Title	強磁性ナノ構造を用いた光照射巨大磁気誘電デバイスの創製
Sub Title	Creation of light-induced large magneto-dielectric devices using magnetic nanostructures
Author	海住, 英生(Kaiju, Hideo) 西井, 準治(Nishii, Junji) 長浜, 太郎(Nagahama, Taro)
Publisher	
Publication year	2022
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2021.)
JaLC DOI	
Abstract	絶縁体中に磁気ナノ微粒子が分散した磁気グラニュラー素子は、磁気抵抗効果、磁気誘電効果、ファラデー効果など、磁性、誘電性、光に関連した興味深い現象を示す。本研究課題では、2次元磁気ナノグラニュラー素子において、光照射磁気誘電現象の発現を目指すとども、そのメカニズムを明らかにすることを目的とした。その結果、本素子において、光抵抗効果、及び光キャパシタンス効果の観測に成功した。また、それぞれの実験結果はQuantum-mechanical tunneling (QMT)模型とDebye-Frohlich(DF)模型による計算結果と良い一致を示した。 Magnetic granular devices, which consist of nanoparticles dispersed in an insulating matrix, show interesting phenomena related to magnetism, dielectrics, and light, such as magnetoresistance effect, magnetocapacitance effect, and Faraday effect. In this study, we investigate photo-induced magneto-dielectric effect and clarify the mechanism of the phenomena in two-dimensional magnetic granular. As a result, we successfully observe light-induced resistance (LR) effect and light-induced capacitance (LC) effect in two-dimensional magnetic granular. We can also explain the LR effect by quantum-mechanical tunneling (QMT) model and LC effect by Debye-Frohlich (DF) model, respectively.
Notes	研究種目 : 挑戦的研究 (萌芽) 研究期間 : 2019～2021 課題番号 : 19K22093 研究分野 : 応用物性
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_19K22093seika

様　式　C－19、F－19－1、Z－19　（共通）

科研費 KAKENHI

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　４ 年　 ５ 月 １９ 日現在

機関番号：３２６１２
研究種目：挑戦的研究（萌芽）
研究期間：2019～2021
課題番号：１９Ｋ２２０９３

研究課題名（和文）強磁性ナノ構造を用いた光照射巨大磁気誘電デバイスの創製

研究課題名（英文）Creation of light-induced large magneto-dielectric devices using magnetic nanostructures

研究代表者
海住　英生（KAIJU, Hideo）

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・准教授

研究者番号：７０３９６３２３

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　5,000,000円

研究成果の概要（和文）：絶縁体中に磁気ナノ微粒子が分散した磁気グラニュラー素子は、磁気抵抗効果、磁気誘電効果、ファラデー効果など、磁性、誘電性、光に関連した興味深い現象を示す。本研究課題では、2次元磁気ナノグラニュラー素子において、光照射磁気誘電現象の発現を目指すととも、そのメカニズムを明らかにすることを目的とした。その結果、本素子において、光抵抗効果、及び光キャパシタンス効果の観測に成功した。また、それぞれの実験結果はQuantum-mechanical tunneling (QMT)模型とDebye-Frohlich(DF)模型による計算結果と良い一致を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
本研究成果は、光学、磁性、誘電性が互いに融合した新たな学際領域を創出させると同時に、次世代超高感度・低消費電力磁気メモリ素子の実現に向けた新しい設計指針を与えるものと期待できる。

研究成果の概要（英文）：Magnetic granular devices, which consist of nanoparticles dispersed in an insulating matrix, show interesting phenomena related to magnetism, dielectrics, and light, such as magnetoresistance effect, magnetocapacitance effect, and Faraday effect. In this study, we investigate photo-induced magneto-dielectric effect and clarify the mechanism of the phenomena in two-dimensional magnetic granular. As a result, we successfully observe light-induced resistance (LR) effect and light-induced capacitance (LC) effect in two-dimensional magnetic granular. We can also explain the LR effect by quantum-mechanical tunneling (QMT) model and LC effect by Debye-Frohlich (DF) model, respectively.

