

氏名	田結莊 健		
学位の種類	博士（工学）		
学位記番号	博甲第 8966 号		
学位授与年月日	平成 31年 3月 25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	数理物質科学研究科		
学位論文題目	スピネルフェライト薄膜のスピン트로ニクスへの応用に関する研究		
主査	筑波大学教授	博士(工学)	柳原英人
副査	筑波大学教授	博士(工学)	末益 崇
副査	筑波大学教授(連係大学院)	博士(工学)	三谷誠司
副査	物質・材料研究機構主幹研究員	博士(工学)	介川裕章

## 論 文 の 要 旨

スピネルフェライト薄膜のスピン트로ニクスへの展開を目的とし、その成膜技術および積層技術の確立を目指した論文である。典型的なスピネルフェライトであるコバルトフェライトと、マグネタイト( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )に注目し、これらフェライト薄膜の成膜条件を検討し、得られた良質なスピネルフェライト薄膜をもちいてスピン트로ニクス材料としての様々な特性の評価を行っている。第一にコバルトフェライト薄膜試料の磁気異方性に関して、磁気弾性効果を通じた磁気異方性の制御を試みている(第 2 章)。そこで得た知見をもとに、磁気異方性の主軸が異なる 2 つのコバルトフェライト薄膜を作製し、Pt との界面における磁化応答をスピンホール磁気抵抗効果によって調べたことで、界面付近での局所的な磁気異方性を明らかにしている(第 3 章)。そして 3 番目のトピックとして  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  を強磁性電極として利用した全スピネル型磁気トンネル接合の作製を試みている。

第 2 章では、磁気弾性効果の大きなコバルトフェライトにエピタキシャル歪を導入することで磁気異方性の誘導を試みている。コバルトフェライトは  $\text{Co}^{2+}$  の存在により、大きな軌道モーメントが存在する。また磁気異方性は主としてスピン軌道相互作用に起因するため、コバルトフェライトの磁気異方性はスピネルフェライトの中で例外的に大きく、また磁気弾性効果も顕著に現れる。コバルトフェライトに正方歪を加えるときに発現する一軸磁気異方性エネルギー ( $K_u$ ) は  $K_u = B_1(\epsilon_1 - \epsilon_2)$  で表される。ここで、 $B_1$  は磁気弾性定数、 $(\epsilon_1 - \epsilon_2)$  は歪の大きさを表す。したがって大きな歪を導入できれば誘導される磁気異方性も比例して大きくなることになる。一方で大きな歪を

導入することで、磁気弾性効果の線形関係は破れることが予想される。効率よく大きな磁気異方性を発現しうる歪の大きさについては、理論的な示唆もあるものの定量性に欠くため、実験的に明らかにする必要があった。そこでこの論文では、コバルトフェライトにくらべて3%以上格子定数の小さな  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  単結晶基板上にコバルトフェライト薄膜を成膜することで磁気異方性がどこまで増大するのか実証を行っている。X線回折実験や断面 TEM 観察など丁寧な構造解析と、外挿法を用いた磁気異方性の評価を行った結果、歪量が最大の試料で  $-5.9 \text{ MJ/m}^3$  もの巨大な負の一軸磁気異方性エネルギーが発現していることを見出している。この大きさは、永久磁石材料として知られている  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  のそれに匹敵するものである。また磁気弾性定数は  $B_1 = 0.15 \pm 0.01 \text{ GJ/m}^3$  であり、この値はバルクの磁気弾性定数 ( $B_1 = 0.14 \text{ GJ/m}^3$ ) と同程度であることから、 $\epsilon_1 - \epsilon_2 = -0.04$  程度の歪であっても磁気弾性効果は線形であることを確認している。

第3章では、スピンホール磁気抵抗効果によるコバルトフェライト表面の磁気異方性の評価に関して述べられている。磁気弾性効果を通じて発現した磁気異方性の表面における局所的な影響を調べるため、コバルトフェライト/Pt 界面でのスピンホール磁気抵抗を測定している。スピンホール磁気抵抗効果 (SMR) は、2013 年に  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{Pt}$  で初めて見出され、その後様々強磁性絶縁体 (FMI) と非磁性金属 (NM) からなる FMI/NM の組み合わせで SMR が報告されてきたものの、いずれの FMI も磁気異方性が極めて小さな材料のみであった。よって、磁気異方性が強い系において SMR がどのように現れるかは明らかではなかった。そこで磁気異方性が強いコバルトフェライト薄膜と Pt の界面において SMR の応答を調べることで、およびその測定を通じて薄膜表面の磁気異方性を評価することを目的とし研究を行っている。コバルトフェライトを  $\text{MgO}(001)$  基板および  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  基板上に反応性スパッタリング法によって成膜している。それぞれの基板上に成膜されたコバルトフェライトは、磁気弾性効果によって正と負の  $K_u$  を有する事になり、実際に磁気トルク測定の結果から  $K_u$  はそれぞれ  $1.1 \text{ MJ/m}^3$  および  $-5.2 \text{ MJ/m}^3$  であったと述べている。前者は膜面垂直方向が磁化容易方向であるのに対し、後者は磁化困難方向である。これらの磁化容易方向の主軸が異なる2種類のコバルトフェライト薄膜に Pt ホールバーを積層させ SMR の測定を試みている。その結果、それぞれの試料においてコバルトフェライトの異方性主軸を反映した SMR 曲線が得られている。またどちらの試料もスピンミキシングコンダクタンスには大きな差が見られなかった。さらに得られた SMR 曲線をもちいて異方性磁界を評価したところ、界面付近の異方性磁界は薄膜全体のそれに比べて半分程度であることを見出している。

## 審 査 の 要 旨

[批評]

良質なコバルトフェライト薄膜に大きなエピタキシャル歪を導入して非常に大きな磁気異方性が誘導可能であることを実証した意義は大きいと考える。外挿法を用いた磁気異方性の評価方法は、以前からよく知られていたが、本系のような非常に大きな異方性をもつ系においても有用であることを示した点は高く評価できる。また、この大きな磁気異方性をもつ強磁性絶縁体と非磁性金属である Pt との SMR については新たな知見を得ており、今後 SMR 現象の理解を深めていく上で重要な実験事実であるといえる。マグ

ネタイトを電極とし、トンネル障壁層まで含めて全スピネル構造による磁気トンネル素子の作製については付録のなかで述べられているに過ぎないが、理想的な積層構造が実現しているにもかかわらず磁気トンネル抵抗が現れない点は大変興味深い。期待した特性は現れなかったものの、磁気トンネル効果の発現する条件を理解、整理する上で重要な結果であると言える。

〔最終試験結果〕

平成 31 年 2 月 18 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。