

機関番号：12102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21954

研究課題名（和文）垂直磁気異方性を有する窒化物スピントロニクス材料の探索

研究課題名（英文）Studies on nitride-based spintronics materials with perpendicular magnetic anisotropy

研究代表者

末益 崇（Suemasu, Takashi）

筑波大学・数理工学系・教授

研究者番号：40282339

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）：スピントロニクスにおいては、磁性膜の磁化ベクトルの向きを情報の0と1に対応させ、それらを電流で制御することが重要である。これまで、希少元素を含まないフェリ磁性体Mn4Nにおいては、研究代表者等が、外部磁場のサポートが無い状態で、スピン移行トルクのみにより室温で900m/sの超高速で磁化が反転することを実証してきた。本研究では、Mn4NにわずかにNiをドーピングすることで磁化補償が生じること、そのようなNi組成では、室温で3000m/sの超高速の磁化反転を実証した。同様な磁化補償は、Coをドーピングした場合や、非磁性不純物であるSnやAuをドーピングしても、室温で生じることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで、フェリ磁性体を用いて補償組成付近で超高速の磁壁移動を達成報告した例はあるが、Tb等の希少元素を含む材料であり、また、磁壁移動に外部磁場のアシストが必要であった。本研究で室温で超高速の磁壁移動を達成した材料は、希少元素を含まず、また、室温で外部磁場のアシストが不要な点に学術的な意義がある。

研究成果の概要（英文）：In spintronics, it is important to control the direction of the magnetization of the magnetic films to the zeros and ones of the information and to control them with electric current. The principal investigator and co-investigators have demonstrated ultra-fast domain wall motion in rare-earth free ferrimagnet Mn4N reaching 900m/s driven by pure spin transfer torques. They also demonstrated the magnetic compensation for Mn4N films doped with a small amount of Ni by x-ray magnetic circular dichroism measurement, and achieved at such a Ni composition ultra-fast domain wall motion as fast as 3000 m/s at room temperature without any assistance of external magnetic field. Such magnetic compensations were also demonstrated in Co-, Sn-, or Au-doped Mn4N films by x-ray magnetic circular dichroism measurement.

研究分野：電子工学、結晶成長工学

キーワード：スピントロニクス フェリ磁性体 磁化補償 角運動量補償 磁壁移動 スピン移行トルク

### 1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスでは、磁性膜の磁化ベクトルの向きを制御することが重要である。磁化ベクトルの反転に要するエネルギーの観点から、膜の面直方向に磁化し易い垂直磁気異方性をもつ材料が盛んに研究されている。磁化ベクトルの反転には、素子の小型化・集積化に対応できるスピン偏極した電子を注入するスピン移行トルク、また、スピン軌道トルクの2つの方法が研究されている。このような背景の中、研究代表者は、SrTiO<sub>3</sub>(001)基板上的Mn<sub>4</sub>N膜では磁区が1mmを超えることを発見した。磁区が大きいことは、磁区と磁区間の磁壁が動きやすいことを意味している。このため、スピントロニクス分野で実績豊富なグルノーブルアルプ大学(UGA, 仏)と共同で、Mn<sub>4</sub>N細線での電流誘起磁壁駆動の実験をしたところ、速さ900m/sに達する超高速の磁壁移動を実証した。この値は、外部磁場によるアシストが無い磁壁駆動としては、世界最高レベルの速さである。磁壁の移動スピードは、磁化の大きさに反比例する。このため、Mn<sub>4</sub>Nに第3の元素をドーピングすることで磁化補償を起こさせ、さらに高速の磁壁移動が達成できるのではないかと考えた。

### 2. 研究の目的

フェリ磁性体 Mn<sub>4</sub>N をベースに、不純物を僅かにドーピングした膜を形成し、磁化補償が室温で生じる組成を明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

SrTiO<sub>3</sub>(001)基板の上に分子線エピタキシー法により、プラズマ窒素照射下、KセルでMnと別の元素(NiまたはCo)を同時に蒸着し、不純物ドーピング Mn<sub>4</sub>N膜をエピタキシャル成長した。形成した膜について、磁気輸送特性およびX線磁気円二色性測定を室温で行い、磁化補償の有無を評価した。

