27aB - 1

スピン三重項超伝導体におけるスピンカロリトロニクス

京大理^A,京大基研^B,阪大院基礎工^C,東北大院工応物^D,ルイジアナ州立大^E 松下太樹^{A,B},水島健^C,安藤慈英^C,正木祐輔^D,藤本聡^C,Ilya Vekhter^E

スピン三重項超伝導におけるクーパー対のスピンは、トポロジカル超伝導や非ユニタリ 超伝導などのエキゾチックな超伝導の起源となる。具体的には、

- 時間反転対称なトポロジカル超伝導体は、クーパー対のスピンカイラリティ (< S_uL_v >)、
- 非ユニタリ超伝導体は、クーパー対のスピン分極(< Su >)により実現する。

しかし、これらのクーパー対のスピン構造を捉える物理現象は明らかにされておらず、 そのことが、物質におけるトポロジカル超伝導や非ユニタリ超伝導の立証を妨げてい た。本発表では、時間反転対称なトポロジカル超伝導体と非ユニタリ超伝導体にお いて、温度勾配により誘起されるスピン伝導を観測することにより、クーパー対のスピン カイラリティやスピン分極を検出できることを示す。具体的には、

- 時間反転対称なトポロジカル超伝導体においては、クーパー対のスピンカイラリティがスピンネルンスト効果(温度勾配に垂直な方向のスピン伝導)[1]、
- 非ユニタリ超伝導体においては、クーパー対のスピン分極がスピンゼーベック 効果(温度勾配に沿ったスピン伝導)を引き起こすことを示す[2]。

これらの温度勾配によるスピン伝導は、クーパー対のスピンにより引き起こされるため、 超伝導転移温度以下で増大する。そのため、スピンネルンスト伝導率やスピンゼーベ ック伝導率が、超伝導転移温度以下で増大する振る舞いを観測することにより、クー パー対のスピンカイラリティやスピン分極を立証できる。

引用文献

[1] T. Matsushita, J. Ando, Y. Masaki, T. Mizushima, S. Fujimoto, and I. Vekhter Phys. Rev. Lett. **128**, 097001(2022).

[2] T. Matsushita, T. Mizushima, Y. Masaki, S. Fujimoto, and I. Vekhter arXiv: 2404.02633 (2024).

All-in-one evaluation method for transverse thermoelectric properties of a single magnetic thin film device

IMR, Tohoku Univ.¹, CSIS, Tohoku Univ.²

^oTakumi Yamazaki¹, Norihiko L. Okamoto¹, Tetsu Ichitsubo¹, and Takeshi Seki^{1,2} E-mail: takumi.yamazaki.d5@tohoku.ac.jp

Transverse thermoelectric conversion, in which a temperature gradient leads to a transverse electric field, is a promising phenomenon for realizing the next-generation energy harvesting technology [1]. The anomalous Nernst effect (ANE) is a representative transverse thermoelectric effect in magnetic materials. The performance of transverse thermoelectric conversion for the ANE is characterized using the figure of merit $z_T T$ (= $S_T^2 \sigma_{yy} T/\kappa_{xx}$), where S_T , σ_{yy} , κ_{xx} and T denote the transverse thermoelectric coefficient, electrical conductivity, thermal conductivity, and temperature, respectively. Although thin film forms offer advantages from the viewpoint of practical thermoelectric applications, the precise evaluation of their thermoelectric figure of merit is quite challenging. Recently, we have demonstrated that $z_T T$ in thin films can be precisely quantified by the combined use of heat-flux method, time-domain thermoreflectance, and four-terminal method [2]. However, the samples specialized for each evaluation method are required, which slows down the throughput speed and prevents the rapid materials development.

In this study, we propose an all-in-one method to evaluate $S_{\rm T}$, σ_{yy} , and κ_{xx} of thin films. The device features a multilayer structure comprising of substrate/magnetic film sample/insulator/transducer. The device structure was fabricated by photolithography and Ar ion milling, enabling the simultaneous measurement of these three parameters with a single device. Herein, κ_{xx} is determined by fitting the temperature response of Joule heating to a theoretical curve derived from a one-dimensional heat conduction model, known as the 2ω method [3]. $S_{\rm T}$ is obtained from the relation of $S_{\rm T} = \kappa_{xx}\Delta T_{\rm AEE}/(dj_cT)$ [4], where *d* and *j*_c represent the sample thickness and applied charge current density, respectively. $\Delta T_{\rm AEE}$ denotes the temperature change induced by the anomalous Ettingshausen effect (AEE), which is the reciprocal phenomenon of the ANE. σ_{yy} is measured using the four-terminal method. To detect the temperature response induced by Joule heating and $\Delta T_{\rm AEE}$, the lock-in thermoreflectance is employed, which is an optical thermometry based on the temperature dependence of reflectivity [5]. To verify the accuracy of the developed 2ω method, κ_{xx} of an Al-O insulating film was measured, yielding a value of 1.15 ± 0.22 W m⁻¹ K⁻¹, which is consistent with values reported in the previous study [6]. Subsequently, the magnetic field dependence of $\Delta T_{\rm AEE}$ of CoFeB film was measured. The obtained response reflects the magnetization curve of the CoFeB film, successfully evaluating the AEE. In the presentation, the details of each measurement method will be explained.

[1] K. Uchida and J. P. Heremans, Joule 6, 2240 (2022). [2] T. Yamazaki *et al.*, Phys. Rev. Applied 21, 024039 (2024). [3] Y. Nakamura *et al.*, Nano Energy 12, 845 (2015). [4] A. Miura *et al.*, Appl Phys. Lett. 115, 222403 (2019). [5] T. Yamazaki *et al.*, Phys. Rev. B 101, 020415(R) (2019). [6] S.-M. Lee *et al.*, Int. J. Thermophys. 38, 176 (2017).

局所熱流注入による磁気イメージング

 一色弘成、Nico Budai、Zheng Zhu、小林鮎子、上杉良太、肥後友也^A、中辻知^A、大谷義近^B (東大物性研、^A東大理、^B理研 CEMS)

Magnetic imaging by local heat injection H. Isshiki, N. Budai, Z. Shu, A. Kobayashi, R. Uesugi, T. Higo^A, S. Nakatsuji^A, Y. Otani^B (ISSP, ^AUniv. of Tokyo, ^BRIKEN)

<u>はじめに</u>

近年、新しい磁性トポロジカル材料が続々と発見されており、それらをスピントロニクスデバイスに組み 込んで高機能化を目指す研究が盛んに行われている。そのため、微細加工された磁性トポロジカル材料に対 する磁気イメージングがますます重要になっている。本発表では、従来の強磁性体のみならず、反強磁性 Weyl 半金属のナノ細線に対しても有効な、空間分解能約80 nm の新しい磁気イメージング手法を報告する。

<u>実験方法</u>

磁性体内の磁気分極と温度勾配の外積方向に電圧を生じる異常ネル ンスト効果に着目した。原子間力顕微鏡の探針を、ヒーターで加熱し た試料細線に接触させることで局所的な面直温度勾配を作る。Fig.1 に 示すように、探針を接触モードでスキャンし試料細線両端に生じる異 常ネルンスト電圧をマッピングすることにより磁気像を得る¹⁾。本稿 では、反強磁性体であるにも関わらずその特異なバンド構造によって 異常ネルンスト効果を示す、反強磁性 Weyl 半金属 Mn₃Sn 多結晶のナ ノ細線に対する測定結果を示す。測定は大気・室温の環境で行った。

<u>実験結果</u>

Mn₃Sn ナノ細線の凹凸像と、対応する磁場印加前後の異常ネ ルンスト電圧マッピング像を Fig.2a,b,c にそれぞれ示す。 Fig.2b,c の正(負)の電圧は、その領域のクラスター磁気八極子 (Mn₃Sn の磁気分極)が+y(-y)方向を向いていることを示してい る。初期状態の Fig.2b では、異常ネルンスト電圧の符号が異な る数百ナノメートル程度の大きさの領域が複数存在しており、 結晶粒に閉じ込められた磁気八極子のドメインがランダムに 分布していることがわかる。一方、外部磁場により細線短手方 向(+y 方向)に磁気八極子を飽和させた後、ゼロ磁場で同じ領域 をマッピングした Fig.2c では、全体的に磁気八極子が+y 方向 を向いていることがわかる。形状磁気異方性のない Mn₃Sn では、 細線の短手方向に、残留磁気分極が生じていることが可視化さ れた。Fig.2cの電圧信号が一様ないことは、多結晶で一部の結 晶粒が異常ネルンスト効果を発現していないことを示してい る。このように、本手法によって、多結晶 Mn₃Sn ナノ細線の磁 気的な構造について新しい知見を得ることができた²⁾。

参考文献:

N. Budai et al. Appl. Phys. Lett. 122, 102401 (2023)
H. Isshiki et al. Phys. Rev. Lett. 132, 216702 (2024)



Fig.1 Concept of the experiment.



