナノスケール磁性体 Py では 5 nm 層の保磁力が 20 nm 層よりも小さいことが報告されており [18, 19]、以上の考察とよく一

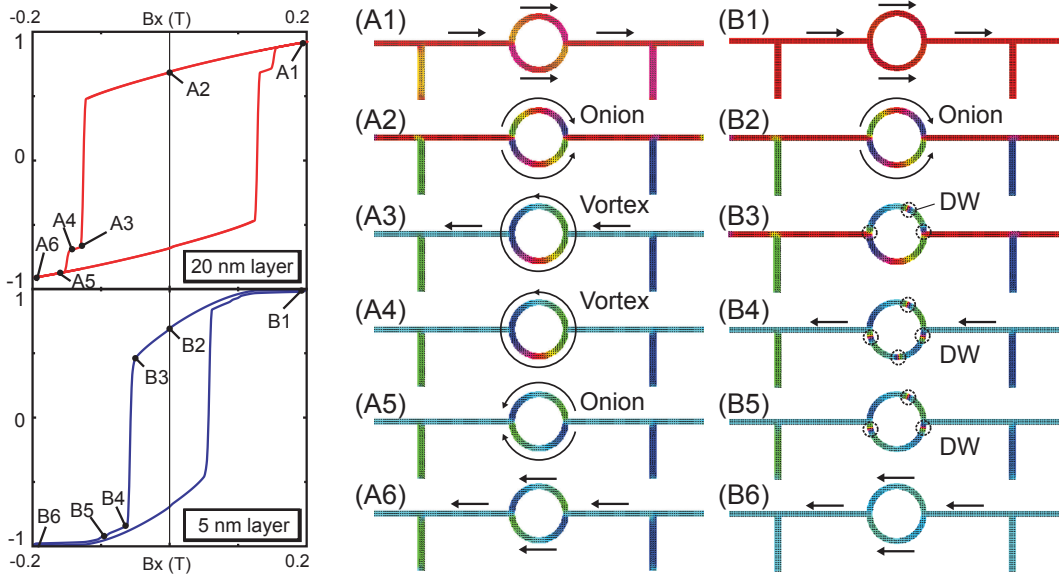


Fig 3.5: Micromagnetics シミュレーション。(A1)-(A6)20 nm 層、(B1)-(B6)5 nm 層。電圧端子間 $2 \mu\text{m}$ である (磁化反転過程は電圧端子位置に依存しない)。セルサイズは $5 \text{ nm} \times 5 \text{ nm}$ 。

致する。

3.3 巨大磁気抵抗効果の磁場印加角度依存性

外部磁場を基板面内アーム軸 ($\theta = 0^\circ$) から 30° 、 60° と変化させて磁気抵抗効果を測定した (Fig.3.1)。 $\theta = 30^\circ$ の測定結果を Fig.3.6、 $\theta = 60^\circ$ の測定結果を Fig.3.7 に示す。

3.3.1 反転磁場増大と磁壁移動

$\theta = 30^\circ$ において依然として角形の抵抗変化を示しており、 $\theta = 0^\circ$ の磁気抵抗曲線に加え、図に示したように最初の磁化反転過程において二段階の変化が現れた。これは 5 nm 層における二本のアームの磁化反転が一本ずつ進行することを示す。 $\theta = 60^\circ$ では、異方性磁気抵抗効果 (AMR 効果) の寄与が大きくなり、磁気抵抗曲線はなだらかに減少する成分を含む。磁化反転過程は基本的には Fig.3.7 における case1 のように、反転磁場 H_{c1} および H_{c3} がそれぞれ 47.1 mT、115 mT と増加する。磁化反転において面内成分が主要な寄与をするためと考えられるが、 H_{c1} は磁場の面内成分のみが磁化反転に寄与にすると仮定したときの反転磁場 $70.8 \text{ mT} (=35.4/\cos 60^\circ)$ に比べて小さい。

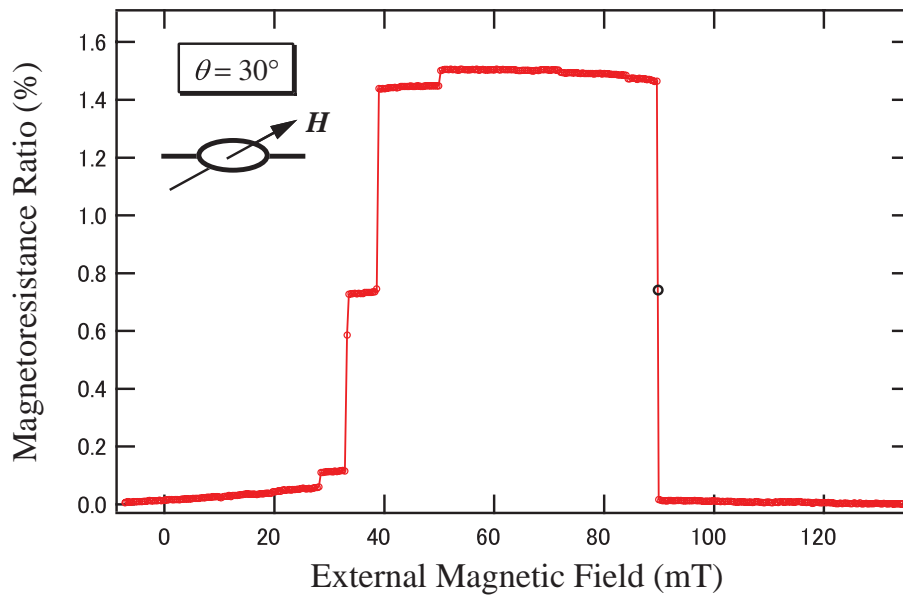


Fig 3.6: 角度 $\theta = 30^\circ$ における巨大磁気抵抗効果 ($T=77\text{ K}$ 、 $R_{(H=0,77K)} = 227.66\ \Omega$)

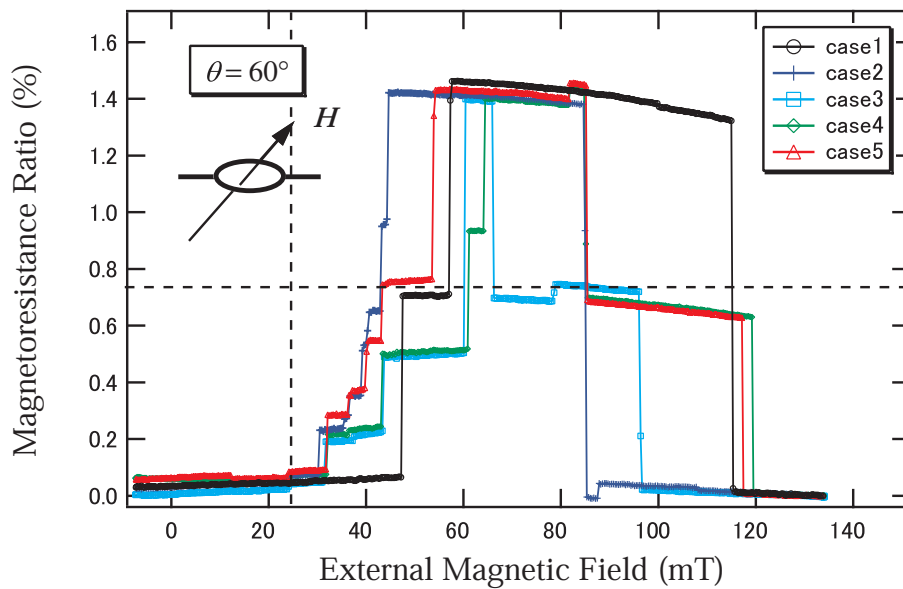


Fig 3.7: 角度 $\theta = 60^\circ$ における巨大磁気抵抗効果 ($T=77\text{ K}$ 、 $R_{(H=0,77K)} = 227.66\ \Omega$)

磁気抵抗曲線の詳細 ($\theta = 60^\circ$) $\theta = 60^\circ$ では複雑な抵抗変化が観測された (case2 ~ case5)。この場合、磁化反転は $H = 24$ mT 付近から階段状に進行しており、 $\theta = 0^\circ$ (Fig.3.2) における反転磁場 ($H = 35.4$ mT) よりも減少する。注目する点は、先に反転する磁性層では5~7段階のステップを経るのに対し、後で反転する磁性層では2~3段階程度と変化しない点である。これは5 nm 層におけるアーム部分の磁化反転では磁壁がピニング・デピニングを繰り返して移動へと変化するのに対して、20 nm 層では一斉に磁化が反転するためと考えられる。最初のステップ (GMR 効果) が始まる磁場を H_{DW} として、これを Fig.3.8 にプロットした。角度を増加させると H_{DW} は減少する。これは面に垂直な磁場成分の存在によって、ピニングサイト (表面ラフネス、欠陥など) に磁壁が作り出されることを示す。面に垂直な磁場成分が磁壁をどのように生成するのか現在はわからないが、Fig.3.1 にある電圧端子とのT字型接合部分、リングとアームの接合部分と考えられる。接合部分では磁化方向が直交しているため、外部磁場の垂直成分が印加されると、磁化が non-collinear な状態になりやすくなる。これが磁化反転の芽になると考えられる。

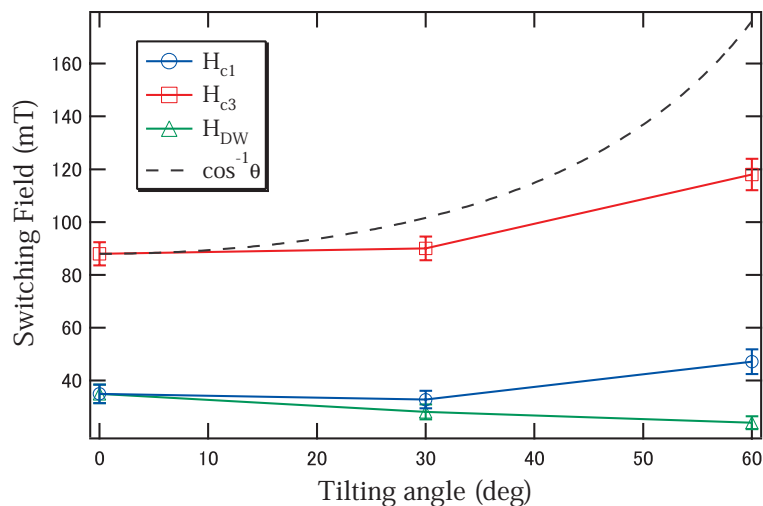


Fig 3.8: 反転磁場の角度依存性

これらの結果、複合構造ナノリングにおいては磁壁移動を詳細に捉えられることがわかった。磁化反転過程を制御した量子干渉計を作製する上で重要な意味を持つ。特に $\theta = 60^\circ$ では磁壁を段階的に移動させることができるため、磁壁の効果を調べることが可能となる。

第4章 極低温磁気抵抗効果の概略

電子 Coherence に対する強磁性金属の影響を調べるため、Cu 層の膜厚の異なる試料を作製した。極低温 ($T < 1000$ mK) における磁気抵抗効果を測定し、複合構造ナノリングを量子干渉計として用いた。量子効果などの詳細な議論は次章に行い、本章では極低温における磁気抵抗効果の概略を述べる。

4.1 複合構造ナノリング I

4.1.1 試料作製 (20 nm/10 nm/5 nm)

複合構造ナノリングの外径・内径はそれぞれ 500 nm, 400 nm であり、設計は前章と同様である。しかし、極低温測定のためジュール発熱を抑制しなくてはならない。特に電流端子間を狭める必要があるが、電圧端子間距離も縮める必要がある¹。

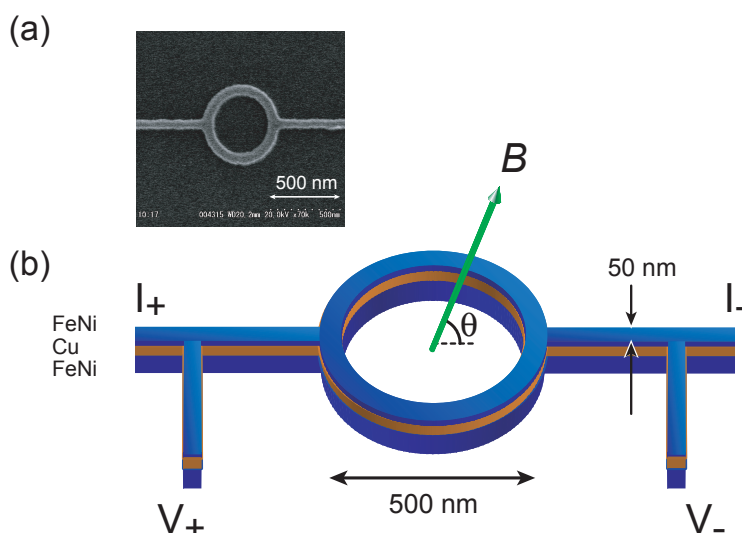


Fig 4.1: 量子効果測定時の複合構造ナノリング。(a)SEM 像と (b) 模式図。

¹位相相関長を考慮すると電圧端子間が短い方が有利であるが、リフトオフの難度が高くなる。

複合構造ナノリング 三層構造の膜厚は第3章と同様 FeNi(20 nm)/Cu(10 nm)/FeNi(5 nm)とする。電圧端子間距離は2 μm とした。微細加工における作製条件で変更した点を以下の表にまとめた。

表 4.1: 電子線描画条件 I

—	スピンコート時間	描画電流	ドーズ時間	フィールドサイズ
一回目	1000rpm(10s)+ 4000rpm(50s)	35 pA	2.0 μs	100 μm
二回目	—	35 pA	2.0 μs	100 μm
三回目	—	360 pA	3.0 μs	500 μm

表 4.2: 蒸着条件 I

—	蒸着金属	膜厚	蒸着時真空度	蒸着速度
一層目	FeNi	20 nm	8×10^{-10} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$
二層目	Cu	10 nm	9×10^{-9} Torr	0.1 $\text{\AA}/\text{s}$
三層目	FeNi	5 nm	2×10^{-9} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$

4.1.2 測定方法

電気抵抗測定には Picowatt 製 AVS-47 を用いた。抵抗レンジは 200 Ω である。アナログ出力を Nanovoltmeter で測定するとともに、デジタル出力を測定感度を向上させるための参照モードを用いて測定した。なお参照値として $\mu_0 H = 0$ [T] における抵抗値を用いた。

極低温において Aharonov-Bohm 振動を観測するため、リング面内部を垂直に貫く磁束 $\Phi_{AB} = BS$ が必要となる。さらに磁化反転を制御するため試料面内の磁場成分も必要となる。そこで磁場印加角度は $\theta = 60^\circ$ に設定し²、超伝導マグネットの電流掃引速度は 0.001 A/s とした。磁気抵抗効果は ³He-⁴He 希釈冷凍機を用いて 120 mK、250 mK、4.2 K で測定した。試料発熱を考慮して励起電圧は変化させた。

²試料ホルダーを銅製ホルダー支持棒に対して 30° 傾けて取り付ける (初期状態 $\theta = 90^\circ$)。

4.1.3 極低温における磁気抵抗効果

Fig.4.3 に極低温 120 mK における磁気抵抗効果、Fig.4.4 に 4.2 K の磁気抵抗効果を示す。これらの励起電圧は $100 \mu\text{V}$ である。Fig.4.5 は極低温 250 mK における磁気抵抗効果 Fig.4.6 には 4.2 K の磁気抵抗効果を示す。これらの励起電圧は 1 mV である。巨大磁気抵抗効果が出現する弱磁場領域をそれぞれ拡大した。

反転磁場の増大

極低温環境によってアーム部分およびリング部分の反転磁場が増大する。磁気抵抗曲線において、最初に抵抗が増大する磁場 H_{c1} または H_{DW} 、磁性層がほぼ反平行磁化配置になる磁場 H_{c3} 、最後に全体が平行磁化配置になる磁場 H_{c4} の値を Fig.4.2 に示す³。磁化反転過程は確率過程なので反転磁場の最大値を元にした。

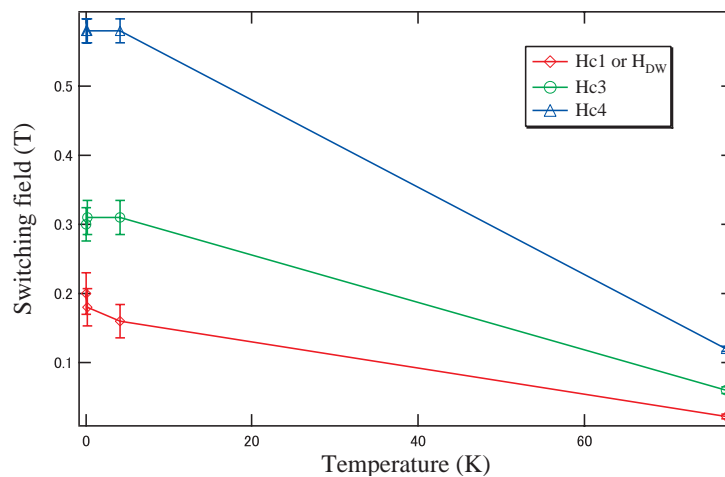
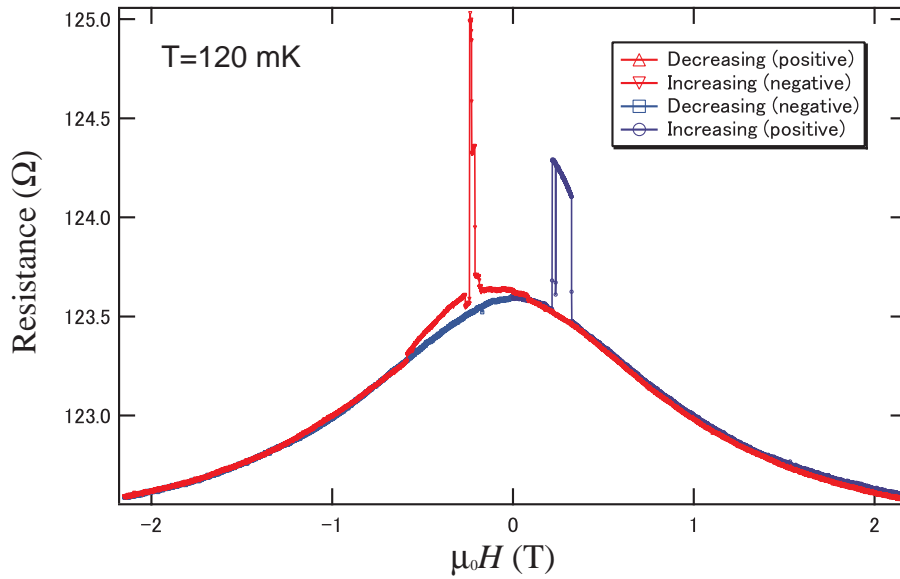


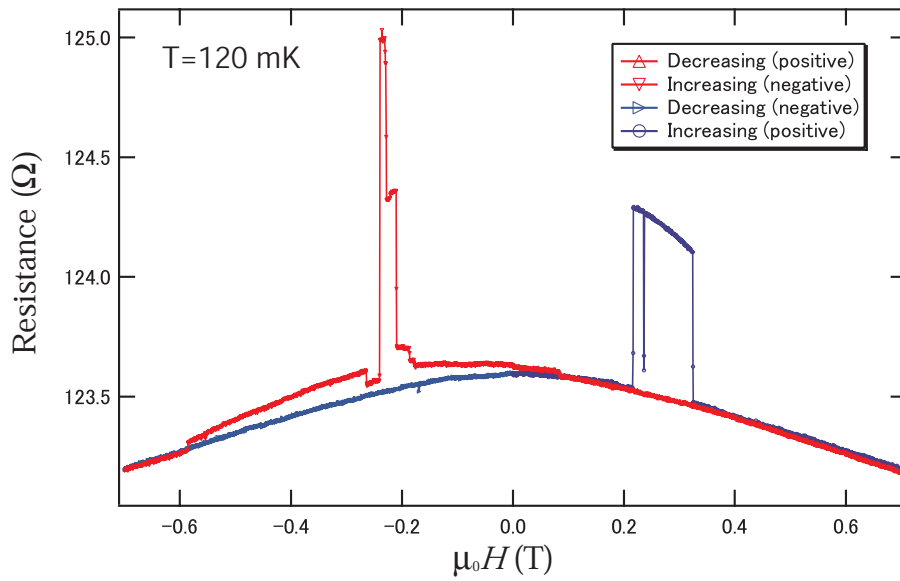
Fig 4.2: 反転磁場の増大

いずれの反転磁場も増大し、4.2 K 以下ではほぼ一定になる。これらは飽和磁化 M_s の増大、および磁壁核生成と磁壁移動に寄与する熱的效果が抑制されるためと考えられる。また、いずれの磁気抵抗曲線においても磁壁移動に対応する小さな抵抗変化を検出した。これは極低温において磁壁移動によって磁化反転が進行する場合、ピニング、デピニングが徐々に進行することを示唆する。

³ H_{c1} などの名称は第3章に基づく。

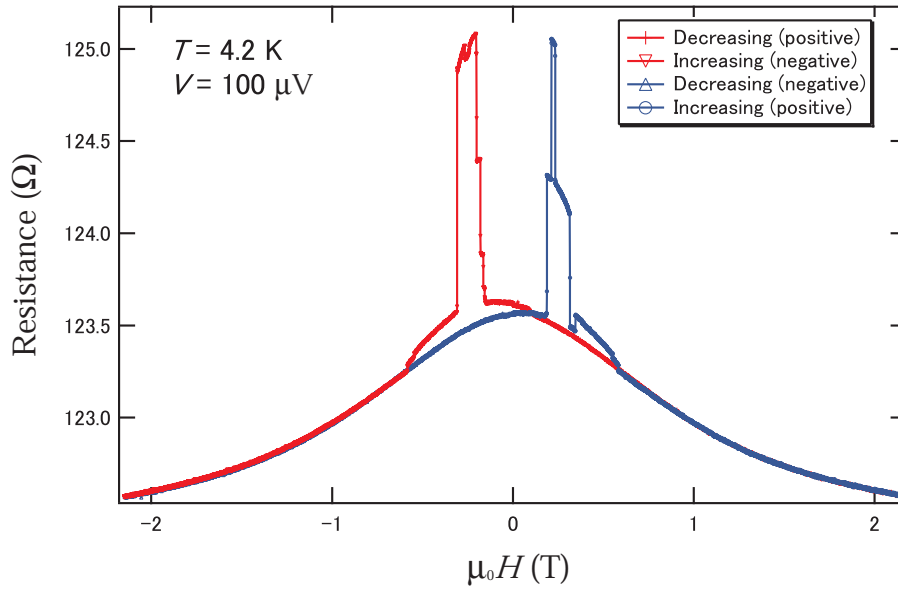


(a) 磁気抵抗効果

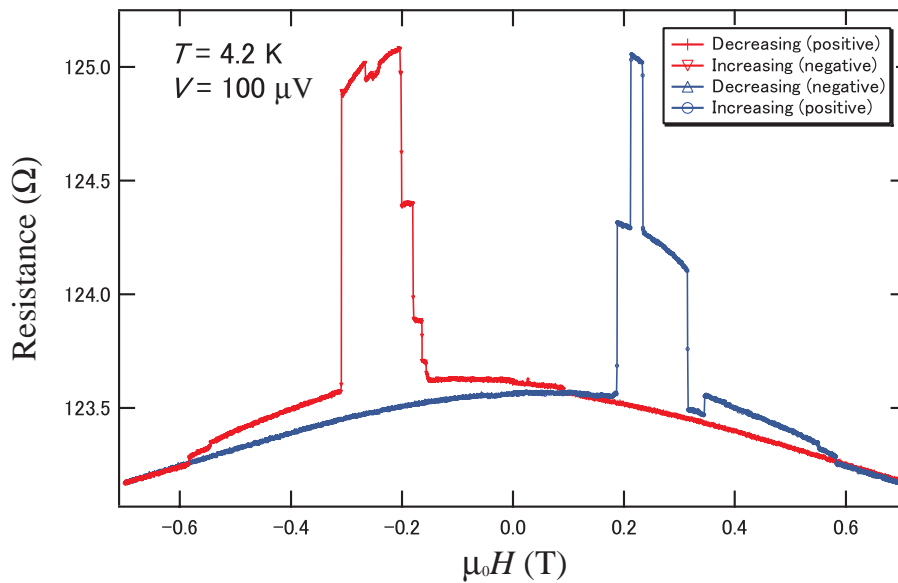


(b) 巨大磁気抵抗効果の詳細

Fig 4.3: 極低温 120 mK における磁気抵抗効果 ($V_{ex}=100 \mu\text{V}$ 、複合構造ナノリング 20 nm/10 nm/5 nm)。無磁場における抵抗値は二値あり $R_{(\mu_0H=0T, T=120mK)} = 123.5935 \Omega$ および $R_{(\mu_0H=0T, T=120mK)} = 123.629 \Omega$ である。

