スピン依存トンネル伝導で誘起される 新規マルチフェロイック効果の発現

The Multiferroic Effect Realized by Spin-dependent Tunneling Conduction

M22助自1

代表研究者 青 木 英 恵 東北大学 大学院工学研究科 講師

Hanae Aoki Senior Lecturer, School of engineering, Tohoku University

共同研究者 増 本 博 東北大学 学際科学フロンティア研究所 教授

Hiroshi Masumoto Professor, Frontier Research Institute for Interdisciplinary Sciences,

Tohoku University

共同研究者 横 浜 希 東北大学 大学院工学研究科 修士2年

(2022年3月に卒業、現職:株式会社リクルート)

Nozomi Yokohama 2nd-yearMaster's course, Graduate School of Engineering, Tohoku University

(Graduated March 2022, present post: Recruit Co., Ltd.)

The multiferroic effect, in which a magnetic field induces polarization (voltage), has been studied for application to voltage-driven devices with low power consumption and spin quantum devices. Among them, ferrite-based multiferroic crystal materials have been studied, in which spins in the crystal are distorted by applying an external magnetic field, resulting in spontaneous polarization. However, there are problems in industrial applications, such as the need for high temperature and high energy for fabrication, degradation of properties when miniaturized due to the long-period structure, and low magnetization due to ferrimagnetism. This study aims to create a new multiferroic material with a completely different mechanism from ferrite-based crystalline materials. Nanogranular films have a structure in which magnetic nanoparticles are uniformly dispersed in a dielectric matrix, and are known for various functions (magneto-resistance, magneto-dielectric, magneto-optical) via spin-dependent tunnel conduction between particles. Nanogranular films with fluoride matrices can be crystallized at low temperatures, and magnetic nanoparticles exhibit large magnetization, thus solving the problem of ferrite-based multiferroic crystals described above. However, compositing magnetic nanoparticles with ferroelectric matrices has not yet been investigated.

In this research, we aim to fabricate ferroelectric nanogranular crystal films in which ferromagnetic nanoparticles are dispersed in a fluoride ferroelectric matrix to create a novel multiferroic effect in which polarization (voltage) is induced by spin-dependent tunneling conduction between the particles. The significance of this research is twofold: 1) it creates a new field of multiferroics based on a spin-dependent tunneling polarization between nanoparticles, and 2) it is expected to develop practical materials as new multiferroic materials that can be synthesized at low temperatures, tolerate nanoscale integration, and be applied to industrial applications. This research project is the first attempt in the world to develop a multiferroic effect using spin-dependent polarization between magnetic nanoparticles, and ferroelectric

structures, potentially seamlessly linking functions such as energy conversion, transport, and storage between nanoparticles.

研究目的

磁界によって分極(電圧)を誘起するマルチ フェロイック効果は、電力消費の小さい電圧 駆動デバイスやスピン量子デバイスへの応用に 向けて研究がなされている。その中で、フェラ イト系のマルチフェロイック結晶材料が研究 されており、結晶中のスピンが外部磁界の印 加で歪み、自発分極を生じる発現機構である。 しかしながら、作製に高温・高エネルギーが必 要、長周期構造のため微細化で特性が低下す る、フェリ磁性で磁化が低いなどの工業応用 上の問題がある。本研究では、フェライト系 結晶材料とは全く異なる発現機構の新規マル チフェロイック材料を提案する。申請者らのグ ループが卓越した作製技術を保有するナノグ ラニュラー膜は、磁性ナノ粒子が誘電体マト リクス中に均一分散した構造を有し、粒子間 のスピン依存トンネル伝導を介した様々な複機 能性(磁気-抵抗・磁気-誘電・磁気-光)で知ら れる。フッ化物マトリクスを用いたナノグラニュ ラー膜は低温で結晶化が可能、かつ、磁性ナ ノ粒子は大きな磁化が発現するため、フェラ イト系マルチフェロイック結晶の問題を解決で きる。しかしながら、磁性ナノ粒子と強誘電体 マトリクスの複合化は未だ検討されていない。

本研究では、強磁性ナノ粒子が複フッ化物 強誘電体マトリクス中に分散する強誘電ナノグ ラニュラー結晶膜を作製し、粒子間のスピン 依存トンネル伝導により分極(電圧)を誘起す る新規マルチフェロイック効果の創出を目的 とする。

