

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03981

研究課題名(和文) 強磁性ナノ接合を用いた巨大磁気キャパシタンス効果素子の創製

研究課題名(英文) Creation of large magnetocapacitance devices using magnetic nanoscale junctions

研究代表者

海住 英生 (Kaiju, Hideo)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：70396323

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：電子の電荷とスピンの2つの自由度を利用する「スピントロニクス」は、現代のエレクトロニクスを凌駕する次世代技術として期待され、近年大きな注目を集めている。本研究課題では、強磁性ナノ薄膜間に極薄絶縁層を挟んだスピントロニクス素子を作製し、磁気キャパシタンス効果を調べることを目的とした。その結果、これまでで最大の155%の磁気キャパシタンス比を観測することに成功した。これは従来値(=50%)の約3倍を示す。また、本実験結果はデバイ・フレリッヒ模型を用いた理論計算により定量的に説明できることがわかった。本理論によると磁気キャパシタンス比は1000%を超えることから、今後更なる発展が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Spintronics, which is an emerging research field utilizing the charge and spin degrees of freedom of electrons, has received much attention due to the next-generation technology that provides new functionalities in conventional electronics. In this study, we fabricate spintronic devices, in which a thin insulating layer is sandwiched between magnetic thin-film layers, and investigate magnetocapacitance effect. As a result, we successfully observe the highest magnetocapacitance ratio of 155%, which is three times larger than the conventional value (=50%). The experimental results can be quantitatively explained by a newly proposed theoretical calculation based on Debye-Frohlich model. Since this calculation suggests that the magnetocapacitance ratio can reach 1000%, the further development will be made in near future.

研究分野：応用物理

キーワード：スピントロニクス 磁性ナノ薄膜 誘電体 交流インピーダンス特性

### 1. 研究開始当初の背景

電子の電荷とスピンの2つの自由度を利用する「スピントロニクス」は、現代のエレクトロニクスを凌駕する次世代技術として期待され、近年大きな注目を集めている。中でも、強磁性体/絶縁体/強磁性体から構成される強磁性トンネル接合(MTJ)は室温にて巨大なトンネル磁気抵抗(TMR)効果を示すことから世界中で盛んに研究が進められている。TMR効果とは、両磁性体の磁化が平行であるとき抵抗 $R$ が小さくなり、反平行であるとき $R$ が大きくなる現象である。その抵抗変化率はTMR比と定義され、現在のところ、最大で600%程度のTMR比が得られている。

一方で、我々はMTJの交流インピーダンス特性に着目することにより、2002年にトンネル磁気キャパシタンス(TMC)効果を初めて発見した。TMC効果とは、両磁性体の磁化が平行であるときキャパシタンス $C$ が大きくなり、反平行であるとき $C$ が小さくなる現象である。キャパシタンス検出では、低インピーダンスが実現することから、低ノイズ化が期待でき、かつ、印加電流と検出電圧間には位相差が生じることから消費電力も低減できる。これらにより、TMC効果は将来の低ノイズ・省エネデバイス創製のための革新的技術となり得ると期待され、国内外で精力的に研究が進められた。しかしながら、約12年間TMC比は伸び悩み、最大でも50%程度に留まっていた。また、そのメカニズムについても不明な点が多かった。

### 2. 研究の目的

そこで、本研究課題では、TMC比の向上を目指すとともに、そのメカニズムを解明することを目的とした。本研究課題の推進は、静的なスピン蓄積と交流スピンドायナミクスに関する新たな学術的知見を提供するとともに、次世代革新的超高性能・低消費電力メモリ素子の実現に向けた新たな設計指針を導くと期待できる。

### 3. 研究の方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化Si基板上にTa/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/IrMn/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/Ru/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/MgO/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/Ta/Ruから構成されるMTJを作製した。Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>強磁性層の膜厚は3nm、MgO絶縁層の膜厚は2nmとした。素子のパターンニングにはフォトリソグラフィ法とイオンミリング法を用いた。パターンニング後、Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>強磁性層に磁気異方性を付与するため、磁場中熱処理を行った。