研究分野：応用物性

キーワード：スピントロニクス　ナノ構造　磁性　誘電率　光学

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９（共通）

１．研究開始当初の背景

近年、磁場により電気分極が変化する磁気誘電(MD)効果は磁気メモリ、ロジック回路素子、高周波インピーダンスチューナブルデバイス等への様々な応用が期待されていることから大きな注目を集めている。MD 効果は、時間反転対称性と空間反転対称性が破れている系で観測される。これまでに MD 効果は磁気ナノグラニュラー材料、強磁性トンネル接合、分子スピンバルブ素子、強磁性単電子トランジスタ等の系で見出されてきた。その中で、本研究では、光照射により誘電特性の変化が期待できる 2 次元磁気ナノグラニュラー材料に注目した。

磁気ナノグラニュラーは絶縁体中に磁気ナノ微粒子が分散した構造を有する。この磁気ナノグラニュラーを 2 次元化した素子において、我々は MD 効果を見出した(*Appl. Phys. Lett.* **116**, 082401 (2020))。この 2 次元磁気ナノグラニュラー素子では、3 次元素子と比較して、磁場に対する誘電率変化が向上した。さらに、薄膜化したことにより、素子への光照射が可能になった。これにより光照射誘電現象の観測が可能になると期待できる。

２．研究の目的

本研究では、2 次元磁気ナノグラニュラー素子において、光照射磁気誘電現象の発現を目指すととも、そのメカニズムを明らかにすることを目的とした。本研究課題の推進は、光学、磁性、誘電性が互いに融合した新たな学際領域を創出させると同時に、次世代超高感度・低消費電力磁気メモリ素子の実現に向けた新しい設計指針を与えるものと期待できる。

３．研究の方法

交流 2 端子法を用いて、Fe(3.0 nm)/MgF_2(50 nm)から構成される 2 次元磁気グラニュラーの光照射磁気抵抗、及びキャパシタンス特性を調べた。図 1 にデバイス構造と測定セットアップの概略図を示す。抵抗、及びキャパシタンスの測定には LCR メータ(Keysight Technologies, 4284A)を用いた。測定周波数は 100 Hz から 1 MHz とし、交流電圧は 100 mVrms とした。磁場の発生には電磁石(GMW, 3470-S)を用いた。最大磁場は 9 kOe とした。レーザー光源には半導体レーザーを用いた。レーザー波長は 445 nm(青)、532 nm(緑)、635 nm(赤)、パワーは 0.12 mW とした。光学系は半波長板、偏光子、ND フィルターにより構成した。

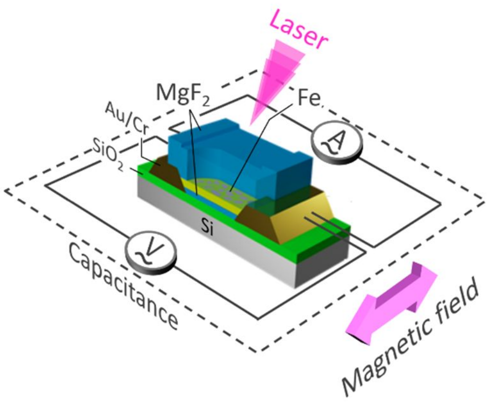

図 1 デバイス構造と測定セットアップの概略図

４．研究成果

図 2 にレーザー光照射(波長: 635 nm)による抵抗の時間応答性を示す。レーザー光照射により抵抗が変化することがわかる。600 Hz ではレーザー光を照射すると、抵抗が増大する。一方で、周波数を高くすると、5 kHz ではレーザー光照射により抵抗は減少する。このように光抵抗効果において符号反転現象が見られた。この符号反転現象は高周波帯域でも生じた。また、200 kHz 以上では、レーザー光照射により抵抗の緩やかな応答が観測された。図 3(a)に光抵抗変化率の周波数特性を示す。符号反転が見られると同時に、高周波帯域では光抵抗変化率が増加することもわかる。このような現象は、445, 532 nm のレーザー光波長においても見られた。また、MΩ級の高抵抗試料でも観測された。図 3(b)にレーザー光照射前後の抵抗の周波数特性を示す。周波数が高くなるに従い、抵抗が小さくなることがわかる。この現象を明らかにするために、Jonscher の式に基づいた Quantum-mechanical tunneling (QMT) 模型と

