

# 層間磁気結合を有する磁化オルソゴナル構造のスピントルク発振

劉, 楚寒

<https://hdl.handle.net/2324/7363836>

---

出版情報 : Kyushu University, 2024, 博士 (工学), 課程博士  
バージョン :  
権利関係 :



層間磁気結合を有する  
磁化オルソゴナル構造のスピントルク発振

劉 楚寒

令和 7 年 2 月

博士後期課程

電気電子工学専攻

# 目次

|                                         |    |
|-----------------------------------------|----|
| 第一章 序論 .....                            | 1  |
| 1.1 社会的な背景 .....                        | 1  |
| 1.2 磁気ダイナミクス .....                      | 6  |
| 1.2.1 Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式 ..... | 6  |
| 1.2.2 強磁性共鳴 .....                       | 10 |
| 1.2.3 スピントランスファトルク効果 .....              | 15 |
| 1.2.4 STO における高周波化の流れ .....             | 27 |
| 1.3 層間磁気結合 .....                        | 29 |
| 1.3.1 各種層間磁気結合 .....                    | 29 |
| 1.3.2 層間磁気結合エネルギーの高次展開 .....            | 32 |
| 1.4 目的と構成 .....                         | 37 |
| 第二章 実験方法 .....                          | 40 |
| 2.1 試料作製 .....                          | 40 |
| 2.1.1 DC マグネトロンスパッタリング .....            | 40 |
| 2.1.2 磁場中アニール処理 .....                   | 42 |
| 2.1.3 フォトリソグラフィ .....                   | 45 |
| 2.1.3 EB リソグラフィ .....                   | 47 |

|       |                                                                        |    |
|-------|------------------------------------------------------------------------|----|
| 2.1.4 | イオンビームエッチング .....                                                      | 49 |
| 2.2   | 試料評価 .....                                                             | 51 |
| 2.2.1 | 試料振動型磁力計 (Vibrating Sample Magnetometer: VSM) .....                    | 51 |
| 2.2.2 | 超伝導量子干渉計 (Superconducting Quantum Interference Device: SQUID)<br>..... | 53 |
| 2.2.3 | 強磁性共鳴 (ferromagnetic resonance FMR) 測定 .....                           | 55 |
| 第三章   | 実験結果と考察 .....                                                          | 57 |
| 3.1   | 面内構造における層間磁気結合の考察 .....                                                | 57 |
| 3.1.1 | VSM による磁化曲線の測定 .....                                                   | 57 |
| 3.2   | オルソゴナル構造における層間磁気結合の考察 .....                                            | 62 |
| 3.2.1 | SQUID による磁化曲線からの層間磁気結合係数算出 .....                                       | 64 |
| 3.2.2 | FMR による飽和磁場からの層間磁気結合係数算出 .....                                         | 70 |
| 3.2.3 | シミュレーションによる FMR 曲線のフィッティングからの層間磁気結合係<br>数算出 .....                      | 76 |
| 第四章   | LLG マイクロマグネティックシミュレーション .....                                          | 82 |
| 4.1   | シミュレーションの基本事項 .....                                                    | 82 |
| 4.1.1 | LLG 方程式の解法 .....                                                       | 82 |
| 4.1.2 | 実効磁場 .....                                                             | 87 |
| 4.1.3 | シミュレーションモデル .....                                                      | 92 |

|                                                                                                               |     |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 4.1.4 層間磁気結合を有するオルソゴナル磁気構造 .....                                                                              | 94  |
| 4.2 初期磁化状態の設定と緩和後静的な磁化状態 .....                                                                                | 97  |
| 4.2.1 Bilinear 結合の静的磁気構造への影響 .....                                                                            | 97  |
| 4.2.2 Biquadratic 結合の静的磁気構造への影響 .....                                                                         | 100 |
| 4.3 層間磁気結合応じた磁気緩和状態に起因した磁化発振状態の違い .....                                                                       | 102 |
| 4.3.1 $A_{12}=-1.2$ mJ/m <sup>2</sup> かつ $B_{12}=0$ mJ/m <sup>2</sup> の場合、材料による Top 層の発振状態の<br>観察 .....       | 103 |
| 4.3.2 $A_{12}=0$ mJ/m <sup>2</sup> かつ $B_{12}=-0.6$ mJ/m <sup>2</sup> における Top 層材料にを変えた場合の磁<br>化発振状態の観察 ..... | 110 |
| 4.4 スピン波の観察 .....                                                                                             | 116 |
| 4.5 シミュレーションのまとめ .....                                                                                        | 121 |
| 第六章 結論と展望 .....                                                                                               | 124 |
| 参考文献 .....                                                                                                    | 127 |
| 謝辞 .....                                                                                                      | 138 |

# 第一章 序論

## 1.1 社会的な背景

過去 20 年間で、物理学および電子工学において 2 つの歴史的な突破があった。その 1 つが、1988 年に発見された巨大磁気抵抗効果 (GMR) である [1, 2]。金属磁性ナノ多層膜において、磁性層の磁化の相対的な方向を調整することで電気抵抗や電流が大きく変化する事が確認された。この発見により、電子の 2 つの基本的な特性—すなわち電荷とスピン—が電子伝導の制御可能な自由度として初めて利用され、スピントロニクスという新しい学問分野が、広く認知されるようになった。

スピントロニクスの発展において、第 2 の歴史的な突破は、spin transfer torque (STT) を介して電流がナノ磁性体の磁化状態を直接変化させる現象である [3, 4]。STT は伝導電子の角運動量と局在磁化の角運動量が交換されることによって生じる一種の磁気トルクであり、電荷の流れる量と方向（つまり電流の向き）によってトルクの大きさと方向を変化させることができる特徴を持つ。1996 年に Slonczewski と Berger によって、3 層構造の GMR 素子における STT の発現とそれを利用した磁化反転（スピン注入磁化反転）についての理論が提唱された。古代に強磁性体が発見されて以来、理論的にも実験的にも、磁化の方向転換は磁場によってのみ引き起こされると考えられてきたが、電流が直接磁化を変化させるという現象は、数千年にわたる物理学上のもう一つの歴史的な突破と見なされている。STT の発見の後、スピンホール効果を利用して純スピン流を生成し、磁化方向を変化させる spin orbit torque (SOT) [5]、磁性体内部でエネルギー散逸によって生じる damping torque、ラシュバ効果に起因する field like torque [6] などが次々と実証されたものの、実用的なデバイスに利用実績のあるものは、STT に限られる。

Society 5.0 時代の到来に伴い、Internet of Everything、インテリジェント・マニ

ユファクチャリング、バーチャル・リアリティといった新たなアプリケーションが、無線通信技術に新たな課題を突きつけている。その中で、STT を利用した新しいマイクロ波発振器、いわゆる spin torque oscillator (STO) が開発された(図 1.1.1) [7]。現在一般的に使用されている半導体発振器と比較して構造が簡単で、従来の技術である voltage-controlled oscillator (VCO) の 50 の 1 という小型化が可能で、周波数範囲が 0.1~100 GHz と広く、0.5 V 以下という低電圧で動作するといった (<0.5 V) な利点を持ち、これらの特性を利用できる応用として、音声認識(図 1.1.2) [8]、HDD(Hard Disk Drive)の MAMR (Microwave Assisted Magnetic Recording) (図 1.1.3) [9]、超短距離通信(図 1.1.4) [10]、指紋認証センサー、生体センサー(図 1.1.5)などが相次いで提案されている。もとより電波と光の技術ギャップと言われるサブ THz 領域はその応用先が多岐に渡るが、その中の一つとして、スペクトル吸収による微小物質検知が提案されている。既にフェムト秒レーザーでの実証は報告されているものの、大型かつ高額であるため、IoT デバイスとして広く流布するには至っていない[11]。もし、小型で簡便な、周波数可変のサブ THz 送受信が可能になれば、ウィルス等の検出に使えると期待される(図 1.1.6)。これに対して、超短距離通信および生体センサーでは比較的高い周波数が必要であるため、従来は数 GHz であった STO の周波数を如何にして向上させるかが課題となっている。本研究では、直流電流から高周波信号生成が可能な「スピントルク発振現象」に注目し、STO の周波数の向上を目的として行った。

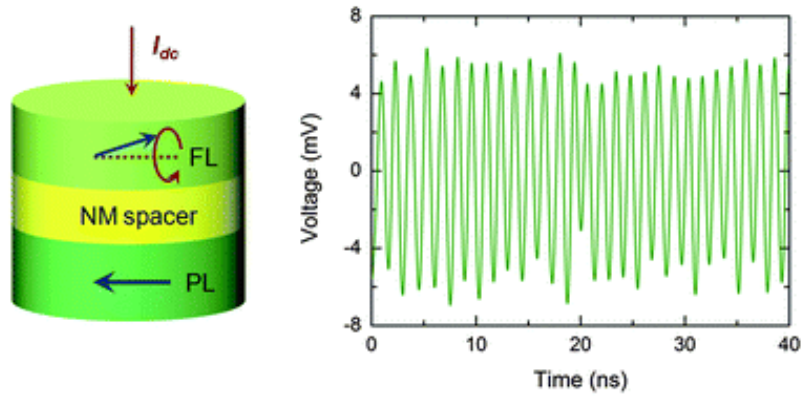


図 1.1.1 STO の動作原理模式図 (a) と電流駆動によるマイクロ波信号 (b) [7]

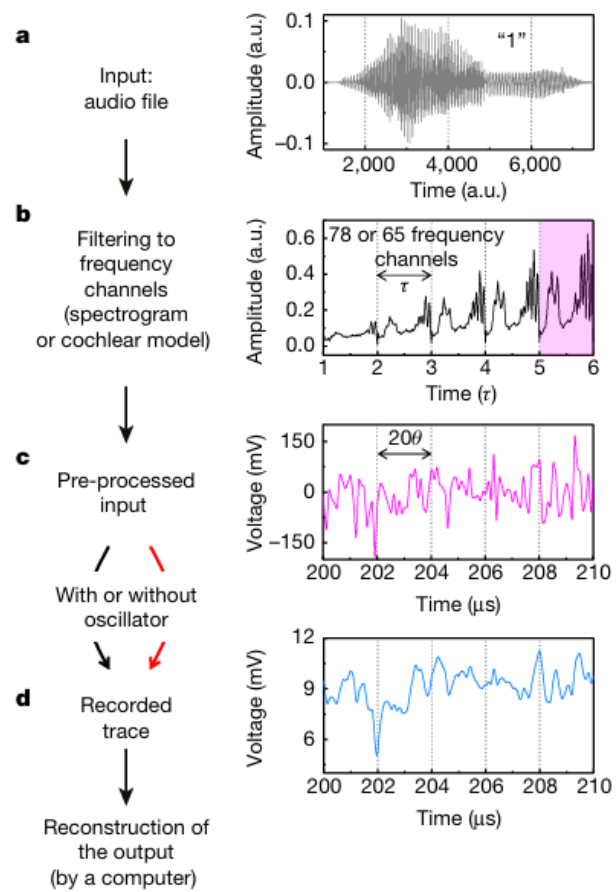


図 1.1.2 STO による音声認識[8]

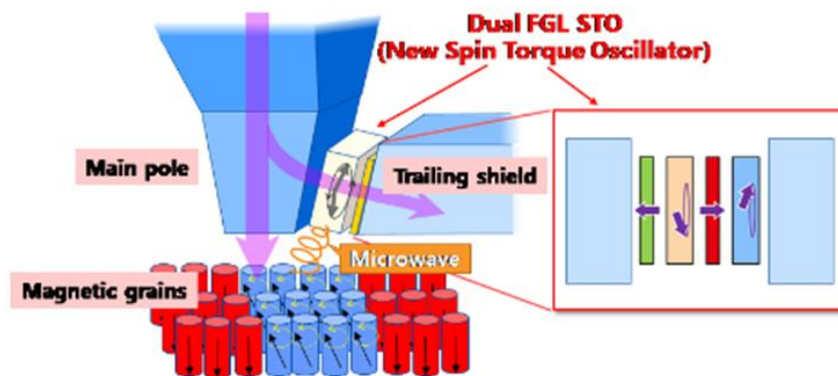


図 1.1.3 HDD の MAMR (Microwave Assisted Magnetic Recording) [9]

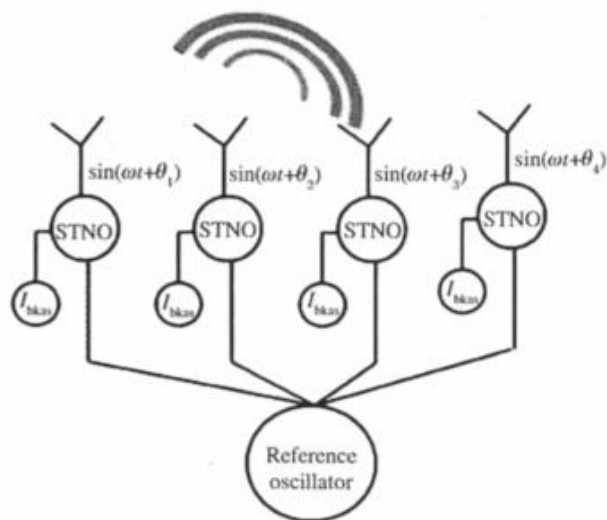


図 1.1.4 フェーズアレイアンテナにおける STO の応用[10]

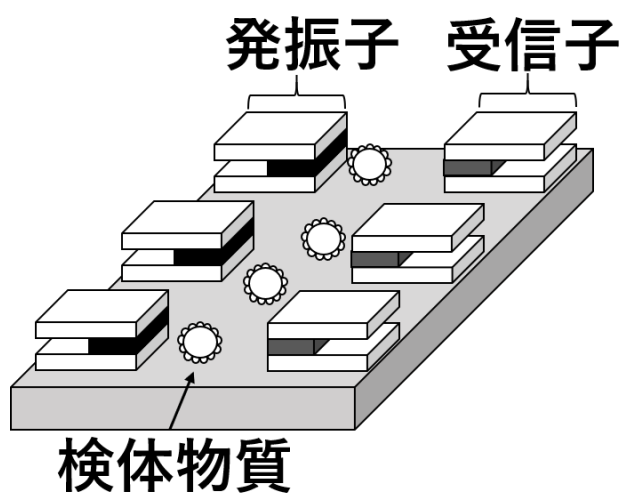


図 1.1.5 指紋認証センサー概念図

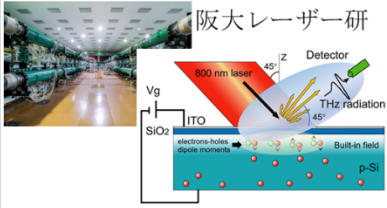
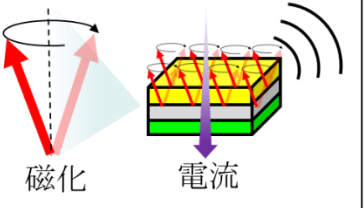
|                                                                                                 |                                                                                   |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| 応用例：微小物質検知<br>共鳴スペクトル吸収 <div> <div>光源</div> <div>THz光</div> <div>検体</div> <div>検出器</div> </div> |                                                                                   |
| 報告例：フェムト秒レーザー                                                                                   | 提案：Spin torque oscillator (STO)                                                   |
|                |  |
| 検体そのものを検出（実証済）○<br>周波数可変○                                                                       | 未実証×<br>周波数可変○                                                                    |
| 光源が大きい（高い）×                                                                                     | 小型オンチップ（安い）○                                                                      |

図 1.1.6 STO の応用例およびフェムト秒レーザーと STO の比較

## 1.2 磁気ダイナミクス

### 1.2.1 Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式

強磁性体の磁気モーメント $\mathbf{m}$ は、強磁性体を構成する磁性イオン中の打ち消されていない電子のスピンと軌道磁気モーメントから導かれる。磁気モーメント $\mathbf{m}$ と全角運動量 $\mathbf{j}$ の関係は以下の通りである：

$$\mathbf{m} = -\gamma \mathbf{j} \quad (1.2.1)$$

ここで、 $\gamma$ は磁気回転比である。

Ehrenfest 定理から、量子系と古典系の間のダイナミクスを簡単に観察することができる。ある物理量 $\mathbf{A}$ が与えられると、その時間発展方程式は次のようになる：

$$\frac{d\langle \mathbf{A} \rangle}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\mathbf{A}, \mathcal{H}] \rangle \quad (1.2.2)$$