TMC効果の測定には磁場中交流4端子法を用いた。周波数帯域は80Hz-1MHzとした。最大印加磁場は1.4kOeとした。

### 4. 研究成果

図1(a)に200HzにおけるTMC効果を示す。TMC比は室温にて155%を示し、従来の約3

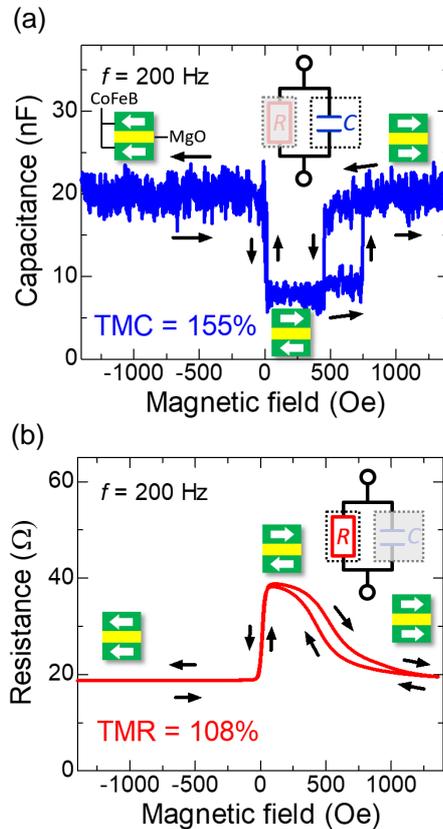


図1 MTJにおける(a)TMC効果と(b)TMR効果

倍の値を示した。また、図1(b)に示すように、このMTJでのTMR比は108%であることから、TMC比はTMR比より大きくなることもわかった。

図2にTMC比とTMR比の周波数依存性を示す。TMR比は周波数に対して一定であることに對し、TMC比は200Hz付近で最大値を示すことがわかる。このTMC比の最大値はTMR比より大きい。これらの実験結果を説明するため、Debye-Fröhlich(DF)模型を用いた新たな理論を構築した。その結果、図2に示すように、実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかった。これは強磁性層と絶縁層の界面に生じる電気的なダイポールが交流電場によって振動し、この振動モードがDF

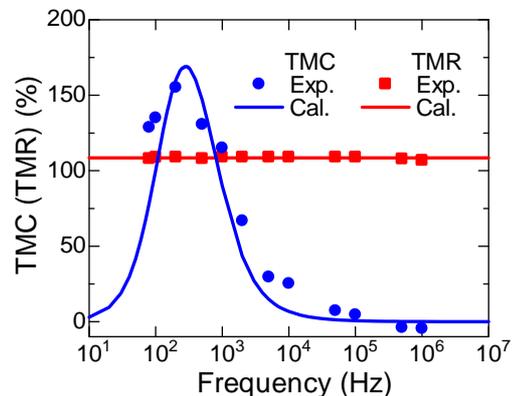
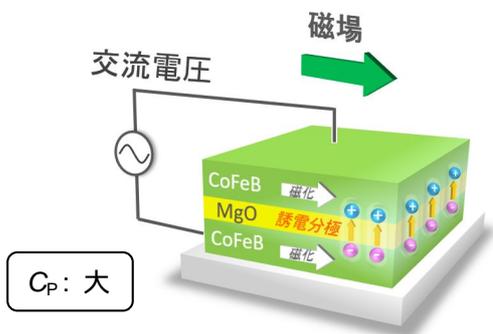