概 要

磁界によって分極(電圧)を誘起するマルチ フェロイック効果は、電力消費の小さい電圧 駆動デバイスやスピン量子デバイスへの応用に 向けて研究がなされている。精力的に研究がな されるフェライト系結晶材料のマルチフェロ イック効果は、結晶中のスピンが外部磁界の 印加で歪み、自発分極を生じる発現機構であ るが、作製に高温・高エネルギーが必要、長 周期構造のため微細化で特性が低下する、フェ リ磁性で磁化が低いなどの工業応用上の問題 がある。本研究では、フェライト系結晶材料 とは全く異なる発現機構の新規マルチフェロ イック材料を提案する。申請者らのグループ が卓越した作製技術を保有するナノグラニュ ラー膜は、磁性ナノ粒子が誘電体マトリクス 中に均一分散した構造を有し、粒子間のスピ ン依存トンネル伝導を介した様々な複機能性 (磁気-抵抗効果、磁気-誘電効果、磁気-光効 果)を示すことが知られる。フッ化物マトリク スを用いたナノグラニュラー膜は低温で結晶化 が可能、かつ、磁性金属ナノ粒子により大き な磁化が発現する。しかしながら、磁性ナノ粒 子と強誘電体マトリクスの複合化は未だ検討 されていない。

本研究では、低温合成が可能で優れた強誘電性を示す $BaMgF_4$ 複フッ化物結晶とするに着目した。 $BaMgF_4$ (バルク結晶) は斜方晶を呈し室温で $7.7\mu C/cm^2$ の自発分極を生じる強誘電体であり、かつ、 $200\sim1800$ nmの広帯域の光透過性を有する。先行研究から、M- (M-fluoride)系ナノ複相膜 (M= (Co, Fe), M-fluoride= (MgF_2 , BaF_2)) は、高電気比抵抗および高飽和磁化で

あり、トンネル磁気誘電効果を発現することが報告されている。フッ化物マトリクスであれば、常温のスパッタ成膜で容易に結晶化し高抵抗に寄与するとともに金属粒子を酸化させず、磁気・誘電両特性を向上できる。これらの単フッ化物は常誘電体であり、また、金属添加とともに誘電損失が増加する(D>0.1)という課題から、その強誘電的性質は検討されていないが、もし単フッ化物マトリクスを強誘電性のBaMgF4で置き換えられれば、スピン依存トンネル伝導で誘起される新規強誘電膜として期待される。

本研究課題では、強磁性ナノ粒子が複フッ化物強誘電体マトリクス中に分散する強誘電ナノグラニュラー結晶膜を作製し、粒子間のスピン依存トンネル伝導により分極(電圧)を誘起する新規マルチフェロイック効果の創出を目的として、1) BaMgF4マトリクスの化学量論組成比の達成、2) 熱処理によるCo-BaMgF4ナノ複相膜の結晶化条件の最適化、3) Co-BaMgF4ナノ複相膜の諸特性と強磁性・強誘電性の評価を行った。

 $Co-BaMgF_4$ 膜は共スパッタ法を用いて、 BaF_2 、 MgF_2 およびCoの同時成膜で作製した。成膜によるフッ素の欠損はほとんどなく、成膜後の膜組成はBa:Mg:F=x:y:(2x+2y)(at. %比)となる。Ba/Mg比を変化させたところ、450 $\mathbb C$ 熱処理における結晶条件が $x/y=0.89\sim1.06$ であることを明らかにした。この化学量論組成範囲のマトリクスにおいて、 $Coを0\sim25$ at.%添加し、膜のナノ複相化および強磁性・強誘電特性の同時発現可能性について検討した。いずれのCo添加量においても、成膜後はアモルファスであるが、 $400\sim500$ $\mathbb C$ の熱処理でマトリクスの $BaMgF_4$ は結晶化した。このとき、単相膜の結晶化温度 $(450\ \mathbb C)$ に比べて、金属を添加すると低い温度 $(420\ \mathbb C)$ で結晶化が開始