磁気モーメント $\mathbf{m}$ に対して、式(2.1.2)は以下の形に変形される：

$$i\hbar \frac{d\langle \mathbf{m} \rangle}{dt} = \langle [\mathbf{m}, \mathcal{H}] \rangle \quad (1.2.3)$$

ここで、 $\mathcal{H} = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{B}$ である。角運動量演算子の性質を用いると、 $m_x$ は次のように展開できる：

$$[m_x, \mathcal{H}] = i\hbar\gamma^2 (B_z j_y - B_y j_z) \quad (1.2.4)$$

$M_y$ 、 $M_z$ も同様に展開できる。したがって、式(2.1.3)は次のようになる：

$$\frac{d\langle \mathbf{m} \rangle}{dt} = -\gamma(\langle \mathbf{m} \rangle \times \mathbf{B}) \quad (1.2.5)$$

$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ であることを考慮すると、式(1.2.5)の古典的形式を用いて、時間に対する磁化ベクトル（または磁気モーメント）の歳差運動方程式を記述することができる：

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mu_0(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) \quad (1.2.6)$$

この式が示す意味は、エネルギーの散逸を考慮しなければ、 $\mathbf{m}$ は図2.1.1に示すように $\mathbf{H}$ の周りを永遠に運動することを示す。

実際の系では減衰効果が存在するため、 $\mathbf{m}$ は $\mathbf{H}$ の周りで歳差運動をする過程でエネルギーを失い、図1.2.2に示すように、 $\mathbf{m}$ は徐々に $\mathbf{H}$ の方向に近づき、最終的に平衡状態に達する。1935年にLandauとLifshitzは磁気モーメントの非線形運動の式を提案した。式はLandau-Lifshitz(LL)方程式と呼ばれる[12]。

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2}(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \frac{\alpha}{1+\alpha^2} \frac{\gamma}{M_s} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) \quad (1.2.7)$$

1955年、Thomas Gilbertは運動方程式に減衰項 $\mathbf{T}_D \sim \alpha \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt}$ を導入し、より正確な運動方程式を導き出した。これが有名なLandau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式である[13, 14]。

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) + \frac{\alpha}{M_s} \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (1.2.8)$$

式の第二項は Gilbert damping 項、 $\alpha$ は Gilbert damping 係数である。

$\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ は、式(1.2.8)の両辺に存在する。式(2.1.7)の右辺の $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ を消失させるためには、

式(1.2.8)の両辺に同時に $\mathbf{m} \times$ すればよい。

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = \mathbf{m} \times \left( -\gamma(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \frac{\alpha}{M_s} \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \right) \quad (1.2.9)$$

計算すると、

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma(\mathbf{m} \times \mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \alpha M_s \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (1.2.10)$$

式(1.2.10)を式(1.2.8)に導入すると、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \alpha \left( -\gamma(\mathbf{m} \times \mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \alpha M_s \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (1.2.11)$$

計算すると、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2}(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \frac{\alpha}{1+\alpha^2} \frac{\gamma}{M_s} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) \quad (1.2.12)$$

上記の式は、式 1.2.7 の LLG 方程式である。

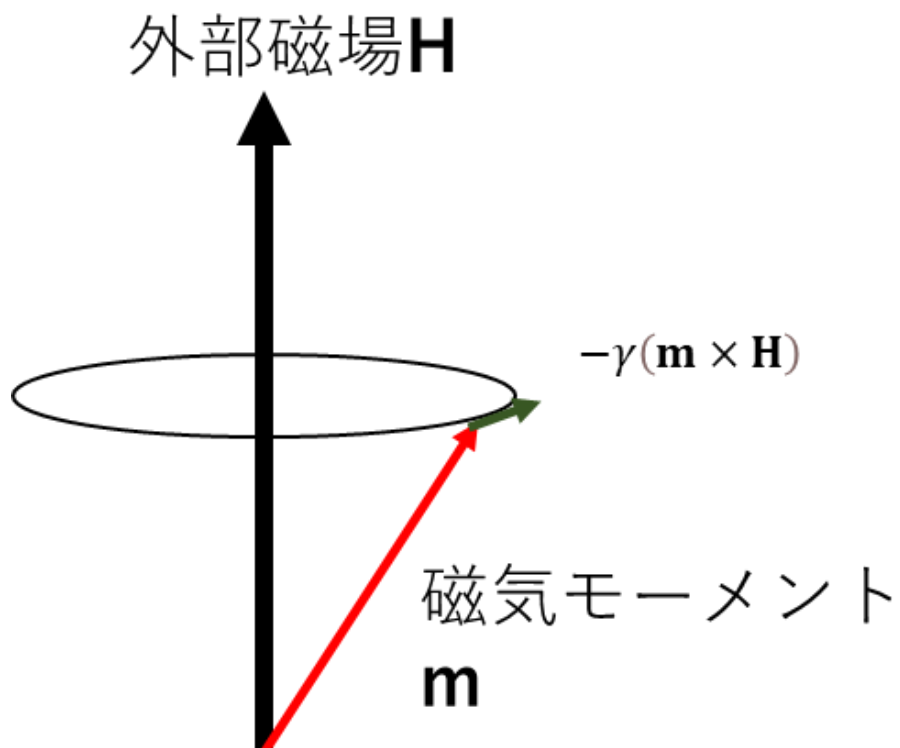


図 1.2.1 減衰なしの歳差運動

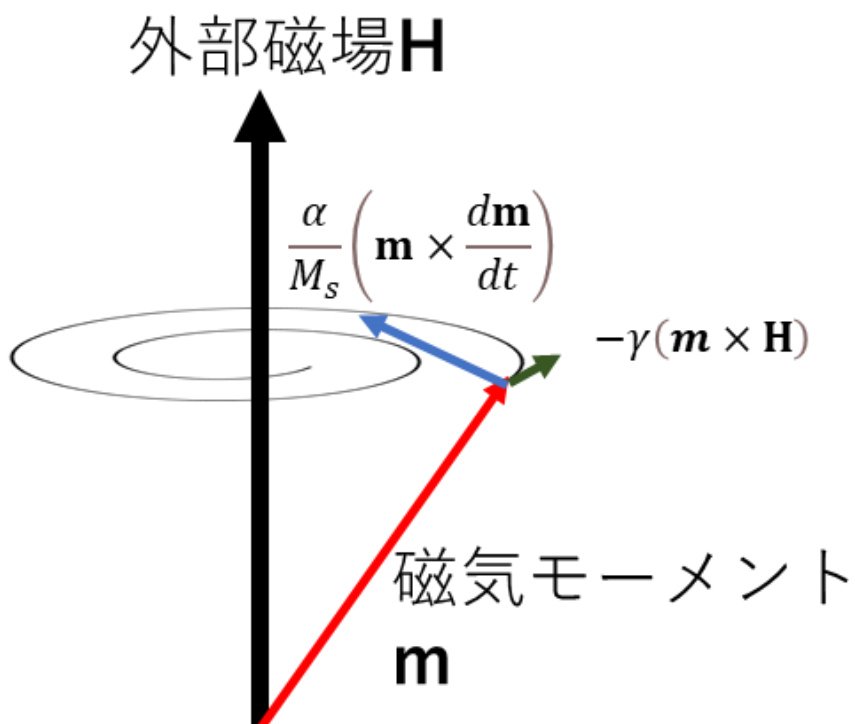


図 1.2.2 減衰ありの歳差運動

### 1.2.2 強磁性共鳴

強磁性共鳴(ferromagnetic resonance, FMR)とは、強磁性体がある一定の磁場とある周波数のマイクロ波磁場によってバイアスされ、共鳴条件を満たすと強い吸収共鳴を起こす現象である。 Vonsovskii の《Ferromagnetic resonance》の記述によると[15]、1911年に Arkad'yev が強磁性体による UHF 放射の吸収を初めて観測し[16]、1923年には Dorfman が Arkad'yev の実験結果を説明した。 1946年に Griffiths は、金属 Fe、Co、Ni の透磁率が、固定周波数のマイクロ波磁場の励起下で磁場と共鳴することを観測し、これは FMR が発見された最初の実験となった。その1年後、Kittel は、有効磁場に対する消磁磁場の寄与を考慮することによって、Griffiths の実験結果を再計算し、見事に解釈した[17-19]。次に、透磁率に及ぼすマイクロ波磁場の影響から Kittel 方程式を導くことにする。

磁化 $\mathbf{M}$ と印加磁界 $\mathbf{H}$ の関係は、 $\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}$ であることが常に知られている。ここで、 $\chi$ は磁化率であり、材料の性質を決定するスカラー量である。同様に、磁性体が交流磁場 $\mathbf{h}$ の中にあるとき、交流磁化 $\mathbf{m}$ が生じ、両者の関係は高周波透磁率を通じて結ばれ、次のように表される：

$$\mathbf{m} = \hat{\chi} \mathbf{h} \quad (1.2.12)$$

ここで $\hat{\chi}$ はテンソルであり、材料自体の高周波特性や運動特性に密接に関係している。

図 1.2.3 に示すように、無限大のサイズの試料において、有効磁場 $H_{eff}$ が  $z$  軸に沿って配向している理想的な系を考えてみよう。

交流磁場 $\mathbf{h}$ と交流磁化強度 $\mathbf{m}$ を考えると、

$$\mathbf{H}_{eff} = h_x \mathbf{i} + h_y \mathbf{j} + (H_{eff} + h_z) \mathbf{k}$$

$$\mathbf{M} = \mathbf{m}_x \mathbf{i} + \mathbf{m}_y \mathbf{j} + (M_0 + \mathbf{m}_z) \mathbf{k} \quad (1.2.13)$$

そのうち、 $\mathbf{h}_r = h_r e^{i\omega t}$ 、 $\mathbf{m}_r = m_r e^{i\omega t}$ として、LLG 方程式(1.2.7)に導入すると、

$$i\omega \begin{pmatrix} \mathbf{m}_x \\ \mathbf{m}_y \\ \mathbf{m}_z \end{pmatrix} = -\gamma \begin{vmatrix} i & j & k \\ \mathbf{m}_x & \mathbf{m}_y & M_0 + \mathbf{m}_z \\ \mathbf{h}_x & \mathbf{h}_y & H_{eff} + \mathbf{h}_z \end{vmatrix} + \frac{\alpha}{M_s} \begin{vmatrix} i & j & k \\ \mathbf{m}_x & \mathbf{m}_y & M_0 + \mathbf{m}_z \\ i\omega \mathbf{m}_x & i\omega \mathbf{m}_y & i\omega \mathbf{m}_z \end{vmatrix} \quad (1.2.14)$$

計算すると、

$$i\omega \begin{pmatrix} \mathbf{m}_x \\ \mathbf{m}_y \\ \mathbf{m}_z \end{pmatrix} = -\gamma \begin{pmatrix} \mathbf{m}_y(H_{eff} + \mathbf{h}_z) - \mathbf{h}_y(M_0 + \mathbf{m}_z) \\ \mathbf{h}_x(M_0 + \mathbf{m}_z) - \mathbf{m}_x(H_{eff} + \mathbf{h}_z) \\ \mathbf{m}_x \mathbf{h}_y - \mathbf{m}_y \mathbf{h}_x \end{pmatrix} + \frac{\alpha}{M_s} \begin{pmatrix} i\omega \mathbf{m}_y \mathbf{m}_z - i\omega \mathbf{m}_y(M_0 + \mathbf{m}_z) \\ i\omega \mathbf{m}_x(M_0 + \mathbf{m}_z) - i\omega \mathbf{m}_x \mathbf{m}_z \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.2.15)$$

$|\mathbf{m}| \ll M_0$ 、 $|\mathbf{h}| \ll H_{eff}$ と仮定して、2 次の項を無視すると、

$$i\omega \begin{pmatrix} \mathbf{m}_x \\ \mathbf{m}_y \\ \mathbf{m}_z \end{pmatrix} = -\gamma \begin{pmatrix} \mathbf{m}_y H_{eff} - \mathbf{h}_y M_0 \\ \mathbf{h}_x M_0 - \mathbf{m}_x H_{eff} \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{\alpha}{M_s} \begin{pmatrix} -i\omega \mathbf{m}_y M_0 \\ i\omega \mathbf{m}_x M_0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.2.16)$$

ここで、 $\omega_0 = \gamma H_{eff}$ 、 $\omega_M = \gamma M_0$ として、式(1.2.16)を変換すると、

$$\begin{cases} i\omega \mathbf{m}_x + (\omega_0 + i\alpha\omega) \mathbf{m}_y = \omega_M \mathbf{h}_y \\ -(\omega_0 + i\alpha\omega) \mathbf{m}_x + i\omega \mathbf{m}_y = -\omega_M \mathbf{h}_x \\ \mathbf{m}_z = 0 \end{cases} \quad (1.2.17)$$

$\hat{\chi}^{-1} \mathbf{m} = \mathbf{h}$ の形を得た。 $\mathbf{m} = \hat{\chi} \mathbf{h}$ の形を得るためには、両辺に同時に $\hat{\chi}$ を掛ける。最後に、

次のような形の $\hat{\chi}$ が得られる。

$$\hat{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & i\chi_{xy} & 0 \\ -i\chi_{yx} & \chi_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.2.18)$$

ここで、 $\chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{\omega_M(\omega_0 + i\alpha\omega)}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2}$ 、 $\chi_{xy} = \chi_{yx} = \frac{\omega_M\omega}{(\omega_0 + i\alpha\omega)^2 - \omega^2}$ である。

各テンソルの実部と虚部を分けて展開する。  $\alpha \ll 1$ のとき、 $\chi = \chi^{Re} + i\chi^{Im}$ とする：

$$\begin{aligned} \chi_{xx}^{Re} &= \chi_{yy}^{Re} = \frac{\omega_M\omega_0(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\alpha^2\omega_0^2\omega^2} \\ \chi_{xx}^{Im} &= \chi_{yy}^{Im} = \frac{\alpha\omega_M\omega_0(\omega_0^2 + \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\alpha^2\omega_0^2\omega^2} \\ \chi_{xy}^{Re} &= \chi_{yx}^{Re} = \frac{\omega_M\omega_0(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\alpha^2\omega_0^2\omega^2} \\ \chi_{xy}^{Im} &= \chi_{yx}^{Im} = \frac{2\alpha\omega_M\omega_0\omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 4\alpha^2\omega_0^2\omega^2} \end{aligned} \quad (1.2.19)$$

式(2.2.18)と式(2.2.19)によれば、 $x$ 方向に交流磁場 $\mathbf{h}_x$ を加えても、 $x$ 軸の $\mathbf{m}_x$ だけでなく $y$ 軸の $\mathbf{m}_y$ も反応することがわかる。  $\omega = \omega_0 = \gamma H_{eff}$ のとき、磁化は最大となり、共振条件、すなわち強磁性共振に達する。

薄膜の場合に、退磁場 $\mathbf{H}_d = -\mathbf{m}_y\mathbf{j}$ 、異方性エネルギー $E_k = K_u \sin^2 \theta = K_u(1 - \cos^2 \theta)$

とその異方性磁場 $\mathbf{H}_k = -\frac{1}{\mu_0 M_s} \frac{\partial E_k}{\partial \mathbf{m}} = \frac{2K_u}{\mu_0 M_s^2} \mathbf{m}_y\mathbf{j}$ を考慮して、式(1.2.13)は以下に示す。

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{h}_x\mathbf{i} + \left[ \mathbf{h}_y - \left( 1 - \frac{2K_u}{\mu_0 M_s^2} \right) \mathbf{m}_y \right] \mathbf{j} + (H_{eff} + \mathbf{h}_z)\mathbf{k}$$

$$\mathbf{M} = \mathbf{m}_x\mathbf{i} + \mathbf{m}_y\mathbf{j} + (M_0 + \mathbf{m}_z)\mathbf{k} \quad (1.2.20)$$