図2 TMC比とTMR比の周波数特性

(a) 磁化平行(P)状態



(b) 磁化反平行(AP)状態

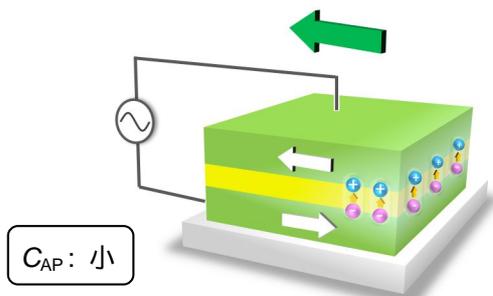


図3 TMC効果のメカニズム: (a) 磁化平行状態、(b) 磁化反平行状態

模型に従うことを意味する。すなわち、強磁性体である  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  層の磁化が互いに平行であるときは、絶縁体である MgO 層内のキャリアは高い透過確率でトンネルするため、ダイポールの振動は俊敏になる(=緩和時間は短くなる)。そのため、外部の交流電場に対してダイポールは追従することができる。これによって MgO 層における誘電分極が大きくなり、キャパシタンスが大きくなる(図 3(a))。一方で、 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  層の磁化が反平行であるときは、上述とは逆で、MgO 層内のキャリアは低い透過確率でトンネルするため、ダイポールの振動は緩慢となる(=緩和時間は長くなる)。そのため、MgO 層における誘電分極が小さくなり、キャパシタンスが小さくなる(図 3(b))。これが本研究で明らかになった TMC 効果のメカニズムである。

さらに、本理論を用い、TMC 比向上に関する検討を行った。図 4 に TMC 比の周波数特性に関する計算結果を示す。本計算では、ス

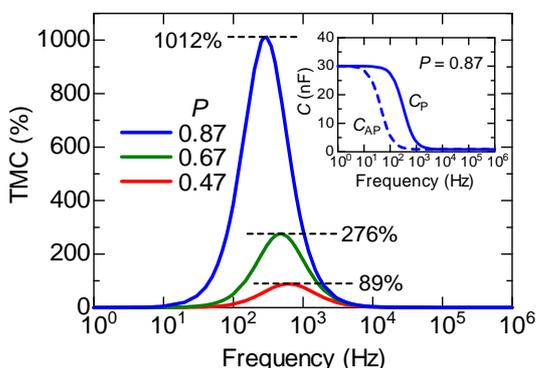


図4 TMC比の周波数特性に関する計算結果

ピン分極率を 0.47、0.67、0.87 とした。これらのスピン分極率は、Julliere の式に基づく、それぞれ 57%、163%、623% の TMR 比に相当する。図 4 に示すように、623% の TMR 比を有する MTJ では、TMC 比が 1000% を超えることが理論的に明らかになった。今後、TMC 比の更なる向上が期待できる。

<謝辞>

本研究を推進するにあたり、ブラウン大学物理学科 Gang Xiao 教授、東北大学多元物質科学研究所北上修教授、北海道大学電子科学研究所技術部武井将志氏には種々のご協力・ご助言を頂きました。深く感謝申し上げます。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

H. Kaiju, T. Nagahama, S. Sasaki, T. Shimada, O. Kitakami, T. Misawa, M. Fujioka, J. Nishii, and G. Xiao, "Inverse Tunnel Magnetocapacitance in Fe/Al-oxide/ $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ", Sci. Rep. Vol. 7, pp. 2682-1–2682-12, 2017, DOI:10.1038/s41598-017-02361-4, 査読有。

N. Takahashi, T. Huminiuc, Y. Yamamoto, T. Yanase, T. Shimada, A. Hirohata, and T. Nagahama, "Fabrication of Epitaxial  $\text{Fe}_{30}\text{O}_4$  Film on a Si(111) Substrate", Sci. Rep. Vol. 7, pp. 7009-1–7009-8, 2017, DOI:10.1038/s41598-017-07104-z, 査読有。

T. Misawa, S. Mori, T. Komine, M. Fujioka, J. Nishii, and H. Kaiju, "Structural and magnetic properties of  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin films sandwiched between low-softening-point glasses and application in spin devices", Appl. Surf. Sci. Vol. 390, pp. 666–674, 2016, DOI: 10.1016/j.apsusc.2016.08.100, 査読有。

H. Kaiju, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama, J. Nishii, and G. Xiao, "Large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions based on Debye-Fröhlich model", Appl. Phys. Lett. Vol. 107, pp. 132405-1–132405-5, 2015, DOI:10.1063/1.4932093, 査読有。