し、アモルファスSiや酸化物に金属を添加し た際に結晶化温度が低下する金属誘起結晶化 と同様の現象が示唆された。金属Coを7at.% 含むCo-BaMgF₄膜は、500℃の熱処理で磁性 金属ナノ粒子が結晶化した高抵抗なBaMgF4マ トリクス中に析出しナノ複相化した。その結果、 68 emu/cm³ (2Tにおいて) の磁化ならびにフェ ライトと同程度に低い誘電損失(tanδ=0.024 @100kHz)を両立することに成功した。さらに、 金属Coを16 at.%含むCo-BaMgF4ナノ複相膜で は、熱処理によりナノ粒子径が10nm程度に成 長し、飽和磁化200 emu/cm3の強磁性を示す が、分極はほとんど示さなかった数10 nC/cm² 程度)。また、膜面内に磁界を印加して分極曲 線を評価したが、ループにほとんど変化は見ら れなかった。これは、マトリクスが無配向であ ること、マトリクス中のBaMgF4の粒径が数nm と小さく残留分極を生じるのに十分でなかった ことが原因であると考えられる。

以上の結果からフッ化物強誘電体を用いることで金属を添加ししても誘電損失が極めて小さく強磁性を示す結晶性ナノ複相薄膜を作製することに成功した。今後の研究では、優れた強誘電性の実現のために、さらにマトリクス結晶相の配向制御すること、ならびにナノ粒子の強磁性を示しうる範囲でマトリクス結晶粒径もμmオーダーに増加するなどの課題解決を目指したい。

本 文

1. 背景と目的

電力消費の小さい電圧駆動デバイスやスピン量子デバイスへの応用に向けて、磁界によって分極(電圧)を誘起するマルチフェロイック材料の研究がなされている。最もよく知られるフェライト系結晶材料のマルチフェロイック効果の起源は、規則結晶格子内の電子によるス

ピンが外部磁界の印加で歪み、自発分極を生 じることに起因する(図1(a))。しかしながら、 作製に高温・高エネルギーが必要、長周期構 造のため微細化で特性が低下する、フェリ磁 性で磁化が低いなど工業応用上の問題がある。 一方で、直径数nmの磁性ナノ粒子が誘電体マ トリクス中に分散する「磁気-誘電ナノ複相膜 (図1(b)) は、外部磁界の印加により誘電率 が変化する現象が見出され「三、その磁気機能 性は伝導、誘電さらに光領域まで及ぶことも 報告される[2-4]。特性発現機構は、磁性金属ナ ノ粒子間のスピン依存トンネル伝導(分極)が 外部磁界で変化することに起因し、結晶中の スピンを介さない点が既存のフェライト系結晶 と異なる。磁性ナノ粒子の大きな磁化とマトリ クスの機能性の両方が反映される構造となっ ているが、これまでにマトリクスとして強誘電 体が検討されたことはない。そこで本研究で は、強磁性ナノ粒子が誘電体マトリクス中に 分散する強誘電ナノグラニュラー結晶膜を作 製し、粒子間のスピン依存トンネル伝導により 分極(電圧)を誘起する新規マルチフェロイッ ク効果の創出を目的とする。もし強誘電結晶 からなるナノ複相膜を実現できれば、フェライ ト系結晶材料とは全く異なる発現機構に起因 する、室温動作の新規マルチフェロイックスの 学術領域を開拓できる。

(a) マルチフェロイック結晶 (b) 磁気-誘電ナノ複相膜







■ 磁性ナノ粒子間の スピン依存トンネル伝導が 分極に寄与

図1 (a) マルチフェロイック結晶 (既存) と(b) 磁気ー誘電ナノ複相膜 (本研究) の磁界中分極挙動

2. 強誘電マトリクスの検討と実験方法

ナノ複相膜のマトリクスとして、高電気抵抗・低誘電損失な常誘電体である MgF_2 、 BaF_2 、および SrF_2 などのフッ化物が重点的に研究されている。その理由として、相分離が良好であり金属ナノ粒子の酸化を防止できること、また、高いバンドギャップから高電気比抵抗化しやすいことが挙げられる。粒子が混入するとアモルファス化しやすいナノ複相膜材料においても、常温~低温成膜で容易にマトリクスが結晶化し高抵抗膜となることでも知られる[2]。本研究では、比較的低温で合成が可能で低誘電損失・強誘電性を示すことが報告される $BaMgF_4$ を選択し、強誘電Coナノ粒子とのナノ複相化を試みた[5]。