### 4. 研究成果

Mn<sub>4-x</sub>Ni<sub>x</sub>N(x=0.1, 0.25)膜について、KEK フォトンファクトリーにおいて、X線磁気円二色性測定を行った。MnおよびNiのL<sub>2,3</sub>吸収端付近のX線吸収スペクトル(XAS)およびX線磁気円二色性(XMCD)スペクトルを、それぞれ図1と2に示す。MnのXMCDスペクトルで、αは角位置のMn(Mn<sub>I</sub>)を、βは面心位置のMn(Mn<sub>II</sub>)を反映していることが分かっている。図1および図2より、MnとNiの両方のXMCD信号が、x=0.1と0.25で反転していることが分かる。このことは、この2つの組成で、MnおよびNi原子の磁気モーメントが反転していることを示し、この組成間で、磁化が補償するNi組成が存在するといえる。

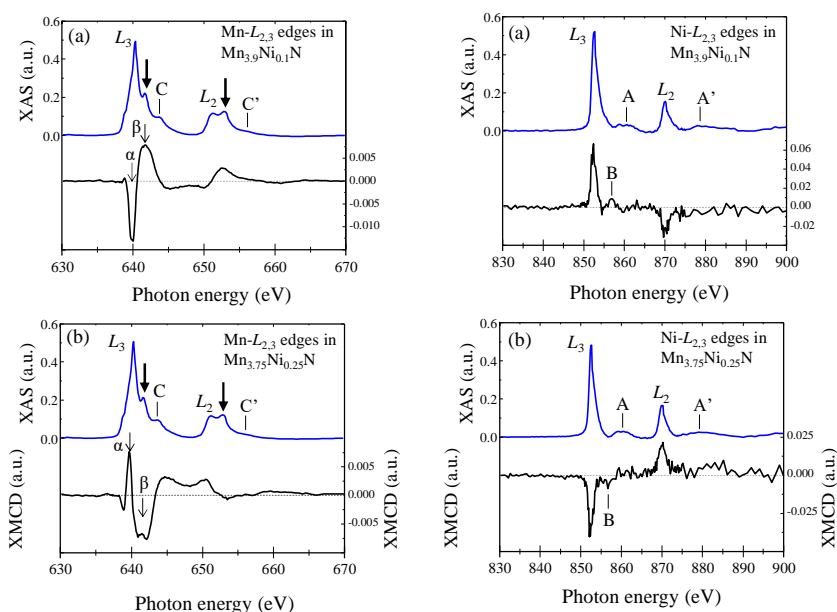


図 1. Mn<sub>4-x</sub>Ni<sub>x</sub>N 膜の Mn L<sub>2,3</sub> 吸収端付近の XAS および XMCD スペクトル。(a) x=0.1, (b) x=0.25.

図 2. Mn<sub>4-x</sub>Ni<sub>x</sub>N 膜の Ni L<sub>2,3</sub> 吸収端付近の XAS および XMCD スペクトル。(a) x=0.1, (b) x=0.25.

図 4 に、室温で測定した Mn<sub>4-x</sub>Ni<sub>x</sub>N 膜(x=0,0.1,0.25,0.5)の異常ホールループを示す。x=0.1 と 0.25

の間で、異常ホール係数の符号が反転していることが分かる。Mn<sub>4</sub>N では、フェルミ準位近傍の状態密度は、Mn<sub>II</sub> が支配的であることが知られている。このため、Mn<sub>II</sub> の磁気モーメントが反転したことで、伝導電子が散乱される方向が変化し、異常ホール係数の符号も反転したと考える。

