

## 共蒸着 FeCo-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜の Fe 含有量の影響

宮本光教\*, 久保利哉\*, 須江聡\*\*, 曾根原誠\*\*, 佐藤敏郎\*\*  
(\*シチズンファインデバイス, \*\*信州大学)

Effect of Fe content on FeCo-MgF<sub>2</sub> granular films prepared by co-evaporation.

M. Miyamoto, T. Kubo, S. Sue, M. Sonehara, T. Sato  
(\*Citizen Finedevice Co.,Ltd., \*\*Shinshu University)

### はじめに

SiC/GaN 半導体をはじめとする次世代パワー半導体は、電動車や充電インフラ、電源用途に用いられ、その市場規模は、2030年には2021年比で10倍以上と予測されている<sup>1)</sup>。高効率(省電)を目指す各デバイス開発において、回路シミュレーションと高精度な電圧/電流計測は極めて重要であり<sup>2)</sup>、小型かつ主回路に影響を与えないセンサが求められている。正確な局所電流計測のために、著者らはファラデー効果を利用した光プローブ電流センサの研究を進めている。本センサの感応素子として、第46回日本磁気学会学術講演会で、等方性 Co-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜を提案した<sup>3)</sup>。これにより、低磁界における感度が大幅に向上し実際のセンサにおいて、数 A 以上の電流計測が可能となった。反面、Co ナノ粒子は磁化が小さく、飽和磁界の低下すなわち計測可能な電流(磁界)範囲が制限される結果となった。本研究では、磁界検出感度が高く、飽和磁界が大きなファラデー素子を実現すべく、従来の Co-MgF<sub>2</sub> 組成に Fe を添加した FeCo-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜を作製し、Fe 含有量の影響を調査した。

### 実験方法

Fe と Co を同一のルツボに Fe を 0~50 at.% の範囲で調製し溶解した FeCo 合金と、マトリックス材料 MgF<sub>2</sub> を用いて、共蒸着法によりガラス基板上に FeCo-MgF<sub>2</sub> グラニューラー膜を蒸着した。この時、成膜中のガラス基板温度は 450°C とし、FeCo と MgF<sub>2</sub> のレート比を FeCo : MgF<sub>2</sub> = 1:4 (FeCo; 0.05 nm/s, MgF<sub>2</sub>; 0.2 nm/s) とした。Fe, Co 比を変更した試料の波長 1550 nm における透過率とファラデー回転角から性能指数 FOM [°/(kA・m<sup>-1</sup>・dB)] を<sup>3)</sup>、磁化曲線から飽和磁界 H<sub>s</sub> を求め、Fe 含有量による影響を調べた。また、XPS により各試料の結合状態を確認した。

### 実験結果

Fig. 1 に FeCo ナノ粒子の Fe 含有量を 0~50 at.% まで変化させた場合の性能指数 FOM と飽和磁界 H<sub>s</sub> を示す。光プローブ電流センサへの搭載を考えた場合、FOM は磁界検出感度に相当し、飽和磁界の大きさは磁界検出範囲に相当する。Fe を添加することでナノ粒子の磁気モーメントが増大し、Fe の含有量 20 at.% 程度までは飽和磁界が単調に増加したが、25 at.% では逆に低下した。ここでは示していないが Fe の含有量 50 at.% の磁化曲線では明確なヒステリシスが観察された。これは Fe の含有量 25 at.% 以上で、蒸着真空層内の残留酸素の影響により FeCo ナノ粒子の酸化が顕著になったことが要因と推定される。Fe の含有量 15 at.% までは、FOM がほとんど低下することなく、飽和磁界が増大した。

### 参考文献

- 1) <https://eetimes.itmedia.co.jp/ee/articles/2205/25/news041.html> (As of June 14, 2023).
- 2) X. Yang, Z. Wang, Y. Ding, J. Li, M. Xu., *IET Power Electron.*, **15**, 728-737 (2022).
- 3) M. Miyamoto, T. Kubo, S. Sue, M. Sonehara, T. Sato., *T. Magn. Soc. Jpn.*, **7**, 22-28 (2023).

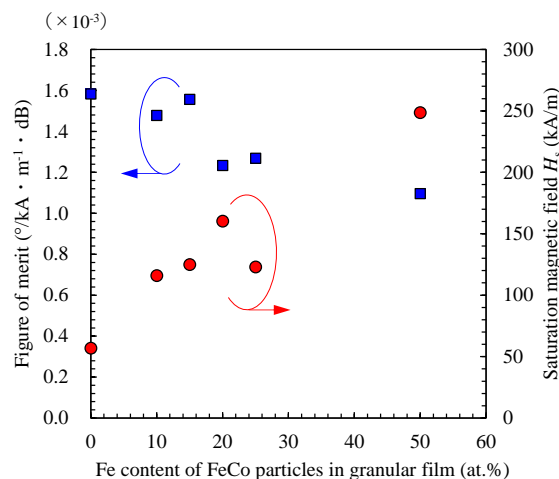


Fig. 1 Fe content in FeCo-particles dependence of figure of merit and saturation magnetic field.

## ナノグラニューラルバルク材料の作製と電磁気特性

小林伸聖、岩佐忠義、池田賢司、直江正幸、荒井賢一  
(公益財団法人 電磁材料研究所)

Fabrication of bulky nanogranular materials and their electromagnetic properties  
Nobukiyo Kobayashi, Tadayoshi Iwasa, Kenji Ikeda, Masayuki Naoe, Ken-Ichi Arai  
(DENJIKEN-Research Institute for Electromagnetic Material)

### はじめに

Fe、Co、および FeCo 合金などの強磁性金属と、窒化物、酸化物、およびフッ化物などのセラミックとの複相構造であるナノグラニューラル材料は、セラミックスから成るマトリックス中にナノメートルサイズの磁性金属粒子がほぼ均一に分散した微細な構造を有し、その膜構造に起因する量子サイズ効果によって、新しい原理に基づくユニークかつ多様な機能性を発揮するため、様々な電磁気デバイスへの応用も期待されている。一方、これらのナノグラニューラル材料は、スパッタ法などによって作製されるため、膜厚がサブミクロンから数ミクロン程度の薄膜材料であり、その形状から応用範囲に制限がある。本研究では、スパッタ法で作製したナノグラニューラル薄膜を出発原料として、厚さが約 1 mm 程度の板状、リング状のバルクサンプルを作製し、高周波透磁率特性および誘電特性を検討した。

### 実験方法

試料は、スパッタ法によってナノグラニューラル薄膜を作製し、その後、基板から剥離することによって粉末状に粉碎し、それを加圧成型することによって作製した。詳細には、まず、タンデム法によって 76 mm φ の FeCo 合金ターゲットを、他方に同じく 76 mm φ の BaF<sub>2</sub> または MgF<sub>2</sub> ターゲットを配置し、同時スパッタしてナノグラニューラル膜を得た。タンデム法とは、両ターゲット直上を基板が交互に通過するように基板ホルダーを回転(公転)させて薄膜材料を得る方法である。公転する基板ホルダーの円周軌道上の広い範囲に成膜することが可能であるため、この軌道に可能な限り基板を並べれば、一回の成膜で多くの薄膜を得ることができる。次にこの薄膜を基板から剥離し、フレック状になったものを粉碎して原料粉末とした。これを所定の形状の金型を用いてプレスすることにより、リングあるいは板状のバルク試料を得た。得られた試料は、真空中で最高 800°C までの任意温度で加熱した。組成は波長分散型 X 線分析装置(WDS)で評価し、結晶構造は X 線回折法(XRD)によって評価した。静磁化特性は試料振動型磁力計(VSM)、複素透磁率の周波数特性および誘電特性の評価にはインピーダンスアナライザ(マテリアルアナライザ)を用い、最大 1 GHz までの周波数範囲で行った。

### 結果

Fig. 1 には今回得られた FeCo-BaF バルクサンプルを示す。成型状態でも、形状の安定した試料の作製が可能である。Fig. 2 には、無加熱の FeCo-MgF リングコアの複素透磁率スペクトルを示す。1 GHz までの測定周波数範囲において、ほぼフラットな実部  $\mu'$  を示しており、バルク状に成型後も、薄膜状態と同様の良好な高周波透磁率特性を示していることが判った。

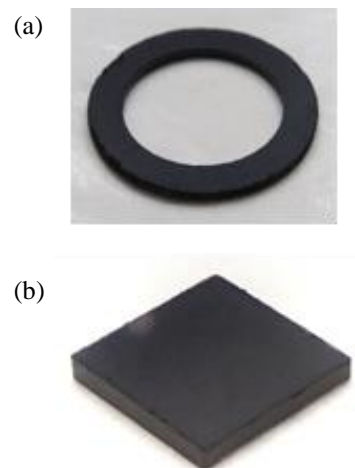


Fig.1 Photographs of FeCo-BaF nanogranular dust cores: (a) ring with outer diameter of 20 mm, inner diameter of 14 mm, and thickness of 1 mm, (b) pellet with projected area of 10 mm<sup>2</sup> and thickness of 1 mm.

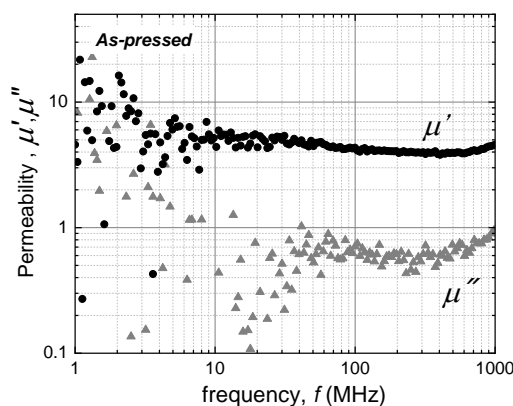


Fig.2 Frequency dependence of complex permeability of FeCo-MgF nanogranular ring core (as-pressed).

# Co-BaF/BaF 積層ナノグラニューラー薄膜の磁気光学効果

池田 賢司, 小林 伸聖, 荒井 賢一

(公益財団法人 電磁材料研究所)

Magneto-optical effect in Co-BaF/BaF multilayer nanogranular films

Kenji Ikeda, Nobukiyo Kobayashi, Ken-Ichi Arai

(Research Institute for Electromagnetic Material, DENJIKEN)

## はじめに

ナノグラニューラー磁性薄膜は、絶縁体等のマトリックス中に磁性金属ナノ粒子を分散させた構造を有しており、多様な物性を示すことで知られている。我々のグループは、フッ化物系ナノグラニューラー膜が光透過性を示し<sup>1)</sup>、大きいファラデー効果を示すことを見出した<sup>2)</sup>。ナノグラニューラー薄膜における大きな磁気光学効果は、マトリックス界面近傍の磁性原子の磁気モーメントがエンハンスされることに起因すると考えられる<sup>2)</sup>。ナノグラニューラー構造は、ナノ磁性粒子に起因する磁気光学効果を示すが、磁性金属の光吸収により光透過性に課題がある。光透過率を高めることが可能となれば、品質係数(Figure of Merit)の改善を通じて光デバイスへの応用を加速することが期待される。本研究では、高い光透過率を有する薄膜の作製を目的として、ナノグラニューラー薄膜とBaFを積層した薄膜を解析した。ここでは、Co-BaF/BaF積層ナノグラニューラー膜の、磁気光学効果および光学特性について報告する。

## 実験方法

積層ナノグラニューラー薄膜の成膜は、BaF<sub>2</sub>焼結ターゲットとCoターゲットを用い、Arガス雰囲気においてシャッター制御することにより各層の厚みの異なる試料を作製した。成膜は400°Cの加熱雰囲気で行い、膜厚約300nmの薄膜を作製した。ファラデー効果の波長依存性は、分光式ファラデー効果測定装置(NEOARK, BH-501F-SVI)を用いて評価した。薄膜の光透過率は、分光光度計(Shimadzu, UV-3150)を用いて測定した。誘電率はエリプソメータ(Horiba, UVISEL-Plus)によって解析した。

## 実験結果

ナノグラニューラー層の厚みを変えて成膜したCo-BaF(x nm)/BaF(1.5nm)積層ナノグラニューラー薄膜(400°C熱処理)のファラデー回転スペクトルをFig.1に示す。ファラデー回転角の絶対値は、通常のナノグラニューラー構造試料が最も大きい値となり、積層薄膜はナノグラニューラー層厚みに応じて回転角が変化している。BaF層の積層により、Coの含有量が増加したことに起因すると考えられる。Fig.2に実効透過率の波長依存性を示す。積層構造膜は透過率が高くなり、ナノグラニューラー層の厚みの減少に応じて透過帯域が広がっていることが確認できる。BaFを積層することにより、ナノグラニューラー層のCo粒子の粒径が変化することが影響していると推測できる。報告では、ファラデー回転角及び実効透過率、誘電率から算出したFoMについても議論する。

## 謝辞

本研究はJST-CREST、JPMJCR19T1の助成を受けたものです。

## Reference

- 1) N. Kobayashi, H. Masumoto, S. Takahashi and S. Maekawa, Sci. Rep., 6, 34227 (2016).
- 2) N. Kobayashi, K. Ikeda, B. Gu, S. Takahashi, H. Masumoto and S. Maekawa, Sci. Rep., 8, 4978 (2018).