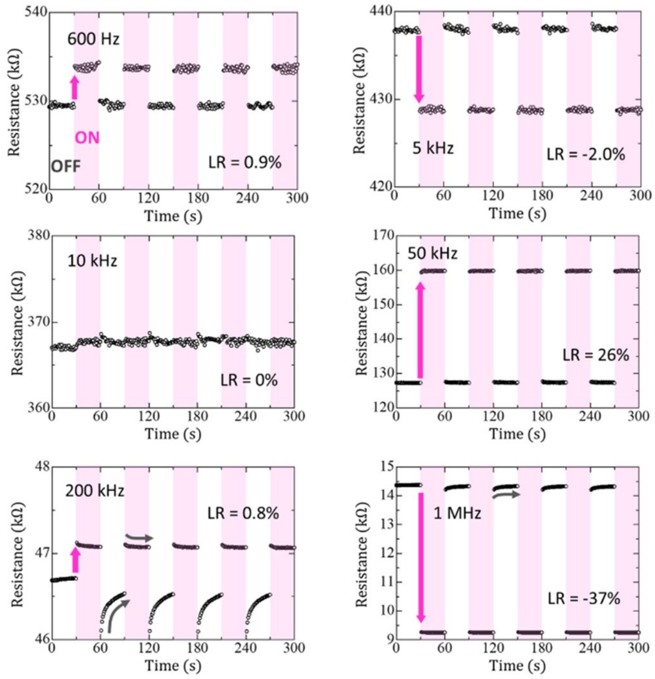

図 2 レーザー光照射による抵抗の時間応答性

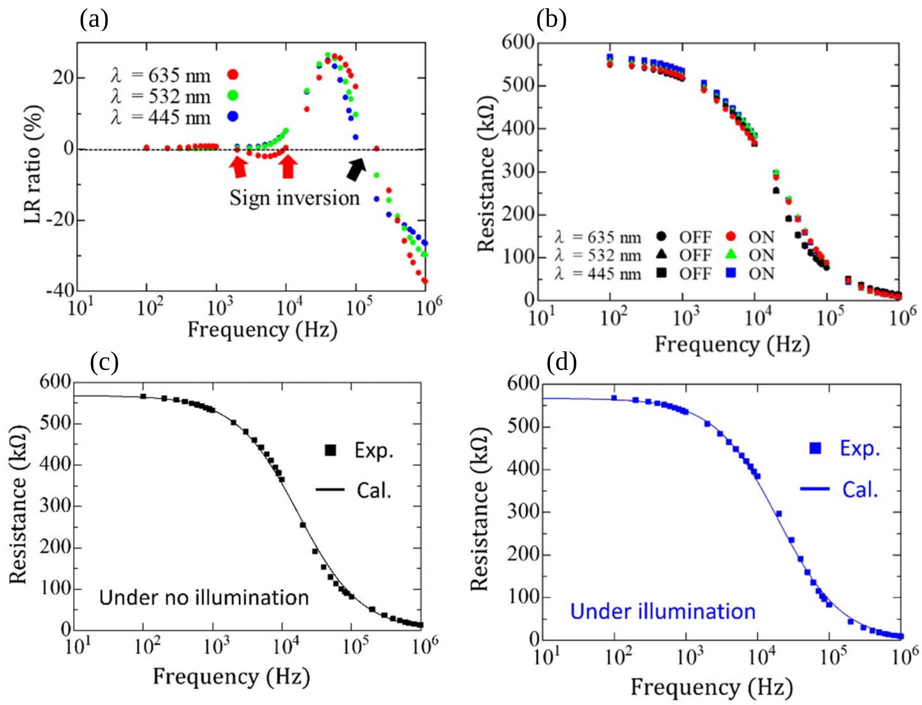

図 3 各レーザー波長における(a)光抵抗変化率と(b)抵抗の周波数特性、レーザー照射(c)前と(d)後の抵抗の周波数特性(実験結果と計算結果)