H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, S. Mori, T. Misawa, T. Abe, and J. Nishii, "Co Thickness Dependence of Structural and Magnetic Properties in Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields", J. Appl. Phys. Vol. 117, pp. 17C738-1–17C738-4, 2015, DOI: 10.1063/1.4917061, 査読有。

[学会発表](計33件)

海住英生、長浜太郎、佐々木駿、島田敏宏、北上修、三澤貴浩、西井準治、Xiao Gang: 「 $\text{Fe}/\text{AlO}_x/\text{Fe}_3\text{O}_4$  磁気トンネル接合における逆磁気キャパシタンス効果」、日

本物理学会第 73 回年次大会、2018 年  
海住英生、長浜太郎、北上修、西井準治、  
Xiao Gang: 「スピンデバイスにおける磁  
気誘電効果の理論とその実証」, 第 2 回マ  
テリアルズ・インフォマティクス基礎研  
究会、2018 年

佐々木悠馬、三澤貴浩、Msiska Robin、森  
澄人、小峰啓史、星野哲久、芥川智行、  
西井準治、海住英生: 「磁性薄膜エッジを  
利用した  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  ナノ接合  
素子に関する研究」, 第 53 回応用物理学  
会北海道支部学術講演会、2018 年  
海住英生、西井準治: 「薄膜エッジを利用  
したナノスケール分子接合デバイス」, 東  
工大化生研講演会、2017 年

海住英生、長浜太郎、北上修、西井準治、  
Xiao Gang: 「磁気トンネル接合における逆  
磁気キャパシタンス効果」, 第 22 回スピ  
ン工学の基礎と応用 (PASPS-22)、2017  
年

Y. Sasaki, T. Misawa, R. Msiska, S. Mori, T.  
Komine, N. Hoshino, T. Akutagawa, M.  
Fujioka, J. Nishii, and H. Kaiju: “Study of  
 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  nanoscale junction  
devices utilizing thin-film edges”, The 18th  
RIES-Hokudai International Symposium,  
2017.

H. Kaiju, T. Nagahama, S. Sasaki, T.  
Shimada, O. Kitakami, T. Misawa, M.  
Fujioka, J. Nishii, and G. Xiao, “Inverse  
Tunnel Magnetocapacitance in  
 $\text{Fe}/\text{Al-oxide}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ ”, 62nd Annual  
Conference on Magnetism and Magnetic  
Materials, 2017.

海住英生、長浜太郎、佐々木駿、島田敏  
宏、北上修、三澤貴浩、藤岡正弥、西  
井準治、Xiao Gang: 「 $\text{Fe}/\text{AlO}_x/\text{Fe}_3\text{O}_4$  にお  
ける逆トンネル磁気キャパシタンス効  
果」, 第 41 回日本磁気学会学術講演会、  
2017 年

三澤貴浩、森澄人、佐々木悠馬、小峰啓  
史、星野哲久、芥川智行、藤岡正弥、西  
井準治、海住英生: 「 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$   
ナノ接合素子の電気伝導特性」, 第 78 回  
応用物理学会秋季学術講演会、2017 年

佐々木悠馬、三澤貴浩、森澄人、小峰啓  
史、星野哲久、芥川智行、藤岡正弥、西  
井準治、海住英生: 「 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$   
接合素子における量子・古典状態間遷移  
領域に関する研究」, 第 78 回応用物理学  
会秋季学術講演会、2017 年

海住英生、長浜太郎、北上修、西井準治、  
Xiao Gang: 「強磁性トンネル接合にお  
ける磁気キャパシタンス効果」, 第 34 回光機能  
磁性デバイス・材料専門研究会、2017 年  
海住英生、長浜太郎、北上修、西井準治、  
Xiao Gang: 「計算機科学に基づいた磁気  
キャパシタンス効果の発見」, 平成 29 年  
度日本材料科学会学術講演会、2017 年

H. Kaiju, T. Nagahama, O. Kitakami, J.

Nishii, and G. Xiao: “Large  
Magnetocapacitance Effect at Room  
Temperature in Magnetic Tunnel Junctions”,  
3rd Annual World Congress of Smart  
Materials, 2017.