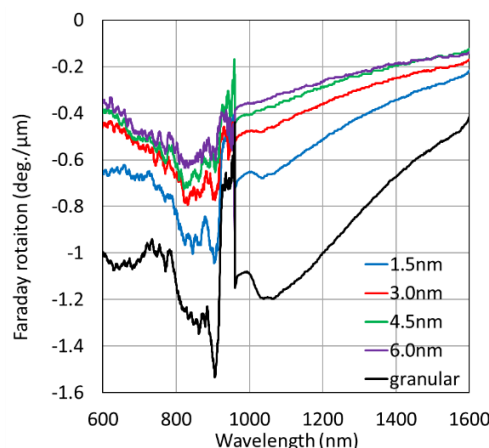


Fig.1 Faraday rotation spectra of Co-BaF/BaF films.

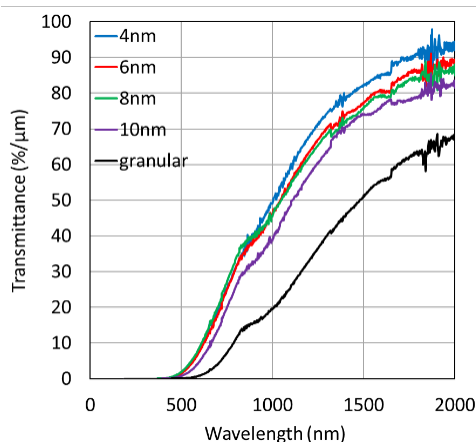


Fig.2 Transmission of Co-BaF/BaF films.

## Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子共凝集体の作製とその交流磁気特性

柳田翔一、山口恭周、小坂奈月、五月女容之、Cathy E. McNamee, 山本真平、齊藤伸、小川智之  
(東北大学院工、三恵技研工業株式会社、信州大繊維学部)

Fabrication of Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> co-aggregated nanoparticles assembly and their AC magnetic property

Shoichi Yanagita<sup>1,2</sup>, Yukichika Yamaguchi<sup>1</sup>, Natsuki Kosaka<sup>1</sup>, Yoshiyuki Sotome<sup>1</sup>, Cathy E. McNamee<sup>3</sup>,  
Shinpei Yamamoto<sup>2</sup>, Shin Saito<sup>1</sup>, and Tomoyuki Ogawa<sup>1</sup>

(Dept, Elec, Eng, Grad, School. Eng, Tohoku Univ.

Advanced Research Department, Development Division, Sankei Giken Kogyo Co., Ltd.

Department of Chemistry and Materials, Faculty of Textile Science and Technology, Shinshu University)

### はじめに

現代社会において多種多様なデバイスや電気機器関連が幅広い周波数帯の電磁波が活用して、漏洩した電磁波が人体や制御系に影響与えることが懸念されている。周波数帯域にあわせた電磁波の遮蔽・吸収の材料・技術は常に必要である。例えば、ハイブリッド車や電気自動車 (EV) では 100 kHz 以下の低周波電磁波に対して鉄板を用いた遮蔽技術以外の有効な技術はまだ確立されてない。本研究では、強磁性ナノ粒子の磁化のブロッキング現象および磁気双極子相互作用に着目し、新しい電磁波吸収材料として磁気モーメントの異なるナノ粒子を混合したナノ粒子共凝集体を作製した。またその交流磁気特性を評価し、磁気損失機構と材料組成との関係を議論した。

### 実験方法

熱分解法を用いて Fe<sup>[1]</sup>と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub><sup>[2]</sup>ナノ粒子をそれぞれ合成した。これらのナノ粒子を Fe : Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> = 9 : 1, 7 : 3, 5 : 5, 3 : 7, 1 : 9 の質量比でトルエン 10 ml に再分散させた。その溶液にエタノール 30ml 加えて、超音波攪拌 (10 min)、その後遠心分離 (5000 rpm, 10 min) を行い、上澄み液を破棄、真空乾燥を行った。得られた黒色粉末に対して、粉末 X 線回折測定 (XRD)、透過型電子顕微鏡 (TEM)、交流率測定を用いて評価した。

### 実験結果

TEM 観察から合成した Fe と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子の粒径はそれぞれ 12.5 nm と 3.4 nm であった。Fe、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、および、それらのナノ粒子共凝集体の磁化曲線から、飽和磁化が混合比率と相関を示すことが確認でき、Fe と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子が巨視的に均一に混合していることが分かった。Fig.1 に複素磁化率の温度依存性を示す。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子では、 $T_{B1} = 21$  K にブロッキング温度を観測した。また Fe ナノ粒子では、 $T_{B2}^{Low} = 150$  K 付近で極大を示すことが確認できた。さらに重量比が 5 : 5 の Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子共凝集体において、 $T_{B2}^{High} = 230$  K に虚部の磁化率  $\chi''$  の極大が観測された。これは Fe や Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子のみ構成された凝集体では見られないものであった。一方  $T_B = (KV/k_B) \ln(\tau/\tau_0)$  の式より、粒径 12.5 nm で、相互作用のない磁氣的に孤立した Fe ナノ粒子では  $T_B^{Fe} = 206$  K と見積られ、測定結果の  $T_{B2}^{High} = 230$  K と近い。よって  $T_{B2}^{High}$  は共凝集体中の磁氣的に孤立した Fe ナノ粒子のブロッキング現象によるものだと考えられる。これは Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子凝集体の内部では Fe ナノ粒子の間に Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子が介在することによって、一部の Fe ナノ粒子が磁氣的に孤立した状態であることを示唆している。また Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> と Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のナノ粒子間の磁気双極子相互作用は無視できるほど小さくなっていると考えられる。さらに  $T_{B2}^{Low}$  が観測されていることから、一部の Fe ナノ粒子同士が局所的に凝集していることが考えられる。

### 参考文献

- 1) Hiroaki Kura, et. al, *J. Phys. Chem. C*, **114**, 5835 (2010).
- 2) Shouheng Sun, et. al, *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 273 (2004).

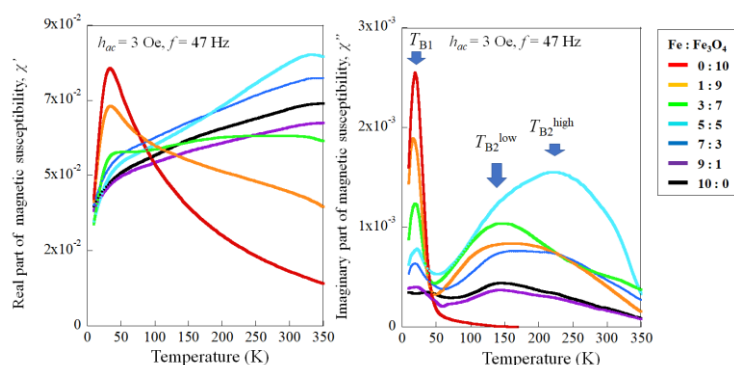


Fig.1 Fe-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ナノ粒子共凝集体の複素磁化率の実部(左)および虚部(右)温度依存性.



## 孤立球殻蛋白質 PfV への Co-Pt ナノ粒子合成

田形 翔<sup>1</sup>, 富永 涼<sup>1</sup>, 東浦 彰史<sup>2</sup>, 中谷 亮一<sup>1,3,4</sup>, 中川 敦史<sup>5</sup>, 白土 優<sup>1,3,4</sup>

(1 大阪大学大学院工学研究科, 2 広島大学医系科学研究科

3 大阪大学 CSRN, 4 大阪大学先導的学際研究機構, 5 大阪大学蛋白質研究所)

Synthesis of Co-Pt nanoparticles in isolated spherical shell protein PfV

Kakeru Tagata<sup>1</sup>, Ryo Tominaga<sup>1</sup>, Akifumi Higashiura<sup>2</sup>,

Ryoichi Nakatani<sup>1,3,4</sup>, Atsushi Nakagawa<sup>5</sup>, and Yu Shiratsuchi<sup>1,3,4</sup>

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 Grad. Sch. Med., Hiroshima Univ. 3 CSRN, Osaka Univ. 4 OTRI, Osaka Univ.,

5. Institute for Protein Research, Osaka Univ.)

**はじめに** 近年, 磁性ナノ粒子は医療分野への応用が期待され, 磁気分離や温熱療法への応用のため細胞や蛋白質との結合機能を有する機能性磁気ナノ粒子の開発が進められている. 我々は, 球殻構造をもつ蛋白質 *Pyrococcus furiosus* virus-like particle (PfV) と磁性ナノ粒子を融合した新規機能性ナノ粒子の研究を進めている. PfV は, 超好熱古細菌由来の耐熱性に加えて, 遺伝子操作により球殻構造の内外のアミノ基を制御することで, 外来蛋白質・ウイルスとの結合機能, 金属との結合機能を付与できるなどの特徴を持つ. 我々は, これまでに mm 超サイズの PfV 結晶を作製し, PfV 結晶内部への磁性ナノ粒子の合成, 超常磁性の発現などを報告してきた [1, 2]. 一方, 上記の目的のためには, 磁性ナノ粒子を合成した PfV の孤立化が必要となる. 本研究では, 結晶化前の孤立 PfV に Co-Pt ナノ粒子を合成することを試み, また, 合成した Co-Pt ナノ粒子の磁気特性について検討した結果を報告する.

**実験方法** PfV の作製方法については, 我々の既報 [1] を参照されたい. 液中の PfV への金属合成は (1) 目的となる Co-Pt のイオン溶液を調製, PfV にソーキング, (2) 限外ろ過膜による Buffer 交換により余分な金属イオンの除去, (3) 還元剤を投与し PfV 内部の金属イオンを還元, の手順で行った. PfV の粒径の評価には, 動的光散乱法 (DLS) を用いた. PfV への Co-Pt ナノ粒子の合成に際して, ソーキングを行う Co-Pt の組成比を 1:3 で固定し, 総量を変化させた. 得られた PfV について, VSM を用いて室温での磁化曲線を測定した.

**実験結果** 図 1 に, PfV にソーキングする磁性イオン量を変化させた試料に対する室温での磁化曲線を示す.  $\text{Co}^{2+} + \text{PtCl}_4^{2-}$  の総ソーキング量は, PfV 量 (mol) の 1000 倍, 10000 倍とした. 還元後の試料において, 非線形な磁化曲線が得られ, Co-Pt の合成量を増加させることで飽和磁化も高くなることが確認出来た. この結果から PfV 中に Co-Pt ナノ粒子が形成していることが示唆される.

[1] M. Taniguchi, K. Tagata, Y. Shiratsuchi *et al.*, J. Phys. Chem. Solid, 169, 110840 (2022). [2] K. Tagata, Y. Shiratsuchi *et al.*, IEEE Trans. Magn. Accepted.

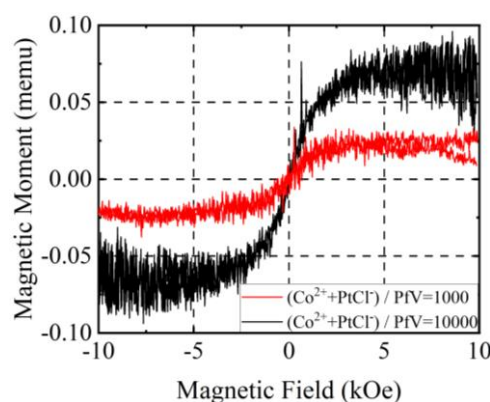


Fig.1 PfV にソーキングする磁性イオン量を変化させた試料の室温での磁化曲線.