Fig. 2 (a) Topography of the Mn₃Sn wire. (b), (c) Local anomalous Nernst voltages before and after applying an external magnetic field. The Seebeck signals have been removed.

GdFeCo フェリ磁性薄膜における熱電発電の負荷抵抗依存性

小林祐希¹, 笠谷雄一², 吉川大貴², 塚本新²

(1日本大学大学院理工学研究科,2日本大学理工学部)

Load resistance dependence of thermoelectric generation in GdFeCo ferrimagnetic thin film

Yuki Kobayashi¹, Yuichi Kasatani², Hiroki Yoshikawa², Arata Tsukamoto²

(¹Graduate school of Science and Technology, Nihon Univ.,

²College of Science and Technology, Nihon Univ.)

<u>はじめに</u>

27aB - 4

温度勾配と磁化に共に直交する方向に電界が生じる異常ネルンスト効果(ANE)は、熱を直接電気エネルギーに変換する Thermoelectric generator(TEG)への応用が期待されている. 我々はこれまでに、電力抽出用負荷抵抗を接続した GdFeCo フェリ磁性薄膜における ANE に根差した熱電発電量の負荷特性が、理想電流源と内部抵抗が並列接続した等価電源回路のような特性を示すことを報告してきた^{1)~3)}.等価電源回路の各素子値と各種物理現象との対応付けにより、熱電効果の等価回路は TEG の負荷特性制御・動作解析の指標となり得るが、先行研究¹⁾⁻³⁾では等価内部抵抗と薄膜物性との対応付けは未検討であった.本報告では、GdFeCo 薄膜における熱電発電の等価電源回路における内部抵抗値と薄膜物性の対応付けに向けた計測検討を行った.

<u>実験方法</u>

垂直磁化膜となるように設計した SiN(60 nm) / Gd₂₂Fe₆₈Co₁₀(20 nm) / SiN(5 nm)を Si 基板上にマグネトロン スパッタ法で作成した.対象薄膜における熱電発電値(負荷抵抗電圧 V_{LT})の負荷抵抗 R_L に対する変動を検討

するため, Fig. 1 のように薄膜に種々の負荷抵抗 R_{LT} を接続した. 薄膜に対して膜面垂直(z)方向に外部磁界 H を印加し, 膜面内(x) 方向に温度勾配 $\nabla_x T$ を与え, V_{LT} を測定した.また, 負荷抵抗を接 続せずに薄膜素子の端子間抵抗 R_{pin} の計測も行った.

<u>実験結果と考察</u>

種々の負荷抵抗 R_{LT} における異常ネルンスト効果に起因する負荷電圧 V_{LT} を Fig. 2 に示す. V_{LT} は R_{LT} の増加に伴い連続的に増加し, R_{LT} の増加と共に一定値に漸近する.この V_{LT} の負荷抵抗依存性につき電子回路理論に基づいて評価する.理想電流源 I と内部抵抗 r_{int} および負荷抵抗 R_L の並列回路で構成される等価回路における負荷電圧 V_L は

$$V_{\rm L} = Ir_{\rm int}R_{\rm L}/(r_{\rm int} + R_{\rm L})$$

で算出できる. この集中定数回路では, $r_{int} \ge R_L$ が等しい場合, V_L は開放電圧の半値となる. ここで,有限の負荷抵抗 ($R_{LT} \le 200 \text{ k}\Omega$)における実測値 V_{LT} の近似線から $V_{LT}(R_{LT}) = V_{LT} (200 \text{ k}\Omega)/2$ となる実効的内部抵抗 $r_{int-eff} \ge 2$ 積もった. (1)式に $r_{int-eff} \ge C$ 代入し算出した等価回路(Fig. 2 挿入図)における $V_{LT} \ge Fig. 2$ に破線で示す. 実測値(plot)と算出値(破線)は R_{LT} に対し同様の変化を示す. 一方で,端子間抵抗 R_{pin} は 80 Ω であり, $r_{int-eff}$ (=360 Ω)に比べ比較



Fig.1 schematic picture of the experimental setup.



Fig.2 Load resistance R_{LT} dependence of load voltage V_{LT} of GdFeCo thin film.

的小さな値を示し,起電力を表す電圧源および端子間抵抗に加え,付加的直列抵抗成分で示されるエネルギ 一損失機構の存在を示唆する結果となった.

(1)

- 1) Y. Kobayashi et al., 第47回 日本磁気学会学術講演会概要集. 28aB-6 (2023).
- 2) Y. Kobayashi et al., 2023 年マグネティックス研究会(IEE-MAG), MAG23-089 (2023).
- 3) Y. Kobayashi et al., MORIS2024, Th-P-14 (2024).

CoFe/Cu 多層膜の磁気熱抵抗効果による巨大熱伝導率変化

牧野楓也^{1,2,4}, 平井孝昌², 志賀拓麿³, 首藤浩文², 藤久裕司³, 大柳洸一⁴, 小林悟⁴, 佐々木泰祐², 八木貴志³, 内田健一^{1,2,5}, 桜庭裕弥^{1,2} (筑波大¹, NIMS², 産総研³, 岩手大⁴, 東大⁵)

Huge changes in thermal conductivity by magneto-thermal resistance effect in CoFe/Cu multilayer Fuya Makino^{1,2}, Takamasa Hirai², Takuma Shiga³, Hirofumi Suto², Hiroshi Fujihisa³, Koichi Oyanagi⁴, Satoru Kobayashi⁴, Taisuke Sasaki², Takashi Yagi³, Ken-ichi Uchida^{1,2,5}, Yuya Sakuraba^{1,2}

(Univ. of Tsukuba¹, NIMS², AIST³, Iwate Univ.⁴, Univ. of Tokyo⁵)

はじめに

巨大磁気抵抗効果(GMR)は磁性多層膜において隣り合う強磁性層の磁化配置に依存して電気伝導率 が大きく変化する現象である。巨大磁気熱抵抗効果(Giant magneto-thermal resistance effect: GMTR) は、磁性多層膜の磁化配置に依存し熱伝導率 κ が変化する現象であり、非接触かつ能動的な伝熱制御 技術の動作原理として期待されている。近年、中山らによって、全層が bcc 構造を有する Co₅₀Fe₅₀(CoF e)/Cu エピタキシャル多層膜系における、膜面直方向の熱伝導率が磁化配置に依存して大きく変化する ことが報告された¹⁾。観測された熱伝導率変化量 $\Delta \kappa$ と磁気熱抵抗比(MTR 比)はそれぞれ24.8 Wm⁻¹K⁻¹と150%であり、MTR 比は室温で磁気抵抗比(MR 比)60%の2倍以上に及ぶ値を示した。この結果 は熱キャリアとして電子とフォノンの寄与だけでは説明できないため、非従来的な熱輸送原理が存在 することが示唆されている。この起源を明らかにするためには、各層膜厚や材料組成等を変えた系統 的な実験と理論的アプローチが必要と考えられる。本研究ではその第一段階とし、CoFe 膜厚の異なる 試料を作製し、GMTR を評価するとともに、熱伝導率に対する電子及びフォノン成分を理論的に解析 した。

実験方法

先行研究の CoFe 3 nm¹⁾より強磁性膜厚の厚い CoFe(6 nm)/Cu 多層膜を MgO 基板(001) 上にマグネト ロンスパッタリング法により作製し、膜面直方向の熱伝導率計測には、時間領域サーモリフレクタン ス (Time-domain thermoreflectance: TDTR) 法を使用した²⁾。得られた温度応答を一次元熱伝導方程式 でモデル化し、解析を行うことで試料の熱伝導率を決定した。

実験結果

作製した CoFe(6 nm)/Cu 多層膜の TDTR 測定を行った結果、Fig.1 (a)に示す通り、平行状態と反平行状態の明瞭な温度応答の変化を観測した。モデル解析により得られた熱伝導率 κ は平行状態(69.5 Wm⁻¹K⁻¹)から反平行状態(34.8 Wm⁻¹K⁻¹)まで変化し、 $\Delta \kappa$ は 34.7 Wm⁻¹K⁻¹と先行研究の約 1.4 倍に及ぶ非常に大きな変化量を示した。電子のスピン自由度を取り入れた、2 流体モデル(Valet-Fert モデル)³⁾を用いて膜面

直方向の MR 比を計算し MTR 比と比較した結果、MTR 比 が MR 比を上回った。大きな $\Delta \kappa$ の要因を調べるため、熱伝 導率の電子成分を Valet-Fert モデルにより得られた電気抵 抗率をヴィーデマン・フランツ則に基づき算出し、フォ ノン成分を TEM(Fig.1 (b))によるナノ構造解析結果に基 づき非平衡分子動力学法から見積もった。その結果、平 行配置においては、電子とフォノン以外の未解明な熱キ ャリア成分が全体の熱伝導率の4割近くにも及び、 $\Delta \kappa$ への寄与も大きいことが示唆された。

参考文献

1) H. Nakayama et al., Appl. Phys. Lett. 118, 042409 (2021).