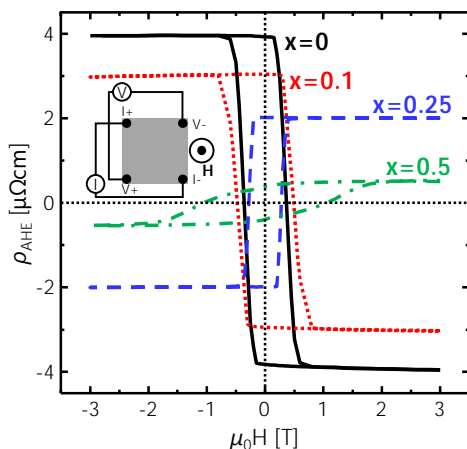


図 4 Mn<sub>4-x</sub>Ni<sub>x</sub>N 膜(x=0,0.1,0.25,0.5)の異常ホールループ。

次に、同様な実験を Mn<sub>4-x</sub>Co<sub>x</sub>N(x=0.2,0.8,1.3)膜について、KEK フォトンファクトリーで行った。Mn および Co の L<sub>2,3</sub> 吸収端付近の XAS および XMCD スペクトルを、図 4 に示す。図 4(a)(a')および図 4(b)(b')より、Mn および Co の XMCD 信号が、x=0.2 と 0.8 で反転していることが分かる。このことは、この 2 つの組成で、Mn および Co 原子の磁気モーメントが反転していることを示し、この組成間に磁化が補償する Co 組成が存在するといえる。次に、図 3(b)および図 3(c)を比べると、Mn の XMCD 信号が反転しているといえる。一方、図 4(c')はやや複雑だが、次のように考えられる。図 4(a')(b')では、Co が角位置を占めているが、図 4(c')では Co 組成が x=1.3 となり 1 を超えるため、面心位置にも Co が入る。このため、Co<sub>I</sub>に加えて Co<sub>II</sub>を反映して、2 組のスペクトルが図 4(c')に現れていると理解できる。そのように考えると、図 4(b)(b')および図 4(c)(c')より、この 2 つの組成間でも、Mn および Co の磁気モーメントが反転していると考えられ、磁化補償が生じているといえる。このように、組成を変えるのみで室温で 2 つの組成で磁化補償が生じるのは、本材料が初めてである。

