

# 2023年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」 調査研究報告書(公開版)

## 【研究題目】

スピネル酸化物薄膜のスピン트로ニクス素子応用に向けた調査研究  
Research on development of spinel oxide thin films for spintronics devices

【整理番号】 TK23-042

【代表機関】 筑波大学

【調査研究代表者(氏名)】 柳原 英人

【TIA 内連携機関：連携機関代表者】 東京大学：岡林潤、NIMS：介川裕章

## 【TIA 外連携機関】

【報告書作成者】 柳原英人 【報告書作成年月日】 2024/4/20

## 【連携推進(具体的な連携推進活動内容とその活動の効果等)】

筑波大学の大学院生1名がNIMSの設備を利用して素子加工を行う準備を行った。成膜装置の改造に伴い、前年度までにある程度確立した多層積層構造膜の成膜プロセスについてその条件を再確認する必要が生じたため、連携研究者(介川氏)の助言を受けながら実験を進めた。

## 【調査研究内容(実験等中心に背景・課題と実行された課題解決の内容と結果)】

電圧印加による磁気層間結合の制御可能性について、昨年度に引き続き実験的な検討を行った。磁気相関結合の電圧制御についてはこれまでいくつかの報告例があるものの多くの場合これらは、界面付近での酸化還元反応に伴う界面状態の変化がその起源であった。本研究では、(電気化学的な変化を伴わない)純粋に電子状態のみの変化に伴う交換結合の制御を目指している。ここでは反強磁性的磁気層間結合を示す  $\text{Fe}/\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4$  に着目し、この系にバイアス電圧を印加するための下部電極層の探索、積層構造の成膜条件の最適化をおこなった。特に重要となるのが、 $\text{Fe}/\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4$  に電圧を印加するために必要となる適切な下部電極材料である。昨年度までに得られた知見として、下部電極層として導電性酸化物である  $\text{CoV}_2\text{O}_4$ [1] を用いて、 $\text{Fe}/\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4/\text{CoV}_2\text{O}_4(001)$  の積層構造を作製することで  $\text{Fe}$  と  $\text{CoV}_2\text{O}_4$  間に電圧印加が可能であることが挙げられる。一方で、 $\text{CoV}_2\text{O}_4$  の電気抵抗が高いため、電圧印加時に電圧降下の大半が下部電極である  $\text{CoV}_2\text{O}_4$  内で生じることから、効率よく  $\text{Fe}/\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4$  界面に電圧印加させる手法を開発する必要があることも明らかになった。そこで  $\text{CoV}_2\text{O}_4(001)$  に代わる導電性酸化物下地層の探索を中心に実験をすすめた。近年報告された低酸素状態で作製することで導電性を生じる  $\text{Co}_{0.125}\text{Fe}_{2.875}\text{O}_4$  薄膜を下地層とすることを検討した。

試料は反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により作製した。まず、Co:Fe=1:23 の組成比の合金ターゲットに酸素を反応ガスとして導入し成膜を行った。このとき、 $\text{Co}_{0.125}\text{Fe}_{2.875}\text{O}_4$  薄膜が低抵抗かつ、垂直磁化膜となる条件を探索した。また酸素導入料は金属モードでスパッタされるように調整した。その結果、飽和磁化と角型比は、高酸素導入時に生成される試料と比べて低下したものの垂直磁化膜である導電性のスピネルフェライト膜を成長できることを確認した。続いてこの上部に絶縁性の  $\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4$  の作製を試みた。Co:Fe=1:3 となる合金ターゲットを用いて、化合物モードになる程度に十分な酸素を導入して成膜したところ、良好な垂直磁化膜となることを確認できた。しかしながら、 $\text{Co}_{0.125}\text{Fe}_{2.875}\text{O}_4/\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4$  の 2 層構造膜は、完全な絶縁膜となっており、下部電極となる  $\text{Co}_{0.125}\text{Fe}_{2.875}\text{O}_4$  の成膜後、 $\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4$  を成膜する際に下部電極の酸化が進むことで、導電性が失われたものと考えられる。

[1] Atsushi Hidaka, Hiroki Koizumi, and Hideto Yanagihara, “Magnetic and electric properties of the spinel oxide  $\text{CoV}_2\text{O}_4$  (001) films”, Japanese Journal of Applied Physics 62 053001 (2023).

#### 【今後の活動予定】

MgO と同程度の格子定数を持ち、かつ酸素あるいは酸素プラズマによって導電性を失わない下部電極材料の探索を続ける。そして前年度にある程度確立した素子作製技術と組み合わせて大きな電圧印加可能な素子を作製し、層間結合の電圧効果を調べる予定である。

【SDGs17 目標について、調査研究成果について、貢献ができると思われる項目があれば、最大3つまで☑をご記載下さい。】

研究成果に関連する SDGs 目標がある。

関連する SDGs 目標は無い

1 <input type="checkbox"/> 貧困をなくそう	2 <input type="checkbox"/> 飢餓をゼロに
3 <input type="checkbox"/> すべての人に健康と福祉	4 <input type="checkbox"/> 質の高い教育をみんなに
5 <input type="checkbox"/> ジェンダー平等を実現しよう	6 <input type="checkbox"/> 安全な水とトイレを世界中に
7 <input type="checkbox"/> エネルギーをみんなに、そしてクリーンに	8 <input type="checkbox"/> 働きがいも経済成長も
9 <input checked="" type="checkbox"/> 産業と技術革新の基盤を作ろう	10 <input type="checkbox"/> 人や国の不平等をなくそう
11 <input type="checkbox"/> 住み続けられるまちづくりを	12 <input type="checkbox"/> つくる責任、つかう責任
13 <input type="checkbox"/> 気候変動に具体的な対策を	14 <input type="checkbox"/> 海の豊かさを守ろう
15 <input type="checkbox"/> 陸の豊かさを守ろう	16 <input type="checkbox"/> 平和と公正をすべての人に
17 <input type="checkbox"/> パートナリーシップで目標を達成しよう	

以上