2) D. G. Cahill, Rev. Sci. Instrum. 75, 5119 (2004). 3) T. Valet et al., Phys. Rev. B 48, 7099 (1993).



黒線はモデル解析結果、(b) TEM 画像

異なる磁性材料と非磁性層が積層した多層膜における マグノンドラック効果の数値的研究

庄子瑛章, 水口将輝*, 大江純一郎

(東邦大,名大*)

Numerical study on the magnon drag effect in magnetic multilayers

T. Shoji, M. Mizuguchi*, J. Ohe

(Toho Univ., *Nagoya Univ.)

<u>はじめに</u>

熱とスピンダイナミクスの相関効果を扱うスピンカロリトロニクス分野において、温度勾配 に対して垂直方向に電圧が生じる異常ネルンスト効果に注目が集まっている。磁性体中の熱電 効果では、通常の電子系の熱起電力に加えて、スピン波の運ぶ電流(マグノンドラック効果) も重要な役割を果たしており、実験と理論の両面から調べられている[1,2]。電子系の熱起電力 を増強する方法はバンドエンジニアリングなどによって提案されているが、マグノンドラック 効果を増強する方法については明らかになっていない。本研究では、このマグノンドラック効 果を増強する系として磁性多層膜に注目し、数値的な解析を行った。

解析方法

Fig.1のような多層膜について、温度勾配下での磁化のダイナミクスを数値的に解いた。特に、層内や層間の強磁性結合定数が異なる場合の指向性スピン波励起に注目した。有限温度の効果は、揺動散逸定理から求められるランダム磁場としてLLG方程式に取り入れた。

解析結果

計算によって、温度勾配を印加することで勾配方向に進行するスピン波振幅の増大を確認した。また、層間結合によってスピン波バンドの分裂が起こり、磁性層間に反強磁性結合があるときに、マグノンドラック効果がより大きくなることが明らかになった。これは反強磁性結合によるスピン波振幅の増大を意味している。また、異なる磁性材料を用いた多層膜では、下層内の交換相互作用が弱いほど上層でのマグノンドラック効果が大きくなることが明らかとなった。

本研究の一部は、科学研究費補助金 基盤研究 (S) (Grant No. 21H05016)、(B) (Grant No. 23K21077)の支援を受けて行われた。

<u>参考文献</u>

[1] T. Yamaguchi and H. Kohno, Phys. Rev. B 99, 094425 (2019).

[2] G. E. W. Bauer, E. Saitoh and J. van Wees, Nature Materials 11, 391 (2012).





Fig.1 Thermal induced spin waves in magnetic multilayers.

Fig.2 Dispersion of the spin wave in magnetic multilayers. Color represents the magnification of the spin wave amplitude

不規則構造 Fe-Ga 合金薄膜の単結晶及び多結晶構造における 異常ホール効果の起源解析

中川碧¹,遠山諒², Simalaotao Kodchakorn^{3,2}, 増田啓介², 三浦良雄^{4,2}, 首藤浩文², 桜庭裕弥^{2,3}, 神田哲典¹ (大島商船高専¹, NIMS², 筑波大³, 京工繊大⁴) Analysis of Origin of Anomalous Hall Effect in

Single Crystal and Polycrystalline of Fe-Ga Disordered Alloys Thin Films

A.Nakagawa¹, R.Toyama², K.Simalaotao^{3, 2}, K.Masuda², Y.Miura^{4, 2}, H.Suto², Y.Sakuraba^{2, 3}, T.Koda¹

(NIT, Oshima Col.¹, NIMS², Tsukuba Univ.³, Kyoto Inst. of Tech.⁴)

はじめに

近年, Society 5.0 の実現が進む中,環境やインフラ等の様々な情報を高速・高感度かつ低消費電力で取得す る革新的なセンサ実現の需要が高まっている.省エネルギー社会の実現に期待される熱流センサは,熱エネ ルギーの流れを直接的に検知することが可能だが,汎用的な熱流センサは未だに実現されていない.磁性体 で発生する異常ネルンスト効果(ANE)は熱流と磁化に垂直な方向に電場が生じる熱電効果である.ANE モ ジュールはシンプルな面内接続構造を実現できるため,耐久性,フレキシビリティに優れる¹⁾.しかし,材料 単体で得られる熱起電力は低く,高い熱起電力を示す磁性材料の探索が進められている.不規則構造 Fe-Ga 合金薄膜の ANE は高い熱起電力を示すことが報告されているが,その起源はまだ明確には解明されていない ²⁾.本研究は,系統的に組成を変化させた Fe_{100-x}Ga_x合金薄膜の単結晶及び多結晶薄膜を作製し,ANE と大き な相関がある異常ホール効果(AHE)について検討した.

実験方法

Fe_{100-x}Ga_xの単結晶及び多結晶薄膜は MgO(100)単結晶基板,熱酸化膜付き Si 基板上にコスパッタ法でそれ ぞれ作製された.組成分析,結晶構造解析,磁化特性はそれぞれ蛍光 X 線分析装置,X 線回折装置,振動試 料型磁力計で評価された.更に物理特性測定装置により,電気抵抗率 ρ_{xx} 及びホール抵抗率 ρ_{yx} を 15 K から 300 K の間で測定し,AHE の輸送特性についてスケーリング解析 ($\rho_{yx}^{A} = a\rho_{xx0} + b\rho_{xx}^{2}$)を行った³⁾.ここで ρ_{xx0} は残留抵抗率を表している. ρ_{yx}^{A} は正常ホール効果を分離するために,飽和磁場より高磁場側における ρ_{yx} の 磁場依存性を線形近似することで得た切片値を採用している.

実験結果

Fig. 1(a), (b)に単結晶及び多結晶薄膜におけるρ^A_{yx} とρ²_{xx}の関係をそれぞれ示す.この関係をスケーリン グ解析式に基づいて線形近似を実行すると,外因性 のパラメータαと内因性のパラメータbが得られる. Fig. 1(c), (d)に単結晶及び多結晶薄膜における内因 性,外因性寄与のGa組成依存性をそれぞれ示す.単 結晶及び多結晶薄膜ともにGa濃度が増加するにつ れ,外因性項αρ_{xx0}が増加する.特に,多結晶薄膜に おけるAHEの輸送特性は,外因性が支配的であるこ とがわかる.スケーリング解析式のαρ_{xx0}はスキュー 散乱を意味するが,その他に結晶粒界起源の散乱も AHEに寄与することが示唆される.

本研究は、NIMS インターンシップ制度及び NIMS 連携拠点推進 制度の支援により遂行されました.



Fig. 1. The scaling analysis of the anomalous Hall effect in (a) single crystal and (b) polycrystalline. The composition dependence of the extrinsic contribution and the intrinsic contribution in (c) single crystal and (d) polycrystalline.

- 1) Yuya Sakuraba et al., Appl. Phys. Express 6, 033003 (2013)
- 2) Hiroyasu Nakayama, Keisuke Masuda, and Yuya Sakuraba et al., Phys. Rev. Mat.3, 114412 (2019)
- 3) Yuan Tian, Li Ye, and Xiaofeng Jin, Phys. Rev. Lett. 103, 087206 (2009)

Ir 添加による Fe₃Co 単結晶薄膜における 異常ホール効果・異常ネルンスト効果に対する外因性の寄与

遠山 諒, 周 偉男, 桜庭 裕弥 (物質・材料研究機構)

Extrinsic contribution to the anomalous Hall effect and Nernst effect in Fe₃Co single-crystal thin films by Ir doping R. Toyama, W. Zhou, and Y. Sakuraba (National Institute for Materials Science)