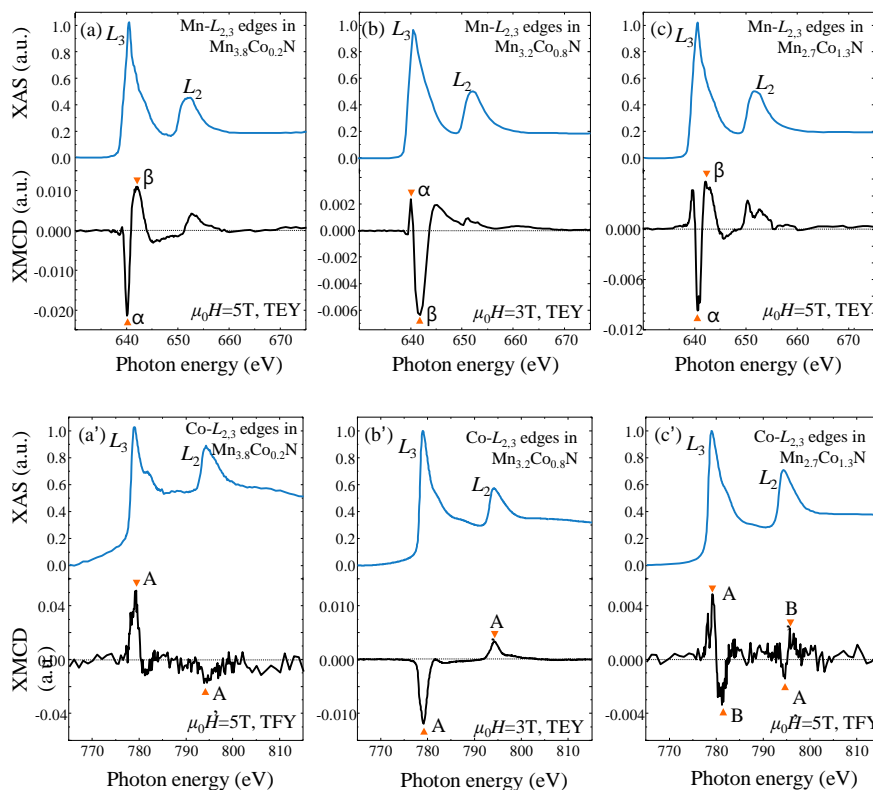


図 4 Mn<sub>4-x</sub>Co<sub>x</sub>N の(a)(b)(c) Mn L<sub>2,3</sub> 吸収端付近の XAS および XMCD スペクトル。  
(a')(b')(c') Co L<sub>2,3</sub> 吸収端付近の XAS および XMCD スペクトル。

## 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 5件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Haruka Mitarai, Taro Komori, Taku Hirose, Keita Ito, Sambit Ghosh, Syuta Honda, Kaoru Toko, Laurent Vila, Jean-Philippe Attane, Kenta Amemiya, Takashi Suemasu	4. 巻 4
2. 論文標題 Magnetic compensation at two different composition ratios in rare-earth-free Mn <sub>4</sub> -xCo <sub>x</sub> N ferrimagnetic films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 094401.1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.4.094401	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 Keita Ito, Yoko Yasutomi, Siyuan Zhu, Munisa Nurmatamat, Masaki Tahara, Kaoru Toko, Ryota Akiyama, Yukiharu Takeda, Yuji Saitoh, Tamio Oguchi, Akio Kimura, Takashi Suemasu	4. 巻 101
2. 論文標題 Manipulation of saturation magnetization and perpendicular magnetic anisotropy in epitaxial Co <sub>x</sub> Mn <sub>4-x</sub> N films with ferrimagnetic compensation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104401.1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.104401	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 Mitarai, Hanako Okuno, Jan Vogel, Mairbek Chshiev, Jean-Philippe Attane, Laurent Vila, Takashi Suemasu, Stefania Pizzini	4. 巻 21
2. 論文標題 Current-Driven Domain Wall Dynamics in Ferrimagnetic Nickel-Doped Mn <sub>4</sub> N Films: Very Large Domain Wall Velocities and Reversal of Motion Direction across the Magnetic Compensation Point	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 2580-2587
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.nanolett.1c00125	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 Taku Hirose, Taro Komori, Toshiki Gushi, Kaoru Toko, Takashi Suemasu	4. 巻 535
2. 論文標題 Perpendicular magnetic anisotropy in ferrimagnetic Mn <sub>4</sub> N films grown on (LaAlO <sub>3</sub> ) <sub>0.3</sub> (Sr <sub>2</sub> TaAlO <sub>6</sub> ) <sub>0.7</sub> (0 0 1) substrates by molecular beam epitaxy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Crystal Growth	6. 最初と最後の頁 125566.1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcrysgro.2020.125566	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 Taku Hirose, Taro Komori, Toshiki Gushi, Akihito Anzai, Kaoru Toko, Takashi Suemasu	4. 巻 10
2. 論文標題 Strong correlation between uniaxial magnetic anisotropic constant and in-plane tensile strain in Mn4N epitaxial films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 0.25117.1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5141818	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 Taro Komori, Taku Hirose, Toshiki Gushi, Kaoru Toko, Takayasu Hanashima, Laurent Villa, Jean-Philippe Attane, Kenta Amemiya, Takashi Suemasu	4. 巻 127
2. 論文標題 Magnetic reversal in rare-earth free Mn4-NixN epitaxial films below and above Ni composition needed for magnetic compensation around room temperature	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 043903.1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5128635	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 Toshiki Gushi, Matic J Klug, Jose Pena Garcia, Sambit Ghosh, Jean-Philippe Attane, Hanako Okuno, Olivier Fruchart, Jan Vogel, Takashi Suemasu, Stefania Pizzini, Laurent Vila	4. 巻 19
2. 論文標題 Large Current Driven Domain Wall Mobility and Gate Tuning of Coercivity in Ferrimagnetic Mn4N Thin Films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 8716-8723
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.9b03416	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 Taro Komori, Toshiki Gushi, Akihito Anzai, Laurent Vila, Jean-Philippe Attane, Stefania Pizzini, Jan Vogel, Shinji Isogami, Kaoru Toko, and Takashi Suemasu	4. 巻 125
2. 論文標題 Magnetic and magneto-transport properties of Mn4N thin films by Ni substitution and their possibility of magnetic compensation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 213902.1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5089869	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