ナノ複相膜の作製は三元マグネトロン共スパッタ法を用いて、BaF2、MgF2およびCoの同時成膜で作製した。各カソードの投入電力を調整し膜組成を調整した。膜はSi(100),Pt/Ti/Si(100)および石英ガラス基板上に成膜し、成膜後、ゴールドイメージ炉を用いて400~500℃で1時間真空中熱処理を施した。膜組成はX線蛍光(XRF,Rigaku ZSX Primus)分析法、膜構造はX線回折(XRD,Rigaku, Ultima IV)および透過電子顕微鏡(TEM,日本電子製,JEM-ARM200F)を用いて評価した。膜の静磁気特性は振動試料型磁力計(VSM,東栄科学産業製,PV-M20-5S)を用いて測定した。

膜の磁気・誘電特性は図2に示す磁界中誘電特性測定系を用いて評価した。Pt/Ti/Si (100) 基板上のナノ複相膜にIn電極 (0.5 mm Φ) を塗布し、上下電極に挟まれた膜の高周波誘電特性 (20 kHzから120 MHz) および分極特性をそれぞれインピーダンスアナライザ (KEYSIGHT, E4990A) および強誘電テスタ (RADIANT Technologies, inc., Precision LC) で評価した。誘電損失は100 kHzにおける $D = \varepsilon'/\varepsilon''$ (複素比

誘電率 $\varepsilon = \varepsilon' + j \varepsilon''$) の値を採用した。電磁石を用いて膜の面内方向に外部磁界1.2 T印加し、複素誘電率および誘電分極の外部磁界依存性を評価した。

3. 実験結果

3.1. 結晶性Co-BaMgF₄ナノ複相膜の成膜および熱処理条件の最適化

まず、 $BaMgF_4$ が結晶化する熱処理温度および組成範囲を検討した。熱処理による $BaMgF_4$ 膜の結晶化温度は500 $\mathbb C$ であることが報告されている [5]。 $Ba/Mg比=0.8\sim1.5$ の範囲で $BaMgF_4$ 膜を作製し成膜後熱処理を行ったところ、従来より低い450 $\mathbb C$ において以下の結晶相が出現することを明らかにした。1) $Ba/Mg比=0.89\sim1.06$: $BaMgF_4$ 相、2) Ba/Mg比>1.2: BaF_2 相 3) Ba/Mg比<0.89: Pモルファス。このことから、マトリクス組成Ba/Mg比= $0.95\sim1.05$ 、熱処理温度450 $\mathbb C$ を、成膜後熱処理による $BaMgF_4$ 結晶化の条件とした。このとき、膜は多結晶構造を呈した。

良好な誘電特性を示す $BaMgF_4$ 膜が得られた上記成膜条件のもと、 $Coを7\sim25$ at.%添加し、さらに熱処理を施したときの結晶化およびナノ複相構造の変化について調べた。成膜後の状態で、16および25 at.%Co原は、いずれもアモ

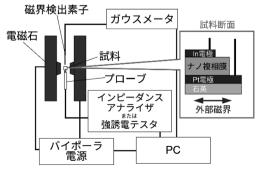


図2 磁界中誘電特性評価系(高周波誘電率評価:インピー ダンスアナライザ、分極特性評価:強誘電テスタ)

ルファス状態のCoとBaMgF4からなるナノ複相 構造を呈した。マトリクスの結晶化および磁 性粒子の粒成長を目的として成膜後に熱処理 を施したところ、7 at.%Co以上のすべての膜で BaMgF₄結晶相が確認された。一例として、図 3にCo₇-(BaMgF₄)₉₃ナノ複相膜のXRDパター ンの熱処理温度依存性を示す。室温成膜後 410 ℃以下はアモルファスだが、420 ℃以上で はBaMgF4の回折プロファイルと一致する結晶 ピークが観察された。金属添加物により、結 晶化温度が低減する現象は「金属誘起結晶化 | として知られ、古くはSiの低温結晶化に応用 される[6]が最近は酸化物への金属添加におい ても報告がある[7]。添加したCoにはBaMgF4の 結晶化の活性化エネルギーを低減する効果が あると考えられる。また、回折ピークの強度は 熱処理温度の増加とともに増加した。熱処理 による膜構造の変化を調べたところ、図4のよ うに、500℃の熱処理後によって、不明瞭なア モルファス構造から、直径4nm前後のCo粒子 (暗コントラスト)が結晶性BaMgF4に分散する