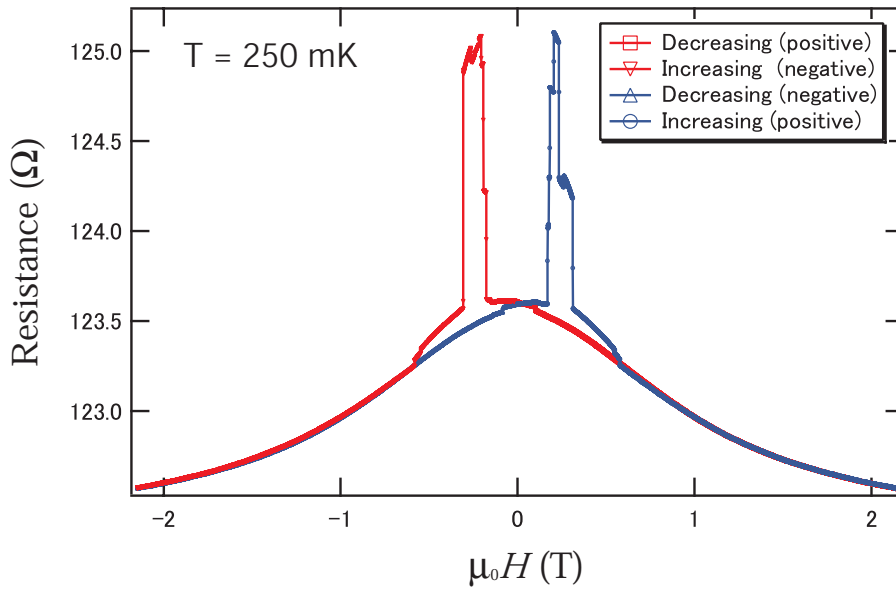


(a) 磁気抵抗効果

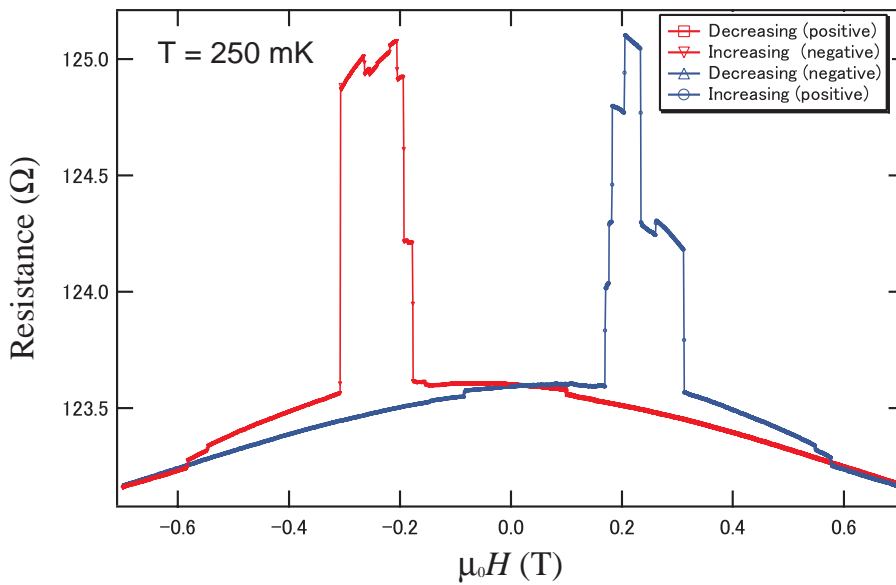


(b) 巨大磁気抵抗効果の詳細

Fig 4.4: 低温 4.2 K における磁気抵抗効果 ($V_{ex}=100 \mu\text{V}$ 、複合構造ナノリング 20 nm/10 nm/5 nm)。無磁場における抵抗値は二値あり $R_{(\mu_0 H=0 \text{ T}, T=4.2\text{K})} = 123.56 \Omega$ および $R_{(\mu_0 H=0 \text{ T}, T=4.2\text{K})} = 123.61 \Omega$ である

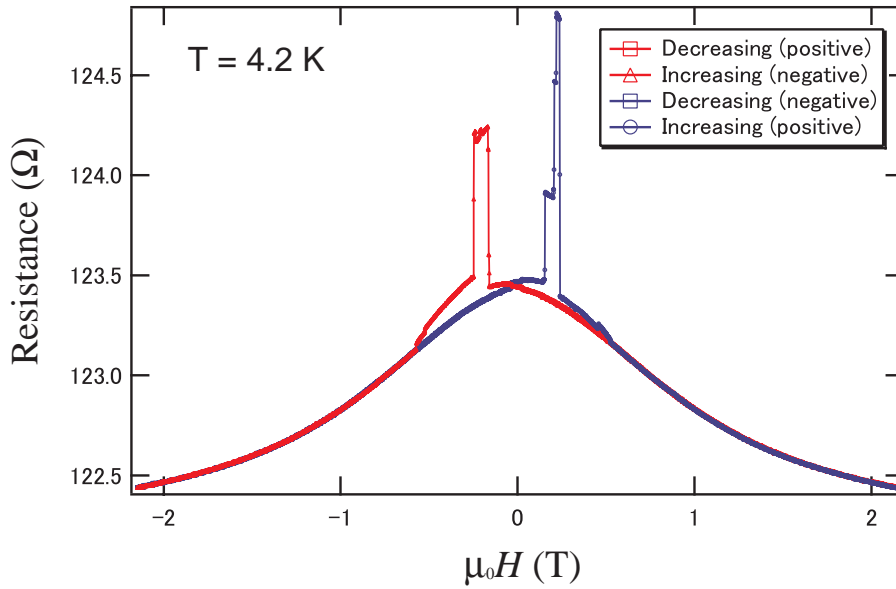


(a) 磁気抵抗効果

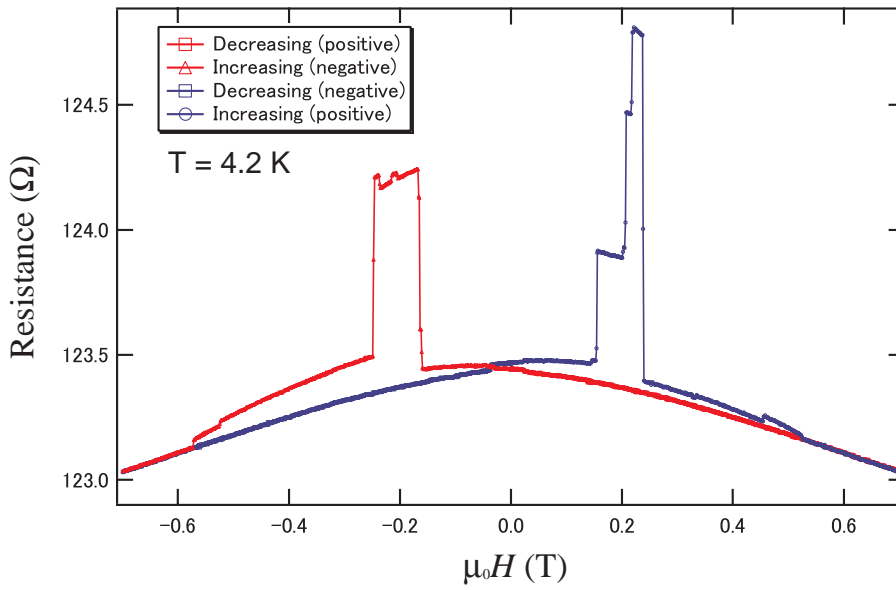


(b) 巨大磁気抵抗効果の詳細

Fig 4.5: 極低温 250 mK における磁気抵抗効果 ($V_{ex}=1$ mV、複合構造ナノリング 20 nm/10 nm/5 nm)。無磁場における抵抗値は二値あり $R_{(\mu_0H=0T, T=250mK)} = 123.5929 \Omega$ および $R_{(\mu_0H=0T, T=250mK)} = 123.601 \Omega$ である。



(a) 磁気抵抗効果



(b) 巨大磁気抵抗効果の詳細

Fig 4.6: 低温 4.2 K における磁気抵抗効果 ($V_{ex}=1$ mV、複合構造ナノリング 20 nm/10 nm/5 nm)。無磁場における抵抗値は二値あり $R_{(\mu_0H=0T, T=4.2K)} = 123.44 \Omega$ および $R_{(\mu_0H=0T, T=4.2K)} = 123.47 \Omega$ である。

4.1.4 巨大磁気抵抗効果と異方性磁気抵抗効果

巨大磁気抵抗効果

Fig.4.3 から Fig.4.6 に示した磁気抵抗曲線には、MR 比 1.5%の巨大磁気抵抗効果 (GMR 効果) が現れている。同一試料にもかかわらず GMR 形状が測定毎に異なるのは、第 3.3.1 節で示したように磁壁移動によって磁化反転が進行するためである。磁化反転過程は基本的に第 3 章と同様である。しかし、Fig.4.6(b) の負の磁場領域 ($\mu_0 H < 0$) および Fig.4.3(b) の正の磁場領域 ($\mu_0 H > 0$) のように MR 比が 1.5%に達しない場合があった。Fig.4.7(a) と Fig.4.7(b) に拡大して示す。

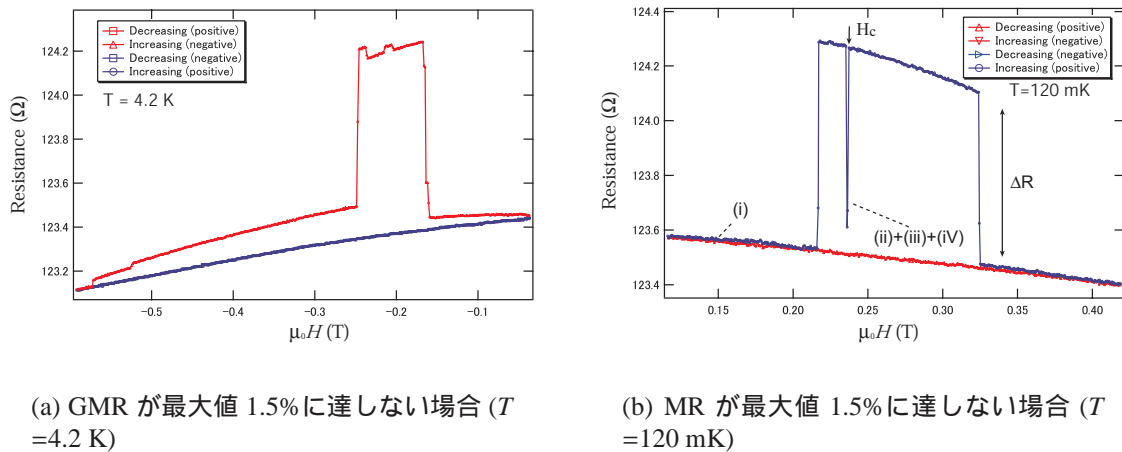


Fig 4.7: 複合構造ナノリング I でみられる磁気抵抗変化

どちらの磁場印加過程ともその後の飽和過程 ($\mu_0 |H| > 0.6$ T) において大きな抵抗変化が生じず、MR が 1.5%に達した場合と飽和抵抗値が同一になる。したがって磁化反転が起きない部分が残存 (反平行磁化配置が残存) するわけではなく、異なる磁性層 (リング部またはアーム部) の磁化反転が同時に生じたと考えられる。Fig.4.3(b) を例にとると、 $\mu_0 H = 0.21$ T と $\mu_0 H = 0.32$ T における抵抗変化 ΔR がアーム一本の抵抗変化 (AP \leftrightarrow P) に対応するため⁴、5 nm 層のアーム一本に続いて 20 nm 層のアーム一本が反転したと考えられる。Fig. 4.8 に模式図で磁化反転過程を示す (なお簡単のためリング部分の磁化反転は無視した)。はじめに二本のアームの磁化が平行状態 (i) にあり、外部磁場 H_c において (ii)(iii)(iv) と連続的に生じたと考えれば Fig. 4.7(b) の変化も説明することができる。Fig.4.7(a) に関しても、磁場領域 $-0.25 < \mu_0 H < -0.15$ T において同様の磁化反転が生じたと考えることができる。

⁴第 3.2.2 節参照

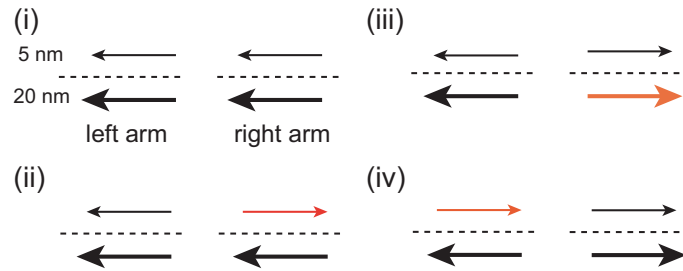


Fig 4.8: 磁化反転過程の例

異方性磁気抵抗効果

極低温によって磁性層の反転磁場が増大するため、異方性磁気抵抗効果 (AMR 効果) の寄与が 77 K 測定の時と比べて大きい。GMR 効果に AMR 効果が重畳しており、原点付近からなだらかに抵抗が減少する。いずれの抵抗変化も強磁場 $\mu_0 H = 2$ T 付近で飽和するため、 $\mu_0 H = 2$ T で試料の磁化が磁場方向に揃うことを示す。AMR 効果は $\mu_0 H = 2$ T で 1.2% の抵抗減少を示す。Fig.4.5(b) および Fig.4.4(b) において、磁場領域 $0.2 < \mu_0 |H| < 0.3$ T では抵抗減少の曲率が減磁過程より急峻になる。

Fig.4.9 に拡大する。フィッティング曲線の曲率は明らかに減磁過程よりも高い。

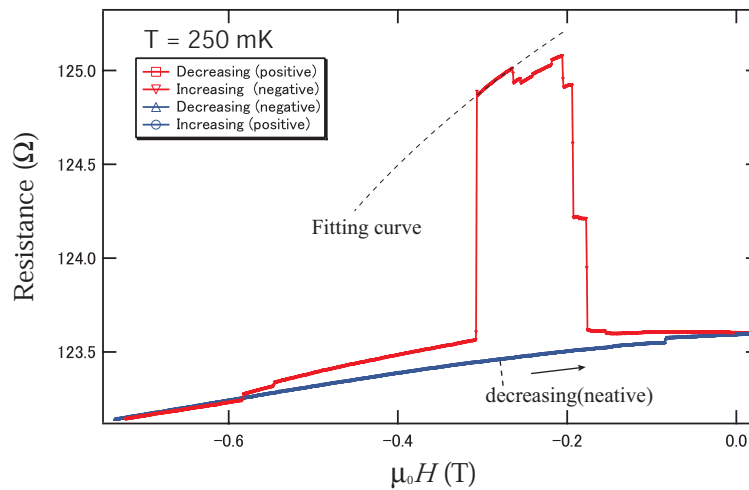


Fig 4.9: AMR 効果の重畳

これは磁化が一斉回転するときにも観測される現象であり [20, 21]、磁化方向がゆっくりと変化する過程に対応する。この試料では磁化反転は磁壁移動によるので、任意の磁区において、磁壁が移動してくるまでの間磁化が回転することに対応する。

4.2 複合構造ナノリングII

4.2.1 試料作製 (20 nm/20 nm/5 nm)

Cu層における電子のCoherenceを残存させるため、Cu層膜厚を20 nmとした。抵抗ブリッジ測定では抵抗が減少すると発熱が多くなるため、電圧端子間距離は0.8 μm とした。

表 4.3: 電子線描画条件II

—	スピコート時間	描画電流	ドーズ時間	フィールドサイズ
一回目	1000rpm(4s)+ 4000rpm(50s)	42 pA	1.6 μs	100 μm
二回目	—	42 pA	1.6 μs	100 μm
三回目	—	740 pA	1.5 μs	500 μm

表 4.4: 蒸着条件II

—	蒸着金属	膜厚	蒸着時真空度	蒸着速度
一層目	FeNi	20 nm	6×10^{-10} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$
二層目	Cu	20 nm	5×10^{-9} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$
三層目	FeNi	5 nm	8×10^{-10} Torr	0.2 $\text{\AA}/\text{s}$

4.2.2 測定方法

電気抵抗測定にはPicowatt製AVS-47を用いた。抵抗レンジは200 Ω 、励起電圧は1 mVである。アナログ出力をNanovoltmeterで測定するとともに、デジタル出力測定では測定感度を向上させるために参照モードを用いた。参照値として $\mu_0 H = 0$ [T]における抵抗値を用いた。磁場印加角度は $\theta = 60^\circ$ とし、超伝導マグネットの電流掃引速度は0.002 A/sとした。測定温度は96 mK、250 mK、500 mK、1000 mK、4.2 Kである。なお500 mK、1000 mKは磁場 $\mu_0 H = 2$ T印加後の減磁過程のみ測定した。

4.2.3 極低温における磁気抵抗効果

極低温120 mK、250 mK、4.2 Kにおける磁気抵抗効果をFig.4.10からFig.4.15に示す。巨大磁気抵抗効果が出現する領域をそれぞれ拡大した。

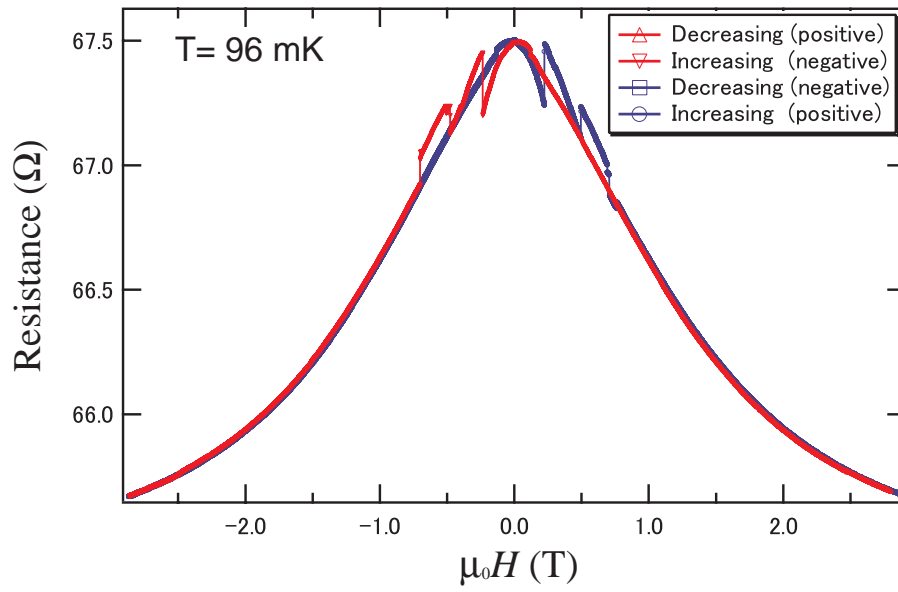


Fig 4.10: 磁気抵抗効果 (20nm/20nm/5nm, $T=96$ mK), $R_{(0T, 96mK)} = 67.503 \Omega$

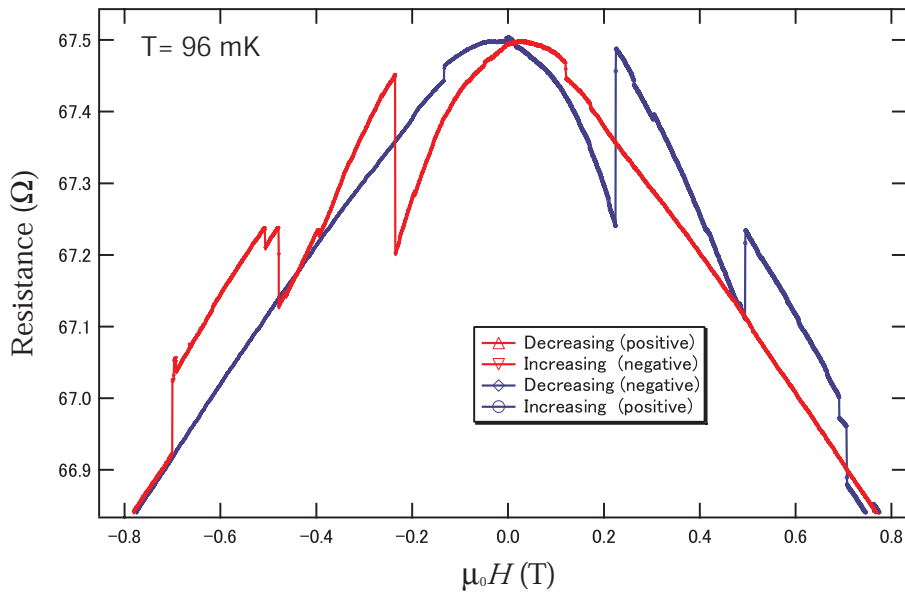


Fig 4.11: 巨大磁気抵抗効果の詳細 (20nm/20nm/5nm, $T=96$ mK)

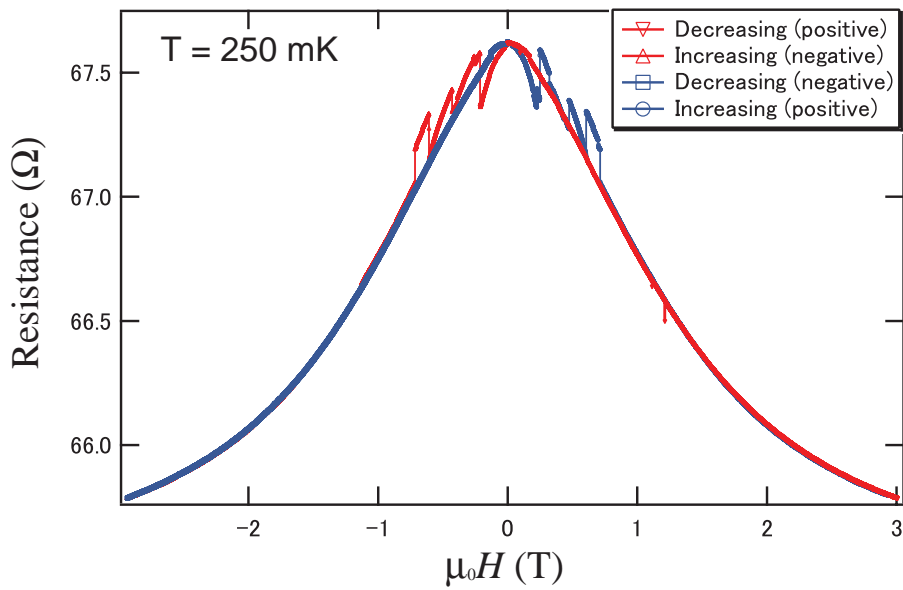


Fig 4.12: 磁気抵抗効果 (20nm/20nm/5nm, $T=250$ mK)。 $R_{(0T,250mK)} = 67.618 \Omega$

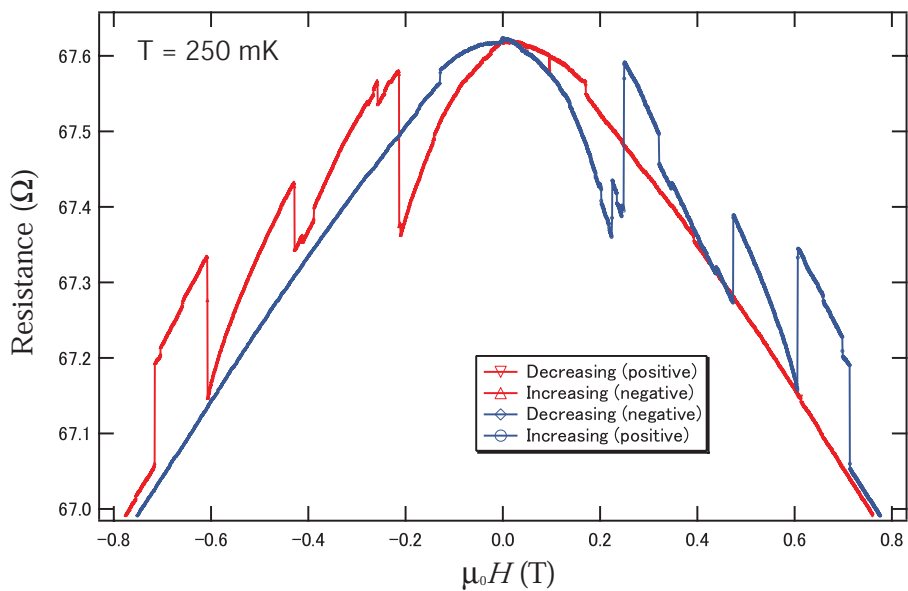


Fig 4.13: 巨大磁気抵抗効果の詳細 (20nm/20nm/5nm, $T=250$ mK)