# LbL 法アシスト複合めっきによる (エポキシ被覆 Fe-B 微粒子) / Epoxy 複合膜の作製

増本千裕<sup>1</sup>, 西井丈流<sup>2</sup>, 東啓士郎<sup>2</sup>, 武藤浩行<sup>3</sup>, 遠藤恭<sup>1</sup>, 藤田直幸<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>東北大学, <sup>2</sup>奈良工業高等専門学校, <sup>3</sup>豊橋技術科学大学)

Preparation of epoxy-coated Fe-B /Epoxy composite film by LbL method assisted composite plating.  
Chihiro Masumoto<sup>1</sup>, Takeru Nishii<sup>2</sup>, Seishirou Higashi<sup>2</sup>, Hiroyuki Muto<sup>3</sup>, Yasushi Endo<sup>1</sup>, Fujita Naoyuki<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Tohoku University, <sup>2</sup>NIT, Nara College, <sup>3</sup>Toyohashi University of Technology)

## 1. 緒言

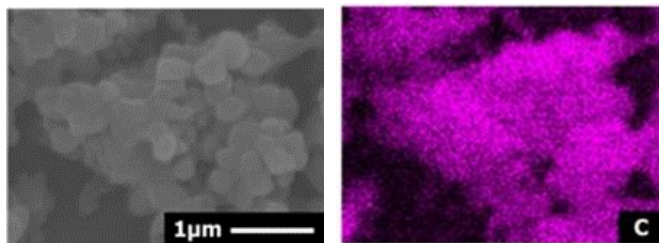
我々の研究グループでは、高周波帯域で電磁波吸収特性を示す金属-絶縁物複合膜を、樹脂の電析と同時に磁性微粒子を析出させる LbL 法アシスト複合めっきという手法で作製している。藤原<sup>1)</sup>は Fe-B 微粒子に LbL 処理を施すことで、エタノール中では Fe-B の分散状態が向上することを示した。しかし、純水を用いた Fe-B/Epoxy 複合膜の反応液中では、Fe-B が酸化し、飽和磁化が減少すること、作製した複合膜は、Fe-B 微粒子とエポキシが不均一に析出しており、表面の凹凸が大きくなるという問題があった。そこで、本研究では、Fe-B 微粒子を無電解めっきによりエポキシで被覆した後に、成膜することで、Fe-B 微粒子の酸化を防ぎ、優れた磁気特性を示す Fe-B/Epoxy 複合膜の作製を目指した。

## 2. 実験方法

福井らの無電解エポキシ成膜の方法<sup>2)</sup>の方法を用いて、水溶性エポキシ(日本ペイント, N12)を含む反応液に Pd 核が吸着した Fe-B 微粒子を浸漬し、エポキシを被覆させた。Pd 核の吸着では、まず、正に帯電している Fe-B 微粒子を高分子電解質溶液(PAA=1wt.%)に浸漬し、負に帯電させた。その後、PdCl<sub>2</sub> 溶液(10mg/L)に浸漬させた。これらの工程はエタノールを溶媒とし、Fe-B の酸化を防いだ。エポキシ反応液に Fe-B 微粒子を 30 分間浸漬させエポキシを被覆した後、純水に浸漬させ、飽和磁化の変化を評価した。作製した (Fe-B)-Epoxy 微粒子 1.0g を用いて、藤原<sup>1)</sup>の条件で複合膜を作製した。

## 3. 結果および考察

Fig. 1 の SEM-EDS 像より、無電解めっき後の Fe-B 微粒子全体からエポキシに対応する炭素が検出されており、エポキシが微粒子表面全体を被覆できていることがわかる。この微粒子を純水に 3 時間浸漬し続けた時の飽和磁化は、浸漬前の約 95%である 138emu/g を保った。Fe-B 微粒子にエポキシを被覆することで、水溶液中での酸化を抑制できたと考えられる。Fig. 2 に示す共焦点顕微鏡を用いて観察した複合膜の表面状態より、エポキシを被覆した Fe-B 微粒子を成膜すると表面の平滑性が大幅に向上したことがわかる。LbL 法アシスト複合めっきでは、アルミナ微粒子などの絶縁物をめっきする場合、金属微粒子に比べ平滑な膜が成膜できる。そのため、エポキシ被覆により Fe-B の表面に絶縁層ができ、均一性が向上したと考えられる。しかしながら、膜の比透磁率は、 $\mu_r=1.3$  と小さな値にとどまった。これは、複合膜中の微粒子含有量が約 30.6%と低いことが原因であると考えられる。今後、反応液中の微粒子添加量を増加させ、含有量を大幅に向上させる必要がある。



(a) SEM 像 (b) 炭素組成像

図 1 (Fe-B)-Epoxy の SEM-EDS 像

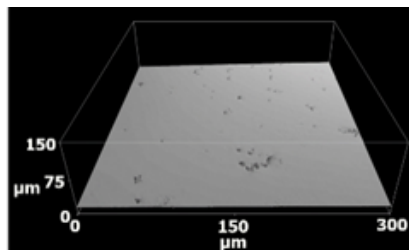


図 2 Fe-B/Epoxy 複合膜の表面状態

## 参考文献

- 1) 藤原康太 他：表面技術協会 第 22 回関西表面技術フォーラム要旨集, 2020-12-04
- 2) 福井斉 他：電気学会論文誌C, 131 巻 11 号, pp. 1843-1847 (2011)

# 強磁性体中のスピホール効果による自己誘起スピン軌道トルク

青木基<sup>1,2</sup>, 重松英<sup>1</sup>, 大島諒<sup>1,2</sup>, 新庄輝也<sup>1,2</sup>, 白石誠司<sup>1,2</sup>, 安藤裕一郎<sup>1,2,3</sup>

(<sup>1</sup>京都大学大学院, <sup>2</sup>京都大学 CSRN, <sup>3</sup>PRESTO, JST)

Self-induced spin-orbit torque induced by the spin Hall effect in ferromagnets

Motomi Aoki<sup>1,2</sup>, Ei Shigematsu<sup>1</sup>, Ryo Ohshima<sup>1,2</sup>, Teruya Shinjo<sup>1,2</sup>,

Masashi Shiraishi<sup>1,2</sup>, and Yuichito Ando<sup>1,2,3</sup>

(<sup>1</sup>Kyoto Univ., <sup>2</sup>CSRN Kyoto Univ., <sup>3</sup>PRESTO, JST)

## 背景

近年のスピン軌道トルク(SOT)に関する研究では、ほぼ全てが非磁性体(NM)/強磁性体(FM)2層構造において、図1(a)に示すような、NM中の電流-スピン流変換現象によりFMへと注入されるスピン流がFMの磁化に与えるトルクを対象としている。一方FM中のスピホール効果を考慮すれば、図1(b)に示すように、FMでスピホール効果(SHE)などにより生成されたスピン流がNMへ流出し、FM内に一方向のスピン流が生成されて、FM自身の磁化に自己誘起スピン軌道トルク(SI-SOT)<sup>1)</sup>が働くと考えられている。重金属に匹敵するスピホール角がCoやNiなどの一般的なFMにも報告されていることを考慮すると、SI-SOTはほぼ全てのNM/FM2層構造でのSOT測定に影響すると予想されるが、SI-SOTに関する実験的研究は少ない。

## 目的・方法

以上を踏まえ、本研究ではNM/FM2層構造におけるSI-SOTの観測を目的とし、Ta/Co2層構造を対象に研究を行った<sup>2)</sup>。本構造においては、TaのSHEによるSOTとCoのSHEによるSI-SOTが逆符号であるため、Co膜厚の増加に従いSI-SOTが増大し、Ta由来のSOTを打ち消すことが予想される。本効果を確認するため、異なるCo膜厚のデバイスに対し、スピントルク強磁性共鳴法<sup>3)</sup>を用いてSOT効率 $\zeta_{\text{FMR}}$ を測定した。

## 結果

図2は測定された $\zeta_{\text{FMR}}$ のCo膜厚 $t_{\text{FM}}$ 依存性である。薄膜領域でのフィールドライクトルクに起因する符号反転に加え、 $t_{\text{FM}} > 8.5$  nmにおいても $\zeta_{\text{FMR}}$ の符号反転が見られた。これはTaのスピホール効果による通常のSOTとCoのスピホール効果によるSI-SOTがCoの膜厚に対して異なる依存性を示し、かつTaとCoではスピホール角の符号が逆であることに起因しており、スピン拡散方程式から予想される信号と一致した。さらにスピン拡散方程式を用いた計算で、非磁性体が高抵抗な場合はSI-SOTの影響が顕著になり、従来の解析手法ではスピホール角を大幅に過大評価する可能性があることを示した。

## 参考文献

- 1) K.-W. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **125**, 207205 (2020).
- 2) M. Aoki *et al.*, Phys. Rev. B **106**, 174418 (2022)
- 3) L. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett **106**, 036601 (2011)

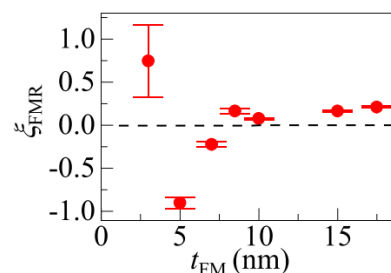
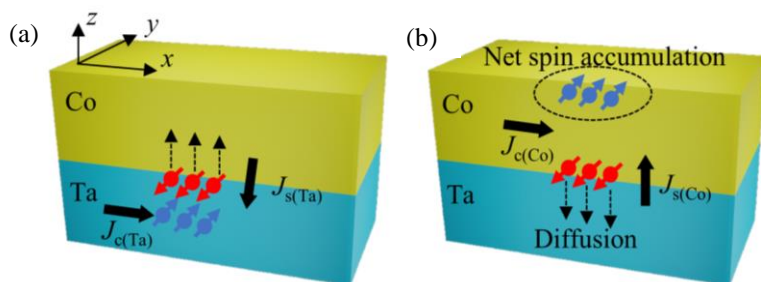


Fig. 1 (a) Injection and (b) absorption of spin current via the SHE in Ta and Co, respectively.  $J_c$  and  $J_s$  are the electric and spin current, respectively.

Fig. 2 Torque efficiency as a function of the thickness of the Co layer

# Ta 層上に積層した Tb/Gd/FeCo 多層膜における スピン軌道トルク磁化反転

藤田雄大, 大島大輝, 高橋茂樹\*, 平山義幸\*, 加藤剛志  
(名古屋大学, \*日本サムスン)

Spin Orbit Torque Magnetization Switching of Tb/Gd/FeCo Multilayers deposited on Ta layer

Y. Fujita, D. Oshima, S. Takahashi\*, Y. Hirayama\*, T. Kato

(Nagoya Univ, \*Samsung Japan Corporation)

## はじめに

スピン軌道トルク(SOT)磁化反転は、現在 MRAM に用いられているスピン移行トルク(STT)磁化反転と比較して、高速かつエネルギー効率が低いことから、次世代の MRAM 書き込み方式として期待されている。また、SOT 磁化反転では、書き込みと読み出しの電流経路が異なるため、読み出し時の誤書き込みが大幅に低減する。我々はこれまで Ta 層上に積層した GdFeCo 合金、Gd/FeCo 多層膜の SOT を調べ、SOT 有効磁界が磁化補償組成に近づくほど増加することなどを報告してきた[1]。また近年、膜厚方向に組成勾配をつけた TbCo 合金において、空間反転対称性の破れに起因する Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用(DMI)によって無磁場での SOT 磁化反転が報告されている[2]。本研究では、膜厚方向の構造非対称性を人工的に制御できる構造として、Gd/FeCo/Tb 多層膜に注目し、Ta 上に積層した Gd/FeCo/Tb 多層膜の SOT 磁化反転の Gd/Tb 層厚依存性を測定した。

## 実験方法

試料作製には RF マグネトロンスパッタ装置を用いて成膜した。サンプルとして熱酸化シリコン基板上に Ta(20)/[FeCo(0.5)/Gd(0.5- $t_{Tb}$ )/Tb( $t_{Tb}$ )]<sub>5</sub>/SiN(5)を積層した(数字の単位は nm)。Tb 膜厚  $t_{Tb}$  は 0.08 nm から 0.14 nm と変化させた。サンプルは微細加工前に交番磁界勾配型磁力計(AGM)によって飽和磁化や異方性磁界を測定した。微細加工の際にはホールクロス幅が 3  $\mu\text{m}$  になるように加工し、異常ホール効果(AHE), SOT 磁化反転の測定を行った。SOT 磁化反転は膜面内磁界  $H_{\text{ext}}$  を印加し、パルス幅 1 ms のパルス電流を印加後の AHE を測定することで調べた。

## 実験結果

Fig. 1 (a)は Tb/Gd/FeCo 多層膜の有効磁気異方性  $K_{\text{eff}}$  の Tb 層厚  $t_{Tb}$  依存性を示しており、 $K_{\text{eff}}$  は  $t_{Tb}$  の増加に伴い、増加している。なお、 $K_{\text{eff}}$  は磁化と異方性磁界の積より算出した。Fig. 1 (b)は Ta 層上の Tb/Gd/FeCo 多層膜の SOT 磁化反転電流密度  $J_{\text{sw}}$  の  $H_{\text{ext}}$  依存性を示している。全ての試料で  $J_{\text{sw}}$  は  $H_{\text{ext}}$  の増加とともに低下している。また、 $H_{\text{ext}} = 0$  へ外挿した  $J_{\text{sw}}$  は  $t_{Tb}$  の増加とともに減少しており、 $K_{\text{eff}}$  が増加するにもかかわらず、 $J_{\text{sw}}$  が減少するという結果が得られた。

## 参考文献

- 1) S. Yanai *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **62**, SB1004 (2023).
- 2) Z. Zheng *et al.* Nat. Commun. **12**, 4555 (2021).

