

令和 5 年 6 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14482

研究課題名（和文）ナノ粒子の配列制御による直流-交流動作ハイブリッド型トンネルリング薄膜の創製

研究課題名（英文）DC-AC hybrid-type tunneling thin films with aligned nano particles

研究代表者

青木 英恵（Aoki, Hanae）

東北大学・工学研究科・講師

研究者番号：60733920

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、直流-交流動作ハイブリッド型トンネルリング薄膜材料を実現することを目的として、膜の面内方向に密に粒子が配列する「横粒子層状膜」ならびに膜の面直方向に密に粒子が配列する「縦粒子柱状膜」を作製し、直流-交流トンネル効果の評価および発現機構の解明を行った。横粒子層状膜は、面直粒子間隔を0.3-2.1nmまで制御できるが、面内粒子間隔は0.5-1.0nmの範囲であることから、構造制御により面内面直どちらも粒子間隔の小さい(大きい)状態を実現でき、縦横に柔軟性のある直流-交流ハイブリッドトンネルリング膜の創製に有効であることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

複数の異なる電流・電圧が制御可能なナノスケール構造体の開発は集積化への可能性から注目を集めている。本研究では、自己組織化するナノ複相膜において磁性金属粒子を数nmオーダーで配列させることに成功し、横に直流、縦に交流の異なるトンネル電子が寄与することを見出した。磁界依存するトンネル電子を媒体とすることで、縦横の誘電率および電気比抵抗をそれぞれ4%程度、磁界で制御可能なことを見出した。また、磁氣的孤立を保ったまま、粒子形状を扁平・扁長にすることで、長軸方向に磁気異方性を付与できる形状磁気異方性の効果も実証した。

研究成果の概要（英文）：To realize a DC-AC hybrid tunneling effect in the same thin film, I have fabricated "lateral" and "vertical" nanogranular film in which the metal magnetic particles are densely aligned in the in-plane and out-of-plane direction, respectively. For the lateral films, the spacing between particles in the thickness direction can be controlled from 0.3 to 2.1 nm, while the spacing between particles in the in-plane direction is in the range of 0.5 to 1.0 nm. Then those structural modulations can control both in- and out-of-plane conduction levels by small (large) particle spacing, which is effective for the fabrication of flexible DC-AC hybrid tunneling films.

研究分野：高周波ナノマグネティクス

キーワード：ナノ複相膜 磁性ナノ粒子 トンネル磁気抵抗効果 トンネル磁気誘電効果 形状磁気異方性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

電子デバイスには、直流動作のセンサ素子、交流動作のトランス素子、直流 - 交流を変換するスイッチング素子等がそれぞれ別々に近接して使用されており、消費電力の増加やノイズ干渉の原因となっている。もし直流 - 交流動作をハイブリッドする素子があれば、電子デバイスの低電力化・低ノイズ・高密度化が期待できる。現在直流動作のセンサ・スイッチであるトンネル接合[図1左]は、強磁性層のスピンの状態を変化させると非磁性層のトンネル電流を高効率で変換可能であり、高密度化・省電力化が同時に期待できる。しかしながら、トンネル接合では、一方向の直流のトンネル効果しか得られず、直流から交流まで幅広いトンネル効果が同時に発現可能かどうかは検討されていない。

直径数 nm の磁性金属ナノ粒子がセラミクス中に均一に自己形成するナノグラニューラ膜は、抵抗が磁界で変化するトンネル磁気抵抗効果を示すことが広く知られている。一方、申請者らのグループでは、2014年に交流の誘電率()が磁界で変化するトンネル磁気誘電効果(交流トンネル効果)を世界で初めて発見した[N. Kobayashi et al, Nature comm.(2014)]。両特性の違いは一言でいうと、ナノ粒子間の距離が近いと直流、離れていると交流のトンネル効果が得られる。従来の均一なナノグラニューラ膜では磁性金属組成が決まると粒子間の距離が均一なので、どちらか片方の特性しか得られない[Y. Cao et al, J. Appl. Phys.(2017)]。もし異なる粒子間距離を一つの膜で実現すれば、直流 - 交流両方のトンネル特性を同時に発現させることができる。