<u>はじめに</u>

磁性体における熱電輸送特性として、異常ネルンスト効果 (ANE) が挙げられる。ANE とは、磁性体に 温度勾配 (∇T) を印加したとき、∇Tと磁化の単位ベクトル (m) に垂直な方向に異常ネルンスト電界 (Eane) が生じる現象である [1]。 E_{ANE} は、異常ネルンスト係数 (S_{ANE})を用いて $E_{ANE} = S_{ANE}$ ($\nabla T \times \mathbf{m}$)と表される。 一方、∇T を電流に変えた場合は、印加電流と磁化に垂直な方向に異常ホール電圧が生じる異常ホール効果 (AHE) が観測される。SANEは、異常ネルンスト伝導度 (α,y) を介した VT の横方向電流への直接変換による内 因性の寄与と、AHE とゼーベック効果の掛け合わせの寄与の和で表される。内因性起因の ANE については、 モットの関係式より、avvは内因性異常ホール伝導度 (ov)のエネルギー微分として表されるため、内因性AHE と密接に関わっている。ベリー曲率の積分として σxyを計算することにより、内因性 αxyを理論的に計算する ことが可能である。実験的にも、ワイル半金属 Co2MnGa に代表されるように、特異な電子構造に由来して、 大きな内因性 asyが得られることが報告されている [2]。一方、ANE に対する外因性の寄与については、AHE にはスキュー散乱やサイドジャンプといった外因性の寄与が知られていることから、ANE に対しても外因性 AHE の寄与が関係することが考えられる。しかしながら、理論計算の適用の難しさから、あまり深く研究さ れてきていない。実験的に AHE の支配的起源を変化させた例として、強いスピン軌道相互作用を持つ重元素 を試料に添加する方法が報告されている [3]。そこで本研究では、単純な 3d 遷移金属である Fe3Co に重元素 であるIrを添加した組成傾斜薄膜を作製し、AHEに対する外因性の寄与の割合を系統的に変化させることで、 ANE に対する外因性の寄与について、輸送特性測定から実験的に考察することを試みる。

<u>実験方法</u>

コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、(Fe₃Co)_{100-x}Ir_x ($x \le 12\%$) 組成傾斜膜を MgO(100)基板上に成膜した。 れ成傾斜膜の結晶構造を X 線回折 (XRD) により評価した。その後、フォトリソグラフィと Ar イオンミ リングにより、組成傾斜膜をホールバー素子に加工した。PPMS 等を用いて、加工したデバイスの AHE、ANE、 縦抵抗率、ゼーベック効果の Ir 組成依存性を評価した。

実験結果

XRD 測定結果より、(Fe₃Co)_{100-x}Ir_x組成傾斜膜は MgO(100)基板上にエピタキシャル成長しており、x = 7.3%から B2 規則構造 [4] を有することが確認された。AHE 測定結果より、Ir 添加により、300 K において x = 12%で ≈ 9.2 倍という異常ホール抵抗率の増大が観測された。AHE のスケーリング解析を行った結果、Ir 低濃度 領域では Ir 添加直後に外因性寄与が急激に増加し、高濃度領域では内因性寄与が支配的になることがわかった。 た。一方、ANE は、AHE とは異なり、顕著な組成依存性を示さなかった。これらの輸送特性結果より、SANE に対しては、AHE とゼーベック効果に関係した寄与が支配的であることがわかった。また、 a_{xy} は、Ir 添加直 後に正から負の値へと急激に変化し、 $x \approx 1\%$ で負の最大値を示し、x = 12%ではほぼゼロまで減少することが わかった。以上の実験結果から、Ir 添加直後に急激に値・符号が変化する a_{xy} と、Ir 添加直後に増加する AHE の外因性寄与の関連性を実験的に示唆した [5]。

- 1) K. Uchida et al., Appl. Phys. Lett. 118, 140504 (2021).
- 2) K. Sumida et al., Commun. Mater. 1, 89 (2020).
- 3) S. Jamaluddin et al., Phys. Rev. B 106, 184424 (2022).
- 4) R. Toyama et al., Phys. Rev. Mater. 7, 084401 (2023).
- 5) R. Toyama, W. Zhou, and Y. Sakuraba, Phys. Rev. B 109, 054415 (2024).

スキルミオン強磁性体 Fe2-xPdxMo3N 薄膜におけるネルンスト効果

山本 完地¹、強 博文¹、浅野 秀文²、宮町 俊生¹、水口 将輝¹ (¹名古屋大学、²名古屋産業科学研究所)

Nernst effect in ferromagnetic Fe_{2-x}Pd_xMo₃N thin films with skyrmions

K. Yamamoto¹, B.W. Qiang¹, H. Asano², T. Miyamachi¹, M. Mizuguchi¹ (¹Nagoya Univ, ²Nagoya Industrial Science Institute)

【はじめに】

スキルミオンは、ナノスケールの渦状の磁気構造であり、次世代の高密度不揮発性メモリ やロジックデバイスへの応用が期待されている^[1]。そのため、室温で安定的に駆動可能なス キルミオンの生成が必要不可欠となる。ネルンスト効果は、スピン軌道相互作用に起因する 電気伝導と熱伝導のクロスオーバー現象であり、スキルミオンの生成・制御に深く関与して いると考えられる。しかしながら、およそ 30 nV/K²のネルンストシグナルが観測されてい る Gd₂PdSi₃においても、そのキュリー温度は室温には及ばない^[2]。本研究では、室温でスキ ルミオンが形成されることが確認されている Fe_{2-x}Pd_xMo₃N (FPMN) 薄膜におけるネルンス ト効果を調べた^[3]。

【実験方法】

マグネトロンスパッタにより FPMN 薄膜材料をサファイア(001)基板上に作製した。6.4 Pa の窒素雰囲気下、基板温度 580 °Cで成膜を行い、スパッタ時間 90 min で約 50 nm の薄膜試 料を作製した。EDX により試料の組成分析を行った。また、PPMS により室温で 1.5 K 程度 の温度差を付与してネルンスト効果の測定を行った。

【結果】

EDX による組成分析の結果、Pd の組成 (x) が x=0.1、0.3、0.7 の三つの組成の試料が作 製されたことが分かった。試料のネルンスト効果の測定を行った結果、Pd の組成に依存し てネルンスト効果の大きさが変化し、x = 0.3 の試料においておよそ 30 nV/K²の大きさのネ ルンストシグナルが観測され、本試料は従来の強磁性体と比較して最大レベルの大きさの ネルンスト効果を室温で発現することがわかった。また、スキルミオンを生成しない Pd 組 成 (x = 0.1) では、異常ネルンスト効果のみが観測され、トポロジカルネルンスト効果が発 現しないことも分かった。講演では、理論的考察と実験的検証を交えながら、スキルミオン 磁性体におけるネルンスト効果の重要性について議論する。

- [1] 望月維人,日本磁気学会報「まぐね」,10,192 (2015).
- [2] M. Hirschberger et. al., Phys. Rev. Lett., 125, 076602 (2020).
- [3] B. W. Qiang et. al., Appl. Phys. Lett., 117, 142401 (2020).

CoPt 組成傾斜薄膜における L1₀規則化 CoPt の大きな異常ネルンスト伝導度

遠山 諒¹, 増田 啓介¹, Kodchakorn Simalaotao^{1,2}, 周 偉男¹, Varun K. Kushwaha¹, Nattamon Suwannaharn¹, 佐々木 泰祐¹, 桜庭 裕弥^{1,2} (¹物質・材料研究機構,²筑波大学)

Large anomalous Nernst conductivity of *L*1₀-ordered CoPt in CoPt composition-spread thin films R. Toyama¹, K. Masuda¹, K. Simalaotao^{1,2}, W. Zhou¹, V. K. Kushwaha¹, N. Suwannaharn¹, T. T. Sasaki¹, and Y. Sakuraba^{1,2} (¹National Institute for Materials Science, ²Univ. of Tsukuba)

<u>はじめに</u>

異常ネルンスト効果 (ANE) は、磁性体において温度勾配 (∇T) と磁化の単位ベクトルの外積方向に電界が 発生する現象である [1]。ANE は、∇T に対して電界が横方向に発生する横型熱電変換であるため、デバイス 構造を単純化できることから、次世代の熱電デバイスや熱流センサへの応用が期待されている [2]。異常ネル ンスト係数 (SANE) は、二つの異なる起源の和で表される。一つは、異常ネルンスト伝導度 (axy) を介して∇T を横方向電流に直接変換するものであり、もう一つは異常ホール効果 (AHE) によるゼーベック効果誘起電 流の変換である [1]。特に、前者は axy が関わる内因性の起源であり、大きな axy を示す材料が探索されてい る。大きな axy を示す強磁性材料の候補として、Fe-Ga [3] や Co₂MnGa [4] 合金などが報告されている。しか し、これらは結晶磁気異方性 (Ku) の小さなソフトな材料であり、保磁力 (Hc) も小さいことから、デバイス への実応用にはあまり適していない。FePt や FePd などの L10規則合金は、高い Ku と大きな Hc を持ちつつ、 大きな axy を示すことから、有力な候補として考えられている [5,6]。CoPt も L10規則相を示すため、FePt 等と同様に大きな axy が期待されるが、L10-CoPt の ANE に関する実験はこれまでなされていない。そこで本 研究では、CoPt 組成傾斜薄膜を作製し、広い Pt 組成領域における L10-CoPt の axy を系統的に評価することを 目的とする。