Correlated barrier hopping (CBH) 模型を組み合わせた理論解析を行った。図 3(c)と(d)に実験結果と計算結果を示す。照射レーザー光の波長は 445 nm とした。図 3(c)と(d)より実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかる。

次に、レーザー光照射によるキャパシタンス特性について示す。キャパシタンス(=静電容量)は誘電率に比例した物理量である。図 4 にレーザー光照射(波長: 635 nm)によるキャパシタンスの時間応答性を示す。レーザー光を照射することによって、キャパシタンスが変化することがわかる。周波数を高くすると、その変化率は大きくなる。また、光抵抗効果と異なり、測定全周波数帯域において、俊敏な応答を示した。

図 5(a)に光キャパシタンス変化率の周波数特性を示す。高周波帯域において、光キャパシタンス変化率が大きくなることがわかる。このような現象は、445, 532 nm のレーザー光波長においても見られた。図 5(b)～(d)にレーザー光照射前後のキャパシタンスの周波数特性を示す。周波数が高くなるに従い、キャパシタンスが小さくなることがわかる。この現象を明らかにするために、Debye-Fröhlich(DF)模型を用いた計算を行った。このとき、計算では 2 つのキャパシタンスが並列に繋がった等価回路を仮定した(図 6(a))。2 つのキャパシタンスは、図 6(b)の高角度環状暗視野走査透過型電子顕微鏡(HAADF-STEM)像に示すように、孤立した Fe ナノ粒子と接触した Fe ナノ粒子の 2 つの状態がナノグラニュラー中に存在することに由来する。図 5(b)～(d)より、実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかる。これは光キャパシタンス効果が Fe 粒子間の電気双極子に起因することを意味する。磁気ナノグラニュラー中の磁性ナノ粒子間には、正孔と電子からなる電気双極子が存在することが知られている(*Nat. Commun.* **5**, 4417 (2014))。粒子間のトンネル確率が大きいとき、この電気双極子の緩和時間は短くなる。緩和時間が短いとき、電気分極は大きくなるため、誘電率は大きくなる。したがって、キャパシタンスが大きくなる。つまり、光照射により、粒子