式(2.2.17)と同じようにして、

$$\begin{cases} i\omega \mathbf{m}_x + (\omega_y + i\alpha\omega) \mathbf{m}_y = \omega_M \mathbf{h}_y \\ -(\omega_x + i\alpha\omega) \mathbf{m}_x + i\omega \mathbf{m}_y = -\omega_M \mathbf{h}_x \\ \mathbf{m}_z = 0 \end{cases} \quad (1.2.21)$$

ここで、 $\omega_x = \gamma H_{eff}$ 、 $\omega_y = \gamma(H_{eff} + M_0 - \frac{2K_u}{\mu_0 M_s})$ 、 $\omega_M = \gamma M_0$ である。

同じに式(1.2.19)の分母は $(\omega_x \omega_y - \omega^2)^2 + 4\alpha^2 \omega_0^2 \omega^2$ になる。 $\omega = \sqrt{\omega_x \omega_y}$ の時、強磁性共鳴が発生し、以下の式に示す。

$$\omega = \sqrt{\omega_x \omega_y} = \gamma \sqrt{H_{eff} \left( H_{eff} + M_0 - \frac{2K_u}{\mu_0 M_s} \right)} \quad (1.2.22)$$

式(1.2.22)はKittel 式である。

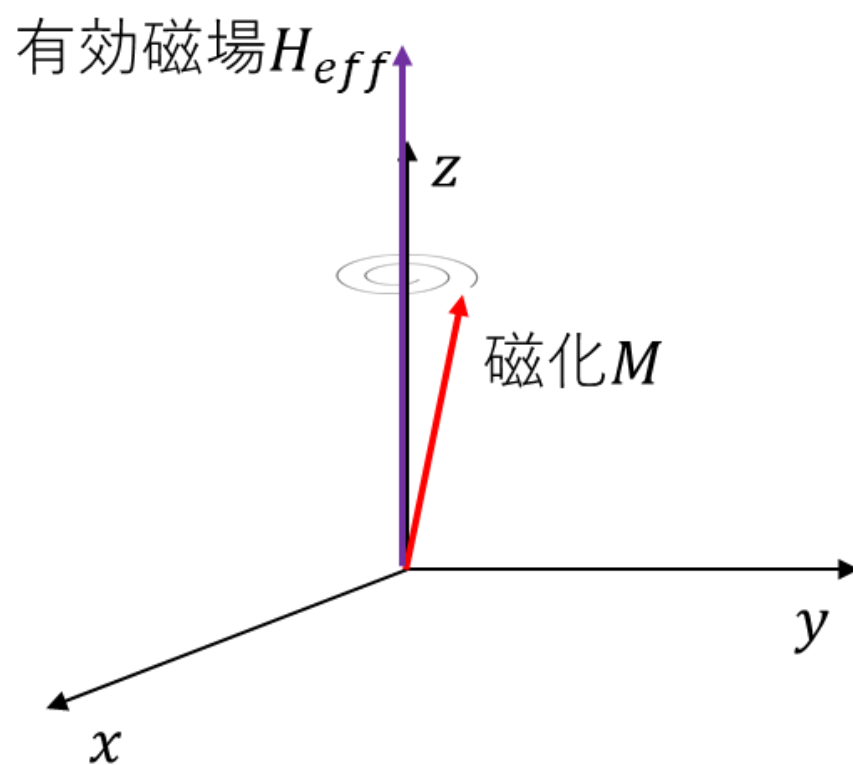


図 1. 2. 3 無限大のサイズの試料における歳差運動の概念図

### 1.2.3 スピントランスファトルク効果

スピントランスファトルク (Spin Transfer Torque : STT) 効果とは、スピン偏極電流が磁性薄膜材料に導入されると、薄膜材料のフェルミ面近傍に既に存在する電子が、入力される偏極電流で運ばれる電子の影響を受け、磁性薄膜の磁化ベクトルが変化することを指す。一方、STT 効果は、1996 年に Slonczewski と Berger によって初めて理論的に予測された[3, 4]。

この概念図を図 1.2.4 に示す。電子はピン層からフリー層に流れ込むが、ピン層の磁気モーメントの向きは固定されているため、簡単には変化しない。この場合、異なる方向からのスピン電子がピン層を通過する際、現在のピン層と同じ磁化方向の電子だけが散乱が少ないため、正常にピン層を通過することができ、ピン層と反対の磁化方向の電子は正常にピン層を通過することができず、反射されて戻ってくる。ピン層と同じ方向の電子がフリー層に入ると、反対向き状態にあるフリー層の磁気モーメントに一瞬作用する。電子が常に下向きの磁気モーメントに作用し、このトルクがある臨界値に達すると、これらのもともと下向きの磁気モーメントが反転し、フリー層の磁気モーメントの向きが変わると磁気モーメントの向きが上向きになるため、フリー層とピン層の磁気モーメントの向きが反平行状態の始まりから平行状態に変換され、低抵抗状態にもなる。(図 1.2.4 a)

逆に、スピン電子がフリー層からピン層へ流れなければならない状況になると、この時はフリー層の磁気モーメントの状態が固定されていないため、あらゆる方向の電子がフリー層をスムーズに通過してピン層へ流れ込むことになる。この時、ピン層の磁気モーメントの向きは上向きなので、ピン層と同じ向きの電子はスムーズにピン層を通過できる。ピン層の方向が違い電子はフリー層に反射して戻るため、フリー層の磁気モーメントの向きが変わり、フリー層とピン層の磁気モーメントの向きが平行から反平行に変わり、高抵抗状態になる。(図 1.2.4 b)

STT 効果を 1.2.1 で述べた LLG 方程式に導入する。この式を以下の式 (1.2.23) に示す。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}) + \frac{\alpha}{M} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) - \tau_{STT} \quad (1.2.23)$$

ここで  $\tau_{STT}$  は STT 項であり、ダンピングトルクとは互いに反対方向のトルクである。ダンピングトルクの大きさは磁性体の物性値であることから材料で決定され、スピントランスファトルクの大きさは電子の数に依存するため電流密度で決定される。STT を導入した磁化  $\mathbf{M}$  の運動を図 1.2.5 に示す。

図 1.2.6 では、スピン偏極した電流の電子がピン層からフリー層へと流れていることを示しており、3 つの図 (b)、(c)、(d) は、STT 効果によってフリー層の磁気モーメントがどのように変化するかを示す。フリー層自体がダンピングを発生させるため、ダンピングが STT より大きい、ダンピングが STT と等しい、ダンピングが STT に影響するという 3 つの条件が成立する。まず、スピン偏極電流が小さい場合、ダンピング力は STT よりもはるかに大きいため、ダンピングの作用により、電子によって変化した磁気モーメントは徐々に初期状態に戻る。通過したスピン偏極電流が、ダンピングに匹敵する STT を発生させるのに十分な大きさである場合、この時点での磁気モーメントはフリー層で安定的な歳差運動をもたらす。スピン分極電流が非常に大きい場合、STT はダンピングよりもはるかに大きくなり、最終的にフリー層の磁気モーメントは反転する。

電流密度に依存するこれらの現象は、磁気メモリや高周波発生器に利用することができる。STT による高周波発振器は Spin-Torque oscillator (STO) であり、磁気モーメントの安定的な歳差運動によって発生するマイクロ波が 1.2.3.1 に述べるマイクロ波エレクトロニクスの分野で利用できる。

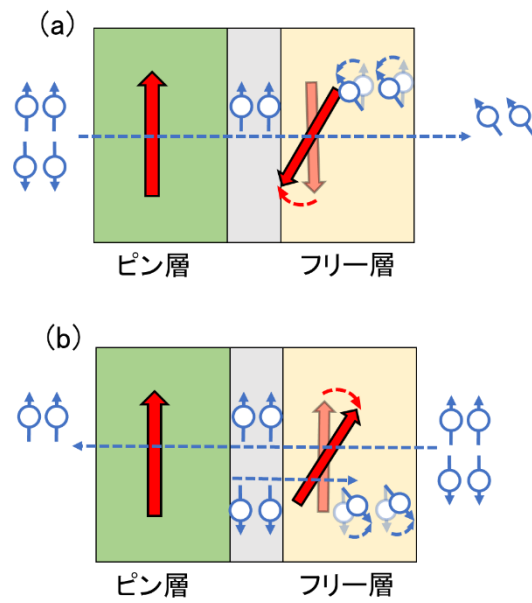


図 1.2.4 スピントランスファトルク効果の概念図である。赤い矢印は磁化、青い丸がスピンをもつ電子、青い破線は電子の動きを示す。

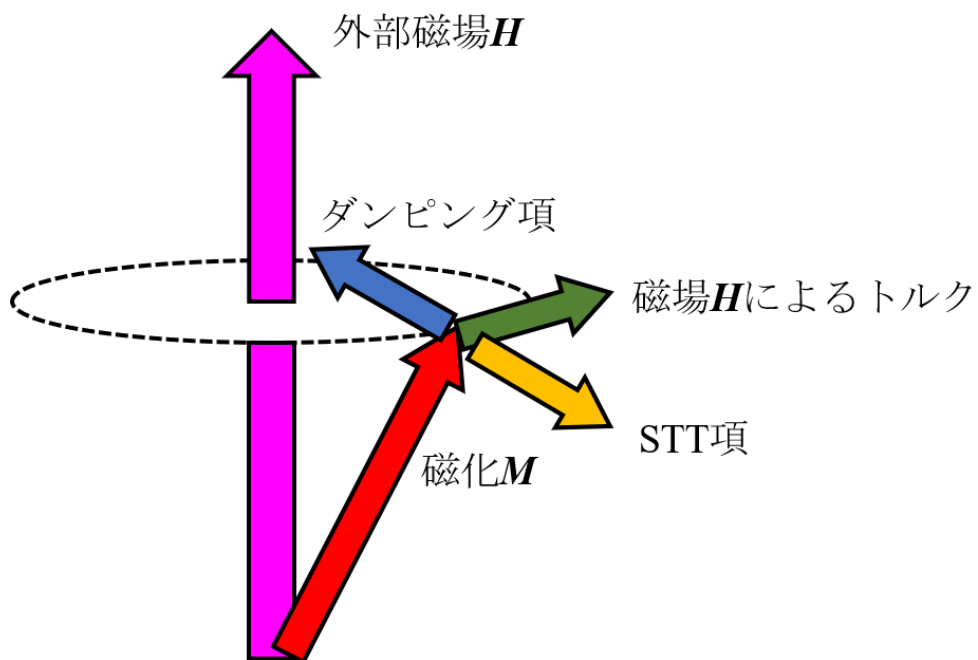


図 1.2.5 STT を導入した磁化  $M$  の運動

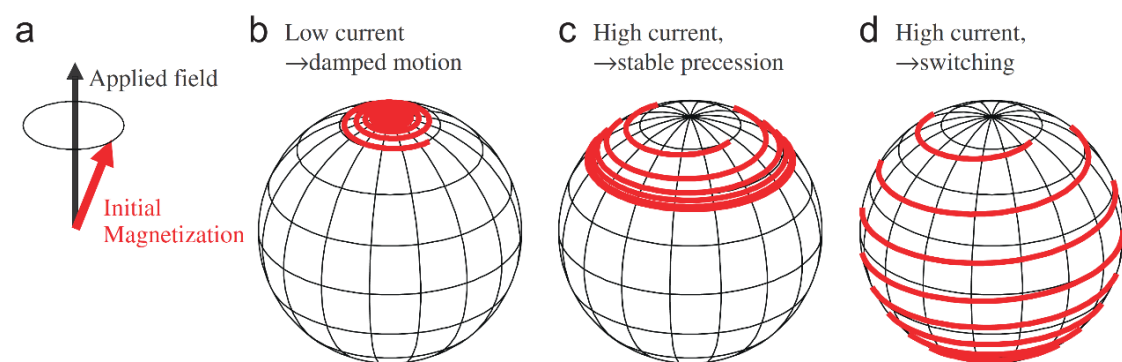


図 1.2.6 電流密度の大きさによる磁化の動き [20]

### 1.2.3.1 Spin Torque Oscillator

前節の通り、ハイテク分野における高周波、高出力、狭線幅、低消費電力のマイクロ波信号の需要を満たすために、小型、高周波、調整が容易な先進的ナノマイクロ波発生器の代表として、STO が登場した。STO によるスピン波の励起後、マイクロ波出力は巨大磁気抵抗の効果[1, 2]、トンネル磁気抵抗効果[21]、異方性磁気抵抗効果[22-24]、スピンホール磁気抵抗効果[25]によって実現されるが、中でもトンネル磁気抵抗効果の出力が最も大きい。

STO について詳述する。磁化ピン層/非磁性層/磁化フリー層から構成され、STT によってフリー層への電流を分極させ、フリー層を摂動させることでフリー層にスピン波を発生させ、巨大磁気抵抗またはトンネル磁気抵抗の効果によって高周波のマイクロ波出力信号を発生させる。

STO における構造、磁性層材料、駆動条件が異なるため、磁性フリー層内で励起されるスピン波が異なり、主に準線形伝搬型と非線形磁気 Soliton 局在型に分類される(図 1.2.7) [26]。

線形または準線形伝搬スピン波は、Slonczewski 型スピン波としても知られている。その振動周波数は、電流密度強度の増加とともに増大する。このタイプのスピン波モードは、図 1.2.7 (c)に示した。

非線形磁気 Soliton 局在型とは、磁気モーメントの振動が試料の狭い構造近傍に限定され、全方向に伝播せず、印加電流を増加しても振動周波数はあまり変わらない。スピン波の主な種類は、vortex 型(a) 、Localized Bullet 型(b)、Droplet Soliton 型(d) である[26]。

STT とは異なる物理現象に、スピンホール効果による Spin-orbit Torque (SOT) がある。これは磁性体に直接電流を流すのではなく、磁性体に隣接する重金属に電流を流し、そこで発現するスピンホール効果を用いるものである。スピン軌道相互作用の大き

な重金属に電流を流すと、スピン分極が生じる。スピン流が磁性体内に注入されると磁化にとってはトルクとなり、STT と同じように磁化反転や磁化発振をもたらす。本研究では SOT による磁化発振は扱わず、STT による磁化発振のみに着目するが、ここで両者の比較のみ行う。STT による STO は一般的に SOT による STO よりも周波数が高く [27]、出力が高いという長所を持つが [21, 28]、その線幅は大きく (MHz~GHz) [29, 30]、フリー層に直接大きな電荷を流す必要があることが短所である。そのため、STO では、可変周波数帯域や出力の拡大に加えて、線幅の縮小や励起電流密度の低減も課題となっている。

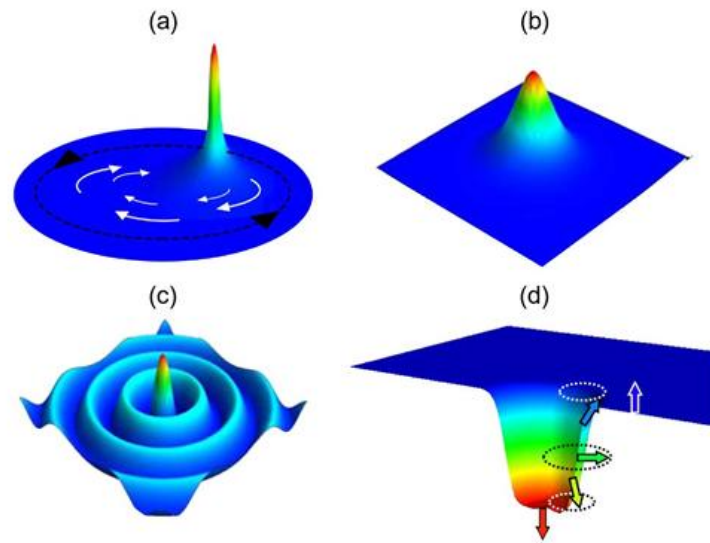


図 1.2.7 ST0 における磁気ダイナミクスモード。(a) Vortex、(b) Localized Bullet (c) Propagating Waves 、(d) Droplet Soliton [26]

### 1.2.3.2 Spin transfer torque oscillator 研究の現状

スピントランスファトルク (STT) 効果に基づく提案された STO は、図に示すように、主に 4 つの異なる構造タイプに分類することができる：ポイントコンタクト、ナノコンタクト、ナノピラー、ハイブリッド構造(図 1.2.8) [26]。