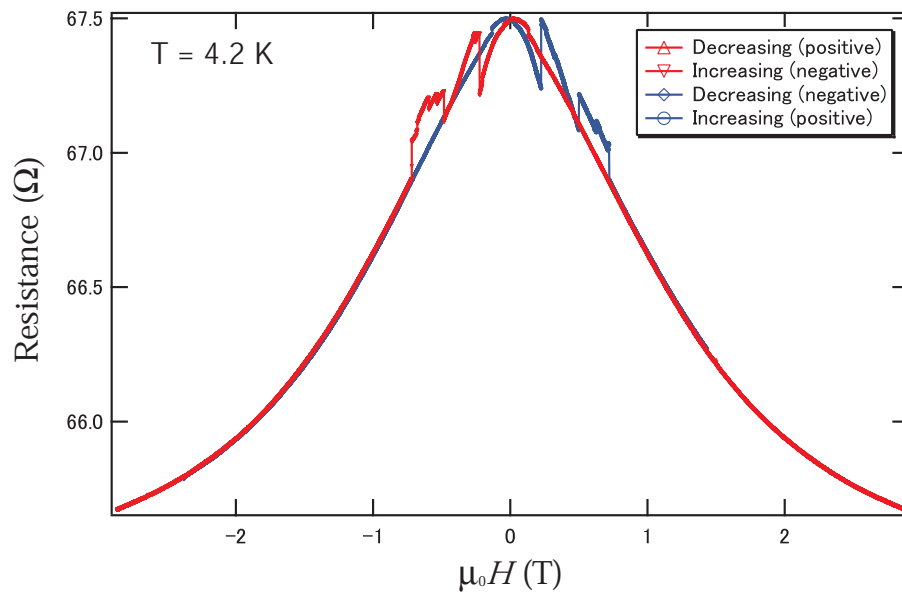


Fig 4.14: 磁気抵抗効果 (20nm/20nm/5nm, $T=4.2$ K)。 $R_{(0T,4.2K)} = 67.492 \Omega$

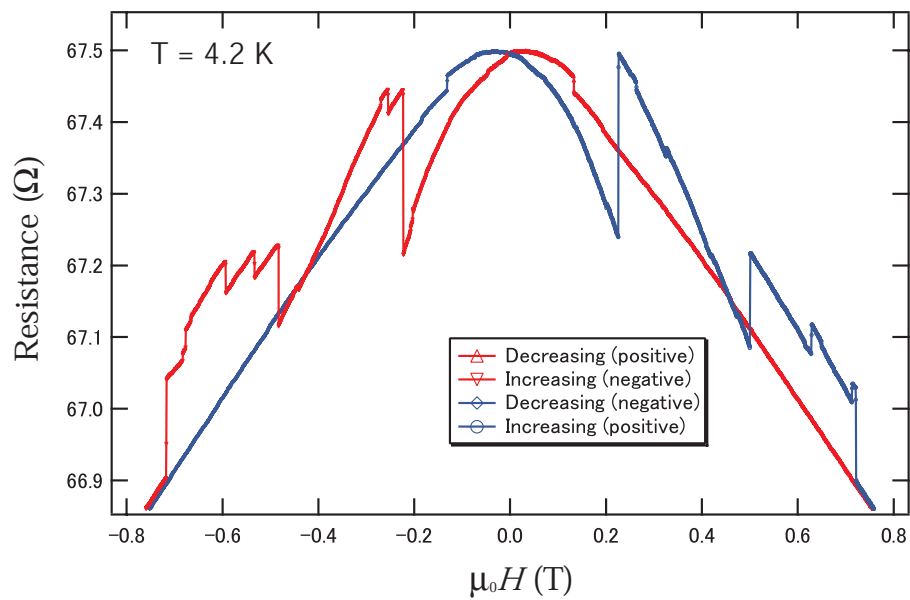


Fig 4.15: 巨大磁気抵抗効果の詳細 (20nm/20nm/5nm, $T=4.2$ K)

4.2.4 巨大磁気抵抗効果と異方性磁気抵抗効果

非磁性 Cu 層の膜厚が 20 nm であるため、Cu 層厚 10 nm の試料 I に比べて GMR 効果が小さく AMR 効果と同程度の抵抗変化を示した。Fig.4.11 と Fig.4.13 の特徴的な抵抗変化部分を Fig.4.16 に拡大した。

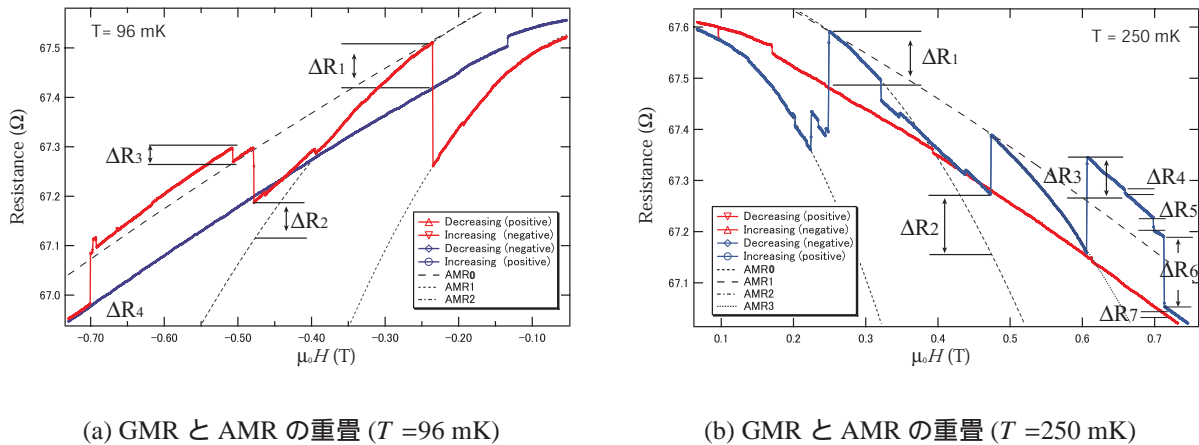


Fig 4.16: 複合構造ナノリング II でみられる磁気抵抗変化

磁化回転と磁壁移動 増磁過程の磁気抵抗曲線には減磁過程のそれに比べて曲率が急峻な部分が存在し、磁化回転に伴う AMR 効果が明瞭である。減磁過程の曲線を平行移動させた 'AMR0' を図中に挿入し、急峻な抵抗変化部分にフィッティングをかけた。フィッティング曲線が包絡線になることがわかる。AMR 効果のみが寄与する場合フィッティング曲線に従って抵抗が減少し、磁化反転後の抵抗値は減磁過程の抵抗値と一致するはずである。したがって図中 $\Delta R_1 \sim \Delta R_7$ と記した抵抗差分が磁化反転後の反平行磁化配置に起因する GMR 効果である。 ΔR_2 は、ある部分（磁区）の磁化回転に従って抵抗が減少する分を他の部分の巨大磁気抵抗効果による抵抗増加で補償する。

Fig.4.16(b) における $\mu_0 H = 0.25$ T の抵抗変化が、ある部分の磁化回転 ($\Delta R_1 = 0.111 \Omega$) に対応し、 $\mu_0 H = 0.47$ T の抵抗変化が他の部分の磁化回転と磁壁移動 ($\Delta R_2 = 0.112 \Omega$) に対応する。ここで抵抗値が 'AMR0' と同一になるため、 $\mu_0 H = 0.47$ T で生じた磁化回転は $\mu_0 H = 0.25$ T の GMR を打ち消す必要がある。すなわち、非磁性層を挟んで対向する 20 nm 層と 5 nm 層の部分（リング-リングまたはアーム-アーム）が反転する。 $\mu_0 H = 0.61$ T の抵抗変化がまた他の部分の磁化回転に対応する ($\Delta R_3 = 0.0859 \Omega$)。それ以降は 20 nm 層と 5 nm 層において同時に磁壁移動による磁化反転が生じるものと考えられる ($\Delta R_4 = -0.0093 \Omega$, $\Delta R_5 = -0.02639$

Ω , $\Delta R_6 = -0.13785 \Omega$, $\Delta R_7 = -0.021 \Omega$)。Fig.4.16(b) の最大 MR はおよそ 0.47% である。等価回路解析の (表 3.3 で与えられる) パラメータは $\alpha = 1.005$ 、 $\beta = 0.2$ となるため、リング半分とアーム一本における AP \leftrightarrow P の抵抗変化比はおよそ 5:4 となる。ところで抵抗値を見てみると

$$\Delta R_1 : \Delta R_3 = 0.111 \Omega : 0.0859 \Omega = 5 : 4$$

$$\Delta R_1 : (\Delta R_4 + \Delta R_5 + \Delta R_6 + \Delta R_7) = 0.111 \Omega : -0.19434 \Omega = 5 : -9 (= -5 - 4)$$

となっており、リングとアームにおける抵抗変化比を組み合わせた数値になる。したがって Fig.4.16(b) を説明することが出来る磁化反転過程は、例えば Fig.4.17 のようになる。

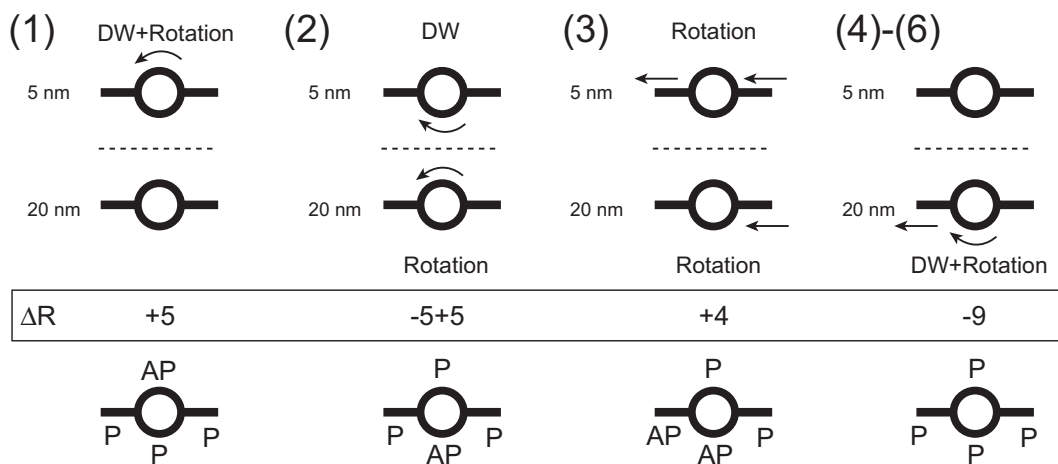


Fig 4.17: Fig.4.16(b) を説明可能な磁化反転過程。初期状態で右方向に一様に磁化している。ここで DW と rotation は磁化反転機構を、AP と P は反平行磁化配置および平行磁化配置をそれぞれ意味する。

ここでリングとアームの接合部に生成される磁壁などの寄与を無視し、磁壁移動 DW はリングのみで生じると仮定した。実際には、磁気抵抗曲線の小さい不連続変化などから推察されるように、細かい磁壁移動などによって若干複雑になるものと考えられる。

Fig.4.16(a) に関しては、 $\mu_0 H = 0.24 \text{ T}$ の抵抗変化がある部分の磁化回転 ($\Delta R_1 = 0.092 \Omega$) に対応し、 $\mu_0 H = 0.479 \text{ T}$ の抵抗変化が他の部分の磁化回転と磁壁移動 ($\Delta R_2 = 0.072 \Omega$) に対応する。ここでやはり抵抗値が 'AMR0' と同一になるため、 $\mu_0 H = 0.479 \text{ T}$ で生じた磁化回転は $\mu_0 H = 0.24 \text{ T}$ の GMR を打ち消している。非磁性層を挟んで対向する 20 nm 層と 5 nm 層の部分 (リングまたはアーム) が反転する。それ以降は 20 nm 層と 5 nm 層において同時に磁壁移動による磁化反転が生じるものと考えられる ($\Delta R_3 = 0.026 \Omega$ 、 $\Delta R_4 = 0.129 \Omega$)。抵

抗値変化は

$$\Delta R_1 : \Delta R_2 = 0.092 \Omega : 0.072 \Omega = 5 : 4$$

となるが、 ΔR_3 以降の磁化反転過程は複雑になり模式化するのは困難である。

リングとアームの接合部に生成される磁壁 Fig.4.10 から Fig.4.15 にあるように、試料全体の磁化を飽和させたあとの減磁過程には外部磁場 $\mu_0 H = \pm 0.13$ T 付近に必ず不連続な抵抗値変化が生じる。抵抗変化値は温度によらず

$$\Delta R_{DW} = 0.0207 \Omega$$

となる。飽和後の減磁過程であり、このような低磁場で磁化反転が生じるとは考えにくい。したがってリングとアームの接合部に生成される磁壁の寄与と考えられる。FeNi 合金では磁壁が生成されると抵抗が減少するが、複合構造なので磁壁生成によって反平行磁化状態となり抵抗が増加するものと考えられる。接合部は 20 nm 層と 5 nm 層に合計 4 つ存在するが、現在ではこの抵抗変化がどのような磁壁の組み合わせによるものかはわからない。

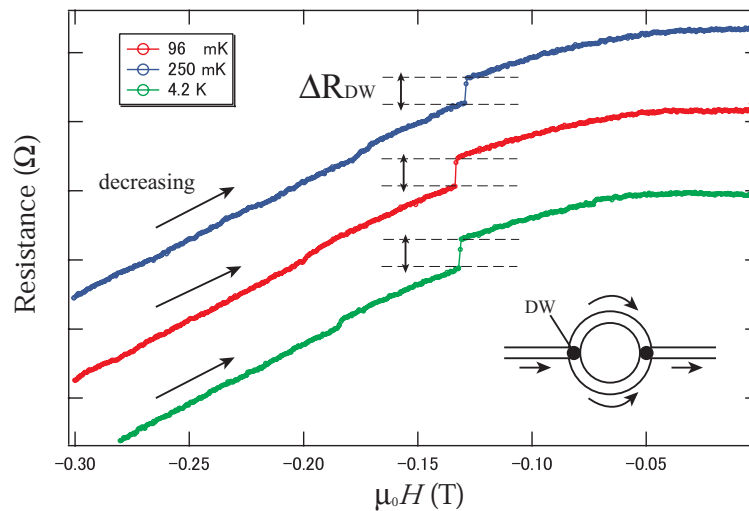


Fig 4.18: 減磁過程に必ず生じる抵抗増加。抵抗値のオフセットをずらしてある。

第5章 弱磁場領域における量子干渉効果

拡散領域における量子伝導機構は磁場領域によって異なる。本章では弱磁場領域における量子効果発現を調べ、複合構造ナノリングにおける位相干渉効果について論述する。

5.1 弱磁場領域における AAS 振動と AB 振動

5.1.1 $h/2e$ 周期と h/e 周期の振動

極低温 $T=120$ mK における磁気抵抗効果の弱磁場領域を Fig.5.1 に示し、同一測定条件である $T=4.2$ K の磁気抵抗効果と比較した¹。Fig.5.1(a) における磁気抵抗効果は減磁過程であり、AMR 効果によってなだらかに抵抗が増加する。ノイズレベルが比較的高いため $T=120$ mK および $T=4.2$ K どちらも同様の変化に見えるが、 $T=120$ mK では磁場領域 $-0.10 < \mu_0 H < 0.10$ T の磁気抵抗曲線の曲率が異なり、原点付近 $\mu_0 H=0$ T に比較的大きな抵抗変化が存在する。

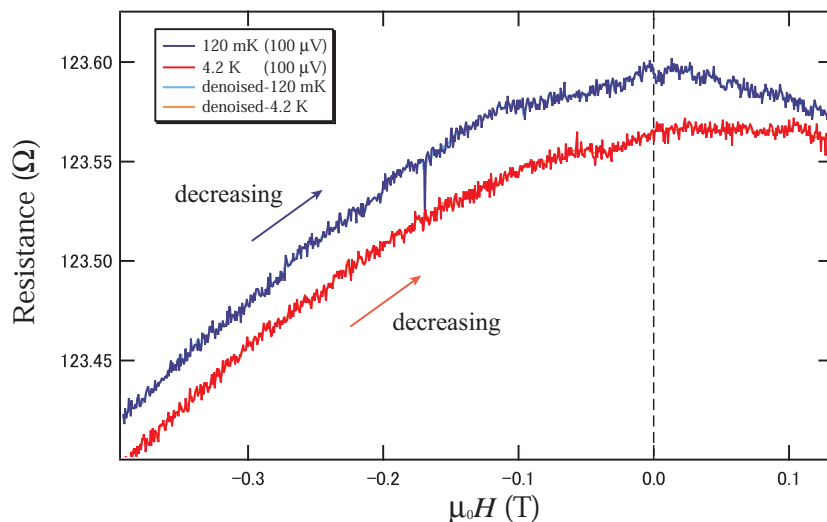
Fig.5.1(b) に原点付近 $\mu_0 H=0$ T の磁気抵抗効果を示す。 $-0.15 < \mu_0 H < 0.15$ T における磁気抵抗振動には二種類の振動成分が重畳しており、 $\mu_0 \Delta H=0.013$ T 周期と $\mu_0 \Delta H=0.026$ T 周期の振動が確認できる。測定試料を電子線顕微鏡 (SEM) 観察したところリング外径と内径がそれぞれ 500 nm と 400 nm であり (Fig.4.1)、AAS 振動 ($h/2e$) と AB 振動 (h/e) から期待される磁場周期はリングを貫く磁束を計算して

$$0.011 \leq \mu_0 \Delta H_{AAS} \leq 0.021 \text{ T} \quad (5.1)$$

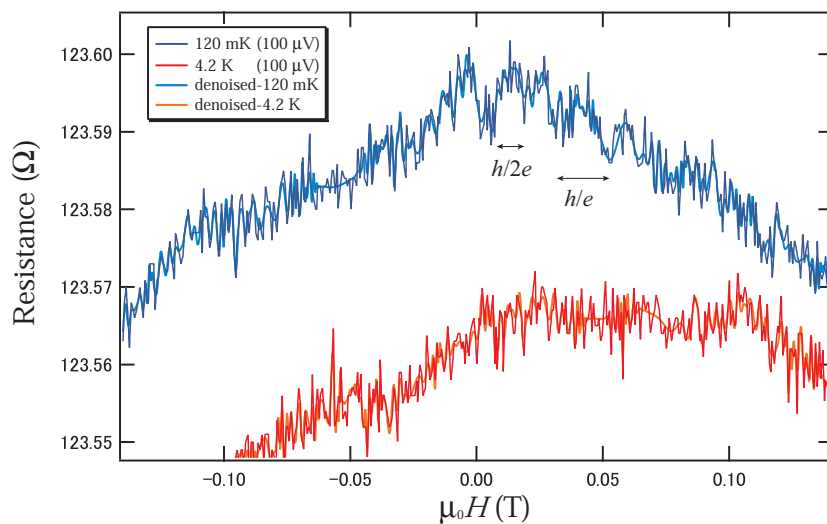
$$0.022 \leq \mu_0 \Delta H_{AB} \leq 0.042 \text{ T} \quad (5.2)$$

と見積もられる。なお SEM 観察による試料サイズ測定で 5% 程度の寸法誤差が生じることが考慮してある。Fig.5.1(b) の二種類の振動成分はこれらの範囲に一致する。

¹Fig.4.3 と Fig.4.4 が同一測定条件 (励起電圧 100 μ V)。



(a) 弱磁場領域 (減磁過程)



(b) $-0.15 < \mu_0 H < 0.15 \text{ T}$ における磁気抵抗振動。AAS 振動と AB 振動に対応する振動成分が重畳する。

Fig 5.1: 弱磁場領域における磁気抵抗振動

5.1.2 振動の PowerSpectrum 解析

振動成分の振動数 $1/\mu_0\Delta H$ (T^{-1}) を調べるため、PowerSpectrum 解析を行った。 $T=120$ mK および $T=4.2$ K とともに弱磁場領域 $-0.15 < \mu_0 H < 0.15$ T の磁気抵抗効果より計算した。PowerSpectrum の結果を Fig.5.2 に示す。

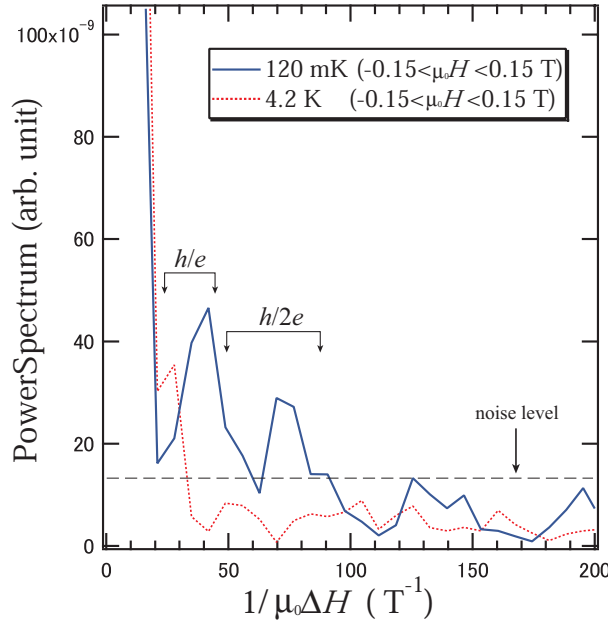


Fig 5.2: 弱磁場領域 $-0.15 < \mu_0 H < 0.15$ T の磁気抵抗効果から計算した PowerSpectrum

原点に向かって増大するスペクトルピークは磁気抵抗効果の長周期変動成分に対応し、磁気抵抗のゆらぎまたは $1/f$ ノイズの寄与に相当する。 $T=120$ mK のスペクトルには 41.9 (T^{-1}) および 69.8 (T^{-1}) に明瞭なピークが存在する。これらは式 (5.1) および式 (5.2) から周波数に換算した

$$47 \leq 1/\mu_0\Delta H_{AAS} \leq 90 T^{-1} \quad (5.3)$$

$$24 \leq 1/\mu_0\Delta H_{AB} \leq 45 T^{-1} \quad (5.4)$$

に一致し、AAS 振動 ($h/2e$) と AB 振動 (h/e) が存在するとわかる。なお、Fig.5.1(b) にみられる高周波ノイズは $210 T^{-1} \sim 340 T^{-1}$ に相当し、 $T=120$ mK と $T=4.2$ K で同レベルである²。ノイズの最大パワーを Fig.5.2 に波線で示してあり、AAS 振動 ($h/2e$) と AB 振動 (h/e) のパワーが有意であることがわかる。

²Fig.5.1(b) 中 denoised と記した曲線を使用して高周波成分を特定。PowerSpectrum の低周波領域 $1/\mu_0\Delta H < 200 T^{-1}$ は生データと denoised 曲線で同一のスペクトルである (Fig.5.2 は生データ)。