実験方法

コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、Co_{100-x}Pt_x組成傾斜薄膜を基板温度 500 ℃ で MgO(100)基板上に 成膜した。また、参照膜として、Co₄₈Pt₅₂均一膜を室温成膜し、600 ℃ でポストアニールした試料も作製した。 作製した薄膜の結晶構造と微細組織を X 線回折 (XRD) と透過型電子顕微鏡 (TEM) により評価した。フォ トリソグラフィと Ar イオンミリングにより、作製した薄膜をホールバー素子に加工した。PPMS 等を用いて、 加工したデバイスの ANE、AHE、縦抵抗率、ゼーベック効果を測定した。また、第一原理計算により、エネ ルギー依存 *a*_{xy} と、*L*10-CoPt の状態密度の Pt 組成依存性を得た。

実験結果

XRD 測定結果より、組成傾斜膜の Pt 濃度が増加するにしたがって、結晶構造が fcc Co, *A*1 不規則相 CoPt, *L*1₀-CoPt, *A*1-CoPt, fcc Pt へと変化することが確認された。*L*1₀規則化した領域のうち、Pt-rich 組成の Co₃₀Pt₇₀ において、 a_{xy} は 2.52 A m⁻¹ K⁻¹の最大値を示した。この値は、*L*1₀-Co₄₈Pt₅₂参照膜の 1.72 A m⁻¹ K⁻¹よりも大き かった。また、これらの値は、過去に報告されている *L*1₀-FePt (0.783 A m⁻¹ K⁻¹) と *L*1₀-FePd (0.321 A m⁻¹ K⁻¹) の a_{xy} の値よりも大きかった [6]。以上の測定結果より、CoPt 組成傾斜膜において、*L*1₀-CoPt の大きな a_{xy} を実験 的に観測した [7]。当日は、第一原理計算により得られたエネルギー依存 a_{xy} と、*L*1₀-CoPt の状態密度の Pt 組成依存性をもとに、Pt-rich 領域で a_{xy} の最大値が得られた理由について、その可能性を議論する。

- 1) K. Uchida et al., Appl. Phys. Lett. 118, 140504 (2021).
- 2) W. Zhou and Y. Sakuraba, Appl. Phys. Express 13, 043001 (2020).
- 3) H. Nakayama et al., Phys. Rev. Mater. 3, 114412 (2019).
- 4) K. Sumida et al., Commun. Mater. 1, 89 (2020).
- 5) K. Hasegawa et al., Appl. Phys. Lett. 106, 252405 (2015).
- 6) Z. Shi et al., Phys. Rev. Appl. 13, 054044 (2020).
- 7) R. Toyama, K. Masuda, K. Simalaotao, W. Zhou, V. K. Kushwaha, N. Suwannaharn, T. T. Sasaki, and Y. Sakuraba, *accepted in J. Phys. D: Appl. Phys.*

重金属元素置換 FeaN 薄膜における異常ネルンスト効果

伊藤啓太¹、関剛斎^{1,2} (東北大金研¹、東北大先端スピン研²) Anomalous Nernst effect in Fe₄N films substituted by heavy metal elements Keita Ito¹, Takeshi Seki^{1,2} (IMR, Tohoku Univ.¹, CSIS, Tohoku Univ.²)

【背景】

新たなエネルギーハーベスト技術として、強磁性体における異常ネルンスト効果(ANE)を利用した横型熱 電変換が注目されている。しかし、半導体におけるゼーベック効果(SE)を利用した熱電変換素子にエネルギ ー変換効率が大幅に及ばない点が課題となっており、大きな異常ネルンスト係数(SANE)を示す新たな強磁性材 料の開発が求められている。Fe4N は資源が豊富な元素から構成されるユビキタス強磁性材料であり、比較的 大きな SANE (1.4~2.2 µV/K)を示す^{1.2)}。加えて、Fe4N の Fe 原子を他の金属で置換することで、電子構造や磁 気特性を大幅に変調することが可能であり³⁾、元素の組み合わせによっては SANE が増大する可能性について 第一原理計算から予測されている^{4.5)}。本研究では、大きなスピン軌道相互作用を有する重金属元素によって Fe 原子を置換する効果を調べるために、過去に合成された報告例がある Fe4xRuxN[®]および Fe4yPtyN⁷⁾の薄膜を 作製し、SANE を評価した。

【実験方法】

分子線エピタキシー法により MgO(001)基板上に膜厚が 21 nm 程度の Fe₄N、Fe_{4-x}Ru_xN (x = 0.02, 0.10)、 Fe_{4-y}Pt_yN (y = 0.04, 0.13)薄膜を 450 °C で作製した。電子線蒸着銃により Fe、Ru、Pt、高周波ラジカル源により N を同時供給することで窒化物薄膜を成膜した。試料の構造は X 線回折(XRD)法により評価した。作製した 薄膜をホールバー素子に加工し、300 K において ANE、SE、異常ホール効果を測定した。熱電効果の測定で は熱勾配(∇T)を窒化物膜面内の[100]方向に印加し、外部磁場を膜面垂直方向に印加した。 ∇T の測定には、素 子上に形成した Pt オンチップ温度計を使用した²。

【結果】

XRD 測定の結果から、すべての試料について MgO(001)基板上へのエピタキシャル成長を確認した。 S_{ANE} の値は Fe₄N、Fe_{3.98}Ru_{0.02}N、Fe_{3.90}Ru_{0.10}N、Fe_{3.96}Pt_{0.04}N、および Fe_{3.87}Pt_{0.13}N 薄膜で、それぞれ 1.33、1.28、1.09、1.36、および 1.54 μ V/K となった。 S_{ANE} は Ru 置換により減少した一方で、Pt 置換量の増大に伴いわずかに増加したことから、Pt 置換が Fe₄N の S_{ANE} の増大に有効であることが示唆された。 S_{ANE} は ρ_{xx} を縦抵抗率、 a_{xy} を横熱電係数、 S_{SE} をゼーベック係数、 θ_{AHE} を異常ホール角とすると、 $S_{ANE} = \rho_{xx}a_{xy} - S_{SE}$ tan θ_{AHE} で表される。 実験で得られた S_{ANE} 、 ρ_{xx} 、 S_{SE} 、tan θ_{AHE} の値を用いて、 a_{xy} を見積もった。 a_{xy} の値は Fe₄N、Fe_{3.98}Ru_{0.02}N、Fe_{3.90}Ru_{0.10}N、Fe_{3.96}Pt_{0.04}N、および Fe_{3.87}Pt_{0.13}N 薄膜で、それぞれ 1.02、0.99、1.02、1.12、および 1.31 A/K·m となった。この結果より、Fe_{4-y}Pt_yN 薄膜における S_{ANE} の増大は主に a_{xy} の増大に起因することが明らかになった。講演ではFe_{4-z}Pd_zN 薄膜における S_{ANE} についても述べる。

参考文献

1) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017). 2) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **132**, 133904 (2022). 3) K. Ito *et al.*, Nanotechnology **33**, 062001 (2022). 4) Y. Tsubowa *et al.*, JSAP Spring Meeting 23a-E205-5 (2022). 5) H. K. Singh *et al.*, Phys. Rev. Materials **6**, 045402 (2022). 5) D. Andriamandroso *et al.*, IEEE Trans. Magn. **29**, 2 (1993). 6) W. George *et al.*, J. Metals **7**, 360 (1955).

<u>謝辞</u>

本研究は JSPS 科研費(JP21K04859)、東北大学金属材料研究所先端エネルギー材料理工共創研究センター、 東北大学電気通信研究所共同プロジェクトの支援を受けた。

Co ポーラス薄膜における異常ネルンスト効果の変調

辻本卓哉, 宮町俊生, 水口将輝

(名古屋大学)

Anomalous Nernst effect in Co porous thin films

Tsujimoto Takuya, Toshio Miyamachi, Masaki Mizuguchi

(Nagoya Univ.)