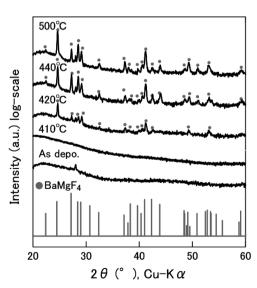


図3 410-500℃の熱処理を施したCo₇- (BaMgF₄) 93ナノ複相 膜のX線回折パターン

結晶質なナノ複相構造に変化したことが分かった。以上の結果から、 $7\sim25$ at.%Coの金属添加量の範囲では、 $Ba/Mg=0.89\sim1.06$ の組成比において $420\sim500$ \mathbb{C} 程度の熱処理によって、結晶性の高い $Co-BaMgF_4$ ナノ複相膜が得られることを明らかにした。

3.2. Co-BaMgF₄ナノ複相膜の磁気・誘電特性 と成膜後熱処理による特性向上

3.1で明らかにした条件で成膜後熱処理した $BaMgF_4$ 単相膜は、 $100\,kHz$ における ε ′が7.0であり、そのときのD値は0.01(@ $100\,kHz$)であった。強誘電体の $YFeO_3$ (D=0.4@ $100\,kHz$ [8]) や常誘電体の BaF_2 (D=0.02@ $100\,kHz$ [2])より低く、 $BaMgF_4$ 薄膜(D=0.008@ $100\,kHz$ [5])の報告値と同程度の値であった。

成膜後ままのCo-BaMgF4ナノ複相膜の ϵ 'は、Co濃度が 7,16および 25 at.%において 2,60および 80倍にそれぞれ増加した。パーコレーション 閾値未満の金属を含むナノ複相薄膜は、誘電膜の $10\sim100$ 倍程度に誘電率が巨大化することが知られる [1,2]。これは、隣接する金属ナノ粒子対が微小なコンデンサとしてふるまい、積層コンデンサと同様に膜全体の静電容量を増加させることに起因する。その一方で、金属添加量に応じて直流または誘電緩和による誘電損失 (D) が増加することから、誘電特性は劣化する。成膜後ままのCo-BaMgF4ナノ複相

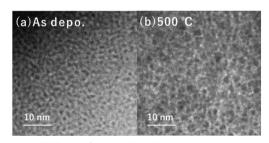


図4 成膜後および500℃の熱処理後のCo₇ (BaMgF₄) ₉₃ナノ 複相膜のTEM明視野像。

膜の電気比抵抗 (ρ) は、Co添加量の増加 (7-25 at.%Co) とともに、 5×10^7 から $10\,\Omega$ cmに急減し、微小容量の集合であるナノ粒子間の誘電緩和現象により、D値は周波数に依存して $0.1\sim1$ の範囲で増減した。Coが増加するとCo粒子間隔が減少し、粒子間の電荷のトンネル確率が増加するため緩和周波数は高周波帯にシフトする。この組成範囲では膜の伝導機構はスピン依存トンネル伝導または分極が支配的であり、膜は緩和周波数帯のe'が磁界でわずかに増加するトンネル磁気誘電効果を示す。

マトリクスの結晶化と誘電損失低減のために、成膜後のCo-BaMgF4ナノ複相膜に410~500 $\mathbb C$ の熱処理を施した。各熱処理温度におけるCo₇- (BaMgF4) $_{93}$ ナノ複相膜の (a) $_{\epsilon}$ 'および (b) $_{\epsilon}$ の周波数依存性を図5に示す。7 at.%Co のCoの添加により、成膜後ままの膜の低周波帯 (100 Hz) における $_{\epsilon}$ 'はBaMgF4単相膜の値 ($_{\epsilon}$ ' = 9.0) の2倍以上に増加したが、膜に410 $\mathbb C$ の 熱処理を施すと減少し、 $_{\epsilon}$ の値も半分以下にまで低減し常誘電的になった。この $_{\epsilon}$ の単減は図3の $_{\epsilon}$ 図3の $_{\epsilon}$ BaMgF4中に固溶し絶縁性を劣化させて