H. Kaiju, T. Nagahama, S. Sasaki, T.  
Shimada, O. Kitakami, T. Misawa, M.  
Fujioka, J. Nishii, and G. Xiao: “Inverse  
Tunnel Magnetocapacitance in  
 $\text{Fe}/\text{Al-oxide}/\text{Fe}_3\text{O}_4$ ”, 第 64 回応用物理学  
会春季学術講演会、2017 年

H. Kaiju, T. Nagahama, O. Kitakami, J.  
Nishii, and G. Xiao: “Large tunnel  
magnetocapacitance in magnetic tunnel  
junctions”, 7th Annual Congress on  
Materials Research and Technology, 2017.

T. Misawa, S. Mori, M. Fujioka, H. Kaiju,  
and J. Nishii, “Fabrication of nanoscale  
junctions utilizing  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin-film edges  
for the creation of novel spin devices”,  
HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on  
Nano, Photo and Bio Sciences, 2016.

三澤貴浩、森澄人、小峰啓史、星野哲久、  
芥川智行、藤岡正弥、海住英生、西井準  
治: 「薄膜エッジを利用した  
 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Alq}_3/\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  ナノ接合の作製とそ  
の構造・電気伝導特性」, 第 77 回応用物  
理学会秋季学術講演会、2016 年

海住英生、武井将志、三澤貴浩、長浜太  
郎、西井準治、Xiao Gang: 「強磁性トン  
ネル接合における室温巨大磁気キャパシ  
タンス効果」, 第 40 回日本磁気学会学術  
講演会、2016 年

H. Kaiju, T. Nagahama, J. Nishii, and G.  
Xiao: “Large magnetocapacitance effect in  
magnetic tunnel junctions at room  
temperature”, Collaborative Conference on  
3D & Materials Research, 2016.

T. Misawa, S. Mori, H. Kasa, M. Fujioka, H.  
Kaiju, and J. Nishii: “Magnetic and  
structural properties of  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin films  
sandwiched between borate glasses”, 第 63  
回応用物理学会春季学術講演会、2016 年

⑲ H. Kaiju, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama,  
J. Nishii, and G. Xiao: “Large  
magnetocapacitance effect at room  
temperature in magnetic tunnel junctions”,  
第 63 回応用物理学会春季学術講演会、  
2016 年

⑳ 海住英生、森澄人、三澤貴浩、小峰啓史、  
中村晃輔、藤岡正弥、西井準治: 「漏洩磁  
場を利用したスピン量子十字デバイスの  
構造・磁気特性」, 第 63 回応用物理学  
会春季学術講演会、2016 年

㉑ 海住英生、西井準治: 「交流スピントロ  
ニクスの最前線」, 第 8 回物質探索・設計  
セミナー、2016 年

㉒ S. Mori, T. Misawa, H. Kasa, K. Nakamura, H.  
Kaiju, and J. Nishii: “Magnetic properties of  
 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin films sandwiched between