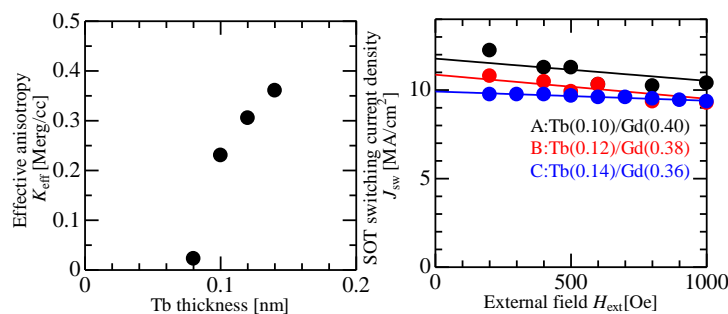


Fig. 1 (a) Tb layer thickness  $t_{Tb}$  dependence of effective magnetic anisotropy  $K_{\text{eff}}$  of Tb/Gd/FeCo MLs. (b) In-plane external field  $H_{\text{ext}}$  dependence of SOT switching current  $J_{\text{sw}}$  of Ta/[Tb/Gd/FeCo] MLs with various Tb layer thickness.



# 単結晶 Dy の強磁性-反強磁性相転移を用いたスピンプンピングの変調

慶大<sup>A</sup>, 慶大スピノ研<sup>B</sup>

山野井 一人<sup>A</sup>, 能崎 幸雄<sup>A, B</sup>

A modulation of spin pumping due to ferromagnetic to antiferromagnetic phase transition  
in single crystalline Dy film

<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center

K. Yamanoi<sup>A</sup>, and Y. Nozaki<sup>A, B</sup>

## はじめに

磁化歳差運動を利用してスピンプンピング効果は、様々な材料へのスピンプン注入を可能にするため、スピンプン流が駆動するスピントロニクスデバイスの研究・開発において重要な物理現象である。スピンプンピングによるスピンプン流の生成効率は、スピンプン注入層とスピンプン吸収層（スピンスINK層）の界面のミキシングコンダクタンスとそれぞれのスピンプン輸送特性に依存する。最近、磁気相転移材料をスピンスINK層として使用することで、スピンプンピングによるスピンプン流生成効率を外場により制御した結果が報告された<sup>1)</sup>。本研究では、より大きな磁気相転移由来のスピンプンピング変調を実現するため、強磁性-反強磁性-常磁性相転移する単結晶 Dy 薄膜と強磁性 NiFe を接合した2層膜を作製し、有効ギルバートダンピング定数の温度依存性を測定することにより、磁気相転移に伴う単結晶 Dy へのスピンプン注入効率の変化を調べた。

## 実験方法および結果

マグネトロンスパッタリング法により、熱酸化 Si 基板上に Ta(3 nm)/Dy(50 nm)/NiFe(20 nm)/SiO<sub>2</sub>(30 nm)を成膜した。Dy 層の成膜時のみ基板を 350 度に加熱し、他は室温成膜した。XRD 測定により、Dy 層が単結晶成長していることを確かめた。その後、イオンミリング装置とレーザー描画装置を用いて多層膜を細線形状に加工し、その上に Ti/Au マイクロ波導波路を作製した。図 1 に単結晶 Dy 薄膜の磁気特性の温度依存性を示す。これにより、作製した単結晶 Dy 層で強磁性-反強磁性-常磁性相転移が実現することが分かった。次に、任意の外部磁場下でベクトルネットワークアナライザを用いて導波路の  $S_{11}$  パラメータの周波数依存性を測定し、NiFe 層の強磁性共鳴 (FMR) スペクトルの温度変化を調べた。FMR スペクトルの線幅の周波数依存性から有効ダンピングの温度依存性を評価した。NiFe/Dy の有効ダンピングから、NiFe 単層のダンピングを差し引くことで、単結晶 Dy 薄膜へのスピンプンピングによる有効ダンピングの増大  $\Delta\alpha$  を算出した (図 2)。単結晶 Dy のスピンプンピングは、常磁性-反強磁性相転移点では極大を示した一方で、反強磁性-強磁性相転移点では大きく増加した。前者は、相転移点近傍において熱スピンプン揺らぎによるスピンプンピングの増大に起因する。また強磁性 Dy に対して反強磁性 Dy ではスピンプンピングが大幅に低下し、常磁性 Dy と同程度であることも分かった。これは、先行研究で指摘されている界面ミキシングコンダクタンス効果によるスピンプンピング変調<sup>1)</sup>以外にも、磁気相転移によってスピンプン拡散長が大きく変化することによる変調を示唆している<sup>2)</sup>。

## 参考文献

- 1) B. Khodadad, *et al.* Phys. Rev. B (2017)    2) K. Yamanoi, *et al.* APEX (2023).

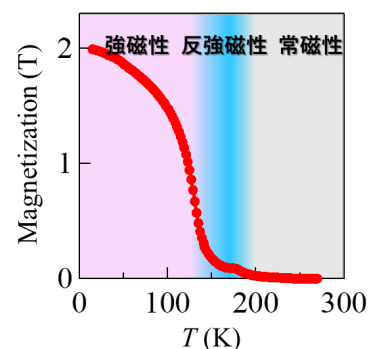


図 1. Dy 薄膜の磁化の温度依存性。

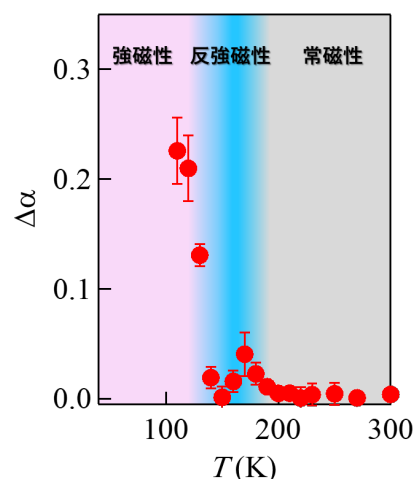


図 2. 単結晶 Dy の  $\Delta\alpha$  の温度依存性。

# MnGa の成長とスピン軌道トルク磁化反転に対する 極薄 Fe 中間層の影響

小川峰登、原拓也、長谷部俊、山ノ内路彦、植村哲也  
(北海道大)

Effect of an ultrathin Fe interlayer on the growth of MnGa and spin-orbit-torque  
induced magnetization switching

M. Ogawa, T. Hara, S. Hasebe, M. Yamanouchi, T. Uemura  
(Hokkaido Univ.)

## はじめに

垂直磁化膜をスピン源とした半導体へのスピン注入は、スピントランジスタやスピン LED などのスピンの機能を利用したデバイスの実現にとって重要な技術である。MnGa は垂直磁気異方性が比較的大きく、また、スピン偏極率も高いことから、垂直スピン源として有望であるが、これまで MnGa から GaAs へのスピン注入効率は 2 K で数%と非常に低い[1]。この原因の一つとして、MnGa は結晶化するために高温成長や熱処理を必要とし、それによって生じる MnGa/GaAs 界面の反応がスピン注入を妨げることが考えられる。本研究では MnGa と GaAs の間に Fe 中間層を挿入することで、垂直磁化特性を有する MnGa が室温で形成できること、さらに、スピン軌道トルク(SOT)磁化反転の効率が增大することを実証した[2]ので報告する。

## 実験方法

GaAs 基板の上に厚さ 250 nm の undoped GaAs バッファ層を MBE にて成長後、MnGa (2 nm)/Fe (0.6 nm) 二層膜を室温で成長した。最後に SOT のスピン源として膜厚 6 nm の Ta 層を成膜した。Fe 中間層の影響を明らかにするため、Fe 中間層無しのサンプルも同時に作製した。そして、積層膜を幅 5  $\mu\text{m}$  のホールバー構造に加工し、磁気特性および SOT 磁化反転の特性を評価した。

## 実験結果

図 1 に GaAs [110] 方向に沿った MnGa の RHEED パターンを示す。同図(a)は Fe 層あり、同図(b)は Fe 層無しのときのパターンである。Fe 層上の MnGa では室温成長でも明瞭なストリークパターンが観察され、MnGa がアニールなしにエピタキシャル成長したことが示された。一方、GaAs 上に直接成膜した MnGa は、成膜直後ではアモルファス状態であり、結晶化のためには 200°C 以上のアニールが必要であった。このことから、極薄の Fe 層が MnGa の室温成長を可能にする下地層として有効であることがわかった。また、磁化測定から、MnGa/Fe 二層膜は MnGa 単層膜と同様に室温で垂直磁化を有していることが分かった(not shown)。

図 2 に MnGa/Fe 二層膜における、パルス電流  $I_P$  に対する横抵抗  $R_{yx}$  の変化を示す。MnGa/Fe 二層膜において、明瞭な SOT 磁化反転が観察された。一方、MnGa 単層膜においては明瞭な磁化反転は観察されなかった(not shown)。講演では MnGa/Fe 二層膜と MnGa 単層膜のより詳細な磁気特性および、SOT 特性について報告する。

## 参考文献

- 1) C. Adelman *et al.*, Appl. Phys. Lett. **89**, 112511 (2006).
- 2) M. Ogawa *et al.*, Appl. Phys. Exp. **16**, 063002 (2023).

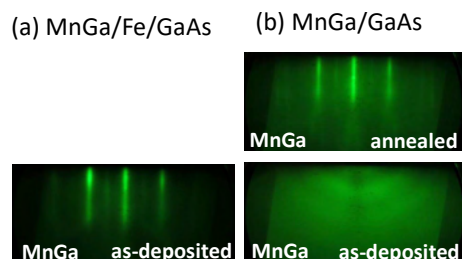


図 1. GaAs 基板の [110] 方向に沿った、(a)MnGa/Fe/GaAs, (b)MnGa/GaAs サンプルにおける、MnGa の RHEED パターン。

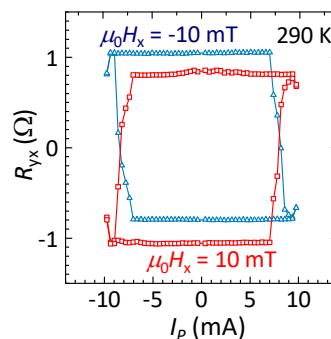


図 2. 290 K における、幅 100  $\mu\text{s}$  の  $I_P$  に対する  $R_{yx}$  の変化。 $\mu_0 H_x$  は  $I_P$  に平行な方向に印加した面内の外部磁場である。

# 垂直磁化 Co/Pd メモリ層を用いた CPP-GMR 膜における STT アシスト SOT 磁化反転

潘 達, 曹 哲, 大島大輝, 加藤剛志  
(名古屋大)

Spin transfer torque assisted spin orbit torque switching of CPP-GMR with  
perpendicularly magnetized Co/Pd memory layer

D. Pan, Z. Cao, D. Oshima, T. Kato  
(Nagoya Univ.)

## はじめに

Co/Pd 多層膜は大きな界面垂直磁気異方性を有するだけでなく、層厚比を変えることで実効異方性を容易に制御できることから、大容量磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)のメモリ層として注目されている。MRAM 書き込み技術として、高速かつ高効率なスピン軌道トルク(SOT)磁化反転が注目されているが、SOT-MRAM は3端子素子となるため、セルサイズが大きく、高密度化に課題がある。これを解決するために、メモリとなる磁性体柱に磁壁を導入し、スピン移行トルク(STT)で磁壁を移動させる新たな3次元多値磁気メモリ素子が提案されている[1]。本研究では、この3次元磁気メモリの書き込み方式として、SOTとスピン移行トルク(STT)の同時印加による垂直磁化 Co/Pd メモリ層の磁化反転[2]を調べた。