AAS 振動と AB 振動の振幅評価 AAS 振動と AB 振動の振幅は PowerSpectrum のピーク面積から見積もることができる³。しかし AAS 振動は磁場 $\mu_0 H = 0.05$ T 程度で減衰しており、AB 振動に関しては AMR 効果による抵抗減少率が大きいために振動成分が磁気抵抗曲線の中に埋もれている。この場合には振幅の平均値は意味を持たないため、AAS 振幅は $\mu_0 H = 0$ T 近傍の振動から、AB 振幅は $\mu_0 H = 0.05$ T 近傍の振動から見積もる。普遍コンダクタンス単位 e^2/h に換算して

$$\Delta g_{AAS} \sim 4.0 \times 10^{-3} e^2/h$$

$$\Delta g_{AB} \sim 3.1 \times 10^{-3} e^2/h$$

となる。これらの値はこれまでに報告された Cu, Ag, Au 等における AAS 振幅、AB 振幅に比べて一桁近く小さい [11, 14]。

5.1.3 単層 Cu ナノリングとの比較

単層 Cu ナノリングの極低温における磁気抵抗効果と比較する。単層 Cu ナノリング是一片およそ $D_{ring} = 560$ nm の角形リング、膜厚 40 nm であり、測定条件は温度 $T = 150$ mK、励起電圧 $V_{ex} = 1$ mV である。磁場を試料面に垂直に印加したときの磁気抵抗効果と PowerSpectrum を Fig.5.3 に示す。Fig.5.3(a) は弱磁場領域 $0 < \mu_0 H < 0.15$ T、Fig.5.3(b) は全磁場領域 $0 < \mu_0 H < 2.8$ T の磁気抵抗効果から計算した。

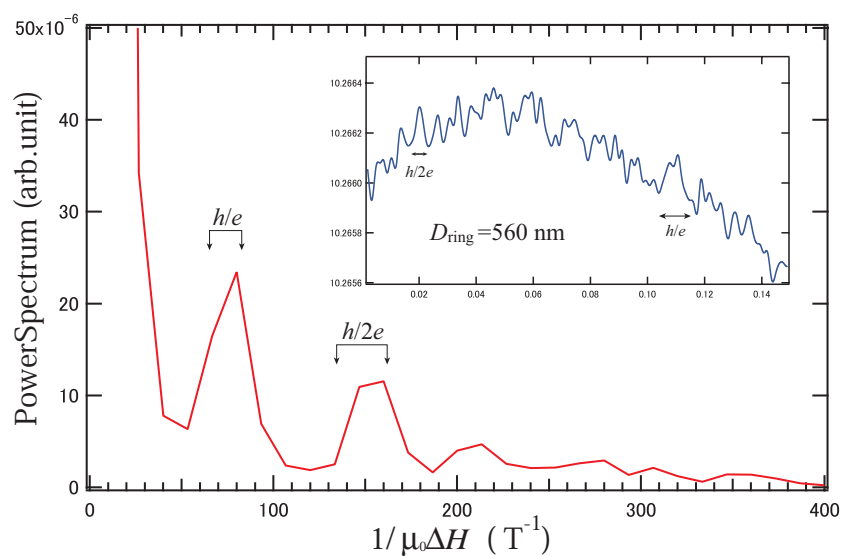
AAS 振動の存在 Fig.5.3(a) のスペクトルには 75 (T^{-1}) および 153 (T^{-1}) に明瞭なピークが存在する。これらはリング外径とリング内径から予想される AAS 振動数、AB 振動数

$$124 \leq 1/\mu_0 \Delta H_{AAS} \leq 154 T^{-1} \quad (5.5)$$

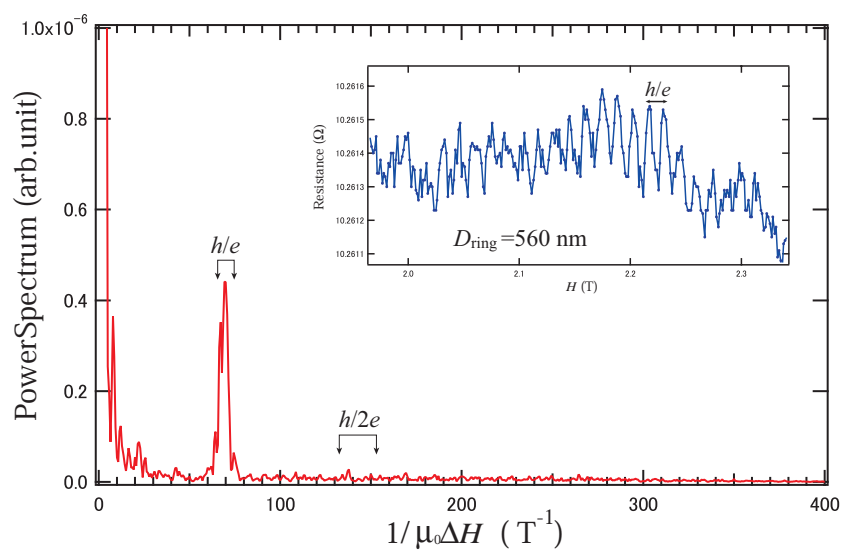
$$62 \leq 1/\mu_0 \Delta H_{AB} \leq 77 T^{-1} \quad (5.6)$$

に一致する。スペクトル形状は Fig.5.2 とほぼ同じである。一方、Fig.5.3(b) のスペクトルでは 75 (T^{-1}) のピークのみ確認でき、全磁場領域にわたる PowerSpectrum では AB 振動 (h/e) が支配的であることを意味する。これは AAS 振動が弱磁場領域で消滅し、PowerSpectrum における AB 振動パワーとの相対比率が小さくなるためである。

³振動成分が式 1.17 で与えられるとすると、振幅 A は $A^2 = \frac{2}{\pi} \int_{\omega_0} d\omega P(\omega)$ により求めることができる。PowerSpectrum は解析領域でのパワーであるため、振幅 A は解析領域での平均値に対応。



(a) 弱磁場領域 $0 < \mu_0 H < 0.15 \text{ T}$ の磁気抵抗効果から計算した Power Spectrum



(b) 磁場領域 $0 < \mu_0 H < 2.8 \text{ T}$ の磁気抵抗効果から計算した Power Spectrum

Fig 5.3: 単層 Cu ナノリング (外直径 $D_{ring} = 560 \text{ nm}$ 、膜厚 40 nm) における磁気抵抗振動。励起電圧 $V_{ex} = 1 \text{ mV}$ 、測定温度 $T = 150 \text{ mK}$

AAS 振動と AB 振動の振幅評価 単層 Cu ナノリングにおいて AAS 振幅は $H = 0$ T 近傍の振動から、AB 振幅は減衰していないため PowerSpectrum 面積から見積もる。

$$\Delta g_{AAS} = 1.4 \times 10^{-2} e^2/h, \quad \Delta g_{AB} = 2.0 \times 10^{-2} e^2/h$$

これらの値はこれまでに報告された AAS 振幅、AB 振幅と同程度である [11, 14]。なおスペクトル面積からは $\Delta g_{AAS} = 1.0 \times 10^{-2} e^2/h$ と見積もられるため、振動振幅が解析した磁場領域内で減衰することがわかる。これら単層 Cu ナノリングと複合構造ナノリング I における振動現象の特徴と PowerSpectrum は同様の振る舞いを示しており、複合構造ナノリング I における振動現象が Cu 層に起因する量子干渉効果であると考えられる。

5.2 磁場 $\mu_0 H = 0$ T 近傍の抵抗極大 (複合構造ナノリング II)

5.2.1 磁場 $\mu_0 H = 0$ T 近傍の抵抗極大

複合構造ナノリング II の磁気抵抗曲線を Fig.5.4 に示す。極低温 $T = 96$ mK における $\mu_0 H = -3$ T \rightarrow 3 T の磁場掃引過程と $\mu_0 H = 3$ T \rightarrow -3 T の磁場掃引過程である。極低温の特徴として、弱磁場領域 (円で囲った領域) に不連続な抵抗変化が存在する。特に磁場 $\mu_0 H = 0$ T では明瞭に抵抗が増大する。磁場 $\mu_0 H = 0$ T において磁壁が生成することは考えられず、量子効果に起因するものと考えられる。 $\mu_0 H = 3$ T 飽和後の残留磁化状態と $\mu_0 H = -3$ T 飽和後の残留磁化状態が磁場掃引毎に異なるため、測定毎に不連続性の有無がある。

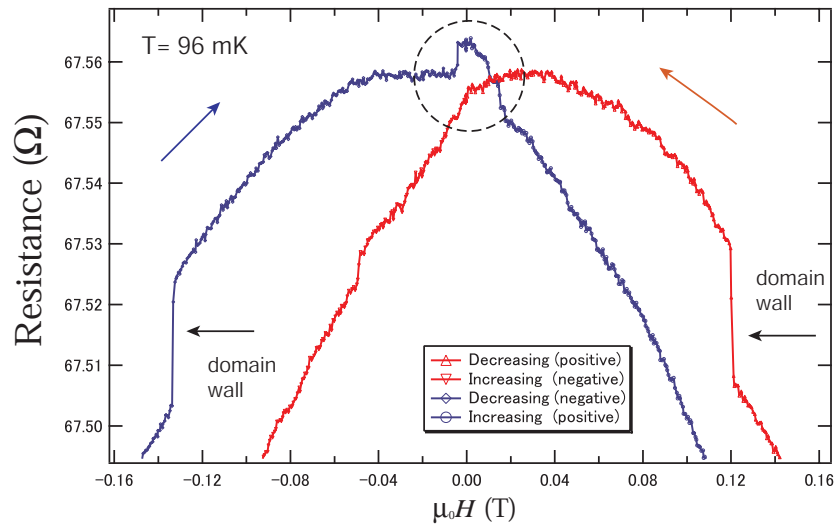


Fig 5.4: 弱磁場領域 $-0.15 < \mu_0 H < 0.15$ T の磁気抵抗効果 (複合構造ナノリング II、 $T = 96$ mK)。円で囲ったところに同程度の不連続変化が存在する。

なお、磁場 $\mu_0 H = \pm 0.12$ T 近傍に不連続な抵抗変化が存在するが、これは磁壁生成によって生じた GMR 効果に対応する(第4.2.4節)。磁壁生成による抵抗変化値は $\Delta R_{DW} = 0.0207 \Omega$ であり、普遍コンダクタンス単位で $0.12 e^2/h$ 程度である。磁場 $\mu_0 H = 0$ T における抵抗変化は $0.039 e^2/h$ とこれより小さく、磁壁生成ではないと示唆される。

振動成分の解析—位相干渉効果の存在

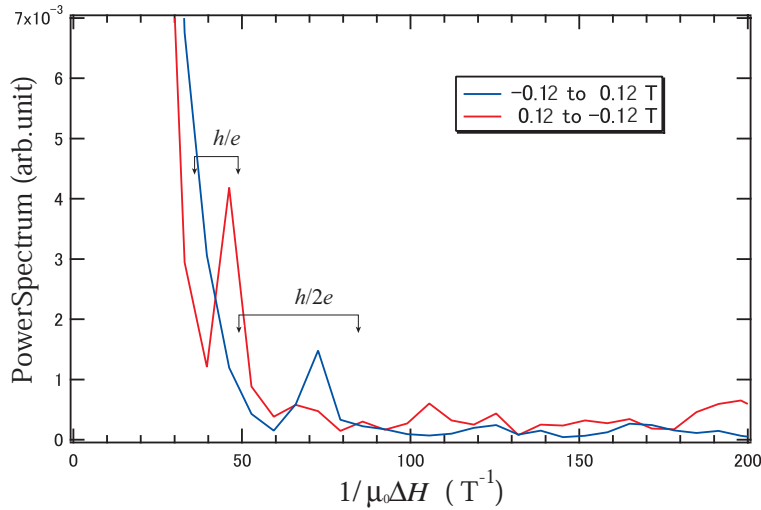


Fig 5.5: 弱磁場領域 $-0.12 < \mu_0 H < 0.12$ T の Power Spectrum

複合構造ナノリング II では AMR 効果による抵抗減少が顕著であるが、磁気抵抗曲線には緩い抵抗変化が重畳する。弱磁場領域における振動成分を調べるため Power Spectrum 解析を行った。 $\mu_0 H = -3$ T \rightarrow 3 T と $\mu_0 H = 3$ T \rightarrow -3 T の磁場掃引過程それぞれについて計算した結果を Fig.5.5 に示す。どちらの磁場掃引過程においてもスペクトルピークが確認できる。 $\mu_0 H = -3$ T \rightarrow 3 T の過程のスペクトルピークは AAS 振動数の領域のみ存在するが、 $\mu_0 H = 3$ T \rightarrow -3 T の過程では AB 振動数と AAS 振動数の境目に位置する。複合構造ナノリング II においては、弱磁場領域で AAS 振動数(位相干渉効果)が支配的であり、それが磁化反転過程によって影響を受けている可能性がある。(スペクトルピークから見積もった振動成分の振幅は $\Delta g_{AAS} = 2.0 \times 10^{-2} e^2/h$ および $\Delta g_{AB-AAS} = 3.4 \times 10^{-2} e^2/h$)

抵抗差分

磁気抵抗振動が見えないのは振動そのものが小さく、AMR 効果による抵抗変化に埋もれているためである。そこで極低温における磁気抵抗曲線から 4.2 K における磁気抵抗曲線

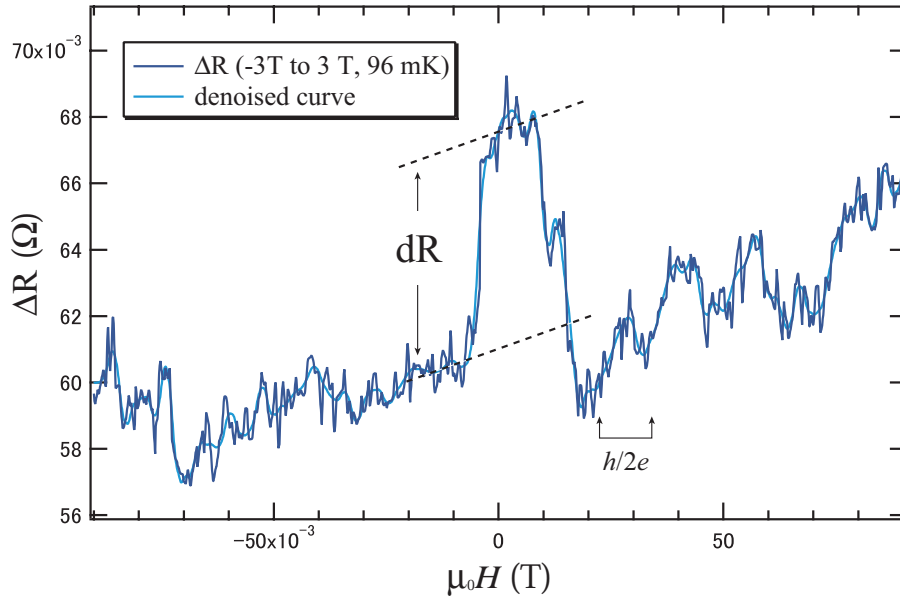


Fig 5.6: 磁場 $\mu_0 H=0$ T おける抵抗極大

の差分をとる。弱磁場領域において抵抗は、

$$R_{LowTemp.} = R_{AMR} + R_{quantum} + R_{noise} \quad (5.7)$$

$$R_{4.2K} = R_{AMR} + R_{noise} \quad (5.8)$$

と考えられるから、磁気抵抗曲線の差分

$$\Delta R = R_{LowTemp.} - R_{4.2K} = R_{quantum} \quad (5.9)$$

によって AMR 効果とシステムノイズを差し引くことができる。Fig.5.6 に抵抗差分曲線を示す。磁場 $\mu_0 H=0$ T おける抵抗極大が明瞭に確認できる。AAS 振動は抵抗極大を示した後数回生じ、速やかに減衰する。これに対して、抵抗極大を示す前は振動を示さない。外部磁場や残留磁化などの影響で電子の Coherence が消滅しており、磁場 $\mu_0 H=0$ T 近傍で Coherence が回復したことを意味する。抵抗極大によって生じた抵抗変化 dR を普遍コンダクタンス単位で換算すると

$$\Delta g_w = 3.9 \times 10^{-2} e^2/h$$

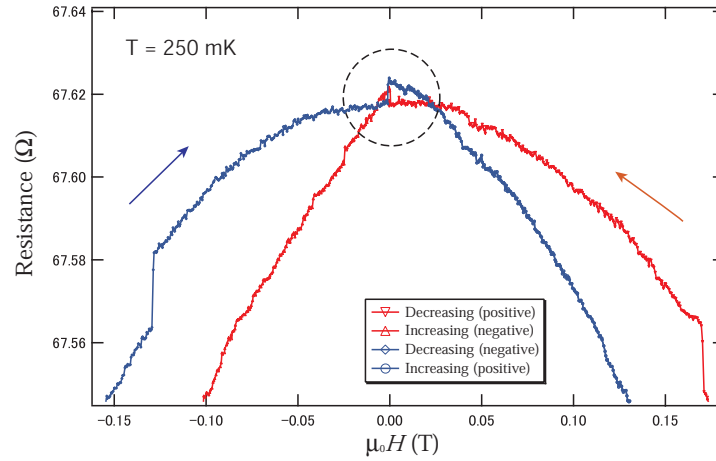
であり、普遍的コンダクタンス揺らぎと同じオーダーになる。一方、AAS 振動振幅は

$$\Delta g_{AAS} = 2.0 \times 10^{-2} e^2/h$$

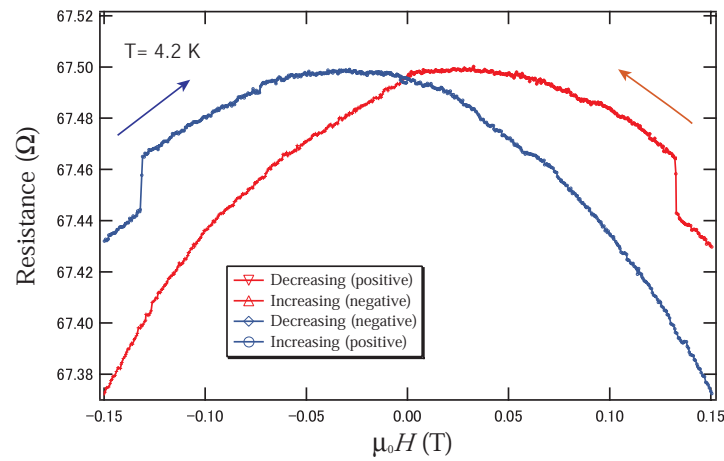
であり Coherence が高い。Cu ナノリングと同程度の Coherence となるが、複合構造ナノリング II はサイズが小さく測定温度が低いため矛盾しない。

5.2.2 抵抗極大の温度依存性

磁場 $\mu_0 H = 0$ T における抵抗極大が位相干渉効果に起因するかを確かめるため、温度依存性を測定した。 $T = 250$ mK および $T = 4.2$ K の弱磁場領域の磁気抵抗曲線を Fig.5.7 に示す。 $T = 250$ mK において抵抗極大が観測されるが、 $T = 4.2$ K では抵抗極大が観測されないことがわかる。



(a) $T = 250$ mK における弱磁場領域の磁気抵抗曲線



(b) $T = 4.2$ K における弱磁場領域の磁気抵抗曲線

Fig 5.7: 抵抗極大の温度依存性

$T = 250 \text{ mK}$ の抵抗差分

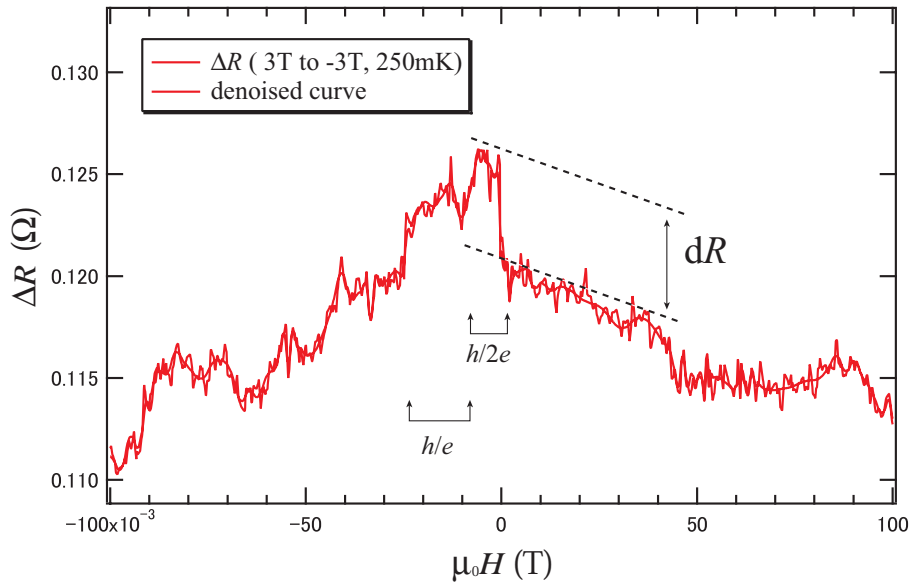


Fig 5.8: $T = 250 \text{ mK}$ の抵抗差分

$T = 250 \text{ mK}$ の抵抗差分を Fig.5.8 に示す。 $T = 96 \text{ mK}$ と同様、磁場 $\mu_0 H = 0 \text{ T}$ 近傍に抵抗極大が確認できる。極大を示す前の磁気抵抗曲線には振動現象が起きておらず、極大後に磁気抵抗振動が現れる。この測定結果では AAS 振動は 1 振動程度で、連続的に AB 振動と混じり合っている。このような移り変わりは Umbach らの結果にも見られており [11]、AAS 振動と AB 振動が連続的に移り変わることは理論的に示されている [10]。

抵抗極大によって生じた抵抗変化 dR を普遍コンダクタンス単位で換算すると

$$\Delta g_w = 2.9 \times 10^{-2} e^2/h$$

である。 $T = 96 \text{ mK}$ と比較すると抵抗変化値が減少しており、測定温度に依存する。

以上のことから、磁場 $\mu_0 H = 0 \text{ T}$ 近傍における抵抗極大は位相干渉効果に起因する弱局在効果であると考えられる [12]。弱局在により定在波がたち、電子が電流を運ばなくなり抵抗が増大した可能性がある。

5.3 複合構造ナノリングにおける量子 Coherence

5.3.1 振動振幅と位相相関長

弱磁場領域の量子干渉効果の特徴 複合構造ナノリングにおける弱磁場領域の量子干渉効果の特徴は以下のようにまとめられる。

1. AAS 振動と AB 振動が存在し、ともに弱磁場 $\mu_0|H| < 0.15$ T で減衰する。
2. Cu 層が厚い複合構造ナノリング II では、磁場 $\mu_0H=0$ T 近傍において抵抗が極大となる場合がある。

弱磁場領域の振動振幅 量子効果について調べるため、複合構造ナノリング I および II の磁気抵抗振動の振動振幅を Fig.5.9 にまとめた。

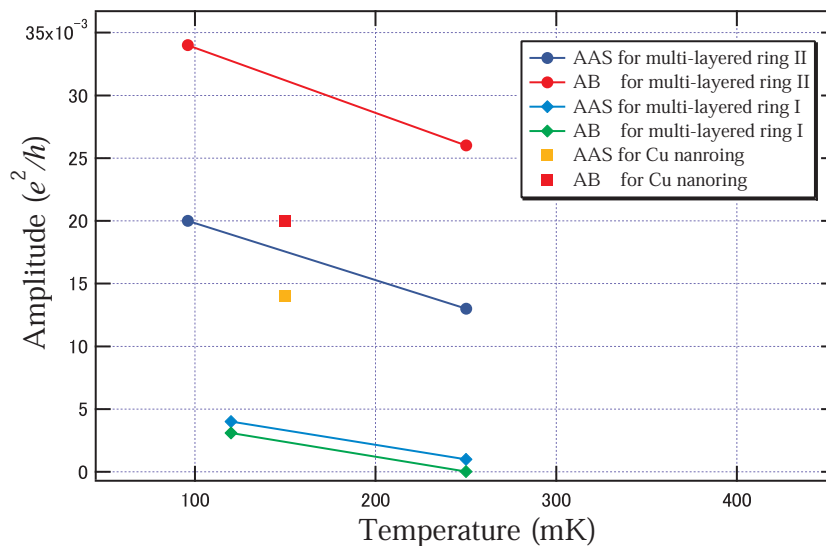


Fig 5.9: 磁気抵抗振動の振幅

Cu 層が最も薄い複合構造ナノリング I の AAS 振幅と AB 振幅が最も小さく、 $T=250$ mK における AAS 振幅についてはほとんど消滅している。温度依存性が強い。リングサイズと測定温度の観点から、複合構造ナノリング I は単層 Cu ナノリングよりも量子干渉に有利な条件である。にもかかわらず AAS 振幅と AB 振幅が単層 Cu ナノリングよりも小さいことは、強磁性層が Decoherence 機構を有する証拠である。