- glasses and nanoscale electronic conduction through  $\text{Alq}_3$  in spin quantum cross devices”, The 4th Frontier Chemistry Center International Symposium, 2016.
- ②⑤ T. Misawa, S. Mori, H. Kasa, K. Nakamura, M. Fujioka, H. Kaiju, and J. Nishii: “Structural and magnetic properties of  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin films sandwiched between low-melting-point glasses”, 13th Joint MMM-Intermag Conference, 2016.
- ②⑥ H. Kaiju, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama, J. Nishii, and G. Xiao: “Large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions based on Debye-Fröhlich model”, 13th Joint MMM-Intermag Conference, 2016.
- ②⑦ 森澄人、三澤貴浩、笠晴也、中村晃輔、藤岡正弥、海住英生、西井準治: 「低融点ガラスに挟まれた  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  薄膜の磁気特性と  $\text{Alq}_3$  を介したナノスケール電気伝導の観測」第 51 回応用物理学会北海道支部学術講演会、2016 年
- ②⑧ T. Misawa, S. Mori, H. Kasa, K. Nakamura, M. Fujioka, H. Kaiju, and J. Nishii, “Fabrication of spin injection devices using  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin-film edge between low-melting-point glasses”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, 2015.
- ②⑨ S. Mori, T. Misawa, H. Kasa K. Nakamura, H. Kaiju, and J. Nishii: “Magnetic properties of  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  thin films and nanoscale electronic transport through  $\text{Alq}_3$  in spin quantum cross devices”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, 2015.
- ③⑩ H. Kaiju, S. Mori, T. Misawa, H. Kasa, N. Nakamura, and J. Nishii: “Nanoscale Junctions Utilizing Magnetic Thin-Film Edges”, 2015 CRL Forum International jointed with the 5th international symposium of Nano-Macro Materials, Devices and System Research Alliance Project, Tokyo Institute of Technology, 2015.
- ③⑪ 三澤貴浩、森澄人、笠晴也、中村晃輔、藤岡正弥、海住英生、西井準治: 「低融点ガラス間  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  薄膜エッジを利用したスピ注入デバイスの創製」第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年
- ③⑫ H. Kaiju and J. Nishii: “Fabrication of ferromagnetic-metal/molecule/ferromagnetic-metal nanoscale junctions utilizing thin-film edges and their structural and electrical properties”, 4th International Symposium on Energy Challenges and Mechanics (ECM4) - working on small scales, 2015.
- ③⑬ H. Kaiju and J. Nishii: “Nanoscale junctions utilizing magnetic thin-film edges”, International Conference and Exhibition on Mesoscopic & Condensed Matter Physics, 2015.

〔その他〕

ホームページ

<http://nanostructure.es.hokudai.ac.jp/>

#### ○プレスリリース

北海道大学、東北大学「新たな物理現象、逆磁気キャパシタンス(iTMC)効果を発見」<sub>1</sub>、2017年6月2日

ブラウン大学 “Researchers flip the script on magnetocapacitance”, 2017年6月2日  
北海道大学「室温巨大磁気キャパシタンス効果の観測にはじめて成功」<sub>1</sub>、2015年10月23日

#### ○報道

Nanotech Japan「新たな物理現象、逆磁気キャパシタンス(iTMC)効果を発見 ~磁石の向きにより電気の溜まり方を自在にコントロール」<sub>1</sub>、2017年6月9日

IEEE Spectrum, “Magnetocapacitance Turned Upside Down Offers a New Tool in Spintronics”, 2017年6月7日

EE Times Japan「北大ら、逆磁気キャパシタンス効果を発見」<sub>1</sub>、2017年6月6日

日本経済新聞「北大と東北大、新たな物理現象・逆磁気キャパシタンス(iTMC)効果を発見」<sub>1</sub>、2017年6月2日

ScienceDaily, “Flipping the script on magnetocapacitance”, 2017年6月2日

AZO MATERIALS, “Scientists Induce Magnetocapacitance Opposite to Normal Capacitance”, 2017年6月2日

Innovations Report, “Researchers flip the script on magnetocapacitance”, 2017年6月2日

OPTRONICS-online「北大ら、室温巨大磁気キャパシタンス効果を観測」<sub>1</sub>、2015年10月26日

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

海住 英生 (KAIJU, Hideo)

北海道大学・電子科学研究所・准教授  
研究者番号: 70396323

##### (2)研究分担者

西井 準治 (NISHII, Junji)

北海道大学・電子科学研究所・教授  
研究者番号: 60357697

長浜 太郎 (NAGAHAMA, Taro)

北海道大学・工学研究院・准教授  
研究者番号: 20357651

##### (3)連携研究者

小峰 啓史 (KOMINE, Takashi)

茨城大学・工学部・准教授  
研究者番号: 90361287