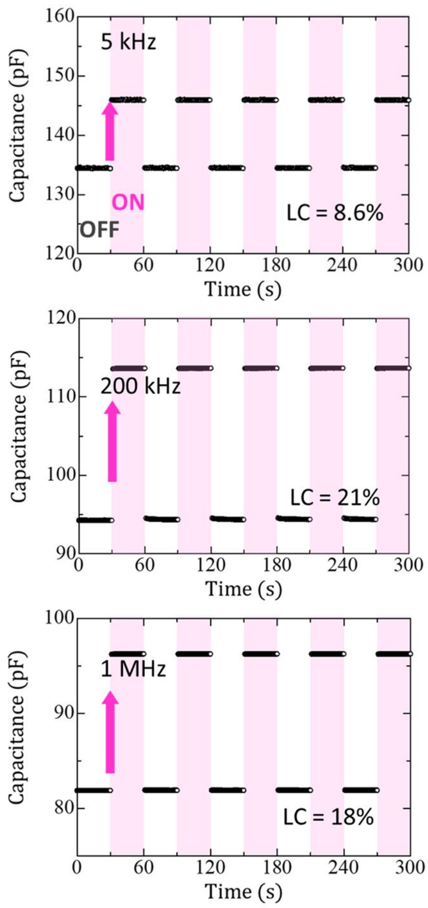

図 4 レーザー光照射によるキャパシタンスの時間応答性

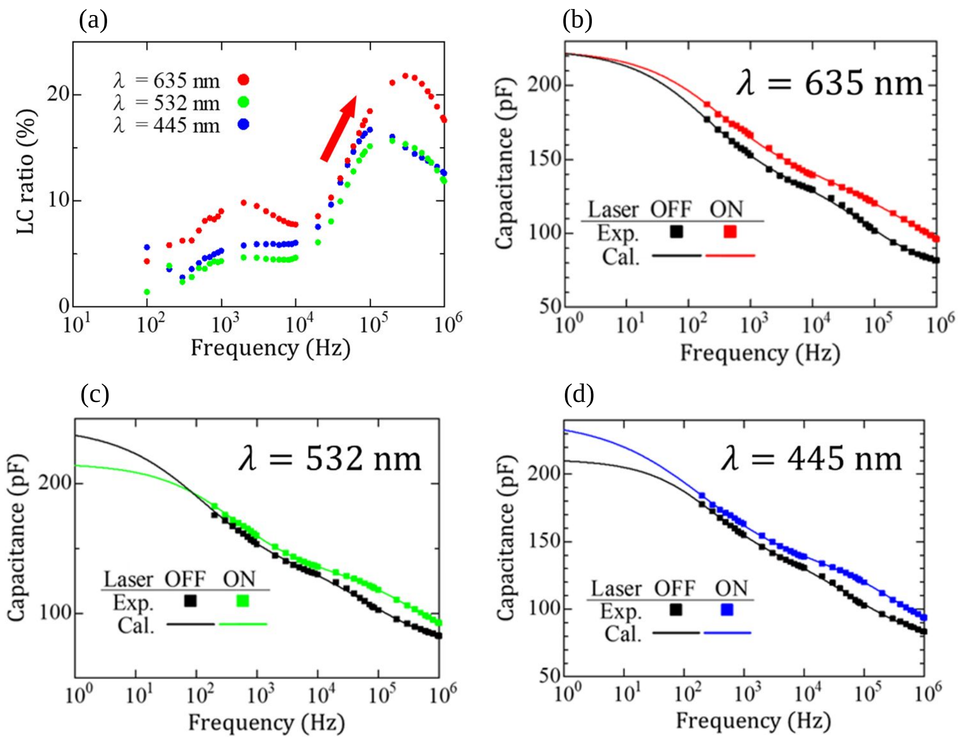

図 5 (a)**各レーザー波長における光キャパシタンス変化率とレーザー照射前後のキャパシタンスの周波数特性**((b) 635 nm, (c) 532 nm, (d) 445 nm)

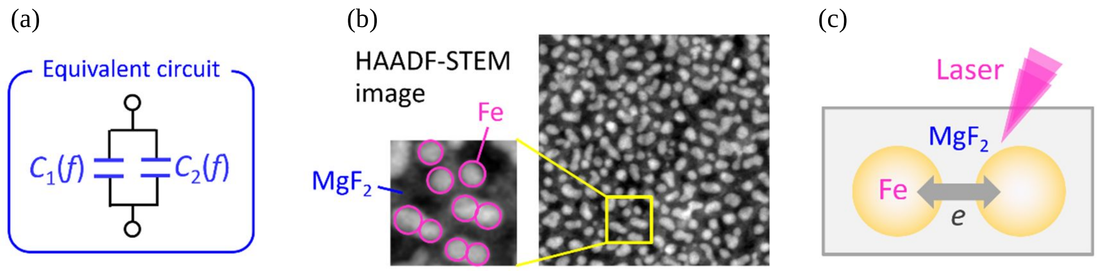

図 6 (a)DF **模型における素子の等価回路、**(b) HAADF-STEM **像、**(c) **光キャパシタンス効果の原理図**

間のトンネル確率が大きくなるため、これによりキャパシタンスが大きくなると考えられる(**図**6(c))**。このように、**DF **模型に基づく計算によると、光キャパシタンス効果は光照射による緩和時間の変化に由来すると結論付けることができる。**

本研究課題を遂行するにあたり、北海道大学有田正志准教授、並びに、慶應義塾大学大学院理工学研究科山内一弘氏には、磁気ナノグラニュラー素子の作製、インピーダンス測定、並びに、理論解析に関して多大なるご協力をいただきました。ここに感謝の意を表します。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計8件（うち査読付論文　8件／うち国際共著　4件／うちオープンアクセス　1件）