[学会発表] 計10件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件)

1. 発表者名 Taro Komori, Haruka Mitarai, Tomohiro Yasuda, Kaoru Toko, Syuta Honda and Takashi Suemasu
2. 発表標題 Examination of magneto-transport properties in Mn <sub>4</sub> -xNixN acquired by experiment and ab-initio calculation
3. 学会等名 The 68th JSAP Spring Meeting
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Haruka Mitarai, Taro Komori, Taku Hirose, Akihito Anzai, Kaoru Toko and Takashi Suemasu
2. 発表標題 Exploring magnetic compensation composition in Fe-doped Mn <sub>4</sub> N epitaxial films at room temperature
3. 学会等名 The 68th JSAP Spring Meeting
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tomohiro Yasuda, Taro Komori, Haruka Mitarai, Kenta Amemiya, Kaoru Toko and Takashi Suemasu
2. 発表標題 Growth of Mn <sub>4</sub> -xInxN epitaxial films and analysis of its structure by X-ray magnetic circular dichroism
3. 学会等名 The 68th JSAP Spring Meeting
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Taro Komori, Haruka Mitarai, Taku Hirose, Kaoru Toko and Takashi Suemasu
2. 発表標題 Analysis of the magneto-transport properties in Mn <sub>4</sub> -xNixN films with large current induced domain wall mobility and anomalous Hall effect
3. 学会等名 The 81st JSAP Autumn Meeting
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Haruka Mitarai, Taro Komori, Taku Hirose, Keita Ito, Kaoru Toko, Kenta Amemiya and Takashi Suemasu
2. 発表標題 Magnetic compensations in Mn <sub>4</sub> -xCoxN epitaxial films proved by X-ray magnetic circular dichroism
3. 学会等名 The 81st JSAP Autumn Meeting
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Taku Hirose, Haruka Mitarai, Taro Komori, Kaoru Toko, and Takashi Suemasu
2. 発表標題 Improvement of crystalline quality and magnetic properties of Mn <sub>4</sub> N thin films on LSAT substrate by post-annealing process
3. 学会等名 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 H. Mitarai, T. Hirose, T. Komori, K. Toko, and T. Suemasu
2. 発表標題 Alterations of magnetic and magneto-transport properties of Mn <sub>4</sub> N thin films by Co substitution
3. 学会等名 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 Taro Komori, Haruka Mitarai, Taku Hirose, Takashi Suemasu
2. 発表標題 Temperature dependence of magneto-transport properties in Mn <sub>4</sub> -xNixN measured by anomalous magnetoresistance important for current induced domain wall motion
3. 学会等名 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 T. Komori, T. Hirose, K. Amemiya, T. Suemasu
2. 発表標題 Magnetic compensation of Mn <sub>4</sub> -xNi <sub>x</sub> N confirmed by X-ray magnetic circular dichroism and analysis on its structure
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 T. Hirose, T. Komori, T. Suemasu
2. 発表標題 Optimization of growth temperature of Mn <sub>4</sub> N thin films on LSAT(001) grown by molecular beam epitaxy
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

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

環境半導体・磁性体研究室 <a href="http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~ecology/journalpapers.html">http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~ecology/journalpapers.html</a> 環境半導体・磁性体研究室 <a href="http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~ecology/journalpapers.html">http://www.bk.tsukuba.ac.jp/~ecology/journalpapers.html</a>
--

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	磯上 慎二  (Isogami Shinji)  (10586853)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員    (82108)	

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		
フランス	University Grenoble Alpes	Spintec	