## 実験方法

500 nm 熱酸化膜付きシリコン基板に、SiN(5)/Pt(35)/Cu(0.2)/Co(0.4)/Pd(0.2)/Co(0.4)/Cu(3)/Co(0.6)/[Pt(1.0)/Co(0.6)]<sub>2</sub>/Ru(0.85)/[Co(0.6)/Pt(1.0)]<sub>4</sub>/Ru(5.0)を超高真空 RF スパッタリング法により成膜した。積層膜はフォトリソグラフィ、電子線リソグラフィ、Ar<sup>+</sup>エッチングにより電流を膜法線方向に流す巨大磁気抵抗(GMR)素子に加工した。下部電極の幅は4 μmである。STTおよびSOT磁化反転はそれぞれ、GMR素子およびPt下部電極にパルス電流を印加することで確認した。STTアシストSOT磁化反転はGMR素子及びPt下部電極にパルス電流を同時に印加した後、GMR素子抵抗を測定することで確認した。但し、SOTおよびSTTのパルス幅はそれぞれ、10 μs, 12 μsであり、SOT電流はSTT電流を注入した1 μs後に注入した。

## 実験結果

Fig. 1に3 kOeの面内補助磁場を印加した際のSOT磁化反転を示している。積層フェリ固定層からの浮遊磁場が十分小さいため、平行、反平行遷移で同程度の臨界電流でSOT磁化反転していることが確認された。Fig. 2にSOT磁化反転電流密度 $J_{SOT}$ のSTTアシスト電流密度 $J_{STT}$ 依存性を示す。面内磁場は図中に示している。 $J_{STT}$ の増加により、 $J_{SOT}$ は大幅に減少することが確認された。Fig. 2の傾き $\Delta J_{SOT}/\Delta J_{STT}$ で定義されるアシスト効率の面内磁場依存性をFig. 3に示す。アシスト効率は面内磁場の大きさに依存し、面内磁界が小さいほど高いアシスト効率を得られることが分かった。

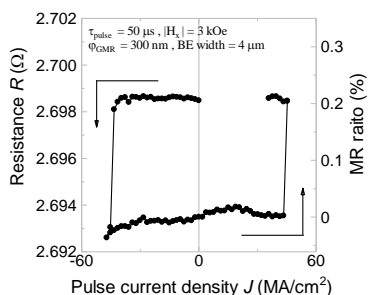


Fig. 1 SOT switching loop of GMR pillar under STT assisting current.

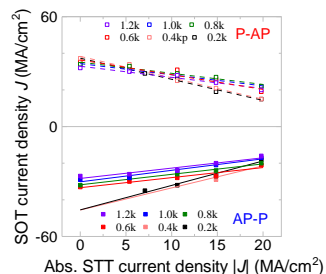


Fig. 2 STT assisted SOT switching current density under different in-plane magnetic fields.

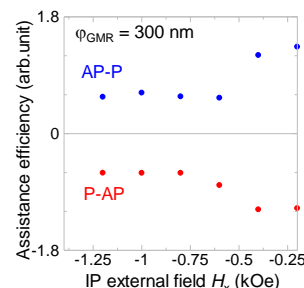


Fig. 3 STT assist efficiency as a function of in-plane magnetic field.

## 参考文献

- [1] Y. M. Hung *et al.*, J. Magn. Soc. Jpn. **45**, 6 (2021).
- [2] D. Pan *et al.*, IEEE Trans. Magn. (2023), DOI: 10.1109/tmag.2023.3284862.

# Thermal spin-transfer torque assisted all-optical switching in L1<sub>0</sub>-ordered FePt thin films

Jian Wang<sup>1\*</sup>, Zhenchao Wen<sup>2</sup>, Yuta Sasaki<sup>2</sup>, Yukiko K. Takahashi<sup>2</sup>, Ken-ichi Uchida<sup>2</sup>  
Kenta Takagi<sup>1</sup> & Kimihiro Ozaki<sup>1</sup>  
<sup>1</sup> AIST. <sup>2</sup> NIMS.

FePt nanogranular film-based heat assisted magnetic recording (HAMR) is a promising technology which uses temporary near-field laser heating of the hard magnetic recording media during writing to increase the storage density of hard disk drives [1]. Besides the heating effect, the circularly polarized laser can also induce helicity dependent magnetization reversal in magnetic materials, so called all-optical switching (AOS) [2]. With its interesting physical phenomenon and potential practical application, the integration of AOS into HAMR technique *i.e.*, realizing laser-induced deterministic magnetization switching in magnetically hard FePt nanogranular film is attracting increasing interest. However, to date, deterministic (100%) AOS has only been reported in soft magnetic materials (*e.g.*, GdFeCo or [Co/Pt]<sub>n</sub> films [3]).

In this work, we propose and demonstrate a thermal spin-transfer torque (STT) assisted AOS in FePt nanogranular films deposited on ferrimagnetic yttrium iron garnet (YIG) substrates. As the conceptual diagram illustrated in **Fig. 1**, a thermal gradient ( $\nabla T$ ) is created in the YIG/FePt bilayer film when expose the sample with circular polarized laser ( $\sigma^+/\sigma^-$ ). Consequently, a pure spin current was generated and injected from YIG substrate into the FePt film via the spin Seebeck effect (SSE). It then exerts a spin-transfer torque on the magnetic moment of FePt film and assists the magnetization reversal associated with AOS.

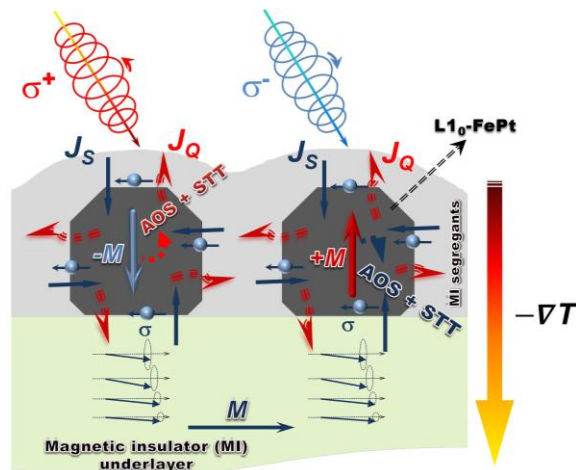
Experimentally, FePt-C nanogranular films were deposited on both YIG and GGG substrates by magnetron sputtering. The YIG and GGG substrates were selected here due to their close match in lattice constants, but distinct spin Seebeck coefficient which enable valid comparison and extract the potential contribution from thermal-STT on the AOS in FePt films. Furthermore, both the laser helicity and laser fluence dependent on AOS in all the samples were investigated to prove the proposed approach. The results from magneto-optical measurement indicated an enhanced helicity-dependent AOS in YIG/FePt-C bilayer sample than GGG/FePt-C bilayer film. Furthermore, the AOS effect presents a visible positive colinear relationship with the laser fluence in YIG/FePt-C bilayer film while it is almost unchanged in GGG/FePt-C bilayer sample. The potential contribution from the thermal-STT on the AOS in FePt nanogranular films will be discussed in detailed with experimental results in the presentation.

## Acknowledgement

This work was supported by Early-Career Scientists (21K14521) from JSPS KAKENHI, Japan.

## Reference

- [1] D. Weller, G. Parker, O. Mosendz, A. Lyberatos, D. Mitin, N. Y. Safonova, and M. Albrecht, *J. Vac. Sci. Technol. B* 34, 060801 (2016).
- [2] Y. K. Takahashi, Y. K. Takahashi, R. Medapalli, S. Kasai, J. Wang, K. Ishioka, *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* 6, 054004 (2016).
- [3] S Mangin, M Gottwald, C-H Lambert, D Steil, V Uhlir, L Pang, M Hehn, S Alebrand, M Cinchetti, *et al.*, *Nat. Mater.* 13, 286 (2014).



**Fig. 1.** Conceptual diagram of the laser induced thermal spin-transfer torque for assisting magnetization reversal in FePt nanogranular media.



## ナノ構造磁性体における創発電磁応答の周波数特性

家田淳一、荒木康史、山根結太\*  
(原子力機構、\*東北大)

Frequency characteristics of emergent electromagnetic response in magnetic nanostructures

J. Ieda, Y. Araki, and Y. Yamane  
(JAEA, \*Tohoku Univ.)

$s$ - $d$  交換結合は、強磁性導体および強磁性/非磁性界面等ナノ構造磁性体において、伝導電子スピンの磁化の間で角運動量とエネルギーの移行をもたらす、各々スピン移行トルク (STT) とスピン起電力 (SMF) といった創発電磁応答を導く。近年この STT と SMF を組み合わせることで、らせん磁性体による「創発インダクタ (EI)」が理論提案された<sup>1)</sup>。らせん磁性体に電流を流すと、伝導電子スピンの STT を介して、らせん磁化構造に磁気エネルギーが蓄えられる。さらに、らせん磁化構造のダイナミクスによって SMF が生じ、逆電圧を入力電流が感じることでインダクタンスが得られる。EI の顕著な特徴は、インダクタンスが電流の流れる素子断面積に反比例する点である。これは、コイルの断面積に比例する従来のインダクタンスと本質的に異なり、インダクタの微細化に革新をもたらす可能性を有する。これまでにらせん磁性体  $Gd_3Ru_4Al_{12}$  による低温 ( $T < 20$  K) での EI 原理の実証<sup>2)</sup>、らせん面の並進運動と傘状変形という二つの励起モードが正負のリアクタンスに寄与することの理論的解明<sup>3,4)</sup>、らせん磁性体  $YMn_6Sn_6$  における室温創発インダクタンスの観察<sup>5,6)</sup>、が報告されている。また、最近著者らは EI の概念拡張を行い、スピン軌道結合を起源とした EI<sup>7)</sup> や、絶縁体を使った EI の実施形態<sup>8)</sup> を提案している。

今回、これまでに検討されてきた様々なナノ構造磁性体における EI について、特に周波数特性に関する比較を行い、その物理的な意義を議論する。

### 参考文献

- 1) N. Nagaosa, "Emergent inductor by spiral magnets," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **58**, 120909 (2019).
- 2) T. Yokouchi *et al.*, "Emergent electromagnetic induction in a helical-spin magnet," *Nature*, **586**, 232 (2020).
- 3) J. Ieda and Y. Yamane, "Intrinsic and extrinsic tunability of Rashba spin-orbit coupled emergent inductors," *Phys. Rev. B*, **103**, L100402, (2021).
- 4) D. Kurebayashi and N. Nagaosa, "Electromagnetic response in spiral magnets and emergent inductance," *Commun. Phys.*, **4**, 260 (2021).
- 5) A. Kitaori *et al.*, "Emergent electromagnetic induction beyond room temperature," *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **118**, e2105422118, (2021).
- 6) A. Kitaori *et al.*, "Doping control of magnetism and emergent electromagnetic induction in high-temperature helimagnets," *Phys. Rev. B*, **107**, 024406, (2023).
- 7) Y. Yamane, S. Fukami, and J. Ieda, "Theory of emergent inductance with spin-orbit coupling effects," *Phys. Rev. Lett.*, **128**, 147201 (2022).
- 8) Y. Araki and J. Ieda, "Emergence of inductance and capacitance from topological electromagnetism," *J. Phys. Soc. Jpn.*, **92**, 074705 (2023).

# Anisotropic magnetoresistance effect in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films grown by molecular beam epitaxy

Weida Yin<sup>1</sup>, Keita Ito<sup>1</sup>, Takahiro Tanaka<sup>1</sup>, Rie Y. Umetsu<sup>1</sup>  
(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>)

## 【Introduction】

Anisotropic magnetoresistance (AMR) is a phenomenon whereby the resistivity of a material changes in response to the direction of an external magnetic field ( $H_{\text{ex}}$ ). AMR represents a significant magnetoresistance effect and finds wide-ranging applications in fields such as magnetic sensors and magnetic storage.  $\text{Fe}_4\text{N}$  is an interesting ferromagnetic material showing negative AMR and the anomalous  $\cos^4\theta$  term ( $C_4$ ) significantly increase at low temperature ( $T$ ).<sup>1-3</sup> AMR of  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with  $x = 1$  and 3 have been reported, but the origin of  $C_4$  is still unclear.<sup>4</sup> In this study,  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with smaller incremental changes in  $x$  were fabricated and their AMRs were measured.