はじめに新規熱電変換デバイスへの応用として異常ネルンスト効果 (anomalous Nernst effect: ANE) に注目が集まっている^[1]。一般的に ANE は温度勾配と磁化の外積方向に電圧が生じるた め、従来のゼーベック効果よりも自由度の高いデバイス設計が可能となる。一方で、ANE はそ の変換効率の低さが問題となっており、一般的な強磁性体である Fe や Co でのネルンスト係数 (*Sxy*) は 0.3 µ V/K 程度である。熱電変換などのデバイス化に向けてはおよそ 20 µ V/K 以上の変 換効率が必要とされており、近年では *Sxy* の大きな材料の探索や、ナノ構造の導入による低次 元化や熱伝導率の低下を実現し、ANE の実用化を目指す研究が盛んに行われている。我々はこ れまでに Co に MgO をドープしたグラニュラー薄膜^[2]や Co に Ge をドープしたコラムナー薄膜 ¹³において、ANE の増大を報告した。そこで本研究では、新たにポーラス構造に注目し、ポー ラス構造における ANE の変調を明らかにした。

<u>実験方法</u>気相脱合金法を用いてポーラス薄膜を作製した。 MgO(001)基板上にマグネトロンスパッタにより組成の異なる Co₁₋ _xZn_x薄膜を作製し、得られた薄膜を赤外線真空炉により適切な条件で瞬間加熱することにより薄膜中の Zn を選択的に脱合金化させ、Co ポーラス薄膜を得た。その後、走査型電子顕微鏡により ポーラス構造を観察し、物理特性測定システム (PPMS) を用いて ANE を含む磁気輸送特性を測定した。

実験結果 ポーラス化による構造変化の傾向として、加熱温度や加熱時間の増加に伴いポーラス孔が大きくなることが分かった。 650°C、10秒間加熱して作製した試料のポーラス孔は、図1に示すように約50 nm であったが、650°C、2分間加熱して作製した試料では 80 nm 以上となった。これらの試料について ANE の測定を行ったところ、ポーラス化により ANE は増大し、その変換効率は0.7 μ V/K 程度まで増大した(図2)。特にポーラス孔が小さい系で大きな ANE が生じた。今後、さらにポーラス孔の小さい試料を設計することでより大きな ANE の増大が期待できる。



Fig.1. SEM image of Co porous thin film.



Fig.2. ANE of Co porous thin films with different annealing conditions.

- [1] H. Sharma, M. Mizuguchi et al., Sci. Rep., 13, 4425 (2023).
- [2] P. Sheng, M. Mizuguchi et al., Appl. Phys. Lett., 116, 142403 (2020).
- [3] T. Tsujimoto, M. Mizuguchi, 11th International Symposium on Metallic Multilayers, (2023).

Fe を添加した SnSe 薄膜における異常ネルンスト効果

和田和己1、藤田武志2、宮町俊生1、水口将輝1 (¹名古屋大、²高知工科大)

Anomalous Nernst effect of Fe-doped SnSe thin films Kazuki Wada¹, Takeshi Fujita², Toshio Miyamachi¹, Masaki Mizuguchi¹ (¹Nagoya Univ., ²Kochi Univ. Tech.)

はじめに

異常ネルンスト効果 (ANE) は熱磁気効果の一つであり、起電力発生方向が熱流方向に垂直であるという 特徴をもつ。そのため、素子設計を工夫することにより、高性能な熱電発電素子への応用が期待されている 11。しかしながら、実用的な応用に結実した研究例はほとんど報告されていないため、新たなネルンスト材料 の開発が求められている。そこで本研究では、半導体である SnSe に磁性元素である Fe を添加した薄膜を 作製し、その ANE を調べた。SnSe の大きなゼーベック効果による電荷流が Fe によるスピン軌道相互作用や 不純物散乱などによって横方向に散乱されることにより、大きな ANE 電圧が生じることをねらいとした。

実験方法

スパッタリング法により、酸化被膜付き Si 基板上に Fe 元素を添加した SnSe 薄膜を成膜した。 Fe は DC マグネトロン方式で、 SnSe は RF マグネトロン方式で共スパッタを行い、成膜後にアニール処理を 施した。また、それぞれのカソード電力を調整することにより、Feの含有比率が 0~31.2at.% と異なる SnSe 薄膜を作製した。 X 線回折 (XRD) により各試料の結晶構造を、振動試料型磁力計 (VSM) により磁 気特性を測定した。物理特性測定システム (PPMS) により各試料のホール効果、ゼーベック効果、ネルン スト効果の測定を室温で行った。

実験結果

150℃ で1時間アニール処理を施した試料において ネルンスト効果の測定を行ったところ、Fe の含有比率 が 19~23.5% の条件で作製した試料において ANE の増大が見られた。そこで、Fe の含有比率 23.5% の 試料の断面のTEM - EDX マッピングを行ったところ、 Fe が薄膜内で層状に局在していることがわかった。続 いて Fe の含有比率が 23.5% の条件で異なるアニール 時間の試料を作製した。XRD 測定の結果を図1に示す。 アニール処理時間に依存して SnSe ピークの明確なシ フトが見られた。これらの結果より、SnSe 結晶に侵入 していた Fe 原子がアニール処理によって拡散移動し、 層状構造を形成したことが示唆された。また、作製した 薄膜の電子状態がアニール条件によって大きく異な り、ANE にも強く影響を与えることが考えられる。講



Fig.1 XRD patterns of Fe_{23.5}(SnSe)_{74.5} films with: (a) non-annealing, (b) 150°C, 1 hour annealing and (c) 150°C, 5 hour annealing.

演では、アニール条件と ANE の関係についても詳しく議論する。

参考文献

1) M. Mizuguchi and S. Nakatsuji, Sci. Technol. Adv. Mater., 20, 262 (2019).

電圧駆動 MRAM の反転電圧における形状磁気異方性の効果に関する シミュレーション研究

宮崎柊弥^{1,2}, 荒井礼子², 今村裕志^{2,1}, 安川雪子¹ (¹千葉工業大学, ²産業技術総合研究所)

Simulation study on the effect of shape anisotropy on switching voltage of voltage-controlled MRAM Shuya Miyazaki^{1,2}, Hiroko Arai², Hiroshi Imamura², Yukiko Yasukawa¹

(¹Chiba Institute of Technology, ²AIST)

<u>はじめに</u>

現在製品開発されている MRAM (Magnetoresistive Random Access Memory) は電流制御によって情報の書き 込みが行われるため、既存の揮発性メモリと比較して書き込み電力が大きいという問題を抱えている。この 問題を克服するために、電圧制御で書き込みを行う電圧駆動 MRAM (Voltage-controlled MRAM) が研究され ている。VC-MRAM ではパルス電圧印加によって記憶層の磁気異方性を小さくすることで磁化を反転させ情 報の書き込みを行う。従来の研究では反転電圧に対する形状磁気異方性の効果はあまり考慮されていなかっ たが、素子サイズを小さくすると記憶層のアスペクト比が小さくなり形状磁気異方性の効果が重要になると 考えられる。本研究ではマイクロマグネティクスシミュレーションを用いて素子の直径と反転電圧との関係 を調べたのでその結果について報告する。

<u>研究方法と結果</u>

マイクロマグネティクスシミュレーションは mumax3 [1] を用いて行なった。記憶層は円板形状とし、厚 さは 2 nm, 直径は 20 nm ~ 80 nm とした (Fig. 1)。飽和磁化 $M_s \varepsilon$ 1 MA/m, ダンピング定数 $\alpha \varepsilon$ 0.05, 交換 定数 $A \varepsilon$ 20 pJ/m とし、外部磁場 H_{ext} 0.04 T εx 軸方向に印加する [2]。初期状態をz軸方向とし、異方性定数 K_u が 0.4 MJ/m³ ~ 0.8 MJ/m³である場合の安定磁化状態を求め、 K_u に対する m_z の変化を調べた。結果を Fig. 2 に示す。 m_z が 0 の時は磁化は面内方向を、1 の時は面直方向を向いていることを表している。素子の直径 が小さくなるにつれて、磁化状態が面内方向から面直方向へ変わる K_u が小さくなっていることがわかる。こ れは素子の直径が小さくなるにつれてz軸方向の反磁場が小さくなるためであると考えられる。

次に、初期状態の K_u を2 MJ/m³として磁気構造を緩和させたのち、パルス電圧印加による変化を想定して K_u を0.4~0.7 MJ/m³の範囲で変えて磁化ダイナミクスの計算を行い、磁化反転が起こるか確認した。磁化反転は Fig. 2 中の星で示す K_u (= K_u^{sw})より小さい場合に起こることがわかった。初期状態の K_u から K_u^{sw} を引いた値が磁化反転に必要な異方性定数の変化(ΔK_u)であり、素子の直径に対するプロットを Fig. 3 に示す。素子の直径が小さくなるにつれて ΔK_u が大きくなる。このことから、素子の直径を小さくすると大きな反転電圧が必要になることがわかる。



Fig. 1 Schematic illustration of the free layer of a VC-MRAM.



unit vector for different diameters. Stars indicate K_u^{sw} .





- 1) Arne Vansteenkiste, et al., AIP Advances, <u>4</u>, 107133, (2014).
- 2) R. Matsumoto, S. Yuasa, and H. Imamura, Phys. Rev. Appl. <u>18</u>, 054069 (2022).