微細加工技術の発展初期には、STT に必要な電流密度の電流を流すナノデバイス構造を準備することは非常に困難であり、電流注入は金属プローブと多層膜表面との接触や点接触構造によって達成する必要がしばしばあった。臨界電流密度を達成するために、プローブのサイズは通常  $100\text{ nm}^2$  程度である。

リソグラフィ技術が成熟した後、ナノコンタクト構造やナノピラー構造がポイントコンタクト構造に取って代わった。ナノコンタクト構造は、磁性多層膜の表面に絶縁層を成膜し、電子ビーム露光とエッチングによって直径  $100\text{ nm}$  の切り欠きを開け、最後に上部電極を成膜する。2004 年、Rippard らはこの構造を提案し、直径  $40\text{ nm}$  の円形ナノコンタクト  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}/\text{Cu}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  STO を作製し、周波数  $7\text{--}8\text{ GHz}$  のマイクロ波を観測した [2]。ナノコンタクト構造の磁性多層膜は微細化されていないため、多層膜に電流が注入された後の横方向の拡散効果が大きく、局所的な電流密度が低くなる。

ナノピラー構造はこの問題をうまく解決している。磁性多層膜をナノサイズの直径を持つ円柱に加工することで、電流は非常に小さな断面に閉じ込められ、高い電流密度が得られる。2003 年、Kiselev らはこの構造を持つ STO を提案し、作製に成功した [1]。ナノピラー構造にもいくつかの欠点があり、そのひとつは、微細加工に伴う構造的な欠陥が避けられないことであり、もうひとつは、サイズが小さいことに伴う熱安定性の低さである。これらの欠点がナノピラー構造の Quality Factor :  $Q$  を低くしている。

2013 年、Maehara らは、より複雑な微細加工プロセスを経て、ハイブリッド構造の STO の作製に成功した(図 1.2.9) [31]。ナノコンタクト構造とナノピラー構造の利点を組み合わせることで、電流利用率が高く、高品質のマイクロ波信号を出力することができ

る。

一般的に STO は、面内磁化構造[1, 2, 32-43]、垂直磁化構造[44]、オルソゴナル磁化構造[45-75]の 3 種類に分けられる(図 1.2.10)。

初期の研究では、面内磁化構造を持つ STO に焦点が当てられていたが、フリー層の磁気モーメントが歳差運動する時、フリー層と参照層のなす角度  $\theta$  は参照層と比較してほとんど変化しないため、観測可能なマイクロ波信号を得るためには、一定の大きさのバイアス外部磁場に頼る必要があった。

面内磁化構造に比べ、垂直磁化構造は熱安定性に優れ、より小さなデバイスの作製が可能である。しかし、面内磁化構造と同様、バイアス外部磁場が必要である。

2013 年、Houssameddine らは 2 層の磁性層の磁化が垂直関係にあるオルソゴナル磁化構造を持つ STO を開発し、バイアス外部磁場のない条件下でマイクロ波信号出力を実現した(図 1.2.11)[46]。

STO では、周波数、線幅、出力電力が極めて重要なパラメーターであり、これらはデバイスのタイプや磁性層の材料と密接に関係している。表 1.2.1 に、これまでに報告された STO の関連データを示す。

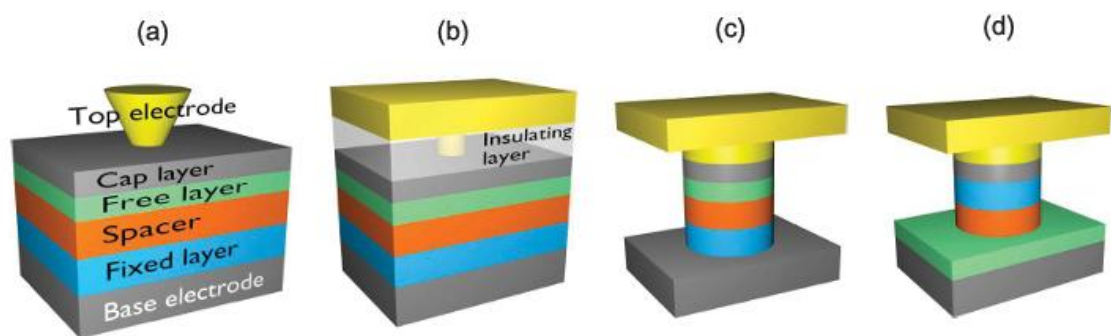


図 1.2.8 異なる構造を持つ STO[14]

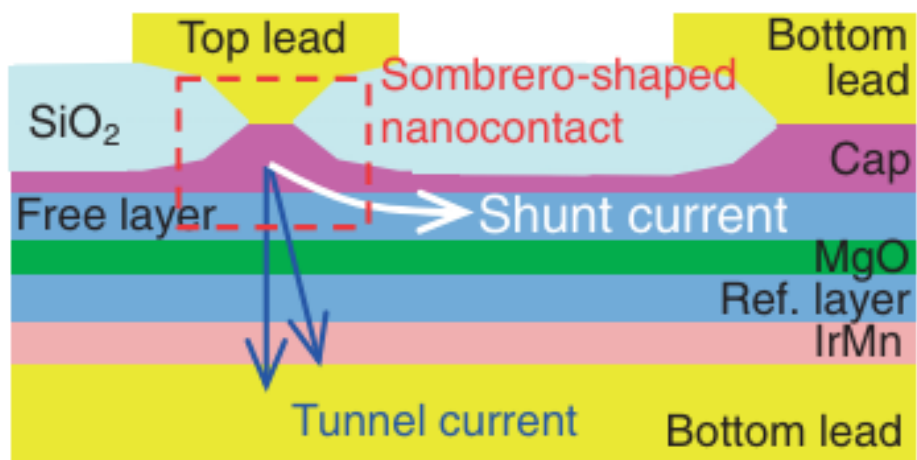


図 1.2.9 Sombrero 型 STO の概念図[31]

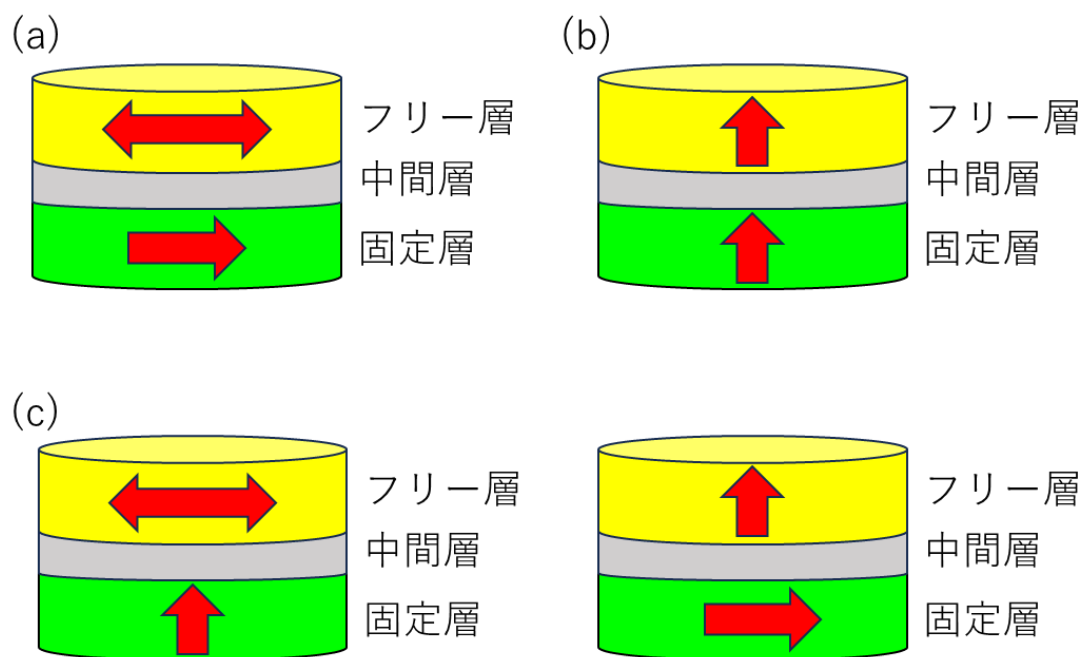


図 1. 2. 10 STT の磁性多層膜構造、(a)面内構造、(b)垂直構造、(c)オルソゴナル構造

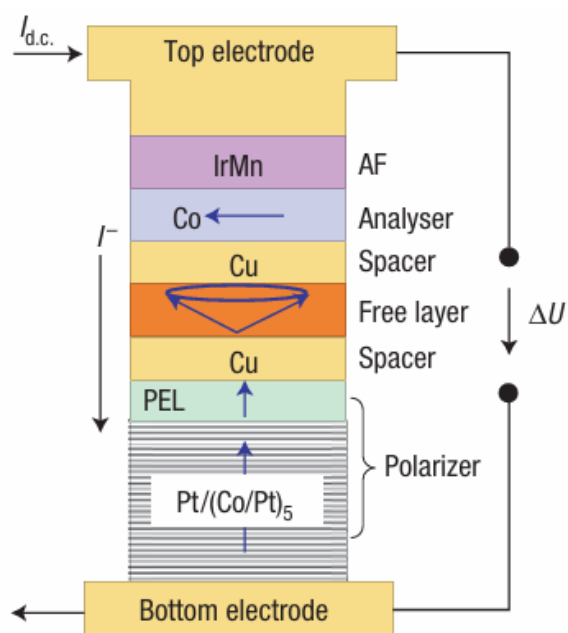


図 1. 2. 11 バイアス外部磁場なしオルソゴナル構造の STT[43]

| デバイスのタイプ   | 磁性層の材料                            | 周波数(GHz) | 線幅(MHz) | 出力(nW)                | 参考文献 |
|------------|-----------------------------------|----------|---------|-----------------------|------|
| GMR-NP-IP  | Co                                | 10~20    | 102~103 |                       | 1    |
| GMR-NC-IP  | Ni <sub>80</sub> Fe <sub>20</sub> | 25       | 2       | 0.1                   | 32   |
| GMR-NC-IP  | Ni <sub>80</sub> Fe <sub>20</sub> | 7~8      | 20      | 1.26×10 <sup>-4</sup> | 5    |
| GMR-NP-IP  | CoFe/NiFe                         | 12       | 2       | 0.02                  | 33   |
| GMR-NP-ORT | Ni <sub>80</sub> Fe <sub>20</sub> | 2~4      | 70      | 0.01                  | 46   |
| GMR-NP-IP  | Ni <sub>80</sub> Fe <sub>20</sub> | 2~8      | 10      |                       | 35   |
| GMR-NP-IP  | Ni <sub>81</sub> Fe <sub>19</sub> | 1~2      | 0.28    | 0.0025                | 36   |
| TMR-NP-IP  | CoFe/CoFeB                        | 6        | 10      | 25.12                 | 37   |
| GMR-NC-IP  | Ni <sub>80</sub> Fe <sub>20</sub> | 0.3      | 8       |                       | 38   |
| TMR-NP-IP  | CoFeB                             | 6~8      | 21      | 19.95                 | 39   |
| GMR-NP-IP  | CoFe/NiFe                         | 5~10     | 16      | 0.05                  | 40   |
| GMR-NC-ORT | Co/Ni                             | 12-24    |         |                       | 51   |
| GMR-NC-ORT | Co/Ni                             | 27.5-28  | 20      | 0.03                  | 56   |
| GMR-NC-ORT | Co/Ni                             | 22       |         | 0.05                  | 61   |
| TMR-NC-ORT | CoFeB                             | 12-14    | 1000    | 0.5                   | 63   |

表 1.2.1 STO の性能評価。NP はナノピラー、NC はナノコンタクト、IP は面内磁化構造、ORT はオルソゴナル構造を示す。

#### 1.2.4 STOにおける高周波化の流れ

一般的には磁性体には 3d 遷移金属を主とした強磁性体が用いられ、その場合の STO 周波数は数 GHz と報告されている[1, 76, 77]。

これに対し近年、多くの研究グループが反強磁性体において STO を実現する研究に取り組んでいる[78-90]。反強磁性体は漏洩磁場が無いいため隣接素子との干渉が無い事と、磁気共鳴周波数が THz に上る事が特長となる。2006 年、Núñez らは反強磁性金属におけるスピントルクおよび巨大磁気抵抗の応用を研究した[78]。著者らは、反強磁性金属には形状異方性が存在しないため、スピントルクが材料全体に作用し得ることから、反強磁性金属の臨界電流がより小さくなる可能性があるとは指摘している。さらに、理論分析およびモデル計算を通じて、反強磁性金属における巨大磁気抵抗 (AGMR) および電流駆動スピントルク効果が強磁性金属の効果と同等であることを証明した。

2017 年には、Khymyn らが数値シミュレーションおよび理論分析を通じて、重金属 (例えば Pt) と双軸反強磁性絶縁体 (例えば NiO) の二層構造におけるスピン流駆動メカニズムを研究し、スピン流駆動による THz 周波数の信号生成を実現した[86]。この手法により、0.1~2.0 THz の範囲で信号生成が可能となっている。しかしながら、実用的かつ明確な磁化発振は実証されていない。この理由は、結晶内の隣り合った磁性原子の磁気モーメントが反平行に強く磁気結合し、個々に歳差運動しにくいためである。

この問題を解決するために、報告によれば、層間磁気結合を利用し、二つの強磁性層が Bilinear 結合または Biquadratic 結合の磁化を持つ合成構造において、STO の周波数が増加することが示されている[91-101]。

2010 年、Seki らは、Fe/Cr/Fe 多層構造において、直流バイアス電流と小さな外部磁場を加えた際に、どのようにモードが励起されるかを研究した[92]。実験結果から、特定の直流電流と外部磁場の条件下で、rf 自発振現象が観察されることが確認された。

著者は、rf スペクトルおよび微分抵抗 ( $\frac{dV}{dI}$ ) の変化を測定することで複数のピークを観

測し、それぞれを異なるモードとして分類した。これらのモードの周波数は、外部磁場および直流電流の変化に伴い特定の依存関係を示し、この依存性はマクロスピンモデルおよび反強磁性結合場の理論計算と一致していることがわかった。層間磁気結合を利用する STO は面内構造であり、STO の周波数が 300 GHz まで増加することが示されている [99, 101]。しかし、これは層間磁気結合係数が非常に高い場合に限られ、実現は難しい。

これに対し本研究では、1.2.3 に述べたオルソゴナル磁気構造を提案する [45-75]。2013 年、Kubota らは、垂直磁化の自由層と面内磁化のピン層を組み合わせることで、高性能のナノピラー型 STO の開発に成功した [54]。この STO は、高いバイアス電圧下で高出力、高周波数、および高 Q 値を示した。また、オルソゴナル構造において、自由層である面内磁化膜の磁化が発振する際、その反磁場と層間磁気結合による有効磁場が同じ方向を向いているため、総計のバイアス磁場が強化される。これにより、実現可能な層間磁気結合の範囲内で周波数の効果的な向上が期待される。

## 1.3 層間磁気結合

### 1.3.1 各種層間磁気結合

磁気交換相互作用は、波動関数の直接的な重なりや間接的な相互作用から生じる量子効果である。磁性多層膜における層間磁気結合には、オレンジピール結合[102]、静磁結合[103]、及び Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 結合などがある[104]。オレンジピール結合は、Néel のオレンジピール結合または Néel 結合とも呼ばれ、2 つの磁性層間の界面の凹凸によって生じる静磁相互作用である。凹凸の具合がオレンジの皮のようであることから、オレンジピール結合と呼ばれる。この「オレンジピール」結合は異方性を持ち、薄膜が面内方向に磁化されている場合には強磁性的であり、磁化が薄膜平面に垂直な場合には反強磁性的な相互作用が発生する。

多層膜における静磁結合とは、固定層漏洩磁場が自由層の磁極に引き起こす静磁結合を指す。

RKKY 相互作用は元来バルク磁性体の磁化配列を説明するモデルで、その強さが磁性原子間の距離に依存して振動する磁気相互作用である。その後、磁性積層膜において、磁性層間距離にあたる非磁性中間層の膜厚に対して結合が振動する現象を説明するモデルに展開された。ナノ構造の磁気特性を決定する上で重要な役割を果たす。

