ナノ磁石--セラミクス界面の束縛状態とトンネル伝導に 基づく超広帯域電気--磁気--光学効果の発現と制御

青木英恵*

Broad Band Electro-magnetic and Opto-magnetic Performance Tunneling Electron Bond State at Magnetic Metal-ceramics Interface

Hanae AOKI*

The magneto-dielectric nano-composite film, in which nano-sized magnets are dispersed in ceramics, is known to exhibit magnetic multifunctionalities, such as magneto-resistive, magneto-dielectric, and magneto-optical, and is obtained over multiple and wide frequency bands. In this study, magneto-dielectric nano-composite films with various magnetic metal nanoparticle shapes were fabricated to achieve variable interparticle gaps. In-plane and out-of-plane electrical resistivities were also changed, subjected to several electron binding states with different relaxation times. We demonstrated frequency control of the magnetodielectric effect via electrical resistivity by structural modulation of the lateral nanogranular system.

1. 背景と目的

ナノサイズの磁石がセラミクスに分散する「ナノ複相膜」の磁気機能性(磁気-抵抗、磁気-誘電、磁気-光)は、単-材料と異なり、複数・幅広い周波数帯で得られることが知られる⁽¹⁾。ナノ磁石間のトンネル伝導(分極)が磁石のスピン(磁 化の向き)に依存することが起源とされるが、直流から光領域にわたる広い周波数帯にわたり電磁機能性が発現する機構 やその制御手法は確立していないのが現状である。本研究課題では、ナノ磁石-セラミクス界面の半導体的な電子の束縛 状態に着目する。広帯域で磁気機能性を示す原因は、トンネル電子を含むスピン依存電子が緩和時間の異なるいくつかの 束縛を受けていることを示唆する。本研究では、ナノ複相膜の磁気-電気-光学効果について周波数を軸に系統的に評価 し、さらに膜中の電子が主に磁性金属-セラミクスマトリクス界面に束縛されるモデルを仮定して、発現機構の解明と制 御を行うことを目的とする。磁性金属ナノ粒子の分散形態と高周波電磁気特性の関係を定量的に実証することで、今後の スマート材料の設計指針を提供できる。

2. 実験内容

1. ナノ複相膜の作製

磁性金属およびセラミクスを交互に成膜可能なタンデムスパッタ法を用いて、基板回転速度を変化させることにより粒子形状・配列の異なる Co-BaF2系ナノ複相膜を作製した。 直径5 nm 程度の扁平粒子が層状に並ぶ成膜条件において、セラミクスの投入電力を変化させたところ、セラミクスの投入電力を変化させたところ、セラミクス層の厚み(t_{BaF2})すなわち縦方向の粒子間隔を0.4~2.0 nm まで変化させることに成功した(図1)。膜面垂直方向に測定した電気比抵抗(ρ_{\perp})測定では、 10^{10} ~ 10^{14} μ Q cm の広い範囲で ρ_{\perp} は変化した。 t_{BaF2} と ρ_{\perp} の間には正の相関があり、垂



図1 膜面垂直方向に異なる粒子間隔を有するナノ複相膜⁽⁶⁾.

直方向に粒子間隔の拡大が粒子間のトンネル障壁が厚みの増加に対応すると考えられる。

2024年3月13日 受理 *豊田理研スカラー 東北大学大学院工学研究科電気エネルギーシステム専攻

2. 本研究で検討したナノ複相膜のモデル

磁性金属-誘電体マトリクス界面に束縛された電子が緩和時間(τ)を持つと いう仮定のもと、実測定で得られたナノ複相構造を反映する電磁気特性の緩和 周波数が、膜の電気比抵抗(導電率)と一定の相関関係を示すと考えた。磁性金 属ナノ粒子がセラミクス中に分散する系では、スピン依存トンネル電子が直流 から高周波帯の電磁気特性に重要な役割を示すため、トンネル電子も粒子間の トンネル障壁を含めた界面準位に束縛されているとみなすと、粒子間隔を変化 させることで ρ が変化し、緩和周波数および電磁変換周波数帯を制御できる可 能性がある。すなわち、ナノ複相膜と等価であるコンデンサと抵抗が並行また は直列に連なった電気回路の誘電率の周波数依存性に対応すると考えた。

3. 広帯域電磁気効果

作製した膜の広帯域電磁気測定は、いずれも面内磁界(1T)印加のもと、直流 は定電圧源を用いた4探針法、kHz~MHz帯はインピーダンスアナライザ、光周 波数帯は分光法を用いて評価した。磁性金属ナノ粒子を含むナノ複相膜は kHz ~MHz帯に緩和する数100の巨大誘電率を示す(図2(a))。 $D(=\tan \delta)$ が最大と なる緩和周波数(f_{relax})付近(f_{TMD})において、外部磁界に対する誘電率の増加率 (トンネル磁気誘電効果,TMD)も最大値を示した(図2(b),(c))。これらの周波数 を前述の ρ_{\perp} で整理すると線形の関係性が認められた。 ρ_{\perp} はセラミクス層厚に より制御できるため、構造により高周波数帯の電磁気特性の調整が可能である ことを実証できた。

3. まとめと今後の展望

基板回転により異種材料が交互積層できるタンデムスパッタ法を用いて、垂 直方向にセラミクス層の厚みを調整可能な磁性金属-セラミクスナノ複相膜を 作製した。膜の電気比抵抗および磁気誘電効果は膜構造一定の相関を持つこと が示され、kHz~MHz帯の電磁変換を制御可能な扁平粒子からなる層状ナノ複 相構造の設計指針が得られた。最近の検証で、トンネル伝導電子を含む膜の電 子が界面準位の弱い束縛を受けたときに調和振動子のふるまいをすると仮定す ると、その電子密度に応じた巨大誘電率が得られることが示唆された⁽⁵⁾。誘電 率増加の影響が光波長帯の屈折率にも影響すると考え、現在磁性金属粒子の形 状を制御するとともに高屈折率マトリクスについても検討を行っている。

謝辞

本研究の遂行にあたりご助言をいただいた横浜国立大学の川井哲郎博士に感謝申し上げる。

REFERENCES

- 1) N. Kobayashi, et al., Sci. Rep., 8 (2018) 4978.
- 2) H. Imamura, J. Chiba, S. Mitani, K. Takanashi, S. Takahashi, S. Maekawa and H. Fujimori, Phys. Rev. B, 61 (2000) 46.
- 3) H. Kijima-Aoki, K. Ikeda, N. Kobayashi, M. Ohnuma, Y. Honda and H. Masumoto, 2023 IEEE International Magnetic Conference Short Papers (INTERMAG Short Papers), 2023, pp. 1-2, 0305022.
- 4) 青木英恵, 池田賢司, 小林伸聖, 增本 博, 遠藤 恭, 日本金属学会春期講演大会, 2023.
- 5) H. Kijima-Aoki and H. Masumoto, Summit of Materials Science 2023 and GIMRT User Meeting 2023, 2023.
- 6) H. Kijima-Aoki, K. Uchikoshi, T. Miyazaki, M. Ohnuma, Y. Honda, N. Kobayashi, S. Ohnuma and H. Masumoto, *Materials Transaction*, 2024, *Accepted*.





図3 緩和周波数 (*f*_{relax}) および最大TMD周 波数 (*f*_{TMD}) と*ρ*⊥の関係⁽⁶⁾.