2. 研究の目的

本研究は、直流-交流動作を膜の縦方向と横方向にハイブリッドするトンネルリング薄膜材料を実現することを目的とする。すなわち、従来のナノ複相膜ではランダムな分散形態であった球形ナノ粒子を膜の縦と横に異なる間隔で配列し、縦に交流、横に直流の独立したトンネル効果が同時発現するナノグラニューラ膜を創製することを目的とする。

3. 研究の方法

ナノ複相膜の作製は、基板が金属およびセラミクスターゲット上を交互に通過するタンデムスパッタ法で成膜した。膜の組成は XRF、結晶性は XRD、微細構造は TEM で評価した。電気比抵抗は 4 探針法、TMR は膜の面内に 12kOe の磁界を印加したときの電気比抵抗の変化率を評価した。誘電特性は、膜の上下に電極を作製し、低周波(20Hz-1MHz)帯では LCR、高周波(20-120MHz)帯ではインピーダンスアナライザを使用して測定した。TMD は膜の面内に 12kOe の磁界を印加したときの誘電率の変化率を評価した。

4. 研究成果

本研究の成果は、(1) 面直方向の粒子間隔を変化させた Co-BaF₂ 膜の直流・交流のトンネル磁気効果、(2) 縦横に形状の異なる磁性粒子が配列し、縦横に異なる TMR 挙動を示す Co-SiO₂ 膜の 2 つである。以下にそれぞれの成果の内容について記述する。

(1) 面直方向の粒子間隔を変化させた Co-BaF₂ 膜の直流・交流のトンネル磁気効果[1]

扁平形状の Co 粒子を面内配列させた Co-BaF₂ ナノ複相膜 [研究活動スタート支援 19K21102] の作製条件において、縦の交流トンネル磁気誘電効果が面直方向のナノ粒子間隔に依存するとの仮説から、面直方向の粒子間隔を 0.5-2.0 nm まで変化させた膜を作製した。その結果、磁界で変化するスピン依存トンネル分極の最適な厚み(粒子間隔)が 1.0-1.5 nm であることを明らかにした。33 at.%Co であっても粒子を扁平化することで、面直方向

に漏電流の少ない誘電特性と 4%の磁界による変化率が得られ、面内方向には 8%の直流トンネル抵抗効果が得られることを明らかにした。

- (2) 縦横に形状の異なる磁性粒子が配列し、縦横に異なる TMR 挙動を示す Co-SiO₂ 膜[2]
また、Co-SiO₂ ナノ複相膜において縦方向に扁長な磁性粒子が形成し、巨大な垂直磁気異方性を誘起できる成果[H. Kijima-Aoki et al., IEEE Magn. Lett. 9 (2018)]をもとに、本研究では、同組成において粒子形状を扁平にすることにも成功し、それぞれの粒子形状および粒子配列において、面内および面直方向のトンネル磁気抵抗効果の制御手法について検討した。その結果、面内方向の TMR では面内に粒子密度が相対的に大きい扁平粒子膜が、垂直の TMR では扁長粒子膜が、それぞれ 2.8%および 1.0%と大きな値を示した。この結果は、スピン依存トンネル伝導の最適厚みが 1.0-1.5 nm であるという(1)の成果に矛盾せず、かつ、粒子の形状磁気異方性がある方向で効果的に磁化を強めることに起因する。

(1),(2)のナノ粒子の形状・配列方法について検討した結果、垂直・扁平に形状や配列に基づく電氣的・磁氣的な異方性を誘起可能であることを実証した。今後は、マトリクス透過性を生かした磁気光学効果にも本手法を適用し、ナノ複相膜の電磁機能性のさらなる広帯域化を推進したい。