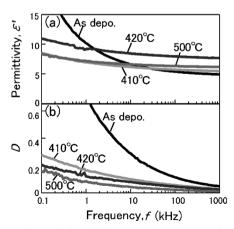


図5 熱処理温度依存性を施した $Co_{\mathcal{P}}$ (BaMgF₄) $_{99}$ ナノ複相膜の(a) 比誘電率(ε ') および(b) D ($=\varepsilon$ "/ ε ') の周波数(f) 依存性

いた金属Coがナノ粒子として凝集し、純度の高いBaMgF4マトリクスが高抵抗化したことに起因すると考えられる。420℃以上の熱処理温度では、図3および図4の通り7at.%Co膜の結晶性や膜構造は大きく変化したものの図5の常誘電特性に大きな変化は見られなかった。

ナノ複相膜が強磁性となるためには、個々の 磁性粒子の大きさを交換結合距離以上とする か、ナノ粒子の場合は粒子密度を増加するな どして、室温程度の熱擾乱に耐えうる強磁性 を維持する必要がある。本研究のCo-BaMgF4 ナノ複相膜は強誘電性発現のために磁性金属 であるCoの添加量を30 at.%未満に抑えてい るが、成膜後ままのナノ複相膜の磁気特性は 7at.%Coで常磁性、16at.%Co以上で超常磁性 であった。これはナノ粒子径が2nm未満であ ることに起因する。強磁性を発現させるため に磁性粒子径を増加させることが重要となる。 成膜後熱処理の結果、マトリクスの結晶化は 420℃以上で起きたが(図3)、磁気特性の向上 は410℃から確認できた。410℃の熱処理に よって、7at.%Co膜は常磁性から超常磁性に、 16および25 at.%Co膜はそれぞれ、2Tの磁界下 における磁化値が、それぞれ110から220、170 から390 emu/cm³まで増加し、強磁性を示した。 図6に7 at.%CoのCo-BaMgF4ナノ複相膜のD値 (左)および2Tの磁界下における磁化(右)の熱 処理温度依存性を示す。熱処理温度の増加と ともに磁化は増加し誘電損失は低下した。特 に390℃から410℃の間で顕著な向上が見られ た。これは結晶化ではなく、BaMgF4マトリッ クス中に固溶していた金属介在物が粒界等に 移動し析出したことによる膜構造の緩和が原 因と考えられる。

500 ℃熱処理を施したCo₁₆-(BaMgF₄)₈₄ナノ 複相膜について、磁気・誘電特性を評価した 結果を図7に示す。磁化曲線は磁気的にソフ トな強磁性であり保磁力は非常に小さい(図7 (a))。未分極処理膜の分極曲線($1\,kHz$)はリーク電流が無視できない常誘電曲線を示した(図7(b))。 $90\,kV/cm^2$ における分極値は $13\,nC/cm^2$ と小さく、また、膜面内に $6\,kOe$ 磁界を印加して分極曲線を評価したが、ループに有意な変化は見られなかった。これは、マトリクスが無配向であること、マトリクス中の $BaMgF_4$ の粒径が数 $10\,m$ と小さく残留分極を生じるのに十分でなかったことが原因であると考えられる。

4. まとめ

スピン依存トンネル伝導に起因する新規マルチフェロイック効果の発現を目的として、強誘電体BaMgF4をマトリクスとするCo-BaMgF4

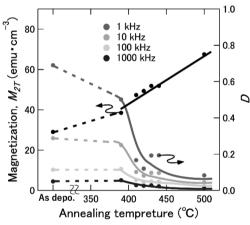


図6 Co₇ (BaMgF₄) 93 ナノ複相膜の2 Tにおける磁化(左) およびD(右) の熱処理温度依存性

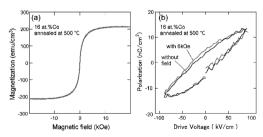


図7 500 ℃熱処理後のCo₁₆- (BaMgF₄) ₈₄ナノ複相膜の (a) 面 内磁化曲線および (b) 分極曲線 (黒線:磁界印加無し、 赤線:面内磁界印加あり)