１．著者名 H. Kaiju and T. Nagahama	４．巻 141
２．論文標題 Principle and Recent Advances in Tunnel Magnetocapacitance Effect	５．発行年 2021年
３．雑誌名 IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials	６．最初と最後の頁 270-278
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1541/ieejfms.141.270	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 H. Kaiju	４．巻 59
２．論文標題 Voltage-induced magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions	５．発行年 2021年
３．雑誌名 Materia Japan	６．最初と最後の頁 191-198
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/materia.59.191	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 R. Msiska, S. Honjo, Y. Asai, M. Arita, A. T. Fukuchi, Y. Takahashi, N. Hoshino, T. Akutagawa, O. Kitakami, M. Fujioka, J. Nishii and H. Kaiju	４．巻 116
２．論文標題 Tunnel magnetocapacitance in Fe/MgF2 single nanogranular layered films	５．発行年 2020年
３．雑誌名 Applied Physics Letters	６．最初と最後の頁 082401(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5139702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 H. Kaiju, T. Nagahama, O. Kitakami, J. Nishii and G. Xiao	４．巻 224
２．論文標題 Room-temperature large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions	５．発行年 2019年
３．雑誌名 Bulletin of Topical Symposium of the Magnetics Society of Japan	６．最初と最後の頁 7-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

１．著者名 K. Sawano, K. Tsukiyama, M. Shimizu, M. Takasaki, Y. Oaki, T. Yamamoto, Y. Einaga, C. Jenewein, H. Colfen, H. Kaiju, T. Sato and H. Imai	４．巻 12
２．論文標題 Enhancement of coercivity of self-assembled stacking of ferrimagnetic and antiferromagnetic nanocubes	５．発行年 2020年
３．雑誌名 Nanoscale	６．最初と最後の頁 7792-7796
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C9NR10558A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

１．著者名 K. Ogata, Y. Nakayama, G. Xiao, and H. Kaiju	４．巻 11
２．論文標題 Observation and theoretical calculations of voltage-induced large magnetocapacitance beyond 330% in MgO-based magnetic tunnel junctions	５．発行年 2021年
３．雑誌名 Scientific Reports	６．最初と最後の頁 13807(1-10)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-93226-4	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 該当する

１．著者名 T. Nakagawa, K. Ogata, Y. Nakayama, G. Xiao, and H. Kaiju	４．巻 118
２．論文標題 Sign Inversion Phenomenon of Voltage-induced Tunnel Magnetocapacitance	５．発行年 2021年
３．雑誌名 Applied Physics Letters	６．最初と最後の頁 182403(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0050304	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

１．著者名 H. Fujiwara, S. Kawaguchi, D. Yonekawa, and H. Kaiju	４．巻 119
２．論文標題 Development of magnetic responsive random lasers fabricated by a laser-induced surface roughness	５．発行年 2021年
３．雑誌名 Applied Physics Letters	６．最初と最後の頁 041105(1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0058284	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

〔学会発表〕　計15件（うち招待講演　2件／うち国際学会　4件）

1．発表者名 K. Senshu, Y. Sasaki, Y. Nakayama, T. Misawa, T. Komine, N. Hoshino, T. Akutagawa, M. Fujioka, J. Nishii and H. Kaiju
2．発表標題 Spin transport properties in Ni78Fe22/Mq3(M=Al, Er)/Ni78Fe22 nanoscale junction devices utilizing magnetic thin-film edges
3．学会等名 International Microprocesses and Nanotechnology Conference（国際学会）
4．発表年 2020年

1．発表者名 千秋賀英子、佐々木悠馬、林恭平、中山雄介、三澤貴浩、小峰啓史、星野哲久、芥川智行、藤岡正弥、西井準治、海住英生
2．発表標題 Ni78Fe22/Mq3(M = Al, Er)/Ni78Fe22ナノ接合素子における室温磁気抵抗効果
3．学会等名 第44回日本磁気学会学術講演会
4．発表年 2020年

1．発表者名 千秋賀英子、　佐々木悠馬、中山雄介、三澤 貴浩、小峰 啓史、星野 哲久、芥川 智行、藤岡 正弥、西井 準治、海住 英生
2．発表標題 磁性薄膜エッジを利用したNi78Fe22/Mq3(M=Al, Er)/Ni78Fe22ナノ接合素子の電気磁気特性
3．学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4．発表年 2020年