電場が荷電粒子間のクーロン相互作用を伝えることができるように、RKKY は金属中の伝導電子によって伝えられる局所的な磁気モーメント間の相互作用であり、空間的な距離によって振動するものとして最もよく特徴付けられる(図 2.4.1)[104]。この理論の著者は Ruderman, Kittel, Kasuya, Yosida 四人である。

1986 年の時点で、Grünberg は Fe/Cr/Fe の三層構造において、中間的な Cr 層の厚さを適切に調整すれば、2 つの強磁性層間に反強磁性的な相互作用が見られることを発見していた[105]。この理由は、まさに前述の RKKY 相互作用にある。Fe は強磁性体であり、局所的な磁気モーメントを提供し、Cr は非磁性体であり、伝導電子を提供する。し

たがって、2つの結合磁性層を記述するエネルギー式は次のように書かれる。

$$E_{int} = -A_{12} \mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2 \quad (1.3.1)$$

ここで、 $E_{int}$ は界面の単位面積あたりのエネルギーであり、 $\mathbf{m}_1$ と $\mathbf{m}_2$ は二つの磁性層の単位磁化ベクトルである。一般的な合意によれば、係数 $A_{12}$ の正（負）符号は相互作用の強磁性（反強磁性）結合に対応する。式(1.3.1)は $\mathbf{m}_1$ と $\mathbf{m}_2$ に関して Bilinear なので、このような相互作用は Bilinear 相互作用と呼ばれる。

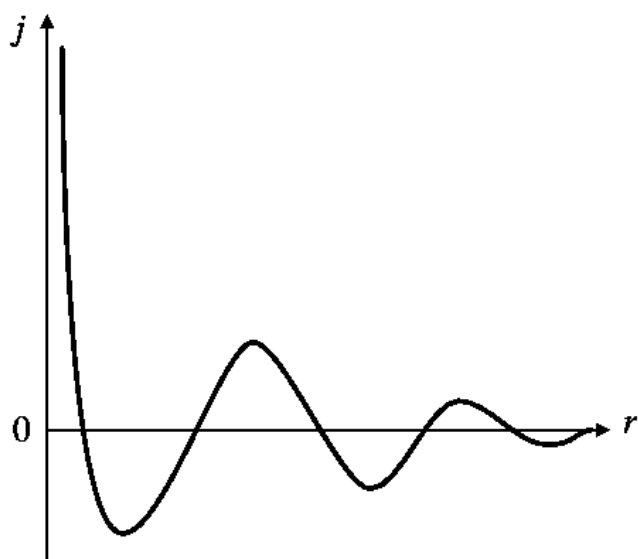


図 1.3.1 原点  $r=0$  の点磁気モーメント近傍における自由電子ガスの間接交換結合定数  $J$  の変化[104]

### 1.3.2 層間磁気結合エネルギーの高次展開

1991 年、Grünberg は Fe/Cr/Fe 三層膜の実験で上述と全く異なる状況を発見した。Fe/Cr/Fe 三層系の磁化曲線では、図 1.3.2 に示すように、Fe の容易軸[100]方向に磁場を印加すると、磁化曲線に二回の磁化反転が現れる[106]。このときの Magneto-optical Kerr effect (MOKE) 顕微鏡像を図 1.3.3 に示した。Fe(001)膜の 4 回対称性は、(001)面内に 4 つの容易軸をもたらすため、図 1.3.3 に示す個々の磁性層の磁化はすべて容易軸に沿っていることに、ここでもう一度注目する価値がある[107]。図 1.3.3 から、異なる磁区では各層の磁化はどのような容易軸にも沿うことができるが、すべての磁区において、2 つの層は互いに平行または反平行ではなく、互いに 90 度で磁化されることを好むことがわかる。上述の磁化曲線と MOKE 顕微鏡で得られた磁区構造は、磁化平行と反平行しか実現しないとした層間磁気結合を示す（式 1.3.1）では説明できない。そこで、エネルギーを磁化に対して高次展開し、追加的な非共線層間磁気結合を現象論的に導入し、以下の式とした。

$$E_{int} = -A_{12}m_1 \cdot m_2 - 2B_{12}(m_1 \cdot m_2)^2 \quad (1.3.2)$$

ここで、 $B_{12}$ は Biquadratic 結合係数であり、第二項は Biquadratic 結合もしくは 90 度磁気結合と呼ばれる。

実は、この 90 度磁気結合は一般的な効果で、多くの積層体で観察される[80, 82, 85-87, 105-112]。Slonczewski は、それを説明するために三つの理論を用いた。そのうち二つはサンプル自体の欠陥に起因する外在的なものであり、一つは内在的なものである[116]。 $\theta$  は 2 層の強磁性層の磁化のなす角とすると、

$$E_{int} = -A_{12}\cos\theta - 2B_{12}\cos^2\theta \quad (1.3.3)$$

層間磁気結合エネルギーが最小となる条件を考える。 $B_{12} > 0$  のとき、 $A_{12} > 0$  ならば  $\cos\theta = 1$ 、すなわち  $\theta = 0$  (平行) で最小を取り、 $A_{12} < 0$  ならば  $\cos\theta = -1$ 、すなわち  $\theta = \pi$  (反平行) で最小を取る。 $B_{12} < 0$  かつ  $|A_{12}| > 2|B_{12}|$  のとき、 $B_{12} > 0$  の際と同様となり、 $A_{12} > 0$  ならば  $\cos\theta = 1$ 、すなわち  $\theta = 0$  (平行) で最小を取り、 $A_{12} < 0$  ならば  $\cos\theta = -1$ 、すなわち  $\theta = \pi$  (反平行) で最小を取る。しかし、 $B_{12} < 0$  かつ  $|A_{12}| < 2|B_{12}|$  のとき、すなわち式(1.4.1)の第2項の寄与が大きくなると、

$$\cos\theta = -\frac{A_{12}}{2B_{12}} \quad (1.3.4)$$

となるときに層間磁気結合エネルギー $E$ は最小となり、2層の強磁性層の磁化は平行もしくは反平行とならずプラスマイナス90度に傾く。また、式(1.3.4)より、磁化の角度は $A_{12}$ と $B_{12}$ の比で決まることがわかる。以上をまとめると、層間磁気結合には強磁性結合 ( $m_1 \cdot m_2 = 1$ )、反強磁性結合 ( $m_1 \cdot m_2 = -1$ )、90度磁気結合 ( $m_1 \cdot m_2 = 0$ ) の3つのパターンが存在する。それぞれの結合状態における発現条件を図1.3.5に示す[117]。これより、90度磁気結合の発現条件は  $B_{12} < 0$  かつ  $|A_{12}| < 2|B_{12}|$  であることがわかる。

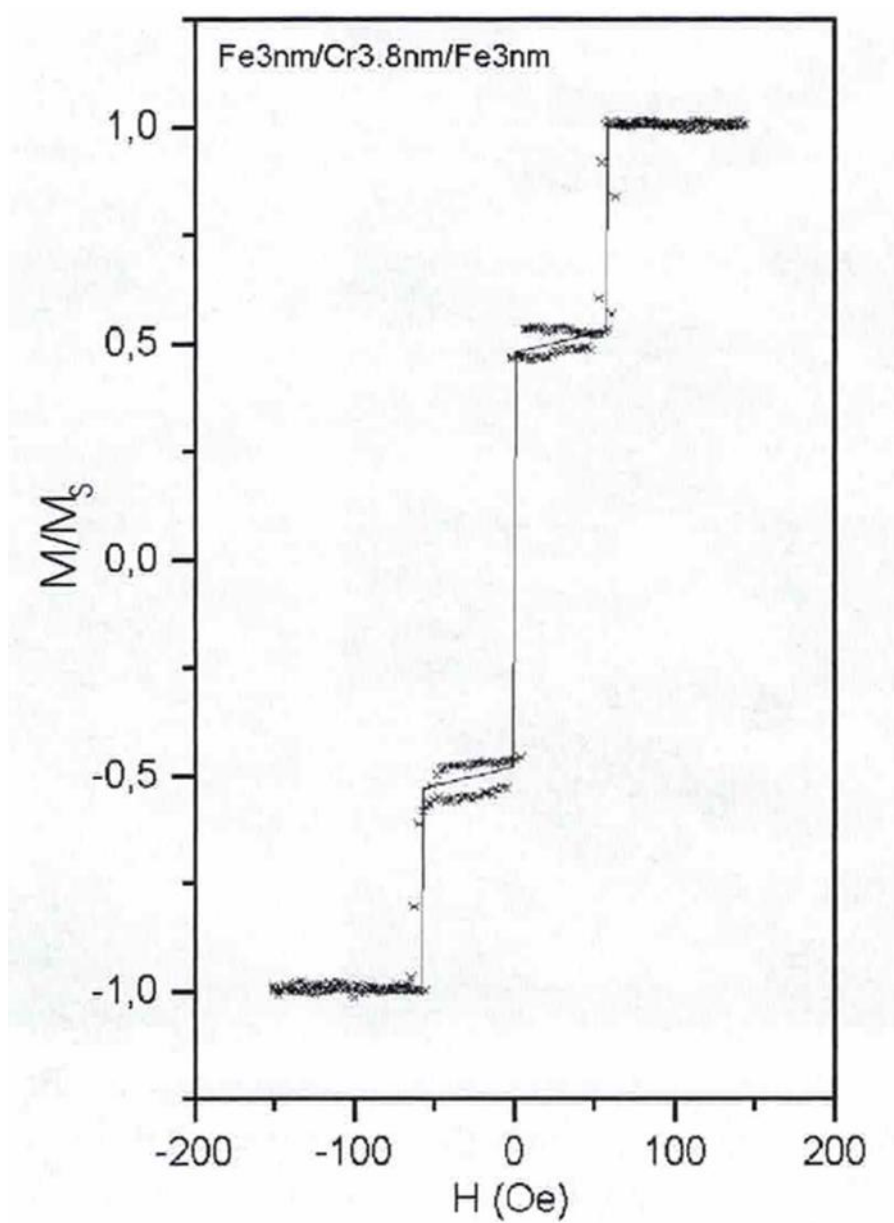


図 1.3.2 Fe/Cr/Fe 三層膜において、Fe の容易軸[100]方向に磁場を印加すると、磁化曲線が二回の磁化反転が見える[106]。

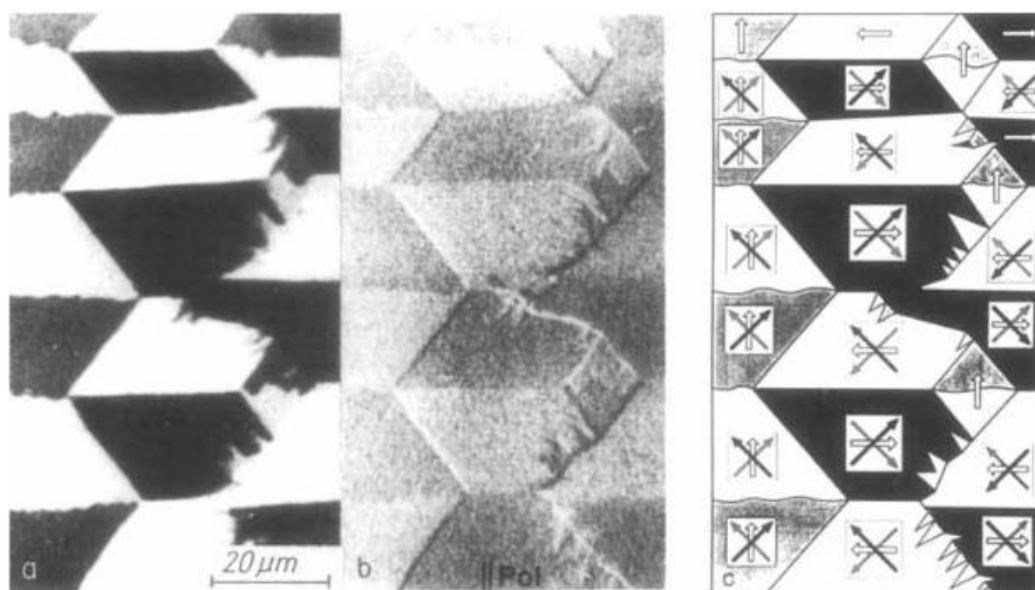


図 1.3.3 (a), (b) Fe(001) 10nm/Cr(001) 0.5nm/ Fe(001) 10nm 層状系のドメインパターンの例（異なる偏光配置で得られた、Kerr 顕微鏡で測定した残留磁化）。(c) すべての観察パターンと一致する解釈[107]

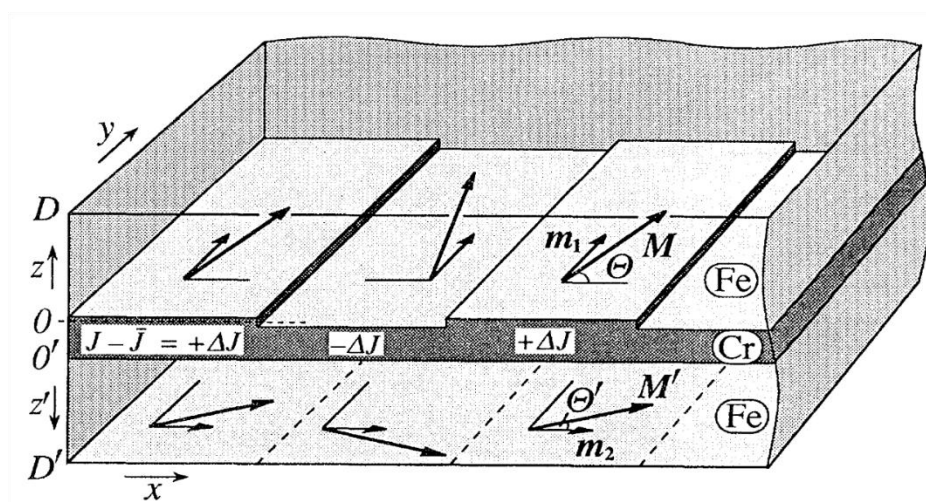


図 1.3.4 Slonczewski による 90 度磁気結合の膜厚揺らぎのモデル[116]

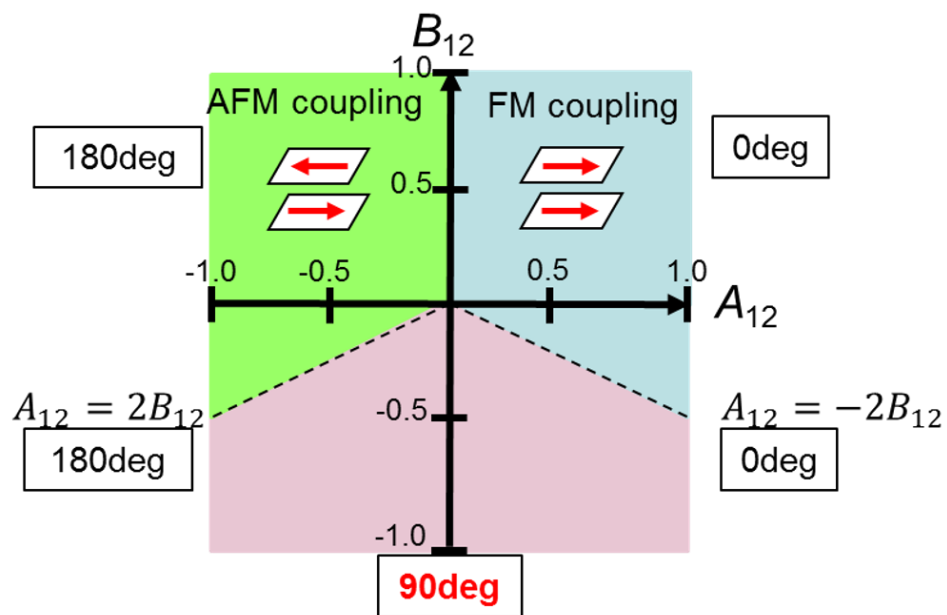


図 1.3.5 Bilinear 結合係数  $A_{12}$ 、Biquadratic 結合係数  $B_{12}$  と層間磁気結合状態の関係

[117]