一方、複合構造ナノリング II における AAS 振幅と AB 振幅は一桁大きく、単層 Cu ナノリングよりも大きい。Cu 層 40 nm の単層 Cu ナノリングよりも、Cu 層 20 nm の複合構造ナ

ノリング II の方が Coherence が残存することになる。この点を量子効果の特徴づける特性長と、リングサイズおよび測定温度との関係から考察する。

位相相関長 L_ϕ の評価

量子干渉効果は熱拡散長 L_T および位相相関長 L_ϕ によって特徴づけられる。式 (1.1) より熱拡散長は $L_T = \sqrt{\hbar D/k_B T}$ と与えられる。拡散定数 D は自由電子近似によって見積もることができ、 $D = v_F \ell_e/3$ である。ここで複合構造ナノリングの伝導度は大半が Cu が担うと仮定し、強磁性金属の影響は散乱効果などに押し込める。バルク Cu のフェルミ速度 $v_F = 1.57 \times 10^6$ m/s および弾性散乱長 $\ell_e = 13.2$ nm を用いると $D \sim 6.9 \times 10^{-3}$ m²/s となる [21]。したがって熱拡散長は

$$L_T(T) \sim 229 \text{ nm} \times (T/1\text{K})^{-1/2} \quad (5.10)$$

となる。 $T = 120$ mK において $L_T = 661$ nm、 $T = 250$ mK において $L_T = 458$ nm となり、ナノリングの円周長 $L = 1.57 \mu\text{m}$ に対して $L_T < L$ である。この場合、位相相関長は現象論的式 (1.19)

$$\Delta G_{h/e} \sim G_1 \frac{e^2}{h} \left(\frac{L_T}{L} \right) \exp \left[-\frac{L}{L_\phi(T)} \right]$$

から見積もることが出来る。 G_1 は現象論的パラメータで試料組成などにあまり依存せず、およそ 0.2 ~ 0.4 である [8, 13, 21]。位相相関長を Table.5.1 にまとめた。

表 5.1: 位相相関長の評価 (弱磁場領域)

—	位相相関長	温度	リング周長
複合構造ナノリング I	$390 \text{ nm} \leq L_\phi \leq 471 \text{ nm}$	120 mK	$1.23 \mu\text{m} \leq L \leq 1.57 \mu\text{m}$
複合構造ナノリング II	$0.98 \mu\text{m} \leq L_\phi \leq 1.5 \mu\text{m}$	96 mK	$1.23 \mu\text{m} \leq L \leq 1.57 \mu\text{m}$
単層 Cu ナノリング	$1.2 \mu\text{m} \leq L_\phi \leq 2.03 \mu\text{m}$	150 mK	$1.84 \mu\text{m} \leq L \leq 2.24 \mu\text{m}$

複合構造ナノリング I の位相相関長がリング周長の 1/3 以下となり、最も短い。一方、複合構造ナノリング II では位相相関長がほぼリング周長に到達する。単層 Cu ナノリングにおける位相相関長もほぼリング周長に到達する。リングサイズおよび測定温度が異なるため単純比較は出来ないが、位相相関長からは複合構造ナノリング II と単層 Cu ナノリングであまり差がない。複合構造ナノリング II における Coherence が単層 Cu ナノリングよりも大きいことを説明できない。

この矛盾はAB振動から位相相関長を見積もることに起因すると考えられる⁴。序論で示したように弱磁場領域にはCooperonの寄与が存在し、弱磁場領域においてはAAS振動を主に考察する必要がある (Table.5.2 に伝導機構をまとめた)。序論第1.3節で示したように、Cooperon寿命は磁場によって急速に短くなる。したがって、ページ169に示した特徴1. 「AAS振動とAB振動がともに弱磁場 $\mu_0|H| < 0.15$ Tで減衰する」は「Cooperonの寄与がなくなるため」と説明できる。

表 5.2: 磁気抵抗振動と伝導機構 (弱磁場領域)

—	$h/2e$ 振動	h/e 振動
伝導機構	Cooperon	Cooperon + Diffuson

5.3.2 磁場長と位相干渉効果 (Cooperon channel)

AAS振動について 複合構造ナノリングにおいてAAS振動 ($h/2e$) が生じる機構には以下の二つが考えられる。

1. 弱局在効果 (Cooperon 位相干渉)
2. AB振動を基本振動とする倍波

ここでAB振動と異なる伝導機構の1.を考える。磁気抵抗におけるAAS振動は

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{e^2}{\pi\hbar} \frac{R_{\square}}{w} \sum_{m=1}^{\infty} [3L_1 e^{-m(P/L_1)} - L_0 e^{-m(P/L_0)}] \cos \frac{2\pi m\theta}{h/2e} \quad (5.11)$$

のように理論的に示される [5, 11, 9]。ここで R_{\square} はシート抵抗、 w は線幅、 P は周長である。 L_1 および L_0 は位相相関長で、 $L_0^{-2} = L_{in}^{-2} + 2L_S^{-2} + L_B^{-2}$ 、 $L_1^{-2} = L_{in}^{-2} + \frac{4}{3}L_{SO}^{-2} + \frac{2}{3}L_S^{-2} + L_B^{-2}$ と表される。 L_S 、 L_{in} 、 L_{SO} 、 L_B はそれぞれスピン反転長、非弾性散乱長、スピン軌道散乱長、磁場長であり、Decoherence機構を意味する。ここで磁場長 L_B に支配されることに注目する。

磁場長 L_B の評価

複合構造ナノリングIIにおいてAAS振動が確認できる磁場領域は $0 \leq \mu_0 H \leq 70$ mTである。磁性層のヒステリシスによって、量子効果にとって $H=0$ となる磁場値がずれていると

⁴位相相関長とは厳密にはCooperonの寿命から定まる

考えられ、現在の見積もりでは $(70 \text{ mT})/2$ が必要な値になる。面に垂直な成分は $35\sin 60^\circ$ になる (複合構造ナノリング I では $-36 \leq \mu_0 H \leq 36 \text{ mT}$ であるため $36\sin 60^\circ$)。次式を用いて見積もると

$$L_B \sim \sqrt{12} \left(\frac{\hbar}{eaB} \right) = 1.51 \mu\text{m}$$

となる。ここで線幅 $a = 50 \text{ nm}$ であることをもちいた。この値はナノリング円周長 $1.23 \mu\text{m} \leq L \leq 1.57 \mu\text{m}$ とほぼ同じであり、Cooperon 位相干渉が残存するといえる。すなわち、複合構造ナノリングにおける AAS 振動 ($\hbar/2e$) は Cooperon 位相干渉に起因する可能性が高い。この磁場領域は文献 [11] の AAS 振動の報告と同程度である。

一方、単層 Cu ナノリングにおいて AAS 振動が確認できるのは $\mu_0 |H| \leq 30 \text{ mT}$ である (Fig.5.3(a))。磁場長はやはり $L_B \sim 1.51 \mu\text{m}$ であるが、単層 Cu ナノリングにおいてはリング円周長に到達しない。磁場長 L_B の観点から複合構造ナノリング II と単層 Cu ナノリングにおいて差が生じており、上記の Coherence の差を説明することができる。したがって、Fig.5.9 が逆に Cooperon 位相干渉を保証するとも言える。

なお、Fig.5.2 および Fig.5.5 の特徴は AB 振動ピークが AAS 振動ピークよりも強いことにあり、これが AB 振動の倍波振動とも考えられる原因である。しかし上記で議論したように磁場長が短いため、これは AAS 振動が速やかに消滅することを反映すると考える方が自然である。

強磁性金属の Decoherence

複合構造ナノリング I と複合構造ナノリング II の差は Cu 層の厚みにある。Fig.5.9 に示したように両者の Coherence の差は著しい。Coherence を有するのは Cu 層であり、Cooperon 位相干渉に対する強磁性金属層の影響が大きいことがわかる (Decoherence)。

5.3.3 弱局在と磁化分布

前節の考察により複合構造ナノリングにおいて Cooperon 位相干渉が存在することが示された。Cooperon 位相干渉の存在によって、抵抗極大についても弱局在の可能性が示されたと言える。抵抗極大について興味深いのは、Fig.5.4 のように残留磁化状態に依存する点である。また、Fig.5.6 で示したように外部磁場が、磁性層の磁化方向と反対方向の成分を持つときに AAS 振動を示す点である。残留磁化状態では強磁性層は平行磁化配置となり、最も単純には Fig.5.10 で示したように磁化がリング円周に沿うと考えられる。また第 4.2.4 節で示したように、リングとアームの接合部に磁壁が入る。

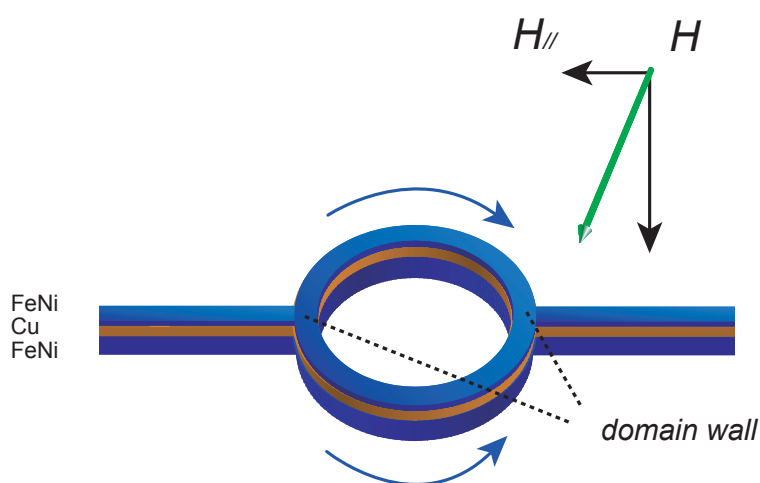


Fig 5.10: 複合構造ナノリングの磁化方向と外部磁場方向

外部磁場印加によってリングに沿う磁化に対して逆方向の磁場が入るため、実験結果からは、

1. 内部磁場に変調が生じ位相干渉に最適な状態が存在する可能性
2. 接合部の磁壁が位相干渉パターンを決めている可能性

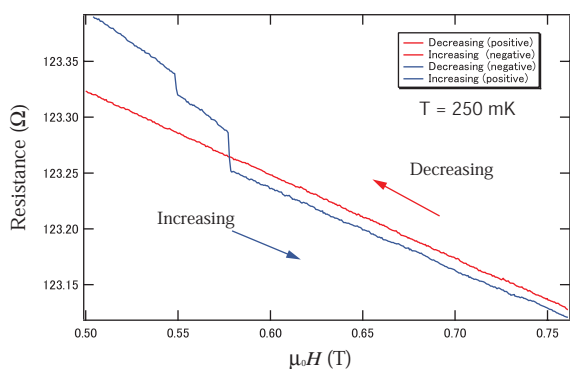
が考えられる。現在までの実験では位相干渉（弱局在）と磁化分布の相関について詳細なことはわからない。しかし、量子効果に対して磁化分布の影響が強いことがわかってきたといえる。

第6章 強磁場領域における Aharonov-Bohm 振動

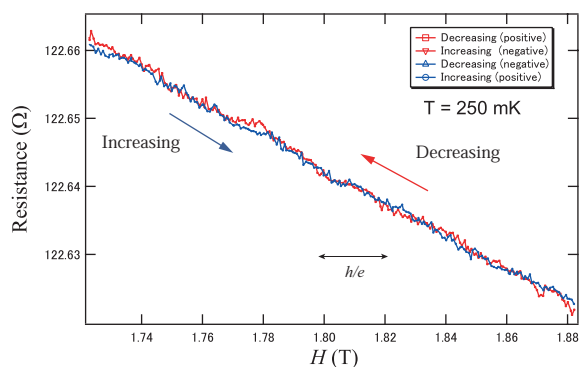
複合構造ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動は、振動周期および振動振幅が磁性層の磁化状態によって変調を受けていた。本章では Aharonov-Bohm 振動が強磁場領域において明瞭になることを示し、Majority 電子の Coherence について論述する。

6.1 磁気抵抗振動の磁場領域依存性 (複合構造ナノリング I)

Fig.6.1 に磁気抵抗曲線の詳細を示す。Fig.6.1(a) は中程度の磁場領域 $0.5 < \mu_0 H < 1.0$ T の磁気抵抗曲線であるが、生データからは増磁過程および減磁過程において磁気抵抗曲線の振動は確認できない。一方、Fig.6.1(b) は強磁場領域の磁気抵抗曲線であるが、若干ノイズのような信号が含まれており、緩い抵抗変化が重畳する。



(a) 中程度の磁場領域 $0.5 < \mu_0 H < 1.0$ T における磁気抵抗曲線 ($T = 250$ mK)



(b) 強磁場領域 $\mu_0 H > 1.0$ T における磁気抵抗曲線 ($T = 250$ mK)

Fig 6.1: 複合構造ナノリング I における磁気抵抗曲線の詳細

6.1.1 磁場領域 $\mu_0 H > 1.0 \text{ T}$

低周期振動の存在 抵抗変化の周期性を確認するため PowerSpectrum 解析を行った。強磁場領域 $\mu_0 H > 1.0 \text{ T}$ の磁気抵抗曲線（増磁過程）から計算した PowerSpectrum を Fig.6.2 に示す。振動周期 $24 \leq 1/\mu_0 \Delta H_{AB} \leq 45 \text{ T}^{-1}$ の近傍にスペクトルピークが存在する。これが AB 振動に対応すると $\mu_0 H = 0$ 近傍の振動周期に比べ若干長周期側に变化したことになるが、 $1/\mu_0 \Delta H \leq 20 \text{ T}^{-1}$ に大きなパワーを持つ低周波が存在するため、有意であるか注意する必要がある。

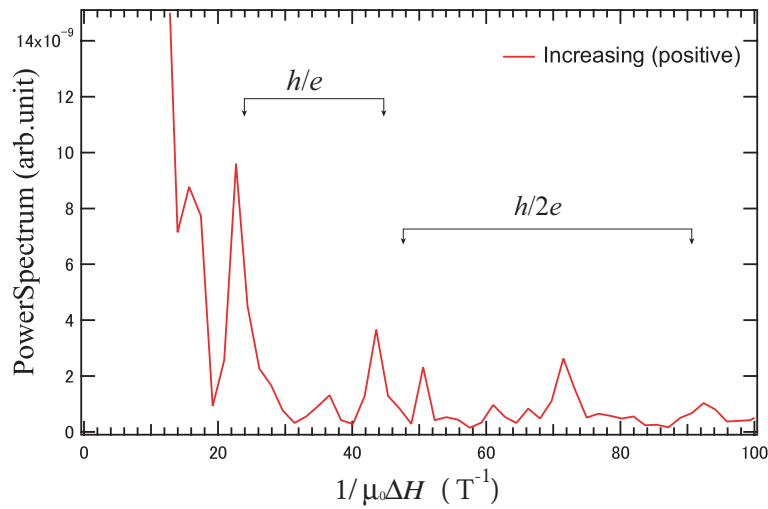


Fig 6.2: 強磁場領域 $\mu_0 H > 1.0 \text{ T}$ （増磁過程）の磁気抵抗効果から計算した PowerSpectrum

磁気抵抗曲線の差分 生の磁気抵抗曲線で磁気抵抗振動が見えないのは、AMR 効果の抵抗変化率が大きいためであり、Fig.6.2 の低周波部分は AMR 効果に起因する。そこで極低温における磁気抵抗曲線から 4.2 K における磁気抵抗曲線の差分をとる。

$$R_{250mK} = R_{GMR} + R_{AMR} + R_{quantum} + R_{noise} \quad (\text{magnetizing process : increasing}) \quad (6.1)$$

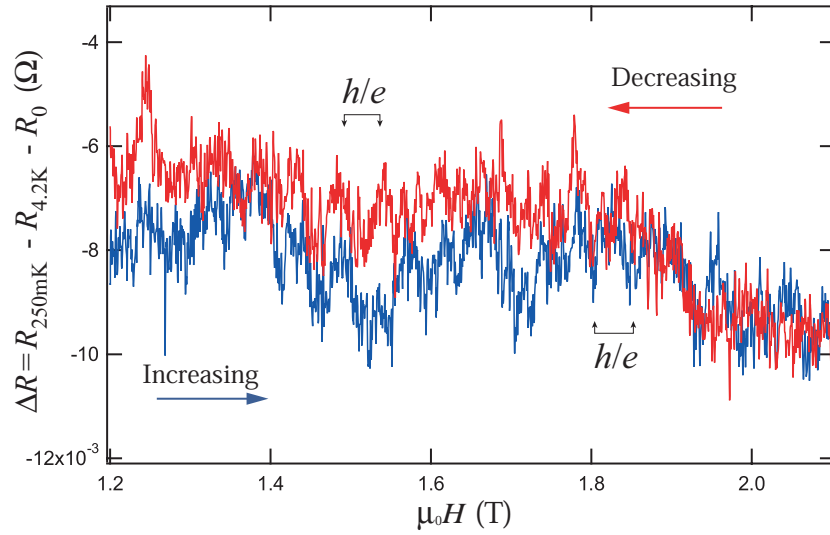
$$R_{250mK} = R_{AMR} + R_{quantum} + R_{noise} \quad (\text{demagnetizing process : decreasing}) \quad (6.2)$$

$$R_{4.2K} = R_{AMR} + R_{noise} \quad (\text{demagnetizing process : decreasing}) \quad (6.3)$$

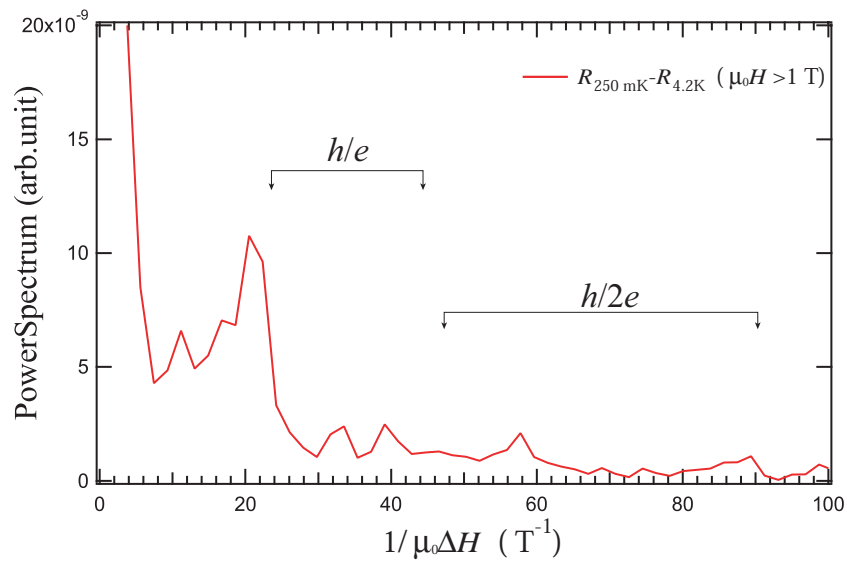
と考えられるから、磁気抵抗曲線の差分

$$\Delta R = R_{250mK} - R_{4.2K} - R_0 \quad (6.4)$$

とすることによって AMR 効果とシステムノイズを差し引くことができる。ここで $\mu_0 H = 0$ における抵抗差分 $R_0 = 0.16 \Omega$ （オフセット）も差し引いた。曲線 ΔR の強磁場領域およびその PowerSpectrum を Fig.6.3 に示す。



(a) 強磁場領域 $\mu_0H > 1.0$ T (増磁過程および減磁過程) の磁気抵抗効果



(b) 強磁場領域 $\mu_0H > 1.0$ T (増磁過程) の磁気抵抗効果から計算した PowerSpectrum

Fig 6.3: 磁気抵抗振動

磁気抵抗振動の再現性 Fig.6.3(a) より、強磁場領域における ΔR には振動成分が存在することがわかる。 $\mu_0 H \sim 2.0$ Tにおいて磁気抵抗振動が増磁過程および減磁過程で重なりあっており、 $1.2 < \mu_0 H < 2.0$ Tにおいても振動位置は再現する。振動周期 $\mu_0 \Delta H = 0.043$ Tが確認でき、これらはリング内径および外径から予想される Aharonov-Bohm 振動周期に一致する(式 5.2)。AMR を取り除く計算によって若干長周期側にシフトするが、長周期シフトは磁化 M の寄与を示唆する。

ノイズであれば増磁過程および減磁過程でランダムになり振動が重なることはない。また、差分によって低周波が除かれたため PowerSpectrum (Fig.6.3(b)) において h/e 振動に対応するスペクトルピークが有意に確認できる。したがってこの磁気抵抗振動は Aharonov-Bohm 振動と考えられる。残った低周波部分は普遍的コンダクタンス揺らぎに対応するものと考えられる。

6.1.2 磁場領域 $0.5 < \mu_0 H < 1.0$ T

抵抗差分によって磁場領域 $0.5 < \mu_0 H < 1.0$ T における振動現象も明瞭になる。特に $\mu_0 H \sim 1.0$ T 近傍の抵抗差分 ΔR を Fig.6.4 に示す。

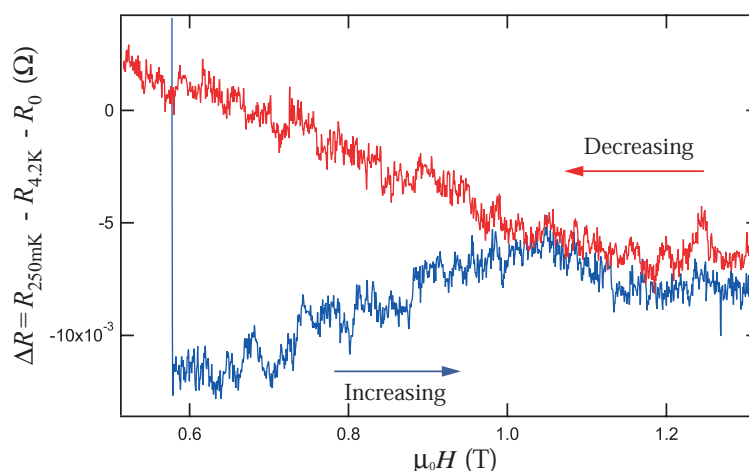


Fig 6.4: 磁場領域 $0.5 < \mu_0 H < 1.0$ T (増磁過程および減磁過程) の磁気抵抗効果

磁場領域 $\mu_0 H > 1.2$ T において磁気抵抗曲線の全体的な変化 (普遍的コンダクタンス揺らぎ) が一致し、磁気抵抗振動は増磁過程および減磁過程は重なりあう。しかし $\mu_0 H < 1.0$ T では減磁過程と増磁過程において振動の再現性がなく、ランダムな振動をするようにみえる。振動成分は存在するが、印加磁場 (磁化反転過程) によって振動数が変化することを意味する。

6.2 Aharonov-Bohm 振動の時間周波数解析

前節では、印加磁場により振動成分の振動数が変化することがわかってきた。この場合、全時間領域に同一振動数が重畳すると仮定した PowerSpectrum 解析より時間周波数解析の方が適している。そこで ΔR に対して Wavelet 変換

$$w(H, 1/\Delta H) = \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{1}{\sqrt{|\Delta H|}} \psi\left(\frac{x-H}{\Delta H}\right) \Delta R(x) \quad (6.5)$$