極薄 Ir キャップ層導入による電圧磁気異方性制御効率の改善

野﨑隆行, 一ノ瀬智浩, 山本竜也, 薬師寺啓, 湯浅新治 (産総研) Improvement of efficiency in voltage-controlled magnetic anisotropy effect by an introduction of an ultrathin Ir capping layer T. Nozaki, T. Ichinose, T. Yamamoto, K. Yakushiji, and S. Yuasa (AIST)

1 はじめに

強磁性超薄膜における電圧磁気異方性制御(VCMA: Voltage-controlled magnetic anisotropy)は従来の電流駆動 と比較して超省電力なスピン制御を可能とする基盤技術として注目を集めており、電圧駆動型(Voltagecontrolled)-MRAM などへの適用が期待されている。VC-MRAM のスケーラビリティー実証および低電圧書 き込みに向けては、多結晶磁気トンネル接合(MTJ)素子における VCMA 効率の増大が求められている。我々 はこれまでに低温ステージを有する量産スパッタ成膜装置(EXIM: 東京エレクトロン株式会社製)を用いて高 品質な MgO/CoFeB 界面の形成を試み、垂直磁気異方性(PMA)やトンネル磁気抵抗効果(TMR)、VCMA 効率 の改善効果について報告してきた¹⁻³)。本研究では MgO/CoFeB/極薄キャップ層 X/MgO をトップフリー層の 基本構造とする MTJ 素子において、様々な極薄キャップ層材料の導入が PMA、TMR、VCMA 特性に与え る影響を系統的に調べた。

2 実験方法と結果

熱酸化膜付き Φ 300mmSi ウェハー上に Ta(5 nm)/Pt (5 nm)/Ru(3 nm)/Ta₅₀B₅₀ (5 nm)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (3 nm)/MgO(2.1 nm)/CoFeB(1 nm)/極薄キャップ層 X(0.2 nm)/MgO(1 nm)/Ru(2 nm)/Ta(3 nm)/Ru(10 nm)構造を作製 した。面内磁界印加下での TMR 測定から PMA および VCMA 特性評価を行うため、下部 CoFeB 層は面内磁 化参照層、上部 CoFeB 層は面直磁化フリー層の 90 度磁化配置型 MTJ となっ

ている。各 CoFeB 層は 100K での低温成長で形成した。極薄 キャップ層 X(0.2 nm)として Ir, Mo, TaB, Mg, Cr, Ti, Ta を導入 した。ポストアニールは温度範囲 200~350℃において無磁界 下で行った。

図1に各ポストアニール温度における VCMA 効率の極薄キャップ材料依存性を示す。極薄キャップ層無し

(MgO/CoFeB/MgO, 57 fJ/Vm)と比較してほとんどのキャップ材料は同等もしくは低い VCMA 効率を示すのに対して、Ir キャップ層を用いた場合は明瞭な増大が見られ、300℃アニール条件下にてキャップ層無しの約 1.8 倍の VCMA 効率(105 fJ/Vm)を示した。同条件下において、PMA 値も約 1.7 倍に増大した。ポストアニール温度の上昇とともに増大する傾向から、極薄キャップ層から MgO/CoFeB 界面への低濃度 Ir 拡散が PMA、VCMA 効率増大の起源であると考えられる。





本研究の一部は国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務(JPNP16007)、 および JSPS 科研費(JP20H05666)助成の結果得られたものである。

- 1) T. Ichinose et al. ACS Appl. Electron. Mater. 5, 2178 (2023).
- 2) A. Sugihara et al. Appl. Phys. Exp. 16, 023003 (2023).
- 3) T. Nozaki et al. APL Mater. 11, 121106 (2023).

Pt/Cr₂O₃/V₂O₃/Pt 薄膜における反強磁性スピンの高効率変調と双方向反転

村山希1、鮫島寛生1、氏本翔1、豊木研太郎1.2.3、中谷亮一1.2.3、白土優1.2.3

(1大阪大学大学院工学研究科、2大阪大学先導的学際研究機構、3大阪大学 CSRN)

High efficiency modulation and bipolar switching of antiferromagnetic spin in Pt/Cr₂O₃ /V₂O₃/Pt epitaxial films Nozomi Murayama¹, H. Sameshima¹, K. Ujimoto¹, K. Toyoki^{1,2,3}, R. Nakatani^{1,2,3}, and Y. Shiratsuchi^{1,2,3} (1 Grad. Sch. Eng., Osaka univ., 2 OTRI, Osaka univ., 3 CSRN, Osaka univ.)

<u>はじめに</u>反強磁性体は、漏洩磁場がなく磁気共鳴周波数が THz帯にあることから超高密度・超高速通信デバイスへの応用が期待される。しかしながら、自発磁化を示さないため、磁気モーメントの検出・制御が困難である。我々は、反強磁性材料として、電気磁気効果を示す Cr₂O₃を用いて界面反強磁性スピンの検出・制御を進めており、ゲート電圧により界面スピンの反転磁場を変調できることを示してきた[1]。さらに、その変調効率が4T・nm/V以上の極めて大きくなることを報告してきた。また、この高い変調効率には、界面構造が強く影響するものと考えられている。本研究では、下地層として Cr₂O₃ と同じコランダム構造をもつ V₂O₃ を用いて、Pt/Cr₂O₃/V₂O₃/Pt 積層膜における反強磁性スピン反転について調査し、Cr₂O₃ バッファー層の反強磁性スピン反転磁場の変調効率への影響について検討した。

実験方法 Pt(2 nm)/Cr₂O₃(20 nm)/V₂O₃(20 nm)/Pt(20 nm)積層膜を α-Al₂O₃(0001)基板上に製膜した。製膜には、DC マグネトロンス パッタリング法を用いた。反射高速電子回折法 (RHEED)、逆格 子マッピングを用いて、作製した薄膜の成長方位を評価し、い ずれの層もエピタキシャル成長していることを確認した。ホー ル効果測定に際して、幅 5µm・長さ 25µm のホールデバイスを 作製した。微細加工には、フォトリソグラフィ法、Ar イオンミ リング法を用いた。磁場と電場の印加方向は、いずれも、膜面 直方向とした。

実験結果 Fig. 1 に、Pt/Cr₂O₃/V₂O₃/Pt エピタキシャル薄膜のホ ール効果曲線を示す。角型性の良いヒステリシスが観測され、 磁場により界面反強磁性スピンが反転していることが分かる。 また、ゲート電圧によりスピン反転磁場が変調することが分か る。ゼロ電圧付近でのスピン反転磁場の変調効率は 67.38 T・ nm/V となり、強磁性材料の VCMA による変調効率と比較して 約 1000 倍[2]となる。Fig. 2 に、ゲート電圧に対するスピン反転 磁場の変化を示す。強磁性材料では困難な電場による双方向反 転観測され、電気磁気効果による反強磁性スピンの超高効率か つ4象限アクセスを達成した。









[1] K. Ujimoto, Y. Shiratsuchi et al., NPG Asia Mater. 16, 20 (2024). [2] T. Nozaki et al., Sci. Rep. 11, 21448 (2021).

Pt/Cr₂O₃/Irエピタキシャル薄膜における反強磁性スピン反転磁場の

電場変調と電圧誘起双方向反転

鮫島寛生¹,村山希¹,氏本翔¹,豊木研太郎^{1,2,3},中谷亮一^{1,2,3},白土 優^{1,2,3} (1大阪大学大学院工学研究科,2大阪大学先導的学際研究機構,3大阪大学 CSRN)

E-field modulation of AFM spin reversal field and bipolar switching in Pt/Cr₂O₃/Ir epitaxial thin film Hiroki Sameshima¹, Nozomi Murayama¹, Kakeru Ujimoto¹, Kentaro Toyoki^{1,2,3}, Ryoichi Nakatani^{1,2,3}, and Yu Shiratsuchi^{1,2,3}

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 OTRI, Osaka Univ., 3 CSRN, Osaka Univ.)

はじめに 反強磁性体は,漏洩磁場がなく磁気共鳴周波数が THz 領域にあることから 超高密度・超高速駆動デバイスへの応用が期待される.しかしながら,反強磁性体はスピンが内部で補償されているため,スピンの検出と制御において強磁性体とは異なるアプローチが必要とされている.これまでに我々は,電気磁気効果を示す反強磁性体 Cr₂O₃を用いて, Pt/Cr₂O₃/Pt 積層膜における反強磁性スピン反転とスピン反転磁場の 電場変調について報告してきた[1].また,バルクとは異なる界面の電気磁気効果が発現することを示したが,この結果は,非磁性重金属材料の選択による界面構造の最適化により更なる高効率化が可能であることを示唆する.本研究では, Pt/ Cr₂O₃/Ir 3 層膜における電場による反強磁性スピンの反転について報告する.