## 1.4 目的と構成

STO は、マイクロ・ナノレベルのマイクロ波発振器の一種で、動作電圧が小さく、周波数変調範囲が広いこと、ミリ波技術の分野で広く使用できる。しかし、面内構造の STO は、STT 効率が低いので、閾値電流が高い。ここで、STT 効率が高い、閾値電流が低いオルソゴナル磁気構造に注目する。しかし、オルソゴナル磁気構造は STT 効率が高いため、磁化反転しやすいから、周波数調整範囲が狭いという問題がある。

この問題を解決するために、オルソゴナル構造に層間磁気結合を導入して STO の周波数調整範囲を広げたい。オルソゴナル構造において、層間磁気結合を利用すれば、合理的な層間磁気結合係数の範囲内で周波数の効果的な向上が期待される。しかし、まだ解決しなければならない問題がある。

- 1、オルソゴナル構造界面に層間磁気結合の存在を検証する必要がある。
- 2、層間磁気結合が周波数の変化にどのように影響するかを検証する必要がある。

本研究の目的は、上記の問題に基づいた研究を展開することである。フローチャートは図 1.4.1 に示す。

本論文の構成は以下の通りである。

第 1 章は序論であり、本研究の社会的な背景、磁気ダイナミクスにおける LLG 方程式、強磁性共鳴、STT 効果について紹介し、STO の分類、様々なタイプの SHNO の研究進展、STO の現在の解決すべき問題、STO 高周波の流れについてまとめ、層間磁気結合を議論する。

第 2 章では、本研究で用いる実験装置を紹介する。

第 3 章では、磁化オルソゴナル構造における層間磁気結合の存在を実験で実証する。さらに 3 通りの方法で層間磁気結合係数を見積もり、その値の妥当性を検証する。

第 4 章では、磁化オルソゴナル構造において層間磁気結合が STO 周波数に与える効果について、LLG マイクロマグネティックシミュレーションにより定量的に見積もる。磁

化オルソゴナル構造と層間磁気結合の組み合わせが、STO 周波数を増加することを検証し、さらに周波数増加の材料依存性を調べ、周波数増加の主因を特定する。

第 5 章では、本研究の結論を総括し、残された課題に言及する。

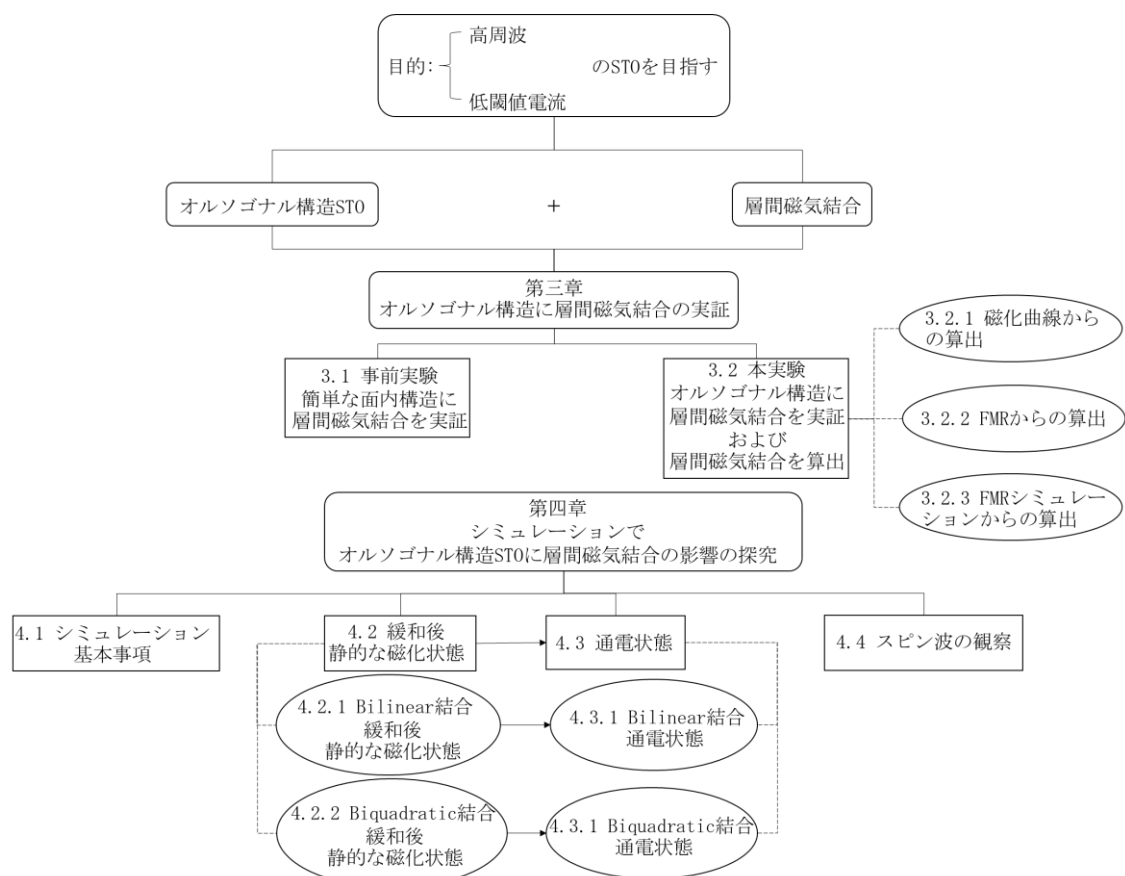


図 1.4.1 本論文のフローチャート

## 第二章 実験方法

### 2.1 試料作製

#### 2.1.1 DC マグネトロンスパッタリング

マグネトロンスパッタリング (magnetron sputtering) は、physical vapor deposition (PVD) の一種に属し、またはプラズマスパッタリング成膜技術の一種である。

その基本原理は、電子が電場 $E$ の作用によって Ar 原子をイオン化し、Ar イオンは電場の作用で加速して陰極ターゲットに向かい、高エネルギーでターゲット表面を叩くことで、ターゲット材料がスパッタリングされ、ターゲット原子が基板表面に堆積するというものである。他のプラズマ堆積法と比較して、マグネトロンスパッタリングでは、移動する電子が磁場中でローレンツ力を受けて軌道が曲がり、時には螺旋運動をすることで移動経路が長くなり、Ar ガスとの衝突回数が増加し、プラズマ密度が高まり、スパッタリング速度が向上する。また、基板表面に到達する原子のエネルギーも向上し、膜の品質が改善される。一方、多くの衝突でエネルギーを失った電子は陽極に到達すると低エネルギー電子となり、基板が過熱することを防ぐ。

本文章では、アルバック社製のスパッタ装置を用いた。装置の概略図を図 2.1.1 に、表 2.1.1 にその仕様を示す。この装置では、熱酸化 Si 基板を準備室に仕込み、ロボットアームで中間室、成膜室へ搬送し、成膜を行う。成膜材料について、中間室は Ta、成膜室は他の金属である。

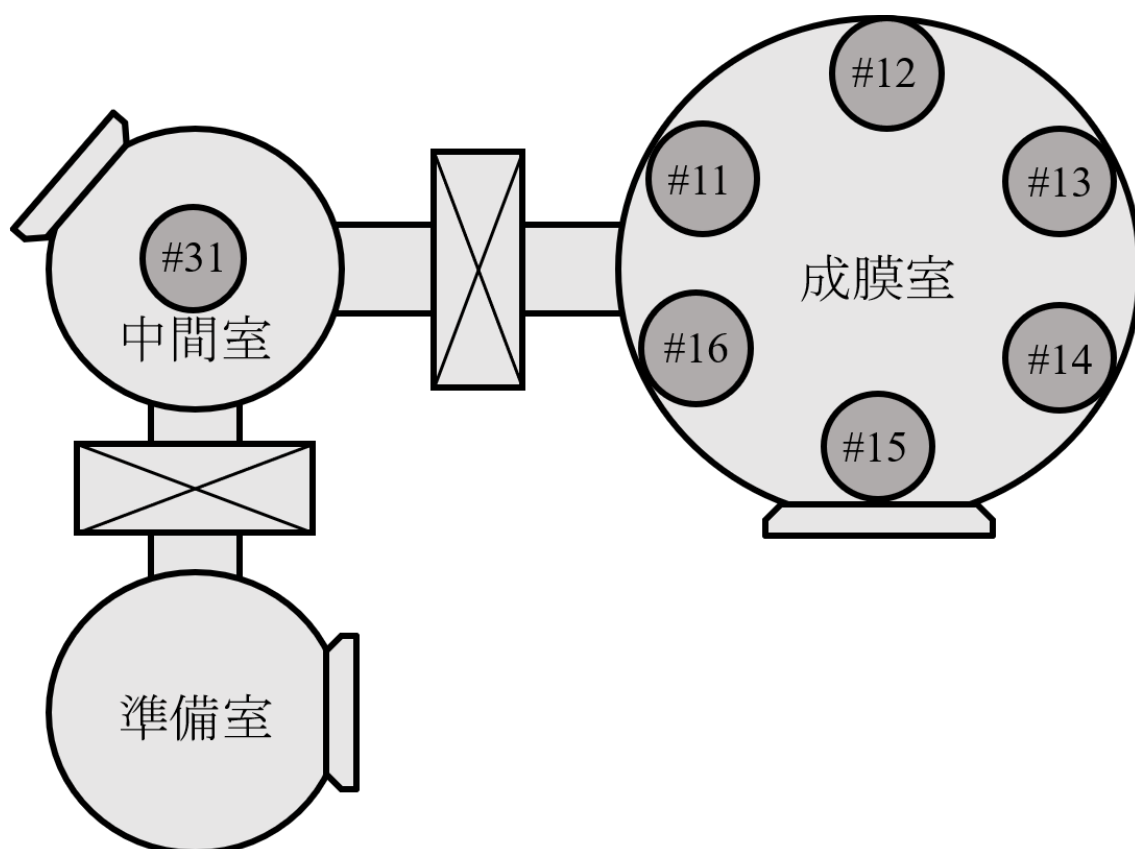


図 2.1.1 スパッタ装置の概略図

表 2.1.1 アルバック社製スパッタ装置の仕様

|        |                                                              |
|--------|--------------------------------------------------------------|
| 成膜方式   | DC マグネトロンスパッタ                                                |
| ターゲット数 | 成膜室：6 元<br>中間室：1 元<br>計：7 元                                  |
| 到達真空度  | 成膜室： $1.3 \times 10^{-6}$ Pa<br>中間室： $7.0 \times 10^{-6}$ Pa |
| 排気方式   | ターボ分子ポンプ                                                     |

### 2.1.2 磁場中アニール処理

反強磁性／強磁性界面において交換バイアス結合を得るためには、試料を磁場中でアニールする必要がある。

アニールは、真空度  $1.0 \times 10^{-4}$  Pa の下、4.1 kOe の磁場を印加して 270° C まで昇温して 1 時間保持し室温まで冷却した。図 2.1.3 と図 2.1.4 はアニール装置の概略図と模式図である。具体的なアニール工程を図 2.1.5 に示す。

