

氏名(本籍)	すずき かずや 鈴木和也(宮城県)		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博甲第6398号		
学位授与年月日	平成25年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	数理物質科学研究科		
学位論文題目	Polyimide-Co ナノハイブリット構造の作製とトンネル磁気抵抗効果の研究		
主査	筑波大学教授	工学博士	喜多英治
副査	筑波大学教授	博士(工学)	末益崇
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	柳原英人
副査	筑波大学教授	博士(工学)	三谷誠司
副査	日本原子力機構先端基礎研究センター グループリーダー	博士(工学)	境誠司

論文の内容の要旨

本研究は、有機物質 - 強磁性金属のハイブリット薄膜を作製し、室温で TMR 効果を示す材料の探索を目的としている。有機材料として芳香族ポリイミドの一種である PMDA-ODA ポリイミド(PI)を対象とした。PI は有機分子の中でもすぐれた耐熱性と化学安定性を持つ絶縁性高分子材料で、分子鎖内で π 共役構造を持たないため電気絶縁性が高く、絶縁材料として活用されている。金属との接合においては電極金属と強い相互作用が生じることが知られている。電極が強磁性金属である場合、TMR 効果に対する寄与が大きいことが期待できる。また、PI を利用する大きな利点は分子の劣化が起こりにくく、熱処理による界面構造の最適化やトップダウン方式の微細加工によるデバイス化が可能になることが考えられる。この研究では、真空蒸着重合法(VDP)を用いてPIマトリクス中にCo微粒子が分散した磁性グラニューラ薄膜と、Co/PI/Co構造を持つ磁気トンネル接合(MTJ)の作製と評価を行うことにより、PIの有機トンネル障壁層としての可能性を検討した。

VDPは真空中で原料モノマーを共蒸着し、高分子薄膜を合成する方法で、溶媒を全く用いずに真空中で高分子膜の作製が可能であり、強磁性金属薄膜との多層膜を真空中で一貫して形成することが可能である。したがって界面は、溶媒と原料モノマーに含まれる不純物や雰囲気による金属表面の酸化といった影響が少なく、高品質な界面構造の形成を期待できる。

本研究では、PI-Coハイブリット構造の作製方法の確立およびTMR効果の観測をおこなった。VDP法を用いてPI-Coグラニューラ薄膜の作製を試みたところ、PIマトリクス中にCo微粒子が均一分散したグラニューラ構造の実現に成功し、室温で2.6%、150Kで3.2%のTMR効果を観測した。また200℃の熱処理により最大4.7%のTMR比を得た。常温でのTMR比は有機物障壁物質では世界トップクラスの大きさである。このTMRにはPIマトリクス中に存在するCo不純物の拡散やPI/Co界面の微細な構造変化、または電子構造の変化が関与していることが示唆された。続いてCo/PI/Co構造を持つMTJを作製した結果、PIとCoは高い平坦性を保ちながら多層膜化できることが明らかになった。このMTJ構造の多層膜を作製し、磁気特性、電気

伝導特性、TMR 効果の測定を行った結果、成膜直後の試料では、上部・下部強磁性電極層間で強磁性的な磁気結合が生じたが、250℃で熱処理を施すことにより、その磁気結合を切ることができた。しかしながら、上部強磁性電極の成膜時にPI層へ拡散するCo不純物の影響が大きいため、室温でTMR効果は観測されなかった。この結果から、PIを用いたMTJを完成させるためには、上部強磁性電極層とPI層との間に拡散防止層の挿入が必要だと結論づけた。

審 査 の 結 果 の 要 旨

この論文では、スピン依存電気伝導の新しい材料と考えられる有機系材料を障壁材料に用いた素子を作製し、磁気トンネル電気伝導を議論するものである。有機スピントロニクス材料は、金属とは異なる性質を持つ伝導電子から構成されるため期待が高まっている。しかしながら、常温ではこれまでに高いトンネル磁気抵抗が報告されていない。この論文は、今まで扱われてこなかったポリマーであるポリイミドに着目し、グラニューラー系としては世界最大級のTMR比を報告した。グラニューラー材料はTMRを観測することに対して材料作製の上では利点を持つが詳細な議論はしにくい。そこで著者は議論の容易なトンネル接合を作製した。界面が平坦な素子が作製できたことは今後のデバイスとしての発展を予期させる。TMRが観測されなかった原因が計測方法に依るものかもしれないため、さらに研究を続ける必要があるものの、グラニューラー素子において、いち早くこの材料の可能性を示した手法は、高く評価できる。また実験手法においても独自に考案された部分が多く含まれており、オリジナリティに富んだ研究と判断できる。

平成 25 年 2 月 21 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。