実験方法 試料作製には DC マグネトロンスパッタリング法を 用い, Pt(2 nm)/Cr₂O₃(15 nm)/Ir(20 nm)//α-Al₂O₃(0001)薄膜を製膜 した.構造評価には,反射高速電子線回折法及び X 線回折法を 用いた.磁気特性評価には,ゲート電圧を印加しながら異常ホ ール効果を測定する手法を用いた.測定のために,作製した薄 膜はフォトリソグラフィ法及び Ar イオンミリング法を用いて, 幅 5 μm,長さ 25 μm のホール素子に微細加工した.測定時のゲ ート電圧及び磁場の印加方向は,膜面直方向とした.

実験結果図1に、275Kで測定したホール電圧のゲート電圧 依存性を示す.磁場は±0.5Tで固定し、電圧を0~-0.9Vで掃 引している.角形の明確なヒステリシスが観測され、両ヒステリ シスにおいて、-0.15V及び-0.80V付近で反強磁性スピンが 反転しており、正負の磁場によりヒステリシスの向きが反転し ていることが分かる.図2に、各磁場(電場)を固定して電場 (磁場)を掃引したときの反強磁性スピンが反転する電場(磁 場)のプロットを示す.電場・磁場のどちらを掃引した際も双 方向の反転が観測された.この4象限のプロットは、反強磁性 スピンの電場による変調が電気磁気効果由来であることを示唆 している.

本研究は、科学研究費補助金基盤研究(B)(課題番号 22H01757)および文部科学省「スピントロニクス学術研究基盤と 連携ネットワーク拠点(Spin-RNJ)」の支援を受けて行われました。

[1]. K. Ujimoto, Y. Shiratsuchi et al., NPG Asia Mater. 16, 20 (2024).



W/CoFeB 界面への Gd-CoFeB 合金挿入による ダンピングライクトルクの向上

○(M2)徳永 和彦¹, 黒川 雄一郎¹, 湯浅 裕美¹ (九州大学¹)

Improvement of dumping-like torque by inserting Gd-CoFeB alloy at the W/CoFeB interface OKazuhiko Tokunaga¹, Yuichiro Kurokawa¹, Hiromi Yuasa¹

(Kyushu Univ.¹)

背景

重金属/強磁性体界面で発生するスピンオービットトルク (SOT) は、電流による磁化制御方法として MRAM や磁壁、スキルミオンデバイスなどに応用が可能であり、注目されている。この SOT は、大きなスピン軌道 相互作用 (SOC) に由来するスピンホール効果 (SHE) によって誘起される。さらに近年、SOC の大きさによ らず軌道角運動量が偏極する軌道ホール効果 (OHE) が次世代の磁化制御方法として注目されてきた。しか し、OHE に基づく軌道流は強磁性体に直接トルクを与えることが難しいため、軌道流からスピン流への変換 過程が必要となる¹⁾。本研究では、SOC の大きいと予想される Gd を磁性層 CoFeB と合金化し、重金属と強 磁性体の界面に挿入することによって軌道流をスピン流に変換する。重金属での SHE によるスピン流と、Gd-CoFeB で OHE から変換されたスピン流の足し合わせでトルクの増強を目指し、ダンピングライクトルク の測定を行った。

実験方法

熱酸化 Si 基板上に、W (5 nm)/Gd₅₀(Co₂₀Fe₆₀B₂₀)₅₀ (*t*_{Gd-CFB} nm)/CoFeB (1.0 nm)/MgO (1.5 nm)/Ta (3 nm) (*t*_{Gd-CFB} =0, 0.3, 0.6)の多層膜をスパッタリングにより成膜した。今回、スピン流と軌道流の注入源としてWを使用した。 CoFeB に垂直磁気異方性を持たせるために、試料を 270℃で熱処理した。試料はフォトリソグラフィにより ホールバー状に加工した。ダンピングライクトルクは高調波ホール電圧測定によって求めた。印加した交流 電流と同方向に面内磁場を印加し、基本波および第二高調波を測定した。それらのフィッティング結果から ダンピングライクトルクによって生じる有効磁場を見積もり、実効ダンピングライクトルク係数 (ξ_{DL})を計算 した⁻²。

実験結果

Fig.1 は高調波ホール電圧測定より求めた ξ_{DL} を示している。結果として、Gd-CoFeB を挿入することによって ξ_{DL} が向上した。挿入層の膜厚の増加に対して ξ_{DL} は線形に増加することが分かった。これは、W から流れ

込むスピン流が Gd-CoFeB 中で減衰する可能 性も考えられるが、それに対して、Wから流 れ込む軌道流が Gd-CoFeB 中の Gd によってス ピン流へと変換される効果が支配的であるこ とを示唆する。その結果、最終的に Gd-CoFeB の挿入と厚膜化により、CoFeB の磁化に働くト ルクが増大したと考えられる。この結果は磁化 制御効率をさらに向上させる道筋を示すもの である。

参考文献

- 1) G. Sala and P. Gambardella Phys. Rev. Research 4, 033037 (2022)
- M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H. Ohno Phys. Rev. B 89, 144425 (2014)



Fig.1 Dependence of effective damped-like torque efficiency (ξ_{DL}) on insertion layer thickness

垂直磁化 W/CoFeB/MgO における電流駆動磁壁移動機構の解析

梅津信之,カンサミカエル,橋本進,近藤剛,門昌輝 (キオクシア株式会社 先端技術研究所)

Analysis of current induced domain wall motion in perpendicularly magnetized W/CoFeB/MgO systems

N. Umetsu, M. A. Quinsat, S. Hashimoto, T. Kondo, M. Kado

(Frontier Technology Research and Development Institute, Kioxia Corporation)

<u>はじめに</u>

Racetrack memory¹) に代表される電流駆動磁壁移動現象を利用するデバイスの実現には、磁壁移動層 の磁気特性の調整による磁壁ダイナミクスの制御が要求される.垂直磁気異方性を有する W/CoFeB/MgO は spin orbit torque (SOT) 駆動の磁壁移動が生じる代表的な積層膜であるが、磁壁移動挙動の磁気特性依 存性は十分に調査されていない.我々はこの積層膜において、先行研究と一致する電流方向の磁壁移動 だけでなく²,電子流方向の磁壁移動も観測した.後者はSpin Hall angle とDzyaloshinskii-Moriya interaction

(DMI)の符号組合せ³⁾から予想される結果と矛盾しており,機構解明のためには実際の磁壁移動層の 磁気特性を反映したモデル構築が望まれる.本研究では,電流駆動磁壁移動に関与する磁気特性を系統 的に評価した結果,およびこれに基づいて磁壁移動特性をモデル計算した結果について報告する.

<u>解析方法</u>

飽和磁化,垂直磁気異方性は vibrating sample magnetometry 測定, DMI 磁場とデピニング磁場は磁区バ ブル拡大実験^{4,5)}, SOT 効率は harmonic Hall 電圧測定⁶⁾ により評価した.磁壁移動方向と磁壁移動しき い値電流密度は, 2um 幅の磁性細線に 20ns のパルスを印加する電流駆動磁壁移動実験において,磁壁位 置変化を磁気光学顕微鏡により測定することで取得した.磁壁移動特性の計算は磁壁ダイナミクスを磁 壁位置と磁壁磁化角度の2変数の時間発展で記述する1次元モデル^{7,8)}を用いて実施した.数値計算に は磁気特性の評価結果を反映したパラメータを用いた.ただし,直接的な測定手法が確立していない外 因性ピニング磁場にはデピニング磁場を代用した.

<u>結果</u>

Fig.1に5つのサンプルの磁壁移動しきい値電流密度 の実験結果と計算結果の比較を示す(符号は磁壁移動方 向を表す).成膜アニール温度300(400)℃のサンプル において磁壁移動方向が電子流(電流)方向となる実験 結果をモデル計算によって再現することに成功した.モ デル解析により磁壁速度と磁壁移動しきい値電流密度 の磁気特性依存性を定式化し,SOT,DMIの他にSTT や外因性ピンニングも磁壁移動方向の決定因子である ことを見出した.

参考文献

- 1) S. S. P. Parkin et al., Science **320**, 190 (2008).
- 2) J. Torrejon et al., Nat. Commun. 5, 4655 (2014).
- 3) M. Kim et al., J. Magn. Magn. Mater. 563, 169857 (2022).
- 4) R. Soucaille et al., Phys. Rev. B 94, 104431 (2016).
- 5) V. Jeudy et al., Phys. Rev. B 98, 054406 (2018).
- 6) M. Hayashi et al., Phys. Rev. B 89, 144425 (2014).
- 7) G. Tatara et al., Phys. Rep. 468, 213 (2008).
- 8) E. Martinez et al., J. Appl. Phys. 116, 023909 (2014).



Fig.1 Comparison of experiments and simulations on the threshold current density of domain wall motion (PHE: planar Hall effect, AHE: anomalous Hall effect)