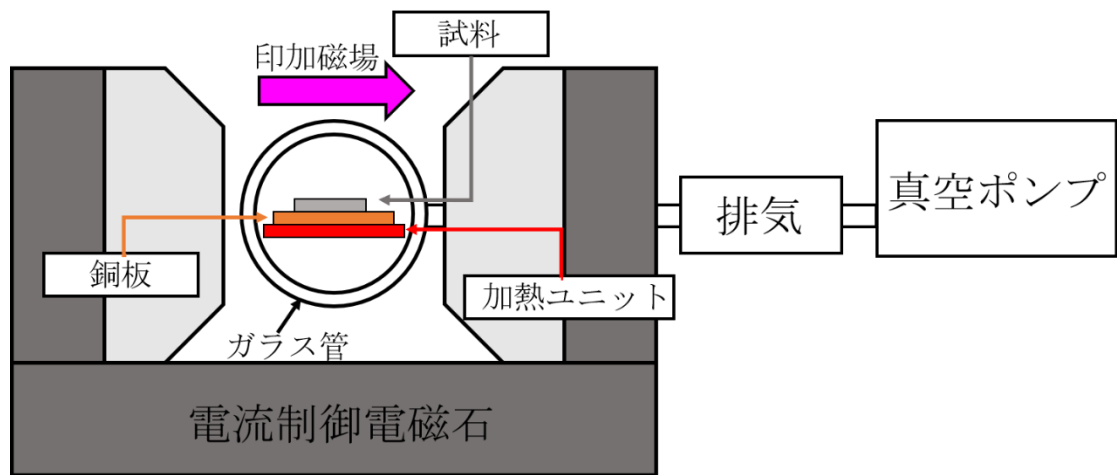


図 2.1.3 アニール装置の概略図

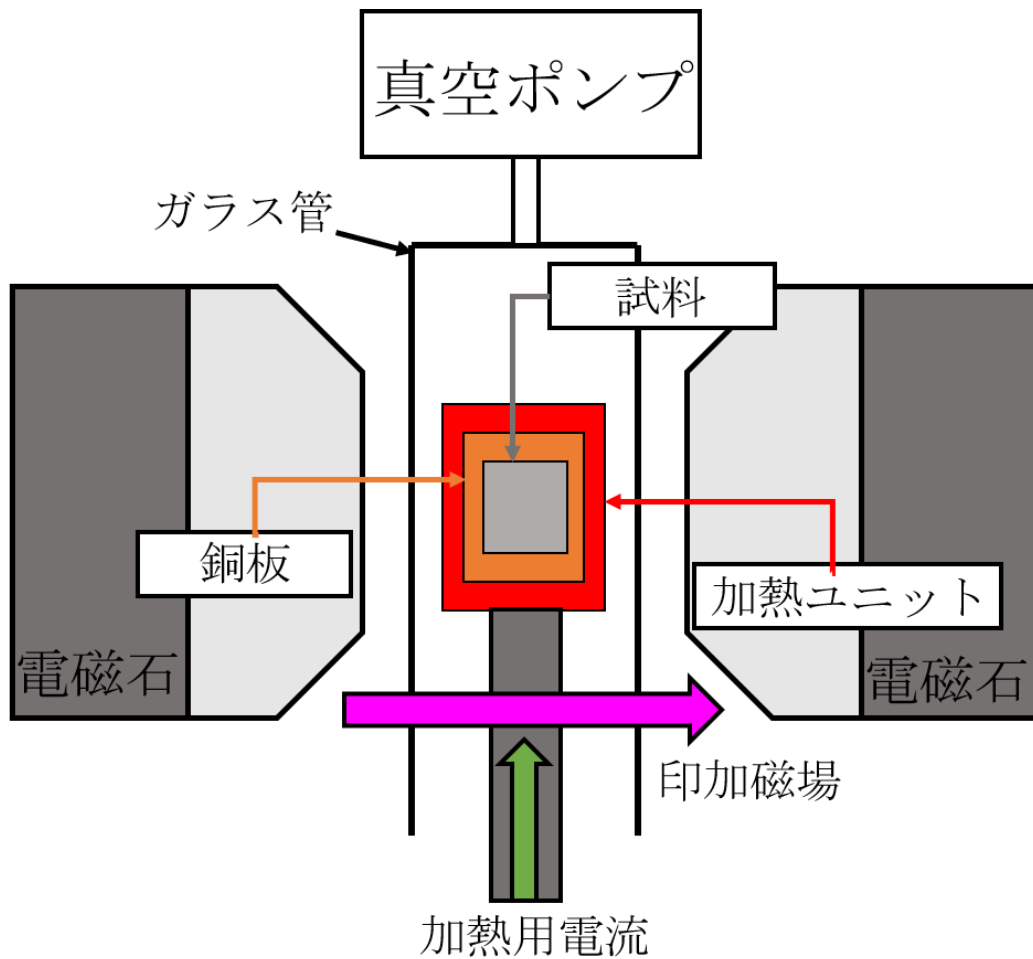


図 2.1.4 アニール装置の模式図

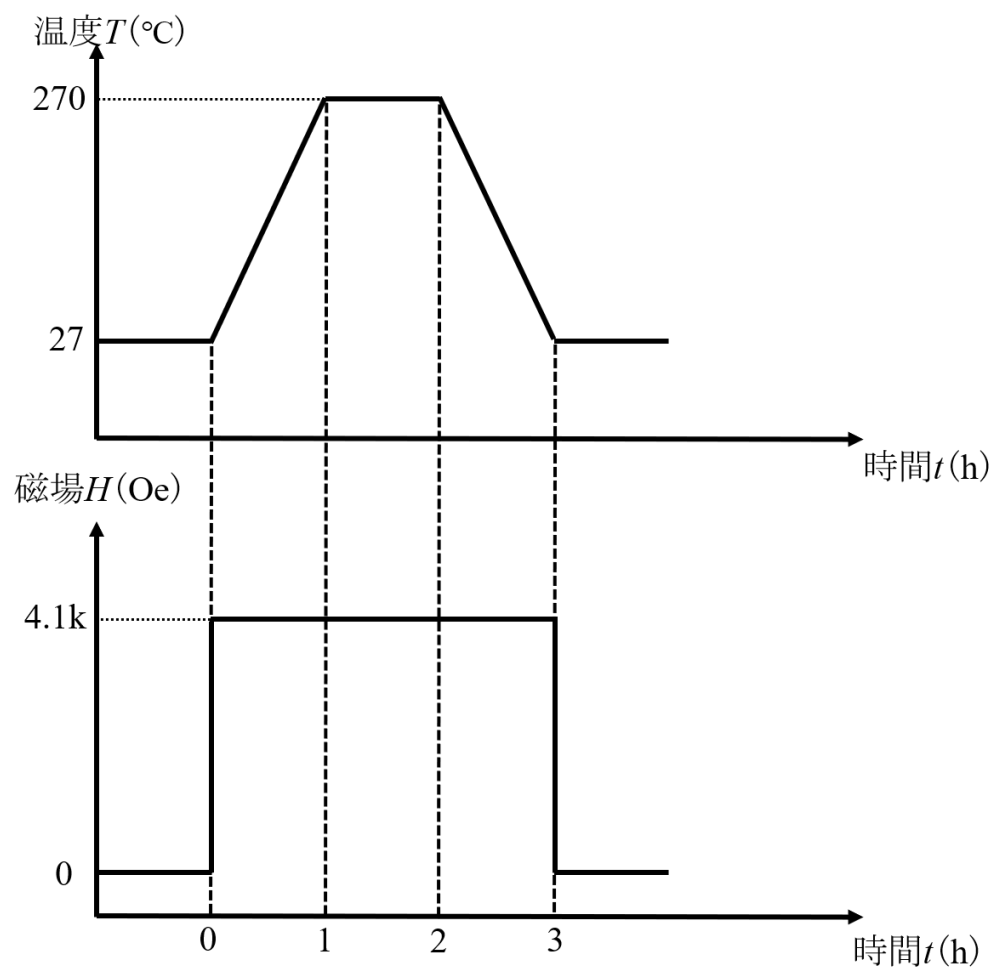


図 2.1.5 磁場中アニール処理の設計工程、実際に冷却に掛かる時間はこれより長い。

### 2.1.3 フォトリソグラフィ

光露光技術は、半導体集積回路に使用される最も初期の微細加工技術であり、現在最も一般的に使用されているグラフィックス製造技術である。

露光の基本原理は、マスク上にデザインされたパターンを、光学系を使って露光、その後現像などの工程を経てフォトレジストが塗布された基板に転写することである。

本文章では、ネオアーク社製のマスクレス露光装置 PALET を用いた。マスクレス露光装置は、図 2.1.6 に示すように、空間光変調器の一つであるデジタルマイクロミラーデバイス (Digital Micromirror Device : DMD) を露光パターンジェネレーターとして採用し、フォトマスクの代用として DMD 上に映し出されたパターンデータをフォトレジスト上に縮小投影するデジタル露光装置である。パソコン上で作成した露光データを直接露光することができるので、自在に露光パターンを作成することができる。

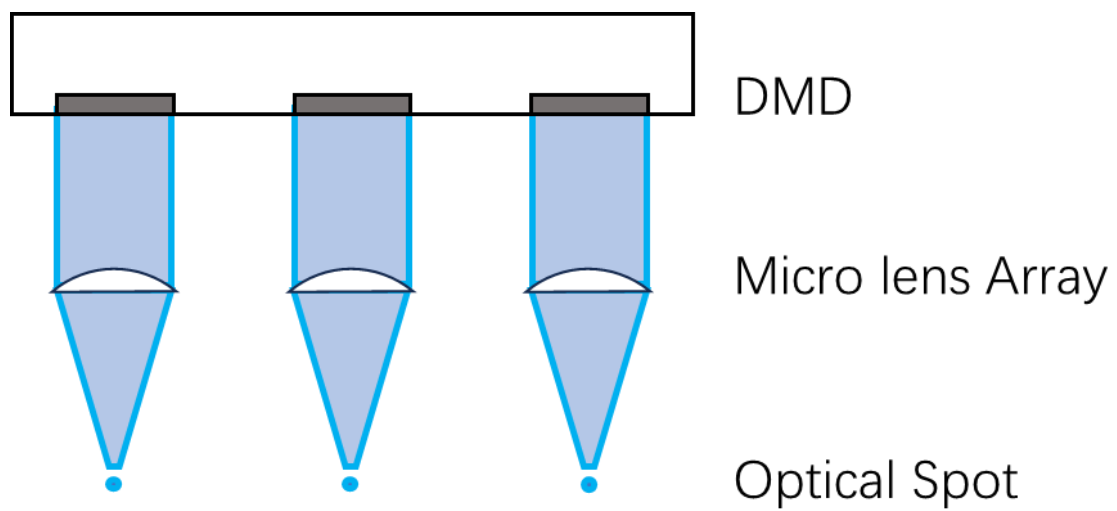


図 2.1.6 Micro lens Array は、DMD の各ピクセルからの光を 1 点に集めるために使用される。

### 2.1.3 EB リソグラフィ

EB リソグラフィ (Electron Beam Lithography、電子ビーム露光技術) は、高いパターン分解能を有するため、磁性ナノ構造の製造プロセスに広く利用されている。フォトリソグラフィとは異なり、EB リソグラフィシステムでは、光ビームの代わりに集束電子ビームを使用して微細・ナノパターンを露光する。電子ビーム露光プロセスで 사용되는電子ビームレジスト（フォトレジストに類似）は電子ビームに敏感であり、電子ビームによる照射を受けた後、現像液中で良溶性（ポジ型電子ビームレジスト）または非良溶性（ネガ型電子ビームレジスト）の特性を示す。

EB リソグラフィの利点は、高いパターン分解能を持つことである。しかし、システムは高真空環境で動作する必要があるため、高分解能の EB リソグラフィ装置は通常、処理速度と生産効率が低いため、大規模な生産には適していない。

本研究で使用した EB リソグラフィ装置は、九州大学木村研究室所有の ELIONIX 社製 ELS-7800 である。

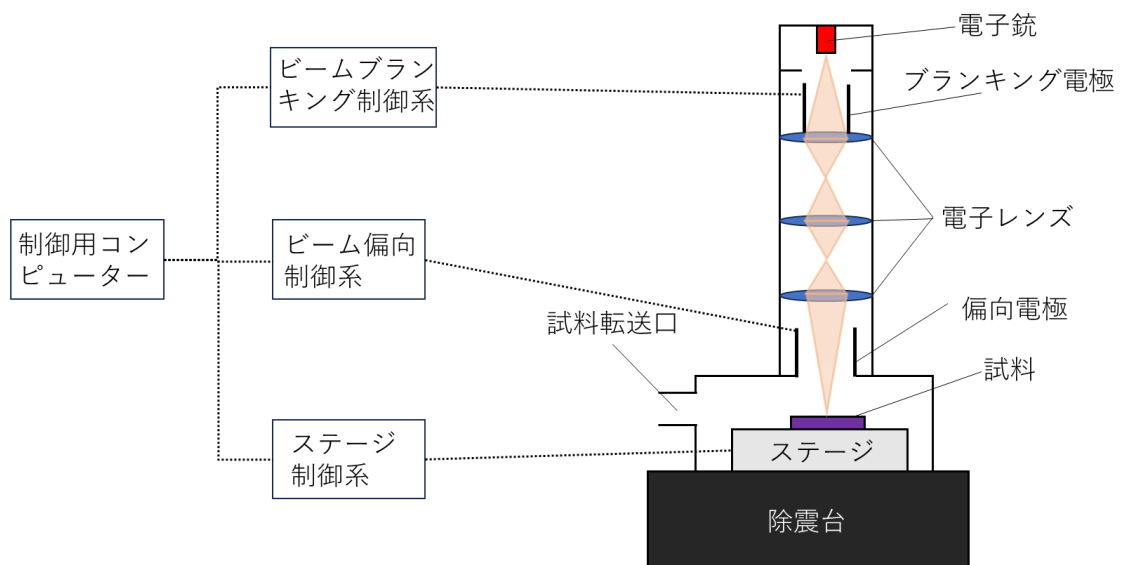


図 2. 1. 7 EB リソグラフィ装置概念図

#### 2.1.4 イオンビームエッチング

イオンビームエッチング (ion beam etching, IBE) は、一定の加速エネルギーを持つイオンが材料表面に衝突することで、材料原子がスパッタリングされ、エッチングを達成する技術である。基本原理は、Ar などの不活性ガスを電磁場に囲まれたプラズマチャンバーに充填し、フィラメントの熱電子放出によって生成された電子が磁場の作用で循環運動を行い、アルゴン原子と多くの衝突を繰り返し、大量のアルゴンイオンを生成する。その後、加速電場の作用により、アルゴンイオンが試料表面に衝突し、有効なパターン構造をエッチングする。これは純粋な物理過程である。

IBE プロセスの利点は、エッチング材料に制限を受けないことである。例えば、磁性多層膜構造に対して、各層のエッチング条件を変更せずに、サンプル全体を一度にエッチングすることが可能である。IBE は方向性も非常に強く、側壁が急峻なナノ構造を作成することができる。しかし、エッチングされた材料の構造のエッジでは、スパッタリングされた原子の再堆積が発生する可能性があり、これがナノ構造に深刻な影響を与える可能性がある。この点には注意が必要である。

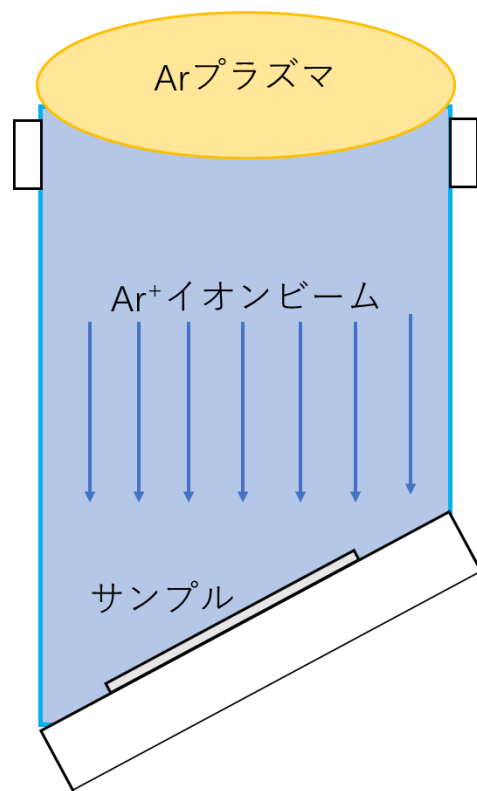


図 2.1.8 イオンビームエッチングの概念図

## 2.2 試料評価

### 2.2.1 試料振動型磁力計 (Vibrating Sample Magnetometer: VSM)

振動試料型磁力計 (VSM) は、物質の磁氣的性質の中で最も基本的である磁化特性を自動測定する装置である。均一磁界中におかれた試料を一定振動数及び一定振幅でさせて、試料近傍に配置された検出コイルに誘起する試料に比例した誘導電流の大きさにより、磁化特性を連続的に測定する装置での測定に最も適している。この文章は玉川製作所製の試料振動型磁力計 (VSM) を用いて試料の磁化測定を行った。VSM の概念図を図 2.2.1 に示す。印加磁場はピン層の磁化に対して 0 度方向と 90 度方向でそれぞれを測定する。これから得られる磁化曲線は 90 度磁気結合の発現を観察することができる。

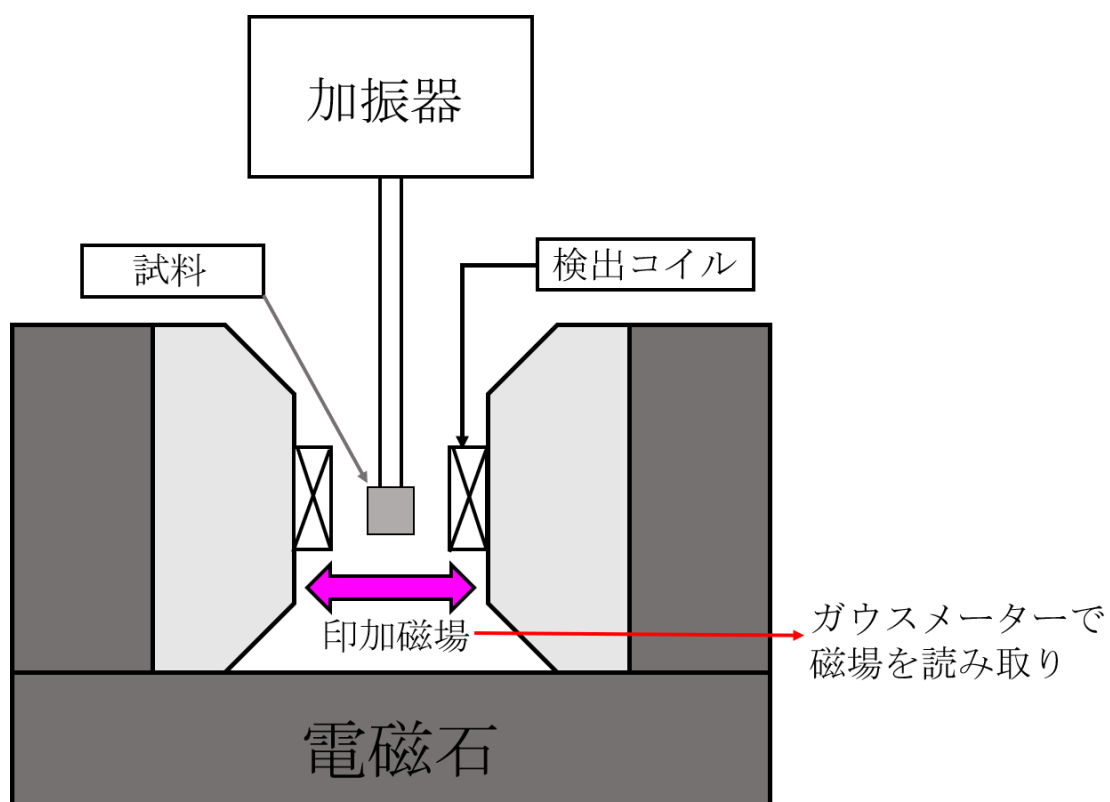


図 2. 2. 1 VSM の概略図

### 2.2.2 超伝導量子干渉計 (Superconducting Quantum Interference Device : SQUID)

超伝導材料で 2 つのジョセフソン接合を並列に接続して超伝導回路を構成することで、超伝導量子干渉計 (SQUID) が実現される。超伝導量子干渉計は大きく分けて 2 種類がある。一つは直流電源方式で、直流量子干渉計 (dc-SQUID) と呼ばれる。二重接合 SQUID では、2 つの弱結合が超伝導経路によってショートされていないため、直流 I-V 特性を観測することができる。動作状態では、デバイスは臨界電流  $I_c$  をわずかに超える値に電流バイアスされ、デバイスの両端の電圧を測定することができる。そのためこの名前が付けられた。もう一つは高周波電源方式で、射頻量子干渉計 (rf-SQUID) と呼ばれる。これは単接合超伝導リングによって構成されており、単接合 SQUID とも呼ばれる。この場合、超伝導経路がショートされるため、電圧応答は超伝導リングを高周波バイアスのエネルギー貯蔵回路 (共振回路) に結合することで得られる。そのためこの名前が付けられた。