[1] H. Kijima-Aoki et al., J. Magn. Magn. Mater 547 (2022) 168890

[2] H. Kijima-Aoki et al., AIP Advances 12 (2022) 035229

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kijima-Aoki Hanae, Ohnuma Shigehiro, Kobayashi Nobukiyo, Masumoto Hiroshi	4. 巻 547
2. 論文標題 DC and AC tunneling magnetoelectric responses of cobalt lateral nanogranular films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 168890 ~ 168890
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jmmm.2021.168890	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kijima-Aoki Hanae, Endo Yasushi, Miyazaki Takamichi, Nojima Tsutomu, Ikeda Kenji, Kobayashi Nobukiyo, Ohnuma Shigehiro, Masumoto Hiroshi	4. 巻 12
2. 論文標題 Shape effect of Co nanoparticles on the electric and magnetic properties of Co-SiO ₂ nanogranular films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 035229 ~ 035229
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/9.0000310	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 H. Kijima-Aoki, Y. Endo, T. Miyazaki, T. Nojima, K. Ikeda, N. Kobayashi, S. Ohnuma, H. Masumoto
2. 発表標題 Shape effect of cobalt nano-particles on magnetic properties of Co-SiO ₂ nano-granular films
3. 学会等名 2022 Joint MMM-Intermag conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 青木英恵, 打越雄央, 曹洋, 川井哲郎, 野島勉, 遠藤恭, 大沼繁弘, 増本博
2. 発表標題 粒子形状を制御したナノグラニューラー膜の巨大保磁力発現機構の検討
3. 学会等名 マグネティクス研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 青木英恵, 曹洋, 野島勉, 大沼繁弘, 小林伸聖, 増本博
2. 発表標題 Co-SiO ₂ ナノグラニューラー膜の 低温磁気特性におよぼす粒子形状の効果
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋期(第168回)講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 青木英恵, 打越雄央, 大沼繁弘, 小林伸聖, 増本博
2. 発表標題 ナノ粒子を扁平化したナノグラニューラー膜の 粒子形状が及ぼす強磁性・超常磁性への影響
3. 学会等名 第45回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 青木英恵, 本田祥基, 大沼正人, 小林伸聖, 大沼繁弘, 増本博
2. 発表標題 小角散乱法を用いたナノグラニューラー膜の構造とトンネル伝導の関係
3. 学会等名 日本金属学会2022年春季(第169回)講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 青木英恵, 池田賢司, 小林伸聖, 増本博, 遠藤恭
2. 発表標題 周波数帯の誘電特性に及ぼすCo-BaF ₂ ナノ複相膜のCo添加量の効果
3. 学会等名 日本金属学会2023年春季(第170回)講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hanae Kijima-Aoki, Kenji Ikeda, Nobukiyo Kobayashi, Masato Ohnuma, Yoshiki Honda, Hiroshi Masumoto
2. 発表標題 Faraday effects of magneto-dielectric nanogranular films with various particle shape
3. 学会等名 International magnetic conference 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hanae Kijima-Aoki, Hiroshi Masumoto, and Yasushi Endo
2. 発表標題 Magnetic nanopillars in self-organized magneto-dielectric nanocomposite thin films
3. 学会等名 International magnetic conference 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Alejandro G. RocaPaolo MeleHanae Kijima-AokiElvira FantechiJana K. VejpravovaMartin KalbacSatoru KanekoTamio Endo	4. 発行年 2021年
2. 出版社 Springer, Cham	5. 総ページ数 287
3. 書名 Surfaces and Interfaces of Metal Oxide Thin Films, Multilayers, Nanoparticles and Nanocomposites	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>・次世代の工学系女性研究者育成事業 本研究課題のナノ粒子形状と配列に関する成果に着想を得て、2022年度から仙台市の女子高校生を対象とした東北大学での研究者体験プログラムを実施している。このプログラムでは、実際の大学の装置を用いた修士学生レベルの研究テーマを高校生自身が実験・データ整理・考察・発表まで一貫して行い、工学部の女子学生比率の向上を狙うものである。 2022、2023年度学際科学フロンティア研究所・新領域創成プログラム「ナノマテリアルサイエンスを通じた女子高生に対する工学マインドの醸成」の支援を得て実施している。 マテジョ x LABO http://www2.fris.tohoku.ac.jp/~matejo/</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	増本 博 (Masumoto Hiroshi) (50209459)	東北大学・学際科学フロンティア研究所・教授 (11301)	
研究協力者	小林 伸聖 (Kobayashi Nobukiyo) (70205475)	公益財団法人電磁材料研究所・その他部局・主席研究員 (71301)	
研究協力者	大沼 正人 (Ohnuma Masato) (90354208)	北海道大学・工学研究院・教授 (10101)	
研究協力者	野島 勉 (Nojima Tsutomu) (80222199)	東北大学・金属材料研究所・教授 (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関