を行った。 $W=|w(H, 1/\Delta H)|^2$ がパワーを与える。MotherWavelet 関数として GaborWavelet

$$\psi(x) = \frac{1}{2\sqrt{\pi}\sigma} e^{-x^2/\sigma^2 - ix} \quad (6.6)$$

を使用した。

6.2.1 Aharonov-Bohm 振動の振動数変調と振幅変調

Fig.6.5 に振動強度 $W(H, 1/\Delta H)$ の等高線図を示す。図中下部が解析対象の磁気抵抗曲線である (ΔR の外部磁場 H 依存性)¹。

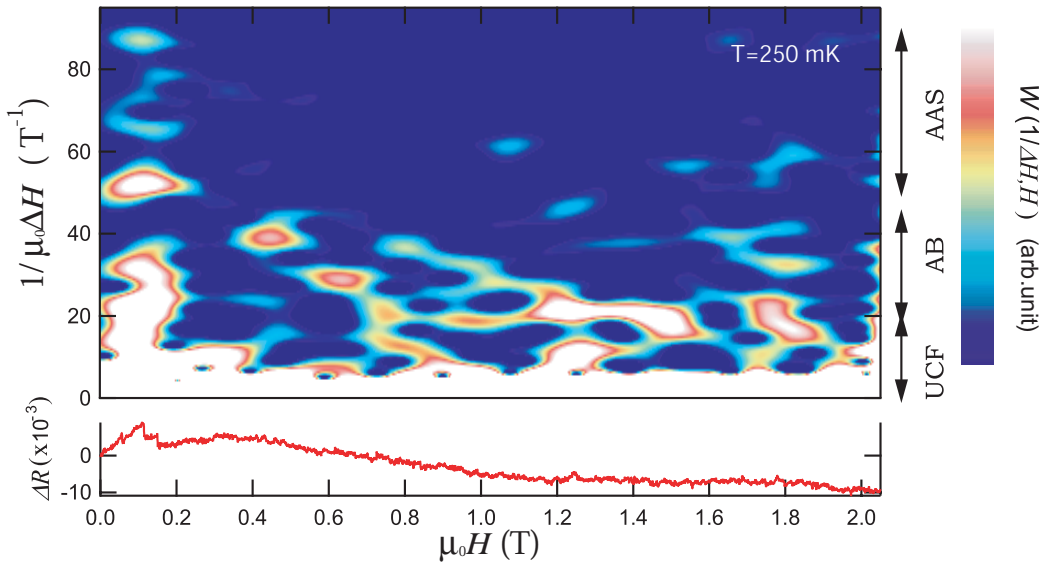


Fig 6.5: Aharonov-Bohm 振動の時間周波数解析 (減磁過程)

¹増磁過程には GMR による不連続点が存在する (Fig.4.5(b) および Fig.4.18 参照)。巨大な不連続性が存在すると無限次の振動成分が混入するため、除去してから計算する必要がある。

振動数変調 磁場領域 $1.2 < \mu_0 H < 2.0$ Tにおいて Aharonov-Bohm 振動に相当する振動数成分の強度が高い。外部磁場が弱くなるにつれて強度分布が高振動数側にシフトして、 $\mu_0 H \sim 0.4$ T 近傍まで連続的に変化するように見える。 $\mu_0 H = 0.5$ T および $\mu_0 H = 0.6$ T における強い強度分布も

$$24 \leq 1/\mu_0 \Delta H_{AB} \leq 45 \text{ T}^{-1}$$

に位置しており、Aharonov-Bohm 振動に相当する成分である。一方、弱磁場領域 $\mu_0 H < 0.2$ T には磁場領域 $1.2 < \mu_0 H < 2.0$ T と同程度の強度分布が存在する。

このように Aharonov-Bohm 振動の振動数は磁場印加過程によって変化しており、強磁性金属層の磁化状態が強い影響を及ぼすことを示唆する。

振幅変調 Fig.6.5 から明らかに振動振幅も磁場印加過程に依存することがわかる。Fig.6.3(a) より磁場領域 $1.2 < \mu_0 H < 2.0$ T における振動振幅を見積もると $\Delta g = 1.2 \times 10^{-3} e^2/h$ であり、 $\mu_0 H = 0.4$ T 付近では $\Delta g = 6.0 \times 10^{-4} e^2/h$ に減少する。

増磁過程 増磁過程における時間周波数解析を Fig.6.6 に示す。増磁過程には GMR 効果が存在するため除去してから計算を行った。磁場領域 $1.2 < \mu_0 H < 2.0$ T において $1/\mu_0 \Delta H_{AB} \sim 19 \text{ T}^{-1}$ 近傍の強度が高く、 $\mu_0 H = 0.5$ T まで連続的に変化する点は一致する。

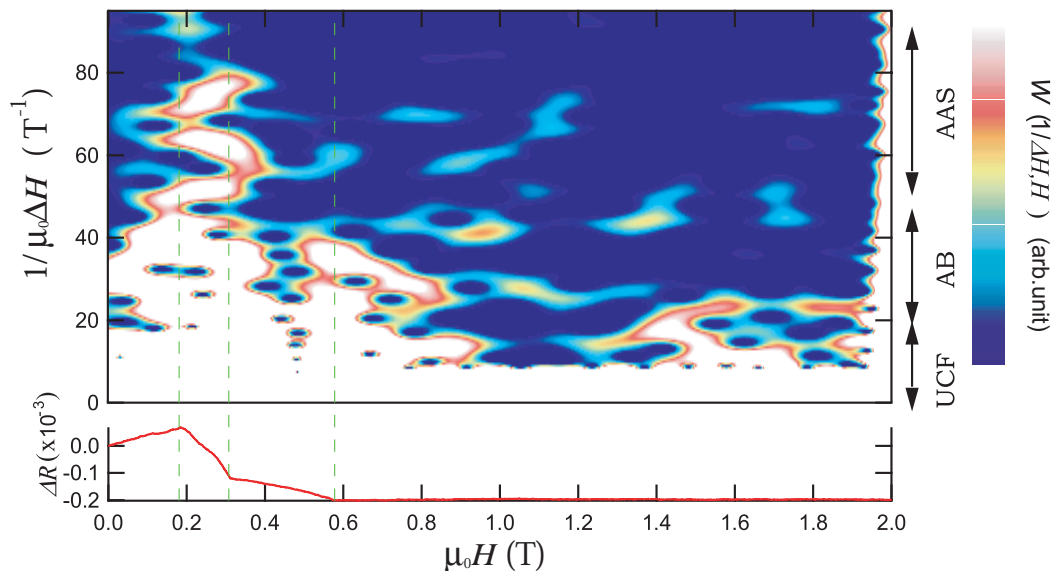


Fig 6.6: Aharonov-Bohm 振動の時間周波数解析 (増磁過程: GMR 効果による不連続成分を除去した後の計算。波線は GMR 効果が生じた地点を示す。)

図中波線で GMR 効果が生じた地点を示すが、不連続点となり、複数の振動数が混入している。また、 $1.2 < \mu_0 H < 2.0$ T における強度分布も相対的に強度が小さくなっている。このため現状では反平行磁化配置の影響を、時間軸（磁場 $\mu_0 H$ ）を含めて捉えることは出来ない。反平行磁化配置の影響を調べるため、Fig.6.7 に反平行配置に対応する磁場領域の磁気抵抗曲線を示した。

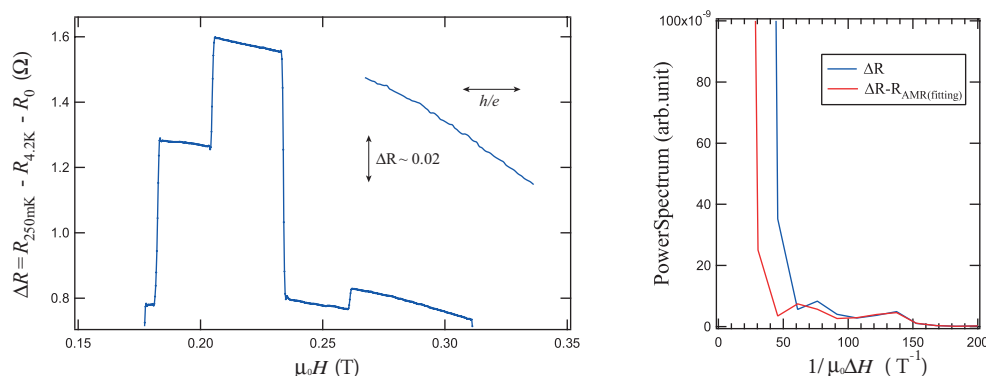


Fig 6.7: 反平行磁化配置に対応する磁気抵抗曲線 (増磁過程)。右図は拡大した曲線の PowerSpectrum。

図中左図からわかるように GMR 効果によって抵抗差分の変化が大きくなる。挿入図には $0.26 < \mu_0 H < 0.31$ T における磁気抵抗曲線を拡大した。Aharonov-Bohm 振動 (h/e 周期) が存在する場合この領域には 3 振動程度確認できるはずであるが、曲線から振動成分は確認できない。これには 2 つの可能性があり、

- AMR 効果を完全に差し引くことができず、Fig.6.4 に比べて一桁オーダーが大きい
- Aharonov-Bohm 振動が存在しない

が考えられる。そこで挿入図の曲線に対して PowerSpectrum を計算し、右図に記した。 ΔR から計算した PowerSpectrum においては AMR 効果に起因する低周波のパワーが強く、Aharonov-Bohm 振動に対応する領域が埋め尽くされることがわかる。Fitting 曲線で更に AMR 効果の寄与を差し引いた場合、低周波が除かれているが、やはり Aharonov-Bohm 振動に対応する領域に有意なスペクトルは観測されない。したがって複合構造ナノリング I の反平行状態においては Aharonov-Bohm 振動が存在しないものと考えられる。

6.2.2 単層 Cu ナノリングとの比較

複合構造ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動の特徴を理解するため、単層 Cu ナノリングにおける振動強度 $W(H, 1/\Delta H)$ の等高線図を Fig.6.8 に示す。

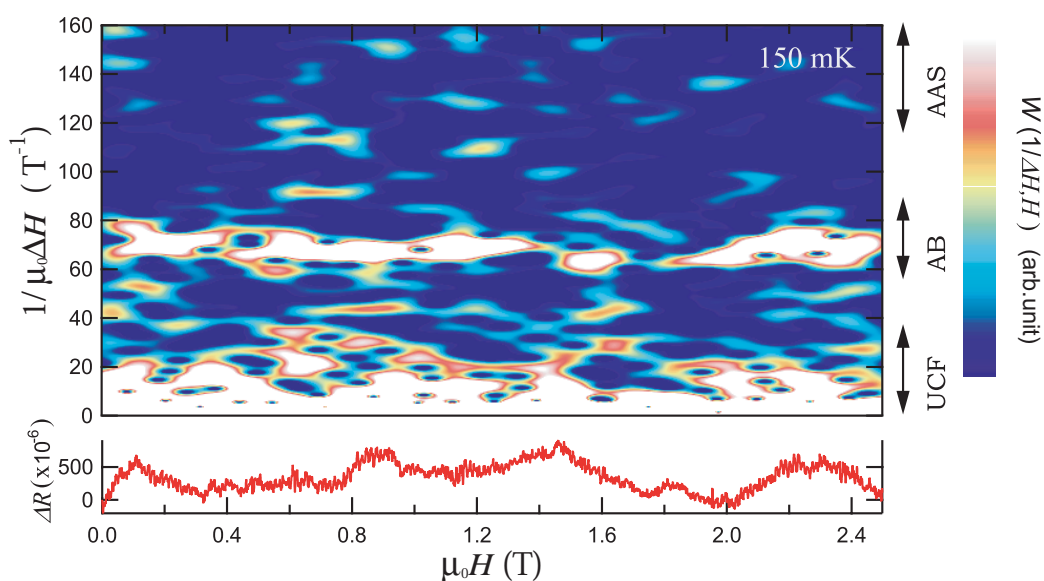


Fig 6.8: Cu ナノリングにおける AB 振動の時間周波数解析

振動強度は全強磁場領域において 70 T^{-1} 近傍が明瞭である。振動数 70 T^{-1} は Aharonov-Bohm 振動であり (第 5.1.3 節参照)、Cu ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動は外部磁場強度に依存しない (弱磁場領域 $\mu_0|H| < 0.15 \text{ T}$ を除く。弱磁場領域の振幅は若干大きい)。また AAS 振動 (140 T^{-1}) に対応する振動領域には強い強度分布が存在しない。普遍的コンダクタンス揺らぎに対応する振動成分は $10 < 1/\mu_0\Delta H < 30 \text{ T}^{-1}$ の振動数領域に強い強度をもたらしている。

6.3 Cu層による Coherence の増大 (複合構造ナノリング II)

複合構造ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動には、振動周期と振動振幅の磁場依存性が存在することがわかった。これは磁場依存性を示さない非磁性 Cu ナノリングと対照的である。本節では複合構造ナノリング II における Aharonov-Bohm 振動に注目し、Cu 層厚による Coherence の効果を調べる。

6.3.1 Aharonov-Bohm 振動

複合構造ナノリング II の $T = 250 \text{ mK}$ における磁気抵抗効果について、AMR 効果を引き去った ΔR を Fig.6.9 に示す。

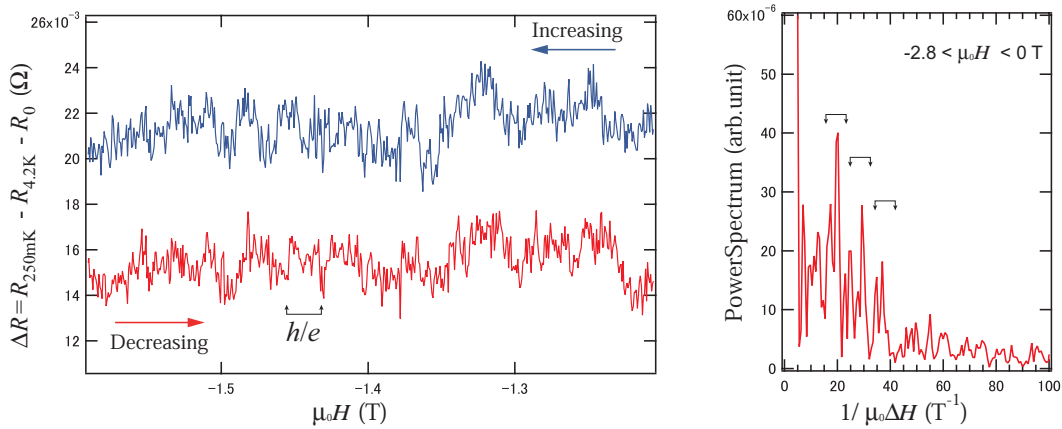
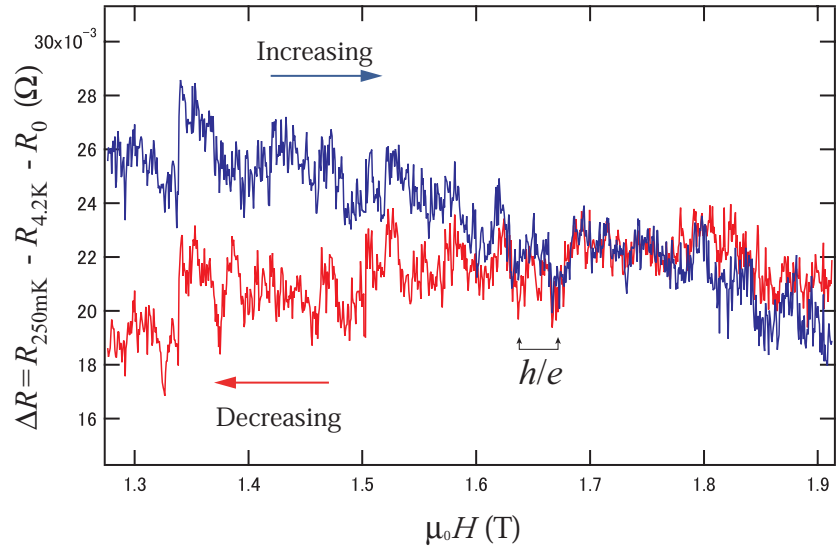


Fig 6.9: 複合構造ナノリング II の磁気抵抗振動

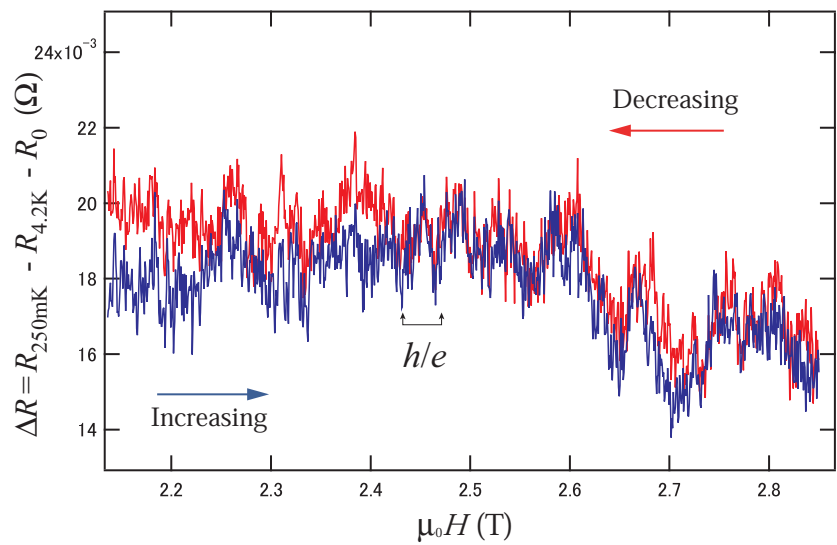
Fig.6.9 左図のように、複合構造ナノリング I に比べて Aharonov-Bohm 振動が明瞭に出現し、磁気抵抗振動は増磁過程と減磁過程で一致する。全磁場領域 (減磁過程) の Power Spectrum をとったところ、Fig.6.9 右図で示すように単一ピークとして出現せず、三つのピークが確認できる。それぞれ Aharonov-Bohm 振動の振動数領域に存在しており、振動数がやはり磁場印加過程によって変化することがわかる。

磁化反転過程に依存すること 複合構造ナノリング II における磁気抵抗振動は、Fig.6.10 のように全磁場領域でほぼ一致する。しかしバックグラウンドで変化する抵抗変化は磁気反転過程で異なり、普遍的コンダクタンス揺らぎが磁化反転過程の影響を受けていることを示す²。

²なお増磁過程における反平行磁化状態について、179 ページと同様の解析を行ったところ振動成分は検出されなかった。反平行状態では Coherence が減少すると考えられる



(a) 磁場領域 $1.3 < \mu_0 H < 1.9$ T (増磁過程および減磁過程) における磁気抵抗効果



(b) 強磁場領域 $\mu_0 H > 2.0$ T (増磁過程および減磁過程) の磁気抵抗効果

Fig 6.10: 複合構造ナノリング II における磁気抵抗振動の再現性

6.3.2 時間周波数解析

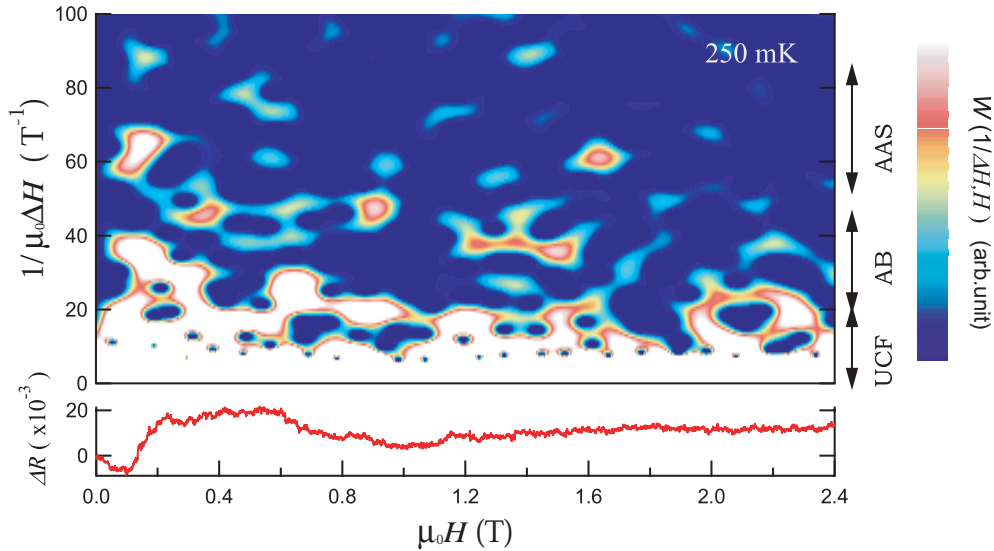


Fig 6.11: Aharonov-Bohm 振動の時間周波数解析 ($T=250$ mK)

複合構造ナノリング II における振動強度 $W(H, 1/\Delta H)$ を Fig.6.11 に示す。振動数 $1/\mu_0\Delta H_{AB} \sim 20 \text{ T}^{-1}$ の強度がほぼ全領域 $0 < \mu_0 H < 2.4 \text{ T}$ において続いている。一方、振動数 $30 \leq 1/\mu_0\Delta H_{AB} \leq 44 \text{ T}^{-1}$ も弱磁場領域 $0 < \mu_0 H < 0.4 \text{ T}$ 、磁場領域 $1.2 < \mu_0 H < 1.6 \text{ T}$ 、強磁場領域 $2.0 < \mu_0 H < 2.4 \text{ T}$ に分布することがわかる。これら Aharonov-Bohm 振動に相当する振動数成分の強度が高い。また $10 \leq 1/\mu_0\Delta H_{AB} \leq 20 \text{ T}^{-1}$ の振動数領域に強度が現れており、これは単層 Cu ナノリング Fig.6.8 と同様に普遍的コンダクタンス揺らぎ (UCF) の寄与と考えられる。

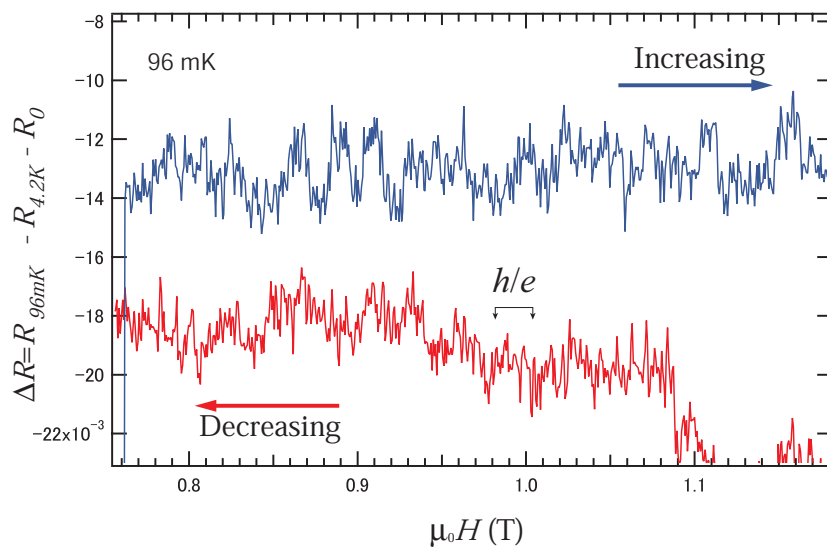
振動振幅 強磁場領域 $2.0 < \mu_0 H < 2.4 \text{ T}$ における磁気抵抗振動から振動振幅を見積もると、

$$\Delta g_{AB} = 6.9 \times 10^{-3} e^2/h$$

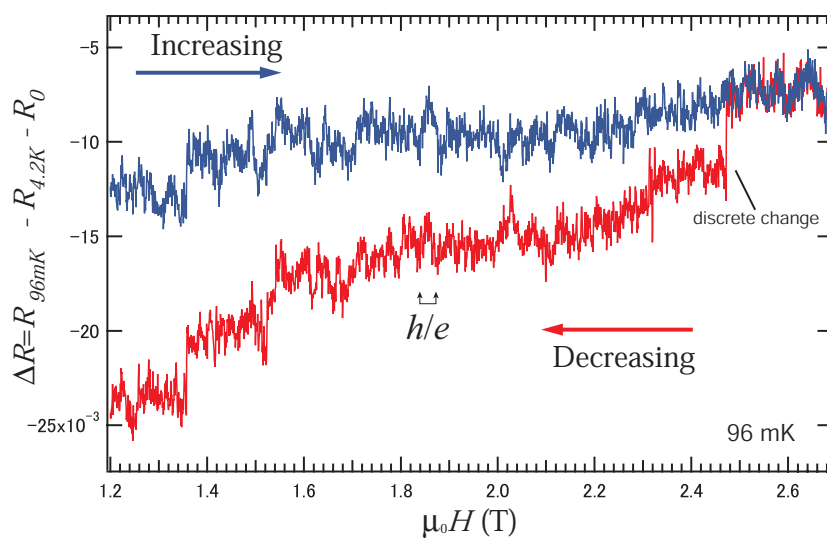
となり、複合構造ナノリング I ($T=250$ mK) に比べて五倍から十倍の振動振幅になる。したがって、Cu 層厚が増加したことによって Coherence が増大し UCF や Aharonov-Bohm 振動強度が増大した。