## 【Experiments】

The epitaxial  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were grown on  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(\text{MAO})(001)$  substrates at 450 °C by molecular beam epitaxy. Fe and Ni were supplied by electron beam gun and N was simultaneously supplied by radio-frequency plasma gun. The structures of the samples were characterized by reflection high-energy electron diffraction and x-ray diffraction. The Ni/Fe ratio,  $x$ , in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films was characterized by electron probe micro analyzer as  $x = 0, 0.6, 1.2, 1.6,$  and 2.2. The samples were microfabricated into a Hall bar shape, and AMR were characterized by using a physical properties measurement system. The sample was rotated under a steady  $H_{\text{ex}}$  of 3 T as shown in Fig. 1, and AMR was measured by four-probe method while changing the relative angle between  $H_{\text{ex}}$  and the current under different  $T$  of 6, 75, 200, and 300 K for all the sample.

## 【Results】

The  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were epitaxially grown on the MAO(001) substrates, but the uniform  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  phase was hard to form with the increase of Ni composition and started to decompose into FeNi at approximately  $x = 2.2$ . The relationship between  $T$  and AMR ratio ( $r_{\text{AMR}}$ ) in the  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with different  $x$  is shown in Fig. 2. In the sample with  $x = 1.2, 1.6,$  and 2.2, the  $r_{\text{AMR}}$  value is positive at 300 K. In contrast, negative  $r_{\text{AMR}}$  is obtained at 300 K in the samples with  $x = 0$  and 0.6. The absolute value of  $r_{\text{AMR}}$  gradually increased with the decreasing  $T$  and the sign of  $r_{\text{AMR}}$  of the samples with  $x = 1.2, 1.6,$  and 2.2 became negative. Particularly in the  $\text{Fe}_4\text{N}$  film, the  $|r_{\text{AMR}}|$  rapidly enhanced to 9.8% at 6 K, which is much larger than the reported  $|r_{\text{AMR}}|$  for  $\text{Fe}_4\text{N}$  films grown on  $\text{MgO}(001)$  and  $\text{SrTiO}_3(001)$  substrates.<sup>1-3</sup> The negative spin-polarization of density of states at the Fermi level ( $P$ ) in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  is reported.<sup>5</sup> Considering a theoretical model reported in ref. 6, the combination of negative  $r_{\text{AMR}}$  and negative  $P$  obtained at low temperature region means that minority spin transport is dominant in the  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films with  $x$  of 0 to 2.2.  $T$  dependence of  $C_4$  will be discussed in the presentation.

## Reference

- 1) M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Express **3**, 113003 (2010).
- 2) K. Kabara *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063003 (2014).
- 3) K. Ito *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 068001 (2012).
- 4) F. Takata *et al.*, J. Appl. Phys. **121**, 023903 (2017).
- 5) F. Takata *et al.*, J. Appl. Phys. **120**, 083907 (2016).
- 6) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024705 (2012).



Fig. 1 A schematic geometry of the transverse AMR measurement. Fig. 2 Temperature dependence of AMR ratio of  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films.

## Co 基ホイスラーバルク単結晶の結晶方位を考慮した 異方性磁気抵抗効果の温度依存性

田中貴大、窪田崇秀\*、古門聡士\*\*、梅津理恵  
(東北大金研、\*東北大工、\*\*静岡大総科技研)

Temperature dependence of anisotropic magnetoresistance effect considering crystal orientation of Co-based  
Heusler bulk-single crystals

T. Tanaka, T. Kubota\*, S. Kokado\*\*, R. Y. Umetsu

(IMR Tohoku Univ., \*Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ., \*\*Grad. Sch. Integ. Sci. Tech. Shizuoka Univ.)

### はじめに

負の符号を示す異方性磁気抵抗効果(AMR)は、ハーフメタル型強磁性体(HMF)であることの必要条件とされ、簡易的に HMF の性質を評価する上で有用な手段であると理論的に示唆されている<sup>1)</sup>。しかしながら、HMF となり得るホイスラー合金において結晶方位を考慮した AMR の報告例は限られており、ハーフメタル性と AMR の結晶方位依存性との関係を実験的に系統的に解明されることが望まれる。そこで、本研究では Co 基ホイスラー合金のうち高いキュリー温度を有する  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  および  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  のバルク単結晶試料を用いて、三次元的な結晶方位を考慮した AMR およびその温度依存性を報告する。

### 実験方法

バルク単結晶試料はブリッジマン法にて作製された。試料はラウエ回折パターンにより確認された特定の結晶方位([100]、[110]、または[111])に沿って短冊状に加工した。その試料を 3T の定常磁場下で回転させ、磁場と電流方向(結晶方位と平行)との相対角度を変化させながら四端子法にて 6 K から 300 K の温度範囲で測定を行った。AMR 比は  $\text{AMR}_\theta = (\rho(\theta) - \rho_\perp) / \rho_\perp \times 100 (\%)$  と定義される。ここで  $\rho(\theta)$  は磁場と電流方向との相対角  $\theta$  における観測された抵抗率を、 $\rho_\perp$  は  $\theta$  が 90 度の時の抵抗率を表す。

### 実験結果

Fig.1 に AMR 比の角度及び温度依存性の結果を示す。 $\text{Co}_2\text{MnGe}$  では、[100]・[110]・[111]の全方位で負の AMR が観測された。温度が 6 K から 300 K まで変化しても符号は変わらず、AMR 比の絶対値もわずかに増加する程度であった。一方、 $\text{Co}_2\text{FeSi}$  では、[110]・[111]では負の AMR が、[100]では 6 K において正の AMR が観測された。また温度上昇に伴い、AMR 比の絶対値が低下した。なお、[100]・[110]における AMR の符号の結果は、古門らが提案した結晶場効果を取り入れた s-d 散乱モデル<sup>2)</sup>との整合性が確認された。

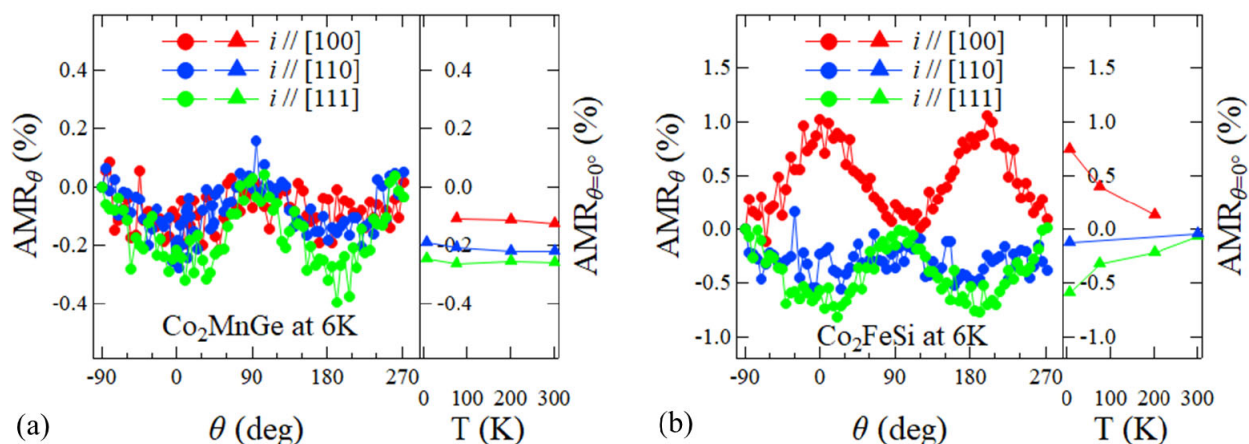


Fig.1 Angle and temperature dependence of AMR ratio of (a)  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  and (b)  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ .

### 参考文献

- 1) S. Kokado, M. Tsunoda, K. Harigaya and A. Sakuma: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 024705 (2012).
- 2) S. Kokado and M. Tsunoda: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **88**, 034706 (2019).

# 量子アニーリングによる不規則性トンネルバリア設計

名和 憲嗣<sup>1,2</sup>, 鈴木 健司<sup>3</sup>, 増田 啓介<sup>2</sup>, 田中 宗<sup>4,5</sup>, 三浦 良雄<sup>2,6</sup>

(三重大院工<sup>1</sup>, 物材機構<sup>2</sup>, TDK<sup>3</sup>, 慶大理工<sup>4</sup>, 慶大 WPI-Bio2Q<sup>5</sup>, 大阪大 CSRN<sup>6</sup>)

Quantum-annealing approach for designing cation-disordered spinels for magnetic tunnel junctions

K. Nawa<sup>1,2</sup>, T. Suzuki<sup>3</sup>, K. Masuda<sup>2</sup>, S. Tanaka<sup>4,5</sup>, and Y. Miura<sup>2,6</sup>

(Mie Univ.<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>, TDK<sup>3</sup>, Keio Univ.<sup>4</sup>, WPI-Bio2Q, Keio Univ.<sup>5</sup>, CSRN, Osaka Univ.<sup>6</sup>)

## はじめに

第一原理計算と機械学習によるデータ駆動の材料開発、いわゆるマテリアルズ・インフォマティクス (MI) が急速に発展しており、材料を構成する元素種や組成比、規則性・不規則性などの様々な自由度を所望の物性に合わせて最適化するための手法開発が多く行われている。最近では、組合せ最適化問題に特化した量子アニーリング (QA) を用いた手法も提案され<sup>1)</sup>、この手法がバイズ最適化 (BO) よりも優れた探索効率を示し得ることが、Li バッテリー材料を例に示された<sup>2)</sup>。本研究では、スピントロニクス材料に対する QA 法の有用性を検証すべく、磁気トンネル接合素子 (MTJ) の有望なバリア材料である逆スピネル MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (MGO) に注目し、全エネルギー ( $\Delta E_{\text{Total}}$ )、トンネル磁気抵抗比 (TMR) および素子抵抗 (RA) に対するカチオン不規則配列の最適化を試みた。

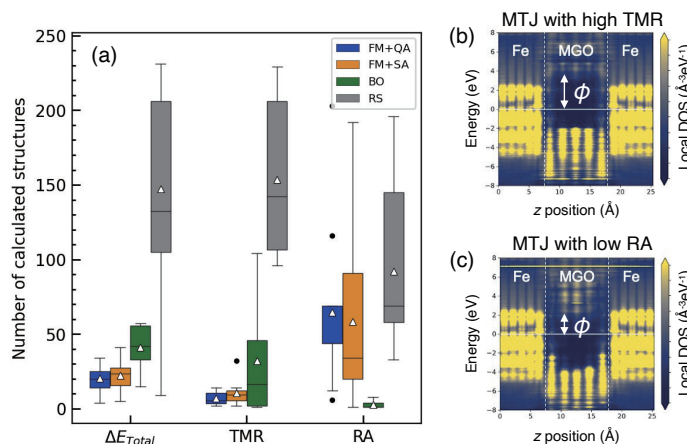
## 解析方法・結果

9 原子層の逆スピネル MGO を用いた Fe/MGO/Fe(001)-MTJ において、カチオンの Mg と Ga は八面体サイトを不規則に占有し、この不規則配列の組み合わせの数は 252 (= 10C<sub>5</sub>) 通りとなる。この中からランダムに選んだ 20 構造に対して第一原理計算を行い  $\Delta E_{\text{Total}}$ , TMR, RA の訓練データを作成し、機械学習の Factorization machine (FM) と量子アニーリングを組み合わせた FM+QA 法<sup>2)</sup>により、次候補のカチオン配列を予測した。予測された MTJ 構造の第一原理計算と FM+QA 法による予測を繰り返し、各物性に対して最適な MTJ 構造が得られるまでに必要な構造数を調べた<sup>3)</sup>。

Fig. 1(a)の通り、FM+QA 法は、 $\Delta E_{\text{Total}}$  と TMR を最適化するカチオン配列の探索には他手法 (FM+SA, BO, RS) より優れた効率を示したが、RA の最適化においては BO が最も優れた探索効率を示した。よって、FM+QA 法の優位性は目的とする物理量に依存する結果が得られた。カチオン配列の特徴を調べたところ、高 TMR (低 RA) を示す MTJ では Mg (Ga) が MGO 層の中央領域に集中して分布していた。第一原理計算の解析から、MGO 層の中央領域に Mg (Ga) が分布することでバリア高さが高く (低く) なり、これが高 TMR (低 RA) の起源であることが分かった [Fig. 1(b), (c)]。本研究は、TDK 株式会社、科研費 (JP20H02190, JP20K14782, JP21H01750, JP21K03391, JP22H04966, JP22K14290, JP23H05447, JP23H05447), JST (JPMJPF2221), WPI-Bio2Q の助成を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) K. Kitai, *et al.*, Phys. Rev. Res. **2**, 013319 (2020).
- 2) K. Hatakeyama-Sato, *et al.*, Adv. Intell. Syst. **3**, 2000209 (2021).
- 3) K. Nawa, T. Suzuki, K. Masuda, S. Tanaka, Y. Miura (submitted).