1．発表者名 藤原英樹、海住英生
2．発表標題 レーザー誘起表面凹凸構造形成法を利用した外部磁場応答ランダムレーザーの開発
3．学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会
4．発表年 2021年

１．発表者名 藤原英樹，弥勒院達紀，大橋由梨，海住英生，平井健二，雲林院宏
２．発表標題 局所レーザー加熱を用いたNi基板上へのグラファイト膜の選択合成
３．学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会
４．発表年 2021年

１．発表者名 R. Msiska, S. Honjo, Y. Asai, M. Arita, A. T. Fukuchi, Y. Takahashi, N. Hoshino, T. Akutagawa, O. Kitakami, M. Fujioka, J. Nishii and H. Kaiju
２．発表標題 Experimental and Theoretical Study on Tunnel Magnetocapacitance in Fe/MgF2 Nanogranular Films
３．学会等名 The 6th Japan-Korea International Symposium on Materials Science and Technology 2019（国際学会）
４．発表年 2019年

１．発表者名 H. Kaiju, T. Nagahama, O. Kitakami, J. Nishii, and G. Xiao
２．発表標題 Magnetocapacitance Effect in Spintronic Devices
３．学会等名 The 6th Japan-Korea International Symposium on Materials Science and Technology 2019（招待講演）（国際学会）
４．発表年 2019年

１．発表者名 藤原英樹、海住英生
２．発表標題 磁性粒子混合ランダムレーザーの外部磁場依存性
３．学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
４．発表年 2019年

１．発表者名
海住英生、長浜太郎、北上修、西井準治、Gang Xiao

２．発表標題
磁気キャパシタンス効果の新展開とその学理

３．学会等名
第1回慶大スピントロニクス研究開発センター研究会（招待講演）

４．発表年
2019年

１．発表者名
藤原英樹、川口翔平、米川大樹、海住英生

２．発表標題
レーザー誘起表面凹凸を利用した外部磁場制御ランダムレーザーの作製

３．学会等名
2020年第67回応用物理学会春季学術講演会

４．発表年
2020年

１．発表者名
山内一弘，本庄周作，浅井佑基，有田正志，福地厚，高橋庸夫，海住英生

２．発表標題
2次元磁気グラニュラーの光インピーダンス特性

３．学会等名
日本物理学会2021年秋季大会

４．発表年
2021年

１．発表者名
K. Hayashi, Y. Sasaki, K. Senshu, T. Misawa, J. Nishii and H. Kaiju

２．発表標題
Observation and theoretical calculation of spin transport in Ni78Fe22/molecules/Ni78Fe22 nanojunction devices

３．学会等名
34th International Microprocesses and Nanotechnology Conference（国際学会）

４．発表年
2021年

１．発表者名
緒方健太郎，中山雄介，Gang Xiao，海住英生

２．発表標題
330%を超える巨大トンネル磁気キャパシタンス効果の観測とメカニズム解明

３．学会等名
電気学会A部門マグネティックス研究会

４．発表年
2021年

１．発表者名
中川健，緒方健太郎，中山雄介，Gang Xiao，海住英生

２．発表標題
電圧誘起トンネル磁気キャパシタンスの符号反転現象

３．学会等名
日本物理学会2021年秋季大会

４．発表年
2021年

１．発表者名
林恭平，佐々木悠馬，千秋賀英子，三澤貴浩，西井準治，海住英生

２．発表標題
Spin transport properties in molecular nanojunction devices using magnetic thin-film edges

３．学会等名
2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

４．発表年
2021年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室ホームページ
https://www.kaiju.appi.keio.ac.jp/

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
研究分担者	西井　準治 (NISHII Junji) (60357697)	北海道大学・電子科学研究所・教授 (10101)	
研究分担者	長浜　太郎 (NAGAHAMA Taro) (20357651)	北海道大学・工学研究院・准教授 (10101)	

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			
米国	ブラウン大学			