ナノ複相膜を作製した。室温成膜した膜に対 して、磁気誘電両特性を発現・向上させるた めに最適な、マトリクスの組成範囲ならびに熱 処理条件を明らかにした。マトリクスはBa/Mg 比=0.95~1.05の範囲で結晶化し、その熱処 理温度はCoの添加により420℃まで低下した。 さらに、膜が結晶化するより低い温度で磁気 特性の向上や誘電損失の低減が確認されてお り、機能性膜の低温における工業プロセスに 応用できる可能性がある。マトリクスの配向制 御や粒径増加が課題であり、強誘電性は発現 できなかったが、本研究で初めて結晶性複フッ 化物をマトリクスとするナノ複相膜の創製に成 功し、数%の金属ナノ粒子を含有するが絶縁 膜と同様に誘電損失の小さい誘電特性を実現 できた。

謝辞

TEM観察にご協力いただいた東北大学金属 材料研究所今野豊彦教授およびARIM事業班 (課題番号JPMXP1222TU0135)に深く感謝申 し上げる。

参考文献

- [1] N. Kobayashi, H. Masumoto, S. Takahashi, S. Maekawa, Nat. Comm. 5 (2014) 4417.
- [2] H. Kijima-Aoki, Y. Cao, N. Kobayashi, S. Takahashi, S. Takahashi, S. Ohnuma, H. Masumoto, J. Appl. Phys. 128 (2020) 133904
- [3] N. Kobayashi, H. Masumoto, S. Takahashi, S. Maekawa, Sci. Rep. 6 (2016) 34227
- [4] N. Kobayashi, K. Ikeda, B. Gu, S. Takahashi, H. Masumoto, S. Maekawa, Sci. Rep. 8 (2018) 4978.
- [5] K. Aizawa, H. Ishiwara, Jpn. J. Appl. Phys. 33 (1994) 5178
- [6] W. Knaepen, C. Detavernier, R. L. Van Meirhaeghe, J. J. Sweet, C. Lavoie, Thin Solid Films 516 (2008) 4946.

- [7] L. Lermusiaux, A. Mazel, A. Carretero-Genevrier, C. Sanchez, G. L. Drisko, Accounts of Chemical Research, 55 (2022) 171.
- [8] S. Madolappa, B. Ponraj, R. Bhimireddi, KBR Varma, J. Ame. Ceram. Soc. 100 (2017) 2641-2650

今後の研究の見通し

結晶性に優れたナノ複相構造に最適な組成 および温度範囲を明らかにすることで、低誘電 損失および強磁性を両立するCo-BaMgF4ナノ 複相膜の低温合成に成功した。しかしながら 研究期間において、マトリクスは結晶化するが、 強誘電性を示すに至らなかった。この原因と して、マトリクス結晶の優先配向や強誘電性 を示すための粒子径を満たせなかったことが考 えられる。ナノ複相膜中の磁性粒子の大きさ や形状・配列に着目した既存研究に対して、 本研究ではマトリクスの結晶粒子径や構造に関 する設計指針が得られたことから、今後の研 究ではマトリクスの機能性を生かすナノ複相構 造を提案しスピン依存電荷分極と強誘電性の 共発現に取り組むとともに、光学特性や機械 特性に及ぶ磁気複機能性も開拓したい。

本助成金による主な発表論文、著書名

- N. Yokohama, <u>H. Kijima-Aoki</u>, and H. Masumoto, "Improving magnetic and dielectric performance of Co-BaMgF₄ nanocomposite films by thermal annealing treatment" Intermag2023 digest (2023)
- 2) <u>青木英恵</u>, 池田賢司, 小林伸聖, 増本博, 遠藤恭, 「光周波数帯の誘電特性に及ぼすCo-BaF₂ナノ複相膜のCo添加量の効果」日本金属学会 春季講演 大会, 2023年3月9日
- 3) H. Aoki, T. Uchiyama, and H. Masumoto, "Magnetoresistance of nano-granular film; the effect of shape and alignment of magnetic nanogranules in ceramics matrix" MRM2023/IUMRS-ICA2023 Grand Meeting digest (2023)