6.3.3 普遍的コンダクタンス揺らぎ

複合構造ナノリング II を更に低温 $T=96$ mK においたときの磁気抵抗振動を Fig.6.12 に示す。Fig.6.12(a) のように振動がより明瞭になり、Fig.6.12(b) のように強磁場領域で振動が一致する。



(a) 磁場領域 $0.8 < \mu_0 H < 1.2$ T (増磁過程および減磁過程) における磁気抵抗効果



(b) 強磁場領域 $\mu_0 H > 1.0$ T (増磁過程および減磁過程) の磁気抵抗効果

Fig 6.12: 複合構造ナノリング II における磁気抵抗振動

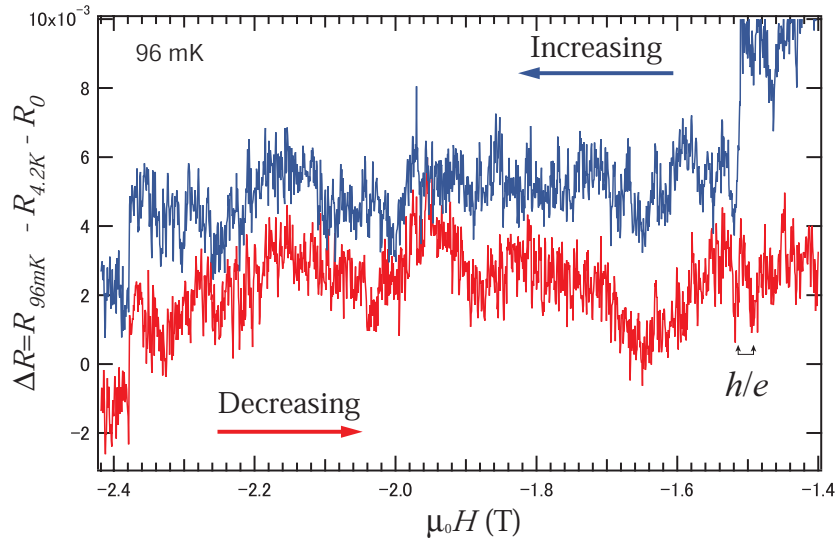


Fig 6.13: 磁場領域 $-2.4 < \mu_0 H < -1.4$ T (増磁過程および減磁過程) における抵抗揺らぎ

不連続な抵抗変化と UCF 極低温 $T=96$ mK においては Fig.6.12(b) のような不連続な抵抗変化がしばしば観測される。このような不連続性が存在すると磁気抵抗曲線の振動の再現性が悪くなり、不連続な抵抗変化は普遍的コンダクタンス単位でおよそ

$$\Delta g_{discrete} = 2.4 \times 10^{-2} e^2/h$$

である。一般的には FeNi 合金において磁壁が生成すると抵抗が減少する。したがってこの場合も磁壁生成によるものと考えられるが、 $\mu_0 H = 2.8$ T もの強磁場が印加された状態であり磁壁が生成したとも考えにくい。第 4.2.4 節で示したように、この系において磁壁の寄与によって古典的に抵抗 $\Delta R_{DW} = 0.0207 \Omega (= 0.12 e^2/h)$ 程度減少する。このオーダーの差から磁壁生成ではなく、磁壁移動に伴う量子干渉パターンの変化の可能性がある。Tatara らによれば、弱局在領域では磁壁が移動するだけでも抵抗が減少する。現在は強磁場中なので Diffuson の寄与であるが、ゆらぎのパターンが変化したと考えられる。

このゆらぎは複合構造ナノリング II において顕著であり、Fig.6.13 に抵抗ゆらぎを示す。微細な振動構造に加えて全体的に大きく変化するゆらぎが確認できる。ゆらぎの振幅はおよそ

$$\Delta g_{UCF} = 1.0 \times 10^{-2} e^2/h$$

であり、不連続な抵抗変化と同じオーダーになる。

6.3.4 Coherence の温度依存性

時間周波数解析 Coherence の温度依存性を調べるため、複合構造ナノリング II の磁気抵抗曲線から、各温度における時間周波数解析を行った。Fig.6.15 に結果を示す。Fig.6.15 から、温度が低下するにつれて振動成分が増加するのが明瞭である³。最低温度 $T=96$ mK では Aharonov-Bohm 振動領域のパワーが増大し、また低振動数領域にも同様の強いパワーが出現する。これは UCF の増大を示す。

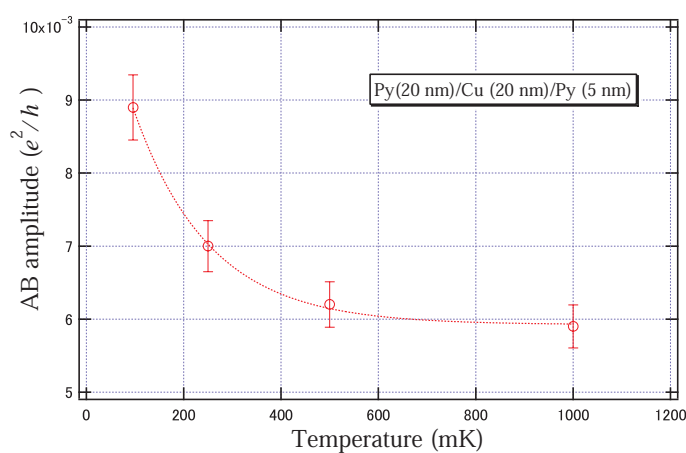


Fig 6.14: Aharonov-Bohm 振幅の温度依存性

Aharonov-Bohm 振動振幅について Coherence は UCF だけでなく、Aharonov-Bohm 振動振幅にも明瞭に現れる。Fig.6.14 に Aharonov-Bohm 振動振幅の温度依存性を示す。温度が低下するに従って Coherence が増大し、振動振幅が増大する。フィッティングカーブによって、500 mK と 1000 mK における振幅の差はほとんどないが 400 mK 辺りから急激に増大することがわかる。温度依存性は

$$A \propto \exp[-\alpha/L_\varphi(T)]$$

型の依存性を示しており、定性的に式 (1.19) と一致する。式 (1.19) から位相相関長を逆算すると(熱拡散長は Cu の値を仮定)、極低温 $T=96$ mK において

$$515 \text{ nm} \leq L_\varphi \leq 666 \text{ nm}$$

となる。リング円周長より短く、Coherence が抑制されることがわかる。

³等高線図における強度は一つの曲線における相対比を意味するため、曲線同士のパワーを直接比較することは出来ない。ここでは $T=96$ mK の最大パワーを 1 として規格化した。

第6章 強磁場領域における Aharonov-Bohm 振動

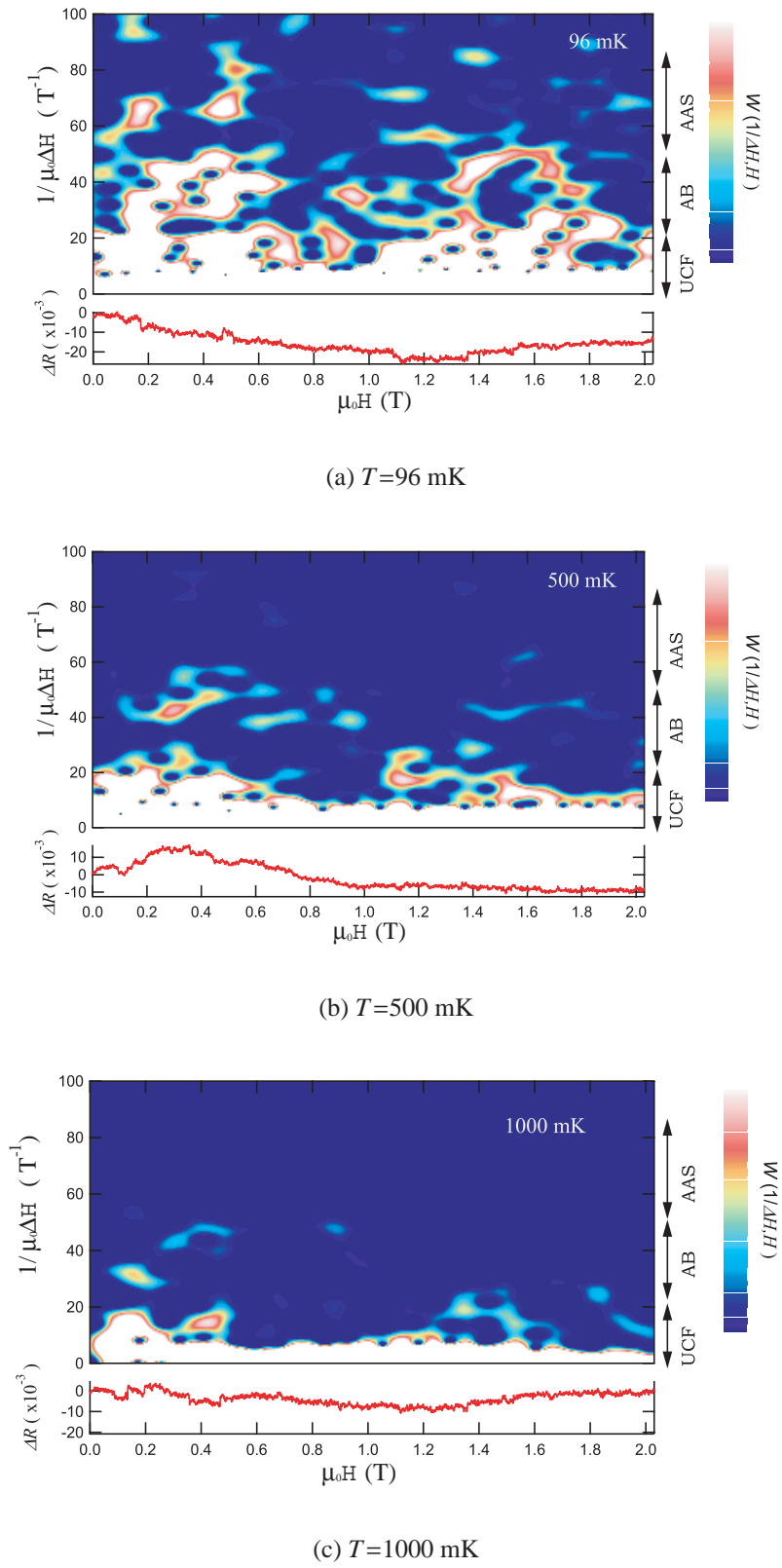


Fig 6.15: 磁気抵抗振動の温度依存性

6.3.5 反平行磁化配置における Aharonov-Bohm 振動

$T=96$ mK における増磁過程の磁気抵抗曲線を Fig.6.16 に示す。Fig.6.16(a) には第 4.2.4 節で考察した磁化分布を挿入した。磁化回転に伴う抵抗減少が差し引けていないため、なだらかな抵抗減少が残存する。

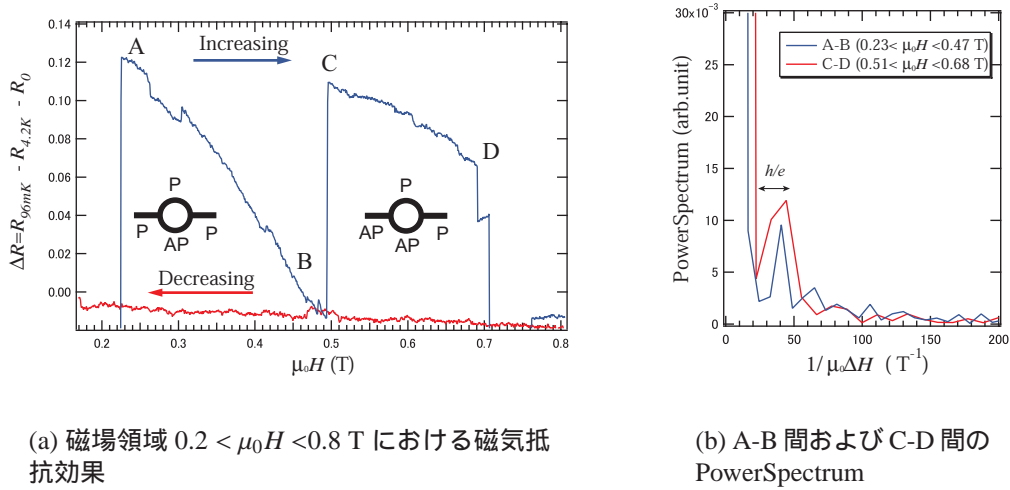


Fig 6.16: 反平行磁化配置に相当する磁気抵抗曲線 ($T=96$ mK)

磁気抵抗曲線の A-B 間および C-D 間からは振動成分が確認できるため、Power Spectrum を計算した (Fig.6.16(b))。Power Spectrum には有意なピークが検出できており、Aharonov-Bohm 振動に対応する。すなわちこの磁化分布でも Coherence が残存する。この領域は図中の挿入図で示したように、リング全体で反平行磁化配置にならない。リングの片方だけ反平行である。Fig.6.16(b) 中ではパワーの強度差が存在するように見えるが、これは解析に用いた磁場領域の広さ (データ点数) に依存するためである。データ点数の比と強度比がほぼ同じなので両者のパワーは同程度である。挿入図の磁化配置より、A-B 間および C-D 間の違いはアーム部分の反平行状態の差である。量子効果が発現するのに必要な Coherence 長はリング一周のループであり、アーム部分の反平行状態は寄与しない。

Power Spectrum のピーク面積から振動振幅を見積もると

$$\Delta g_{AB}(\text{anti-parallel}) = 5.1 \times 10^{-3} e^2/h$$

となり、リング部分すべてが平行磁化配置の時 ($\Delta g_{AB} = 8.9 \times 10^{-3} e^2/h$) に比べて 42% 減少する。

6.4 強磁性金属の電子 Coherence への影響

本節では複合構造ナノリング I および II における Aharonov-Bohm 振動についてまとめ、強磁性金属の Coherence に対する影響を論述する。

6.4.1 Decoherence 機構

複合構造ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動の特徴 複合構造ナノリングにおける、強磁場領域の Aharonov-Bohm 振動の特徴は以下ようになる。

1. 反平行磁化状態では Coherence が抑制され、振動振幅が減少する。
2. 強磁場領域で振動が明瞭になる。
3. 磁場によって振動数および振動振幅が変調を受ける。
4. Cu 層の膜厚により Coherence が回復する。

これらは単層 Cu ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振動が磁場に依存しないことと対照的であり、磁性層の磁化が影響することを示す。

量子伝導機構に関する考察

複合構造ナノリングにおいては GMR 効果が明瞭に観測できるため、二流体モデルが適用できる。また、序論で示したように極低温において有効的に残存する電気伝導チャンネル数はチャンネル間相関によって減少しており、Coherence の低い伝導チャンネルは伝導度に寄与しないと考える。

強磁性金属における電気伝導は up-spin(Majority) 電子および down-spin(Minority) 電子の伝導である。したがって強磁場において磁性層の磁化が平行配置となると、Majority 電子のスピン依存散乱確率が減少し (Coherence が上昇し) 伝導チャンネルが形成される。一方、Minority 電子の Coherence は低下するため伝導チャンネルが消滅することになる。この Coherence の増大は第 6.3.5 節において示したように、反平行磁化配置において Aharonov-Bohm 振動が抑制 (Decoherence) されたことによって明らかである。平行 (P)・反平行 (AP) 磁化配置における位相相関長は (熱拡散長は Cu を仮定)

$$515 \text{ nm} \leq L_{\varphi}(P) \leq 666 \text{ nm}$$

$$435 \text{ nm} \leq L_\varphi(AP) \leq 538 \text{ nm}$$

である。反平行磁化配置といってもリング半分であるが、半周 $620 \text{ nm} \leq L_{half} \leq 780 \text{ nm}$ であるため、AP 磁化配置のリング部分を coherent に通過する確率は e^{-L/L_φ} にしたがって急速に減少する（模式的に Fig.6.17(a) 示す）。このように、スピン依存散乱による Decoherence 機構によって、位相相関長が $80 \text{ nm} \leq L_\varphi \leq 128 \text{ nm}$ 程度減少することが初めて明らかになった。

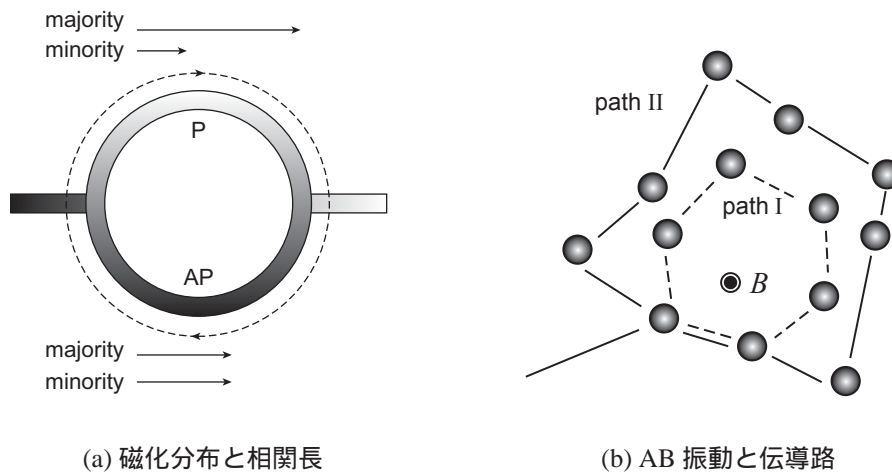


Fig 6.17: 量子伝導機構に対する模式図

AMR 効果と Decoherence 機構

磁場によって振動周期や振動振幅が変調を受けることは、磁化方向の変化によってチャネル間相関の変化（Decoherence）が起きる可能性を示す。第 6.2.1 節で示したように、減磁過程（したがって平行磁化配置）にも関わらず振動周期と振動振幅が変化することは Majority 電子と Minority 電子の Coherence 増減では説明ができない。磁化方向が重要となる。平行磁化配置なので伝導チャネルは Majority 電子のみと仮定することができる。

Fig.6.9 で示したように複数のスペクトルピークが生じることは複数の伝導路の寄与が存在し、さらにチャネル間相関が複雑であることを意味する。チャネルの組み替えが頻繁に生じるため、振動周期や振動振幅が変化するものと考えられる。いま、簡単のため磁化 M は電子 Coherence を低下させたものと考え、磁束に換算しない。このとき Fig.6.17(b) に模式的に示したように、リング内部に存在する内側の伝導路と外側の伝導路では貫く磁束が異なる。Aharonov-Bohm 振動が生じる場合、それぞれの面積を S_{inner} 、 S_{outer} とすると ($\phi_0 = BS$

が一定なので、

$$S_{outer} > S_{inner} \quad (6.7)$$

$$\Delta H_{outer} < \Delta H_{inner} \quad (6.8)$$

$$1/\Delta H_{outer} > 1/\Delta H_{inner} \quad (6.9)$$

の関係が成り立ち、振動数が複数生じうる。このモデルに従うと強磁場になって Aharonov-Bohm 振動が低振動数側に变化するのは、内側を通る伝導路が主に寄与するため、と説明することが出来る。この状況では AMR 効果が減少しており (Fig.6.18(a))、チャンネル間相関が強まり有効チャンネルが減少する。すなわち最も伝導性良い内側の伝導路に伝導チャンネルが集約されると考えられる (一種の edge 状態)。相関効果が強まるのは強磁場領域における Aharonov-Bohm 振動が Diffuson の寄与によって生じるためであり、これは強磁場で Aharonov-Bohm 振動が明瞭になることと一致する。

一方、 $\mu_0 H < 1 \text{ T}$ では磁化方向はリング円周に沿っており (Fig.6.18(b))、AMR 効果が大きい。この場合に高振動数側の寄与が多くなるのは、より外側の伝導路も寄与することを意味する。AMR 効果を引き起こす異方的散乱の結果⁴、伝導路による伝導性の差が無くなると考えられる (平均化)。したがって平均的伝導性をもつ伝導路に伝導チャンネルが分散される。これは第 6.1.2 節において示したように、 $\mu_0 H < 1 \text{ T}$ における磁気抵抗振動がランダムになることを説明することができる。したがって、強磁性金属内部の散乱機構がチャンネル間相関を乱すこと (Decoherence 機構) を意味する。

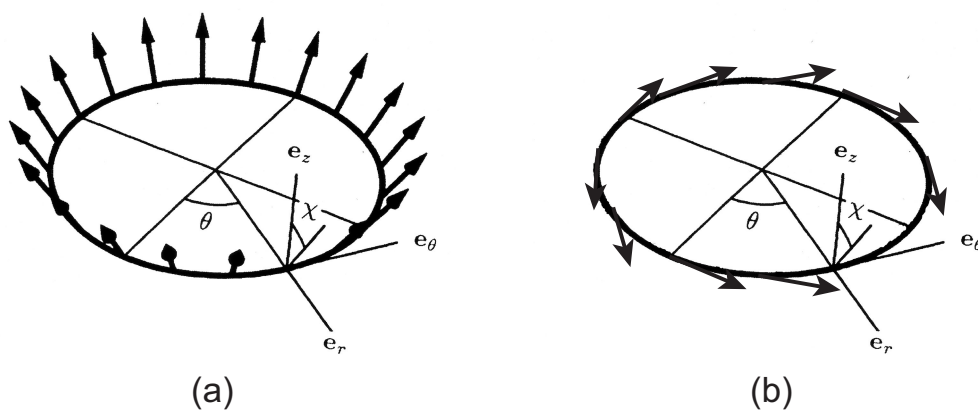


Fig 6.18: リング磁化分布

⁴二電流モデルに基づく AMR 効果のミクロスコピック機構は *sd* 散乱による。

磁化方向によってチャンネル間相関が乱されることは、第 6.3.3 節で見たように、UCF が不連続な変化を示すことと一致する。第 6.3.3 節では磁壁移動と考えたが、磁壁によってチャンネル相関が乱されたとも考えられる。磁壁は磁化が空間的にねじれた状態であり、同様にチャンネル相関を攪乱しうるためである。

6.4.2 Aharonov-Bohm 振幅 (Diffuson channel)

複合構造ナノリング I, II および単層 Cu ナノリングにおける Aharonov-Bohm 振幅について Fig.6.19 にまとめた。

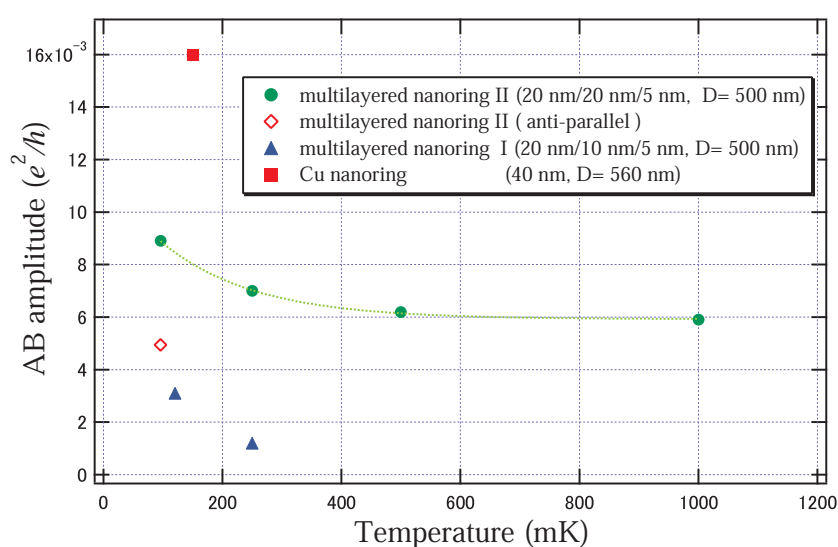


Fig 6.19: Aharonov-Bohm 振幅の温度依存性

振幅の温度依存性はほぼ同等の傾向を示す。複合構造ナノリング I の AB 振幅が最も小さく、単層 Cu ナノリングの AB 振幅はこれより一桁大きい。複合構造ナノリング II の AB 振幅は両者の中間に位置する。反平行磁化配置 (リング半分) における AB 振幅は減少し、スピン依存散乱が強い Decoherence 機構となることがわかる。しかし複合構造ナノリング I の AB 振幅よりは大きい。左端のプロットは各リングにおいて温度がほぼ等しいため、これらの AB 振幅の差は金属層の影響を示す。ここで AB 振幅の小さい順から Cu 層膜厚が 10 nm, 20 nm, 40 nm となる点に注意すると、Aharonov-Bohm 振幅がほぼ等倍で増加することがわかる。すなわち Coherence を担っているのは大部分が Cu 層なのである。反平行磁化配置に起因するスピン依存散乱よりも、Cu 層膜厚減少の方が Coherence が低下する。これは強磁性金属自体に強い Decoherence 機構が存在する間接的証拠である。したがって、反平行磁化配置でなくても AB 振動が消滅する磁場領域が存在することが理解できる。