**Fig. 1** (a) Searching efficiency for optimizing  $\Delta E_{\text{Total}}$ , TMR, and RA with a comparison of FM+SA (simulated annealing), BO (Bayesian optimization), and RS (random search). (b) and (c) Local density of states projected on real-space MTJ structure showing the highest TMR and lowest RA.



# 垂直磁化の導電性コバルトフェライト電極を用いた 磁気トンネル接合素子のトンネル磁気抵抗効果

田中 雅章, 市川 知幸, 眞下 大輔, 森下 雅也, 小見山 遥\*, 本多 周太\*\*, 小野 輝男\*, 壬生 攻  
(名工大工, \*京大化研, \*\*関西大シス理)

Tunnel magnetoresistance effect of magnetic tunnel junctions  
using perpendicularly magnetized conductive cobalt ferrite electrodes

M. A. Tanaka, T. Ichikawa, D. Mashimo, M. Morishita, H. Komiyama, S. Honda, T. Ono, and K. Mibu  
(Nagoya Inst. Tech., \*Kyoto Univ., \*\* Kansai Univ.)

## はじめに

コバルトフェライト(CFO)は逆スピネル構造を持つフェリ磁性であり、面内方向の引っ張り歪みを受けた(001)配向のCFO薄膜は大きな垂直磁気異方性を示す[1-2]。我々はFeリッチのCFO薄膜を作製するときの作製条件を調整することで、 $\text{Fe}^{2+}$ がほとんど存在しないため絶縁性を示すI-CFO (Insulative-  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_{4+\delta}$  ( $0 < x < 1$ ))と $\text{Fe}^{2+}$ と $\text{Fe}^{3+}$ が存在することで導電性を示すC-CFO (Conductive-  $\text{Co}_y\text{Fe}_{3-y}\text{O}_4$  ( $0 < y < 1$ ))の垂直磁化膜を作り分けができることを報告した[3]。また、絶縁性のI-CFO薄膜のトンネル型スピフィルター効果を使って100 Kで-28%の効率を示すスピン注入を観測した[4]。本研究では、第一原理計算から少数スピンを持つ電子が伝導に支配的で高いスピン注入効率が期待できる導電性のC-CFOに注目し、垂直磁化を持つC-CFO薄膜を強磁性電極とする非磁性層バリアの磁気トンネル接合(MTJ)素子を作製し、このMTJ素子に対してトンネル磁気抵抗(TMR)効果の測定を行うことでC-CFO薄膜のスピン注入効率を評価した。

## 実験方法

パルスレーザー堆積法でMgO(001)基板上にバッファ層I-CFO(20 nm)、MTJ素子の下部強磁性電極C-CFO(20 nm)、非磁性トンネルバリア層MgO(2.5 nm)の順番で製膜した。その上に上部強磁性電極としてCo(1.0 nm)/{Tb(0.45 nm)/Co(0.65 nm)}<sub>15</sub>/Co(2.0 nm)またはC-CFO(10 nm)/Pt(3.0 nm)の多層膜を作製し、それぞれMTJ-1とMTJ-2とした。X線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価を行い、SQUID磁束計を用いて磁化測定を行った。またフォトリソグラフィとArイオンミリングを用いて直径が数 $\mu\text{m}$ のMTJ素子を作製したのち、膜面垂直方向に外部磁場を印加して磁気抵抗測定を行い、観測されたTMR効果からスピン注入効率を評価した。

## 実験結果

MgO(001)基板上ではバッファ層のI-CFOと下部強磁性電極層のC-CFOは(001)方向にエピタキシャル成長し、基板の影響を受けて面内方向の引張歪みが存在することがわかった。また、磁化測定からMTJ素子用の多層膜は下部・上部強磁性電極ともに垂直磁化を示し、C-CFO層は垂直磁気異方性が誘起されていることがわかった。磁気抵抗測定から、MTJ-1素子は100 Kにおいて上下の強磁性層の磁化が反平行状態で抵抗値が小さくなる-5%の負のTMR効果が観測された。一方でMTJ-2では100 Kにおいて上下の強磁性層の磁化が平行状態で抵抗値が小さくなる+6%の正のTMR効果が観測された。第一原理計算からC-CFOでは少数スピンを持つ電子が伝導に支配的でCoでは多数スピンを持つ電子が伝導に支配的なため、C-CFO層とCo層を用いたMTJ-1では負のTMR効果が観測され、上下の強磁性層にC-CFO層を用いたMTJ-2では正のTMR効果が観測されたと考えられる。以上のように、本研究ではC-CFO薄膜による垂直磁化方式のトンネル接合の作製に成功した。MTJ-2で観測されたTMR比からジュリエールの式で見積もられたC-CFO層のスピン注入効率は-3%であった。

## 参考文献

- [1] H. Yanagihara *et al.*, J. Appl. Phys. 109, 07D122 (2011). [2] J. Okabayashi *et al.*, Phys. Rev. B 105, 134416 (2022). [3] M. Morishita *et al.*, Phys. Rev. Mater. 7, 054402 (2023). [4] M. Tanaka *et al.*, Appl. Phys. Lett. 122, 042401 (2023).

# SrTiO<sub>3</sub> を用いた(111)配向磁気トンネル接合の理論研究

増田啓介<sup>1</sup>, 伊藤博介<sup>2</sup>, 園部義明<sup>3</sup>, 介川裕章<sup>1</sup>, 三谷誠司<sup>1</sup>, 三浦良雄<sup>1</sup>  
(物質・材料研究機構<sup>1</sup>, 関西大システム理工<sup>2</sup>, 早大ナノ・ライフ研究機構<sup>3</sup>)

Theoretical study for (111)-oriented magnetic tunnel junctions with SrTiO<sub>3</sub> barriers

K. Masuda<sup>1</sup>, H. Itoh<sup>2</sup>, Y. Sonobe<sup>3</sup>, H. Sukegawa<sup>1</sup>, S. Mitani<sup>1</sup>, and Y. Miura<sup>1</sup>

(NIMS<sup>1</sup>, Kansai Univ.<sup>2</sup>, Waseda Univ.<sup>3</sup>)

## はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) への応用のため, 磁気トンネル接合 (MTJ) は高いトンネル磁気抵抗比 (TMR 比) と大きな垂直磁気異方性 (PMA) を有する必要がある. このような主眼から, 我々はこれまで fcc 強磁性体の [111] 方向を積層方向とした新規 (111) 配向 MTJ について理論研究を行ってきた [1,2]. 我々はトンネル障壁として MgO を用いた MTJ について解析を行い, 2000% を超える高い TMR 比と L1 強磁性合金の電子構造に由来する大きな垂直磁気異方性が両立することを実証してきた [1,2]. しかし (111) 配向 MTJ のトンネル障壁は MgO に限られたものではなく, その他の物質について検討することは新規 MTJ の更なる可能性を開拓する上で重要である. そこで本研究では, トンネル障壁として歴史的に重要な役割を果たしてきた SrTiO<sub>3</sub> を取り上げ, これを用いた (111) 配向 MTJ の TMR 効果について理論検討を行う [3].

## 解析方法・結果

本研究ではトンネル障壁として SrTiO<sub>3</sub>, 強磁性電極として fcc Co (Ni) を用いた (111) 配向 MTJ [Fig. 1(a)] を採用する. これらの MTJ に対し, 密度汎関数理論に基づく第一原理計算と Landauer 公式を適用することで TMR 比を計算した [3].

解析の結果, Co を用いた MTJ で 534%, Ni を用いた MTJ で 290% という比較的高い TMR 比が得られた. このような高い TMR 比の起源を知るために電気伝導度の面内波数 ( $k_{\parallel}$ ) 依存性を解析したところ, 少数スピン状態におけるコンダクタンスの  $\Gamma$  点 [ $\mathbf{k}_{\parallel}=(0,0)$ ] にブロードなピークが確認された. これは強磁性電極 Co, Ni のバルクのバンド構造が TMR 効果に主要な寄与を与えていることを示している. そこでこれらのバンド構造を詳細に調べた. Fig. 1(b) に Co の  $\Lambda$  線 ( $\Gamma$  点から  $k_z$  方向に伸びる高対称線で [111] 方向に対応) 上のバンド構造を示すが,  $\Lambda_1$  状態からなるバンドがハーフメタル性を有していることがわかる. このハーフメタル性は, Co と SrTiO<sub>3</sub> の面内格子周期の不一致により, Co でバンドが折り畳まれることにより生じる. また SrTiO<sub>3</sub> の複素バンド構造の解析から,  $\Lambda_1$  状態はトンネル障壁中で小さな減衰率を持ち, トンネル伝導で主要な役割を果たすことが確認された. 以上の結果から, 今回得られた高い TMR 比は強磁性体の  $\Lambda_1$  状態におけるハーフメタル性によって誘起されていると結論づけることができる [3]. 本研究は JSPS 科研費 (JP20H02190, JP20K14782, JP21H01750, JP22H04966, JP23K03933) 及び JST CREST (JPMJCR21C1) の支援を受けて行われたものである.

## 参考文献

- 1) K. Masuda, H. Itoh, and Y. Miura, Phys. Rev. B **101**, 144404 (2020).
- 2) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **103**, 064427 (2021).
- 3) K. Masuda, H. Itoh, Y. Sonobe, H. Sukegawa, S. Mitani, and Y. Miura, Phys. Rev. B **106**, 134438 (2022).

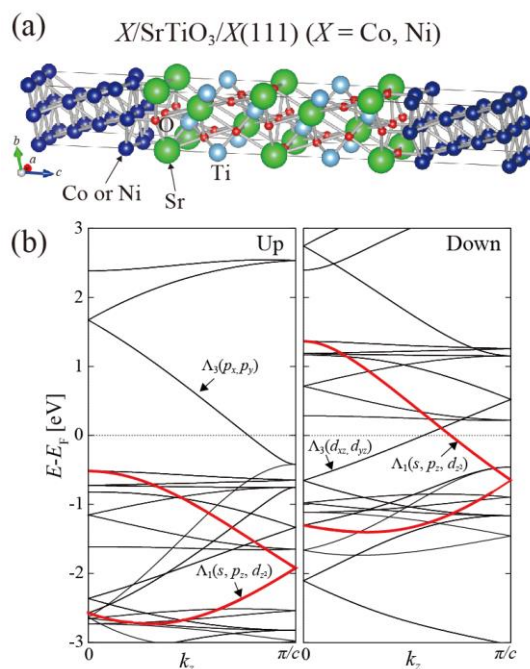


FIG.1. (a) Supercell of  $X/\text{SrTiO}_3/X(111)$  ( $X = \text{Co}, \text{Ni}$ ). (b) Up- and Down-spin band structures along the  $\Lambda$  line of fcc Co for the unit cell with four atoms in each plane. From Ref. [3].

## Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJs の磁気トンネル特性のバリア材料依存性

吉野 克己<sup>1</sup>、安井 彰馬<sup>1</sup>、横倉 聖也<sup>2</sup>、島田 敏宏<sup>2</sup>、長浜 太郎<sup>3</sup>

北海道大学大学院総合化学院<sup>1</sup>、北海道大学大学院工学研究院<sup>2</sup>、山口大学大学院創成科学研究科<sup>3</sup>

Dependence of magnetic tunneling properties of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJs on barrier material

Katsumi Yoshino<sup>1</sup>, Shoma Yasui<sup>1</sup>, Seiya Yokokura<sup>2</sup>, Toshihiro Shimada<sup>2</sup>, Taro Nagahama<sup>3</sup>

Graduate School of Chemical Science and Engineering, Hokkaido University<sup>1</sup>

Graduate School of Engineering, Hokkaido University<sup>2</sup>

Graduate School of Science and Technology for Innovation, Yamaguchi University<sup>3</sup>

### はじめに

Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>はハーフメタル特性を持ち、MTJsの強磁性体層として期待される材料である。一方で、Fe/MgO/Feでも巨大なTMR比が観測されており、これはトンネル電子の波動関数の対称性に依存したコヒーレントトンネリングが原因であると考えられている。最近、Yasui<sup>[1]</sup>らによってFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>を用いたMTJsにおいて100%を超える巨大なTMR比の観測がされたが、これがコヒーレントトンネリングによるものであるのか、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>のDOSの大きなスピン分極率を反映したものであるのかが判別できていない。本研究では強磁性体層にFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>を用いたMTJsにおいて、バリア材料として結晶性MgOと非晶質AlO<sub>x</sub>を用い、それぞれの磁気トンネル特性の比較を行った。また、発表ではFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>のバッファ層としてNiOとCoOを用いた場合の違いについても言及する。

### 実験方法

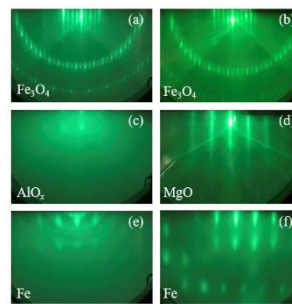
試料の作製は反応性MBE法を用いて行った。MgO(001)基盤上にMgOバッファ層を20 nm堆積させた後、交換バイアス層であるNiOを5 nm蒸着した。強磁性体層であるFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>を60 nm蒸着し、バリア材料としてMgO、またはAlO<sub>x</sub>を2.5 nm堆積させた。上部電極にはFeを10 nm蒸着し、微細加工処理を施した。それぞれのTMR比の温度依存性、TMR比のバイアス電圧依存性を測定することで、磁気トンネル特性の比較を行った。

### 実験結果

Fig. 1にそれぞれのMTJsにおけるRHEED像を示す。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>は明瞭なストリークパターンを示したことからスピネルとして成長していることが分かった。また、バリア層であるAlO<sub>x</sub>とMgOを比較すると、AlO<sub>x</sub>はハローパターンを示すのに対し、MgOはストリークパターンを示すことが分かった。このことから、AlO<sub>x</sub>は非晶質バリアとして、MgOは結晶性岩塩型バリアとして成長し、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJsの磁気トンネル特性をバリア材料の結晶性で比較することが出来ると考えられた。Fig. 2にTMR比の温度依存性を示す。どちらのMTJsにおいてもある温度点まではTMR比が大きくなり、その温度点を下回るとTMR比は減少に転じた。これはFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>がフェルベ点を下回ったことで構造の変化が起き、それに伴いバンド構造の変化があったためであると考えられた。またAlO<sub>x</sub>バリアを用いたMTJsでは150 Kにおいて-41.5%、MgOバリアを用いたMTJsでは125 Kにおいて-43.4%と、得られたTMR比の最大値に大きな違いが見られなかった。以上のことからFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-MTJsでは非晶質バリアを用いても、結晶性バリアを用いても拡散的な伝導を示すと考えられた。

### 参考文献

- 1) Shoma Yasui *et al.*, *Physical Review Applied* **15**, 034042 (2021)



Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/AlO<sub>x</sub>/Fe Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/MgO/Fe  
Fig. 1 RHEED image of each MTJs.

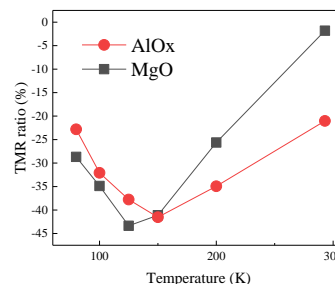


Fig. 2 Temperature dependence of TMR ratio.

## CoFe/MgO/CoFe(001) magnetic tunnel junctions with giant tunnel magnetoresistance exceeding 630% at room temperature

Thomas Scheike, Zhenchao Wen, Hiroaki Sukegawa, and Seiji Mitani  
National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Magnetic tunnel junctions (MTJs) are a key component for spintronics applications, such as sensors and magnetic random-access memory (MRAM). However, the resistive change of MTJs, i.e., tunnel magnetoresistance (TMR) ratio, is low even after several decades of research and development as compared to other nonvolatile competing solutions, such as resistive RAM. Recently, we have demonstrated increased room temperature (RT) TMR ratio exceeding 400% using single-crystal Fe/MgO/Fe<sup>1)</sup> and Fe/MgAlO/Fe<sup>2)</sup> MTJs, doubling the previously reported ratios of Fe-based MTJs by careful optimization of several key layers. The results further emphasized the important role of interface properties, i.e., roughness and oxidation, on the transport properties. In this work, we show the effect of tuning of Mg and CoFe insertion layers at the interfaces on the transport properties leading to increased RT TMR ratios.<sup>3)</sup>

Epitaxial MTJ stacks were fabricated using an ultra-high vacuum magnetron sputter: MgO(001) substrate//Cr (60)/Fe (50)/CoFe ( $d_{\text{bot}}$ )/Mg ( $d_{\text{Mg}}$ )/wedged, electron-beam deposited MgO (1-3)/CoFe ( $d_{\text{top}}$ )/Fe (5)/IrMn (10)/Ru (12) (units in nm). Each layer except IrMn and Ru were *in-situ* post-annealed. MTJs were patterned into elliptical pillars using photolithography and ion etching followed by *ex-situ* annealing. Transport properties were evaluated using a standard 4-probe method. For low temperature measurements, a physical property measurement system was used.

The TMR curve of the optimized MTJ structure is shown in Fig. 1. A maximum RT TMR ratio of 631% was obtained using  $d_{\text{bot}} = 2.24$  nm,  $d_{\text{Mg}} = 0.6$  nm, and  $d_{\text{top}} = 0.56$  nm, which exceeds the reported TMR record of 604% in a polycrystalline CoFeB/MgO/CoFeB MTJ.<sup>4)</sup> The TMR ratio is strongly dependent on the MgO thickness showing a significant oscillatory behavior with a maximum peak-to-valley difference of 125% at RT. The temperature dependence of the TMR ratio is shown in Fig. 2. The TMR ratio increases monotonically with reduced temperature and reaches a maximum of 1143% at 10 K, demonstrating a high tunneling spin polarization. Our results show that TMR ratios of well-engineered interfaces of Fe/MgO/Fe-based MTJs can be even further increased, e.g., by tuning of electrode composition and thickness, etc.

The work was partly supported by JSPS KAKENHI Grant Nos. 16H06332, 21H01750, 21H01397, and 22H04966 and is partly based on results obtained from a project, JPNP16007, commissioned by the New Energy and Industrial Technology Development Organization (NEDO).

### References

- 1) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 042411 (2021).
- 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 032404 (2022).
- 3) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Lett. **122**, 112404 (2023).
- 4) S. Ikeda *et al.*, Appl. Phys. Lett. **93**, 082508 (2008).

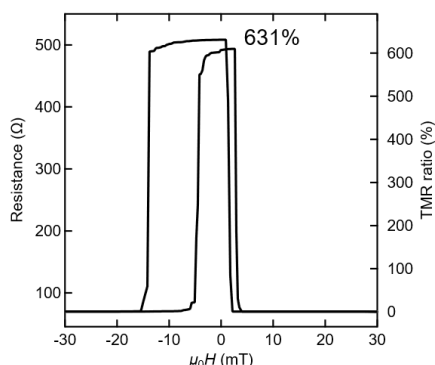


Fig. 1 TMR curve of optimized MTJ at RT.

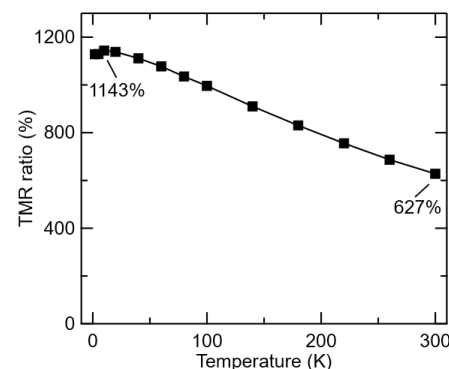


Fig. 2 Temperature dependence of TMR.



## 界面電子構造整合の最適化を目指した組成傾斜磁気抵抗素子の作製と解析

V.K. Kushwaha, 遠山諒, 三浦良雄, 岩崎悠真, 桜庭裕弥  
物質・材料研究機構

Fabrication and analyzation of magnetoresistance device with composition spread layer for optimization of interfacial electronic band matching

V. K. Kushwaha, R. Toyama, Y. Miura, Y. Iwasaki, Y. Sakuraba  
National Institute for Materials Science (NIMS)

### はじめに

昨今、広大な探索空間からハイスループットに高い機能性を有する新規材料や複合構造を見出す手法として、第一原理計算と機械学習を融合した手法(仮想空間 AI)が様々な分野で活用されている。磁性材料やスピントロニクス材料においては、従来知られていなかった大きな磁化やスピン分極率を有する新規材料が本手法によって予測され<sup>1,3)</sup>、実験的にも実証されている<sup>1)</sup>。一方、巨大磁気抵抗やトンネル磁気抵抗効果、スピン注入やスピン軌道トルクといったスピン依存輸送現象においては、材料のバルクとしての物性に加えて、磁性体/非磁性体界面の物性、特に界面電子構造に依存した輸送特性が大きな影響を与える。しかし界面を通じた伝導計算は計算コストが高く、機械学習に足る十分なデータを高速に得るのに不向きである。

従って、仮想空間 AI を、高い性能を有するスピントロニクスデバイス実現へ活用するためには、異種材料の界面の電子構造の整合性やその輸送に与える影響を、効率的に理論予測する新手法の開発が求められる。一方、仮想空間 AI による予測の検証や細かな最適化を実験的に行うためには、様々な組成や構造を有する異種材料界面を作製し、効率的に調べるための手法の確立も求められる。本研究では、このようなインフォマティクスを活用した研究の第一段階として、コンビナトリアル成膜法によって組成傾斜させた Co-Fe 合金を有する巨大磁気抵抗素子を作製し、ハイスループットに磁気抵抗特性を評価し、界面の電子バンドの整合性から簡易的に解析することを試みた。

### 実験方法

(001)-MgO 単結晶基板をイオンミリングによって清浄化した後、 $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成傾斜膜(6nm)/Cu 膜厚傾斜膜(1-5nm)/ $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成傾斜膜(6nm)/IrMn/Ta スピンバルブ構造のエピタキシャル巨大磁気抵抗素子を作製した。組成傾斜は基板の y 方向に、膜厚傾斜は x 方向にすることによって、1 基板上で Co-Fe の組成と Cu 膜厚依存性の全データを得られるよう 1725 個のデバイスパターンニングを行った。試料は自動磁場中プローバーによって高速に磁気抵抗特性を評価した。

### 実験結果

作製した試料について、X 線を絞り  $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  組成毎の XRD 回折を局所測定した結果、 $\text{Fe}(x=1)$  から  $\text{Co}_{17}\text{Fe}_{83}(x=0.17)$  までは bcc 構造を維持し、Cu が準安定 bcc 構造を形成することで、全層が (001) 配向 bcc 構造の巨大磁気抵抗素子となっていることが確認された。図 1 に、測定した磁気抵抗比の Co-Fe 組成と Cu 膜厚に対する 2 次元プロットを示す。その結果、 $x = 0.17 \sim 1.00$  の領域では、同様の結晶性を有する全 bcc 構造と、明確な磁化反平行状態が得られているにも関わらず、 $x = 0.7$  前後で MR 比が急激に変化する挙動を生じることが捉えられた。本結果をフェルミ準位における電子バンドの整合性の観点で検証を行った結果、 $k$  空間における Co-Fe と Cu のバンドの距離で定性的に説明可能であることが導かれた。

参考文献 1) Y. Iwasaki et al., *Commun. Mater.* 2, 31 (2021), 2) I. Kurniawan et al., *Phys. Rev. Mater.* 6, L091402 (2022), 3) Y. Iwasaki, et al., *STAM method* 2, 365 (2022), 3)

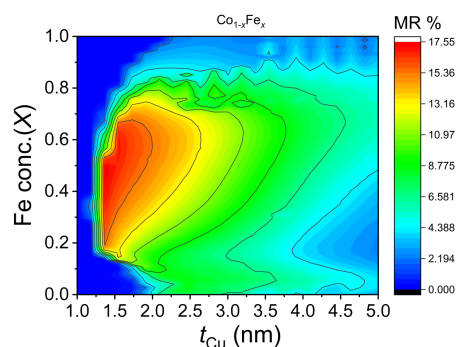


Fig.1 MR distribution of the  $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$ /wedge-Cu/ $\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x$  CIP-GMR device