第7章 本研究の結論

第3章と第4章では複合構造ナノリングの磁化反転過程を調べ、量子干渉計として有望であることを示した。第5章では弱磁場領域の量子干渉効果について調べ、弱局在効果の観点から論じた。第6章では強磁場領域の Aharonov-Bohm 振動について、磁化分布との関連から論じた。この章では、複合構造ナノリングにおける量子効果についてまとめる。

7.1 強磁性金属の Decoherence 機構

複合構造ナノリングにおける磁気抵抗振動の振幅は弱磁場領域、強磁場領域を問わず、Cu 層膜厚に依存する。本研究の、Cu 層が半減すると振動振幅が一桁も変化するという結果は、Coherence を担うのが Cu 層であることを示しており、間接的に強磁性金属が Decoherence 機構を有することを証明する。

弱磁場領域において磁気抵抗振動を特徴づけているのは位相干渉効果 (Cooperon チャネル) である。位相干渉効果は印加磁場数十 mT で減衰し、極低温および直径 500 nm 程度という条件で観測された。 $h/2e$ 振動と磁場 $\mu_0 H = 0$ T 近傍における抵抗極大は弱局在効果を意味し、これらの変化量が温度依存性を持つことによって支持される。これら弱局在効果の影響と考えられる現象は磁性層の残留磁化状態に強く依存しており、量子干渉と磁気構造の相関が現れている。残留磁化状態においては Majority 電子が伝導を担うため、電子スピンの伝導について磁気構造が干渉パターンの変化をもたらすと考えられる。現状では変調効果が存在することがわかったことにとどまるが、複合構造ナノリングにおける弱局在の研究によって、量子干渉性と磁気構造についての知見を得ることが期待できる。

強磁場領域における磁気抵抗振動を特徴づけるのは、ゆらぎとしての Aharonov-Bohm 振動である。時間周波数解析によって Aharonov-Bohm 振動が磁場領域と共に変化し、磁場領域により振動周期と振動振幅に変調がかかることがわかった。これは強磁性金属層の磁化分布が電子 Coherence に対して強く影響を及ぼすことを示す。磁性金属の AMR 効果 (sd 散乱) などを引き起こすスピン依存散乱が強い Decoherence 機構となる可能性がある。本研究ではチャネル間相関による影響を議論したが、相関の定量的評価はいまだ未解決の問

題として残されている。しかし、磁化分布の影響は複合構造ナノリングの反平行磁化配置によって検出され、位相相関長が $80 \text{ nm} \leq L_\varphi \leq 128 \text{ nm}$ 程度減少することがわかった。無論、定量的保証を得るにはさらなる実験結果が必要であるが、本研究によって Majority 電子に対する Decoherence がはじめて定量的に評価されたといえよう。

7.2 結論

本研究では複合構造ナノリングにおける極低温磁気抵抗効果を測定し、拡散領域における量子伝導機構を調べた。本研究で得られた主な結論は以下の通りである。

1. 複合構造ナノリングは巨大磁気抵抗効果によってその磁化分布を推定することができ、磁化過程を制御した量子干渉計として有望である。
2. リング構造（直径 500 nm 程度）を有することで弱磁場領域において $h/2e$ 周期と h/e 周期の振動を観測し、PowerSpectrum 解析によってこれらの振動振幅が磁場と共に減衰することがわかった。複合構造ナノリングの Cu 層膜厚が大きい場合、磁場 $\mu_0 H=0$ T 近傍における抵抗が極大となる現象を観測した。これらは温度依存性を示し、弱局在効果として説明することができる。
3. 強磁場領域における Aharonov-Bohm 振動は磁場領域によってその振動数と振幅が変化する。磁場領域により振動が消滅する場合もある。磁気抵抗曲線は強磁場になると Aharonov-Bohm 振動が明瞭になり、再現性が良くなる。これらは磁化方向が変化することにより、電子の獲得する位相が乱雑になるためと解釈できる。
4. 磁性層の反平行磁化配置によって Aharonov-Bohm 振動振幅が減少する。これはスピン依存散乱が Decoherence 機構となることを示し、電子スピンの依存して位相相関長が $80 \text{ nm} \leq L_\varphi \leq 128 \text{ nm}$ 程度減少することがわかった。

参考文献

- [1] H. Hukuyama, T. Ando 「Transport Phenomena in Mesoscopic Systems」(Springer-Verlag)
- [2] 福山秀敏 「メゾスコピック系の物理」丸善株式会社
- [3] 小野嘉之, 「金属絶縁体転移」朝倉書店
- [4] P. A. M. Dirac, 「The Principles of Quantum Mechanics」(みすず書房)
- [5] B. L. Altshuler and A. G. Aronov, 「Electron-Electron interactions in Disordered Systems」(North-Holland, Amsterdam, 1985)
- [6] Jorgen Rammer 「Quantum Transport Theory」(Westview Press)
- [7] R. A. Webb, S. Washburn, C. P. Umbach, and R. B. Laibowitz, Phys. Rev. Lett.54, 2696(1985).
- [8] S. Washburn, C. P. Umbach, R. B. Laibowitz and R. A. Webb, Phys. Rev. B 32, 4789(1985).
- [9] V. Chandrasekhar, M. J. Rooks, S. Wind, and D. E. Prober, Phys. Rev. Lett.55, 1610(1985).
- [10] A. D. Stone and Y. Imry, Phys. Rev. Lett.56, 189(1986).
- [11] C. P. Umbach, C. van Haesendonck, R. B. Laibowitz, S. Washburn, and R. A. Webb, Phys. Rev. Lett.56, 386(1986).
- [12] J. C. Licini, G. J. Dolan, and D. J. Bishop, Phys. Rev. Lett.54, 1585(1985).
- [13] F. P. Milliken, S. Washburn, C. P. Umbach, R. B. Laibowitz and R. A. Webb, Phys. Rev. B 36, 4465(1987).
- [14] R. Häussler, E. Scheer, H. B. Weber, and H. v. Löhneysen, Phys. Rev. B 64, 085404(2001).
- [15] D. Loss, P. Goldbart, and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. 78, 3773(1997).

- [16] Y. L. Geller, I. L. Aleiner, and P. M. Goldbart, *Phys. Rev. Lett.* 81, 3215(1998).
- [17] M. Kläui, C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, W. Wernsdorfer, G. Faini, E. Cambril, L. J. Heyderman, F. Nolting, and U. Rüdiger, *Phys. Rev. Lett.* 94, 106601(2005).
- [18] T. Ono, Y. Sugita, and T. Shinjo: *J. Phys. Soc. Jpn.* 65 (1996) 3021.
- [19] T. Ono, H. Miyajima, K. Shigeto, K. Mibu, N. Hosoi, and T. Shinjo, *Science* 284 (1999) 468.
- [20] 新山 卓, 修士論文「強磁性体微小リングの電流磁気効果」
- [21] 葛西 伸哉, 博士論文「ナノスケール強磁性体における量子伝導機構と量子干渉効果」
- [22] G. Tatara and H. Fukuyama, *Phys. Rev. Lett.* 78, 3773(1997).
- [23] G. Tatara, and B. Barbara, *Phys. Rev. B* 64, 172408(2001).
- [24] G. Tatara, H. Kohno, E. Bonet, and B. Barbara, *Phys. Rev. B* 69, 054420(2004).

謝辞

慶應義塾大学工学部物理学科教授 宮島英紀先生には、本研究を行う機会を与えて頂き、研究が行き詰まったときにはご多忙にもかかわらず親身にご指導いただきました。そして、絶えず新しい研究意欲を吹き込んで頂き、研究に望む姿勢・研究方法をご教授頂きました。学部・修士・博士課程で学んだ中で何よりも代え難いのは、このような姿勢を学んだことと思います。ここに、心からお礼を申し上げます。

理化学研究所フロンティア研究量子ナノ磁性グループ 廣畑貴文博士には、試料作製条件、実験方法など実験的な助言を数々頂きました。また、学会などにおける有益な議論によって研究が進んだことに深く感謝いたします。ありがとうございました。

慶應義塾大学工学部物理学科講師 柴山義行博士には、本実験の装置製作、実験方法など様々なご指導をして頂きました。特に、本実験で使用した低温使用装置を作製することができなければ、本研究で成果を得ることができなかつたものであり、ここに深く感謝致します。ありがとうございました。

京都大学化学研究所小野研究室助手 葛西伸哉博士には、研究室の先輩として希釈冷凍機の取り扱い、微細加工などについて多くのことをご指導いただきました。学会などにおいて有益な議論をしていただいたことに深く感謝いたします。ありがとうございました。

サイバネット株式会社 臼井信志博士には、密度汎関数法などの電子輸送シミュレーションに関して多くの助言、支援を頂きました。数々の有益な議論によって計算科学の難しさ、基本的な姿勢を学ぶことが出来ました。計算の収束性について、丁寧にご指導いただいたことに深く感謝いたします。ありがとうございました。

慶應義塾大学工学部物理学科助手 山口明啓博士には、実験にたいして実直に向かう姿勢、研究者としての姿勢を学びました。また豊富な実験知識、実験手段によって多くの疑問点を解決していただきました。ここに深く感謝いたします。ありがとうございました。

慶應義塾大学工学部中央試験所 石坂彰 氏には、He 供給に関して実験が最前に進むよう配慮していただきました。強行日程による He 供給など、ご多忙にも関わらず快く供給を引き受けて下さったことに感謝いたします。ありがとうございました。

慶應義塾大学理工学部電子工学科教授 真壁利明先生、小原實先生をはじめとする 21 世紀 COE の事業推進担当の先生方には、COE プログラムを通じて物理学科では得られない情報電気電子分野のご指導を頂きました。教育プログラムによって多くの分野に接して視野を広めることができ、海外ワークショップ・国際シンポジウム参加など貴重な経験をさせていただきました。ここに深く感謝いたします。ありがとうございました。

情報電気電子 COE 研究員のみなさんには公私ともにお世話になりました。博士課程にあって多くの知己を得たのは私の財産であり、切磋琢磨できる環境に身をおけたことに深く感謝いたします。ありがとうございました。

公私ともお世話になった宮島研究室の方々に感謝します。最後に私を支えてくださった方に心からお礼を申し上げます、ありがとうございました。

付録A 密度汎関数法と 非平衡グリーン関数法

電子輸送をミクロスコピックに議論するには、考察対象の分子の電子構造を導出することが出発点となる。電子系は次の多体 Schrödinger 方程式によって記述される。

$$\hat{H} = - \sum_{i=1}^n \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \sum_{i=1}^n \sum_{\mu=1}^N \frac{Z_{\mu} e^2}{|r_i - R_{\mu}|} + \frac{1}{2} \sum_{i,j}^n \frac{e^2}{|r_i - r_j|} \quad (\text{A.1})$$

$$\hat{H} |r_1, r_2, \dots, r_n\rangle = E_0 |r_1, r_2, \dots, r_n\rangle \quad (\text{A.2})$$

第一項は運動エネルギー、第二項は原子核 Z_{μ} のつくるポテンシャル、第三項は電子間相互作用に対応する。式 (A.2) は解析的に解くことができないので、電子密度

$$n(r) = \sum_{\varepsilon_{\alpha} < \mu} \langle \alpha, r | \alpha, r \rangle \quad (\text{A.3})$$

を導入する。すなわち一電子近似 (Hartree 近似、平均場近似) によって、一電子 Schrödinger 方程式に単純化する。

$$\hat{H}_{\text{oneelectron}} = - \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V^{\text{eff}} [n](r) \quad (\text{A.4})$$

$$\hat{H}_{\text{oneelectron}} |\alpha, r\rangle = \varepsilon_{\alpha} |\alpha, r\rangle \quad (\text{A.5})$$

$V^{\text{eff}} [n]$ は有効ポテンシャルであり、電子密度 (A.3) によって求まる量である。式 (A.5) の解が分子の電子構造を与えるが、式 (A.3) に従って再び電子密度 n' を与えるため $n = n'$ となる必要がある。第一原理計算 (密度汎関数法) ならば混合パラメータ β を導入して $n := \beta n' + (1 - \beta)n$ と n を再設定し、自己無撞着 (self-consistent) になるまで方程式群を解く。

A.1 密度汎関数法 (DFT)

分子系のモデル化

分子系は孤立した原子系でなければ、無限に続く周期系でもない。このような系の電子状態（電子密度）を計算するには、一電子 Schrödinger 方程式に単純化しても容易ではない。一電子状態を基底関数（平面波解、原子軌道など）の線形結合として

$$\psi(r) = \sum_i a_i |i, r\rangle \quad (\text{A.6})$$

と適切に選び、基底関数の重なりを示す関数 S を導入する。基底関数の重なり合いは隣り合う原子間のみとすると（スクリーニングの仮定）、式 (A.5) は

$$\sum_j H_{ij} a_j = \varepsilon \sum_j S_{ij} a_j \quad (\text{A.7})$$

$$H_{ij} = \langle i | \hat{H}_{one\ electron} | j \rangle, \quad S_{ij} = \langle i | j \rangle \quad (\text{A.8})$$

となる。ここで分子系を電極 (Left Electrode)、中央領域 (Interaction Region)、右電極 (Right Electrode) とモデル化すると、ハミルトニアンも電極と中央領域に分割された行列形式に変形することができる。

$$\bar{H} = \begin{pmatrix} \bar{H}_{LL} & \bar{H}_{LI} & 0 \\ \bar{H}_{IL} & \bar{H}_{II} & \bar{H}_{IR} \\ 0 & \bar{H}_{RI} & \bar{H}_{RR} \end{pmatrix} \quad (\text{A.9})$$

H_{LL} 、 H_{II} 、 H_{RR} は各領域のハミルトニアン、 H_{LI} 、 H_{RI} は中央領域と電極の相互作用を表すとする。式 (A.7)~式 (A.9) によって電極を周期系として扱うことが可能となり、左右電極から結晶運動量 $\hbar k_L$ 、 $\hbar k_R$ の Bloch 波が流れ込む描像にできる。初等量子力学で与えられるように、透過波（透過確率 t ）と散乱波（散乱確率 r ）による定常状態ができるので、電子密度は

$$n(r) = \sum_{k_L, k_R} \left[|\psi_{k_L}|^2 n_F(\varepsilon_{k_L} - \mu_L) + |\psi_{k_R}|^2 n_F(\varepsilon_{k_R} - \mu_R) \right] \quad (\text{A.10})$$

と与えられる（ μ_L 、 μ_R は電極の化学ポテンシャル）。この境界問題をすべての Bloch 波に対して精度良く解くのは容易ではない。そのため次に説明するグリーン関数法が重要となる。

密度行列とグリーン関数の有用性

密度行列とグリーン関数を導入する有用性は主に二つあり、一つに散乱波を計算しなくてよいこと、二つに自己無撞着性を求める莫大な計算量を複素関数論によって減少させる

ことにある。

電子状態（電子密度）は密度行列によって次のように与えられる¹。

$$n(r) = \text{Tr} \hat{D} \quad (\text{A.11})$$

エネルギーあたりの電子密度を考えると有用な場合があるので、これをスペクトル密度関数 ρ として導入する。 n_F をフェルミ分布関数とすると

$$\hat{\rho}(\varepsilon) = \delta(\varepsilon - \hat{H}) \quad (\text{A.12})$$

$$\hat{D} = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\rho}(\varepsilon) n_F(\varepsilon - \mu) d\varepsilon \quad (\text{A.13})$$

で与えられる。次にグリーン関数

$$\hat{G}(\varepsilon) = \frac{1}{\varepsilon - \hat{H} + i\delta_+}, \quad (\text{A.14})$$

を導入する。複素関数論によって $\text{Im} \frac{1}{x+i\delta_+} = \delta(x)$ なる関係式が証明されているので、グリーン関数とスペクトル密度関数との関係は

$$\hat{\rho}(\varepsilon) = \frac{1}{\pi} \text{Im} \hat{G}(\varepsilon) \quad (\text{A.15})$$

となる。すなわち、グリーン関数を求めることでスペクトル密度、密度行列、電子密度が順に求まる。電子状態は式 (A.6) の基底関数で展開されるため、行列形式にした以下の方程式群が導ける。

$$\bar{G}(\varepsilon) = \frac{1}{\varepsilon - \bar{H} + i\delta_+ \bar{S}} \quad (\text{A.16})$$

$$\bar{\rho}(\varepsilon) = \frac{1}{\pi} \text{Im} \bar{G}(\varepsilon) \quad (\text{A.17})$$

$$\bar{D} = \int_{-\infty}^{\infty} \bar{\rho}(\varepsilon) n_F(\varepsilon - \mu) d\varepsilon \quad (\text{A.18})$$

$$n(r) = \sum_{i,j} \langle i, r | \bar{D}_{ij} | j, r \rangle \quad (\text{A.19})$$

中央領域および電極のグリーン関数を求めることで、式 (A.16) ~ 式 (A.19) の自己無撞着計算が始まる。式 (A.18) が複素積分となり、計算量を減らすことができる。

¹密度行列と電子密度は等価である。

$$\begin{aligned} n(r) &= \sum_{\alpha} \langle \alpha, r | \hat{D} | \alpha, r \rangle = \sum_{\alpha} \int_{-\infty}^{\infty} \langle \alpha, r | \delta(\varepsilon - \hat{H}) | \alpha, r \rangle n_F(\varepsilon - \mu) d\varepsilon \\ &= \sum_{\alpha} \int_{-\infty}^{\infty} \langle \alpha, r | \alpha, r \rangle \delta(\varepsilon - \varepsilon_{\alpha}) n_F(\varepsilon - \mu) d\varepsilon = \sum_{\alpha} \langle \alpha, r | \alpha, r \rangle n_F(\varepsilon - \mu) \end{aligned}$$

自己無撞着ループ

グリーン関数 (A.23) と (A.25) によって式 (A.16) ~ 式 (A.19) の自己無撞着計算が始まるが、ハミルトニアンに含まれる有効ポテンシャルを与える必要がある (式 (A.4) 参照)。有効ポテンシャルは

$$V^{eff}[n] = V^{ion} + V^H[n] + V^{ex}[n] \quad (\text{A.26})$$

によって与えられ、密度 n の関数 (汎関数) となる。第一項はイオンポテンシャル、第二項は平均場 (Hartree ポテンシャル)、第三項は交換相関ポテンシャルをあらわし、それぞれ次の式で定まる。

$$V^{ion}(r) = \sum_{\mu=1}^N \frac{Z_{\mu}e^2}{|r - R_{\mu}|} \quad (\text{A.27})$$

$$\nabla^2 V^H[n](r) = -4\pi n(r) \quad (\text{A.28})$$

$$V^{ex}[n](r) = f(n(r), \nabla n(r), \nabla^2 n(r)) \quad (\text{A.29})$$

交換相関ポテンシャル (電子間の交換相互作用) は電子密度の関数であり局所的に生じるため、局所密度近似 (LDA)、一般化密度勾配近似 (GGA) を適用することができる。GGA は密度勾配を取り入れた近似のため、一般的には LDA よりも精度が良いとされている。更にスピン自由度も考慮した精度の良い近似方法として、局所スピン密度近似 (LSDA)、スピン一般化密度勾配近似 (SGGA) がある。

A.2 非平衡グリーン関数法 (NEGF)

非平衡系の特徴を演算子形式で概観する。系にバイアス電圧が印加されたとき、両電極の化学ポテンシャル μ_L 、 μ_R が異なるため、電子輸送は非平衡となる。左右電極から電子が流れ込むと考えているので、密度行列を左電極と右電極からの寄与に分割する。

$$\hat{\rho}(\varepsilon) = \hat{\rho}^L(\varepsilon) + \hat{\rho}^R(\varepsilon) \quad (\text{A.30})$$

$$\hat{D} = \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \left[\hat{\rho}^L(\varepsilon) n_F(\varepsilon - \mu_L) + \hat{\rho}^R(\varepsilon) n_F(\varepsilon - \mu_R) \right] \quad (\text{A.31})$$

スペクトル密度は以下のように与えられる²。

$$\hat{\rho}^L(\varepsilon) = -\hat{G}(\varepsilon)\text{Im}\hat{\Sigma}^L(\varepsilon)\hat{G}^\dagger(\varepsilon) \quad (\text{A.32})$$

$$\hat{\rho}^R(\varepsilon) = -\hat{G}(\varepsilon)\text{Im}\hat{\Sigma}^R(\varepsilon)\hat{G}^\dagger(\varepsilon) \quad (\text{A.33})$$

エネルギーを考慮するとき、化学ポテンシャル μ_L 、 μ_R の間（非平衡領域）とそれ以外（平衡領域）に分けると考えやすい。 $\mu_L < \mu_R$ ならば、密度行列も

$$\hat{D} = \hat{D}^{eq} + \hat{D}^{neq} \quad (\text{A.34})$$

$$\hat{D}^{eq} = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\rho}(\varepsilon)n_F(\varepsilon - \mu) d\varepsilon \quad (\text{A.35})$$

$$\hat{D}^{neq} = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\rho}^R(\varepsilon)[n_F(\varepsilon - \mu_R) - n_F(\varepsilon - \mu_L)] d\varepsilon \quad (\text{A.36})$$

と平衡部分 \hat{D}^{eq} と非平衡部分 \hat{D}^{neq} に分けることができる。スペクトル密度 (A.33) によって非平衡部分を計算することができる。ただし式 (A.33) はグリーン関数と異なり解析的ではないので、複素平面での積分は意味をなさず、大量計算が必要となる。

透過係数

非平衡グリーン関数論によって透過係数は

$$T(\varepsilon) = \text{Tr}[\text{Im}\hat{\Sigma}^L(\varepsilon)\hat{G}^\dagger(\varepsilon)\hat{\Sigma}^R(\varepsilon)\hat{G}(\varepsilon)] \quad (\text{A.37})$$

と与えられる（透過振幅とは $T_k = \sum_{k'} t_{kk'}^\dagger t_{kk'}$ の関係式がある）ため、Landauer-Büttiker 公式によって電流値を求めることができる。

参考文献

- G. Cuniberti, G. Fagas, K. Richter *Introducing Molecular Electronics* (Springer Verlag, 2005)
- S. Datta: *Electronic Transport in Mesoscopic Systems* (Cambridge Univ. Press., New York, 1996)

²式 (A.23) を変形すると $\hat{G}^\dagger(\varepsilon) = \hat{G}(\varepsilon)[\varepsilon - \hat{H} - \hat{\Sigma}^L(\varepsilon) - \hat{\Sigma}^R(\varepsilon)]\hat{G}^\dagger(\varepsilon)$ となるので $\hat{\rho}(\varepsilon) = \frac{1}{\pi}\text{Im}\hat{G} = \frac{1}{2\pi}[\hat{G} + \hat{G}^\dagger] = -\hat{G}(\varepsilon)\text{Im}[\hat{\Sigma}^L(\varepsilon) + \hat{\Sigma}^R(\varepsilon)]\hat{G}^\dagger(\varepsilon)$