この文章はアメリカの Quantum Design 製の MPMS3 を用いて試料の磁化測定を行った。



図 2.2.2 Quantum Design 製の MPMS3

### 2.2.3 強磁性共鳴(ferromagnetic resonance FMR)測定

FMR は、強磁性材料の磁化の動的振る舞いを検出するためのスペクトル技術である。第1章の1.2で述べたように、FMRは、印加される交流磁場の周波数が強磁性体の固有周波数と同じ、すなわち $\omega = \omega_0$ のときに生じる。

CPW(Coplanar waveguide)とVNA(Vector network analyzer)を組み合わせた技術を用いて、サンプルをG-S-G(Ground-Signal-Ground)CPWの信号線上に配置する(図2.2.3)。

図2.2.3示すように、VNA-FMR測定システムは通常、以下の4つの主要な構成要素で構成されている：マイクロ波信号源、測定ボード、信号検出器、偏置電磁石である。信号源は周波数スキャンモードまたは磁場スキャンモードに設定できる。測定ボードにはCPW回路が選ばれている。VNAのポート1は信号源と信号検出器を兼ねており、反射信号 $S_{11}$ を検出するために使用される。偏置電磁石の外部磁場はLab-viewで作成したスクリプトを用いて制御されている。

マイクロ波磁場がCPWを通じて強磁性材料内のFMRを駆動し、固定磁場下でマイクロ波の周波数を走査し、VNAが異なる周波数でのSパラメーターを測定する。これにより、マイクロ波の吸収スペクトルを得ることができる。本文章で使用した強磁性共鳴実験装置は、慶應義塾大学能崎研究室の装置である。

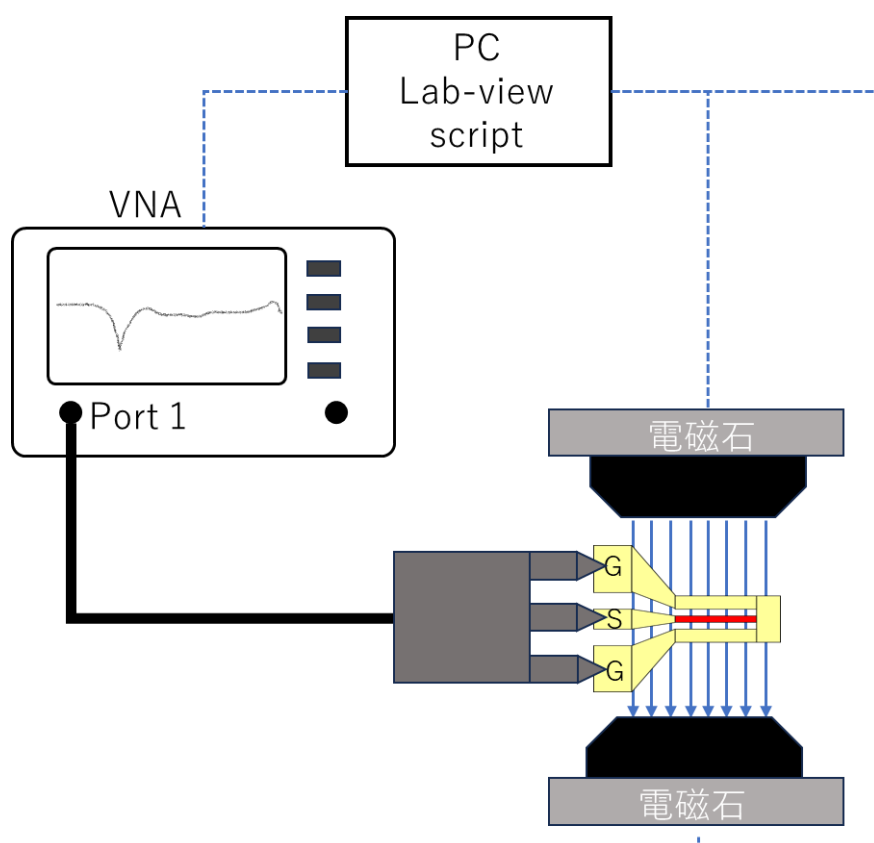


図 2. 2. 3 VNA—FMR 測定システム

## 第三章 実験結果と考察

### 3.1 面内構造における層間磁気結合の考察

オルソゴナル構造における層間磁気結合の考察は非常に複雑であるため、この節ではまず簡単な面内磁化構造における Cr を Spacer 材料として層間磁気結合を確認する。具体的には、Spacer の膜厚が変化することで層間磁気結合の種類にどのような変化が生じるかを観察した。

#### 3.1.1 VSM による磁化曲線の測定

面内磁化構造における層間磁気結合の種類が中間層の膜厚によってどのように変化するかを観察するために、Bottom 層、Top 層、Free 層として  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  を選び、Spacer として Cr を使用した。基本膜構成は以下の通りである。試料①から⑩では、Cr の膜厚を表 3.1.1 のように変えた。

基本膜構成：熱酸化 Si 基板 (Si /  $\text{SiO}_2$  200 nm) / Ta 5 nm /  $(\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20})\text{Cr}_{40}$  5 nm

/  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  1 nm /  $\text{Ir}_{22}\text{Mn}_{78}$  5 nm /  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  2 nm (A) / Cr t nm /  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  2

nm (B) / Cu 6 nm /  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  2.5 nm (C) / Cu 1 nm / Ta 5 nm

表 3.1.1 試料①から試料⑩までの Cr 膜厚

| 試料名 | Cr 膜厚  |
|-----|--------|
| 試料① | 0.6 nm |
| 試料② | 0.8 nm |
| 試料③ | 0.9 nm |
| 試料④ | 1.0 nm |
| 試料⑤ | 1.1 nm |
| 試料⑥ | 1.2 nm |
| 試料⑦ | 1.4 nm |

|     |        |
|-----|--------|
| 試料⑧ | 1.6 nm |
| 試料⑨ | 1.8 nm |
| 試料⑩ | 2.0 nm |
| 試料⑪ | 2.2 nm |

このうち、 $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  (A)は磁化方向が固定された Bottom 層を表し、 $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  (B)は  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  (A)と層間磁気結合を持つ Top 層を表し、 $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  (C)は参照用の Free 層として用いられる。磁場の方向は、試料の 0 度と 90 度の 2 方向である。

各試料の 0 度および 90 度方向の磁化曲線を表 3.1.1 に示す。ここで、0 度は固定された Bottom 層の磁化方向に沿った方向を表し、90 度は固定された Bottom 層の磁化方向に垂直な方向を表す。これらの方向はどちらも面内である。

層間磁気結合の種類は 3 つに分けられる。第一、第二の種類は、Bilinear 結合が主導する強磁性結合および反強磁性結合である。第三の種類は、Biquadratic 結合が主導する 90 度磁気結合である。これら 3 つの層間磁気結合は、それぞれ異なる特性を持つため、磁化曲線にも異なる形状が現れる (図 3.1.1 参照)。そのため、磁化曲線の形状を観察することで、Spacer の膜厚が異なる場合にどのような層間磁気結合が現れるかを判別できる。表 3.1.2 には、各試料における Spacer 膜厚の変化に伴う層間磁気結合が示されている。

Spacer が Cr 0.6nm の試料①の場合、0 度方向の磁化曲線は、(a)の図に示されているように、(一)段階で三層の  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  磁性層の磁化方向が飽和している。磁場が弱くなるにつれて、固定された Bottom 層は元の磁化方向に戻り、この時点で強磁性結合により Top 層の磁化方向も反転する (二段階)。最後に、磁場が逆方向に増加すると、三層の  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  磁性層の磁化方向が再び飽和状態に達す。一方、(d)の図では、Biquadratic 結合が主導的な役割を果たしていないため、ゼロ磁場近くでのみ Free 層の磁化反転が観察される。

Spacer が Cr 1nm の場合、90 度方向の磁化曲線は、(e)の図に示されているように、二度の磁化反転が発生する。(一)段階では、三層の  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  磁性層の磁化方向が飽和しているが、磁場が弱くなるにつれて、(二)段階で固定された Bottom 層が元の方角に戻る。しかし、このとき Biquadratic 結合が主導的な役割を果たしているため、Bottom 層と Top 層の間で 90 度の磁気結合が生じ、これが二度目の磁化反転を引き起こす。

Spacer が Cr 1.2nm の場合、0 度方向の磁化曲線は(c)の図に示されているように、(一)段階では反強磁性結合の影響で Top 層の  $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  が低磁場下で飽和せず、完全な磁化が達成されない。磁場が弱くなるにつれて、(二)段階で固定された Bottom 層と Top 層は反強磁性結合の影響により依然として反対方向を維持する。そのため、この時点で磁化強度は変化しない。磁場が逆方向に増加すると、(三)段階では(一)段階と反対対称が見られる。

その後、各サンプルの磁化曲線とそれに対応する層間磁気結合の種類が表 3.1.2 にまとめられた。この表からわかるように、層間磁気結合の種類は Spacer の厚さの増加に伴い、振動的な変化を示す。Cr の膜厚が 0.8nm 以下の場合、Top 層と Bottom 層は強磁性結合を示す。その後、膜厚が 0.9nm から 1.0nm の間では 90 度磁気結合が見られ、1.1nm から 1.6nm の間では反強磁性結合が、さらに 1.8nm から 2.0nm の間では再び 90 度磁気結合が観察される。2.2nm では再度強磁性結合が確認された。

オルソゴナル構造の試料が  $B_{12}$  と負の  $A_{12}$  を持つ必要があるため、上述の面内磁化構造の結果を参照し、オルソゴナル構造の Spacer は Cr1nm に選定した。また、層間磁気結合を持たないように Spacer を Cu 5nm としたオルソゴナル構造試料を対照として使用し、それらの飽和磁場の大きさを比較する。これについては 3.2 節で詳しく論じる。

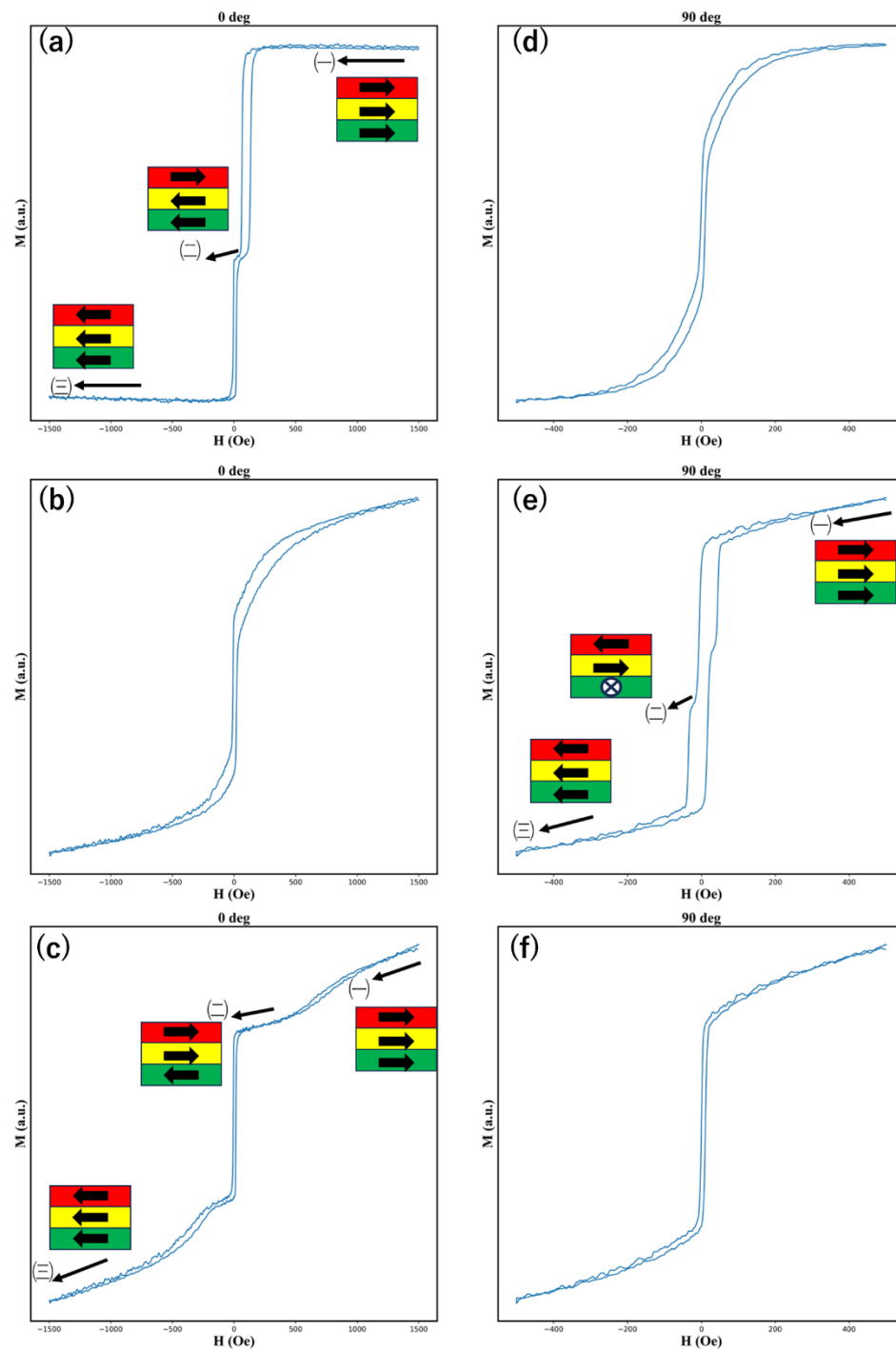
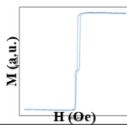
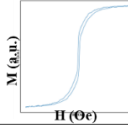
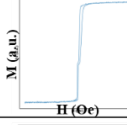
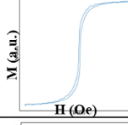
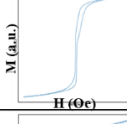
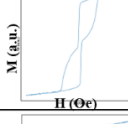
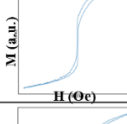
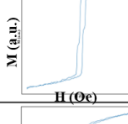
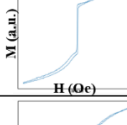
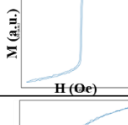
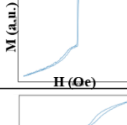
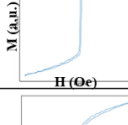
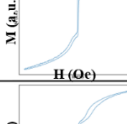
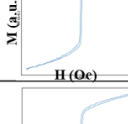
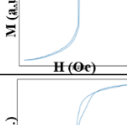
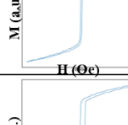
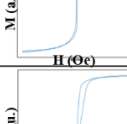
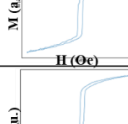
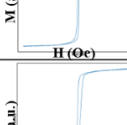
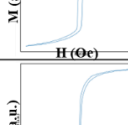
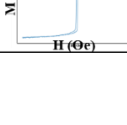
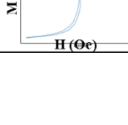


図 3.1.1 3つの層間磁気結合の磁化曲線。(a) (b) (c)はCr0.6nm、Cr1.0nm、Cr1.2nmの場合、0度方向の磁化曲線。(d) (e) (f)は対応している90度方向の磁化曲線。3つの層間磁気結合は、それぞれ異なる特性を持つため、磁化曲線にも異なる形状が現れる。

表 3. 1. 2 Spacer 膜厚を変えたときの磁化曲線と層間磁気結合の種類 (0 deg 磁場は全て±1500 Oe で掃引し、90 deg 磁場は全て±500 Oe で掃引した。)

| Spacer  | 0 deg                                                                               | 90 deg                                                                              | 層間結合種類  |
|---------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|---------|
| Cr0.6nm |    |    | 強磁性結合   |
| Cr0.8nm |    |    | 強磁性結合   |
| Cr0.9nm |    |    | 90度磁気結合 |
| Cr1.0nm |   |   | 90度磁気結合 |
| Cr1.1nm |  |  | 反強磁性結合  |
| Cr1.2nm |  |  | 反強磁性結合  |
| Cr1.4nm |  |  | 反強磁性結合  |
| Cr1.6nm |  |  | 反強磁性結合  |
| Cr1.8nm |  |  | 90度磁気結合 |
| Cr2.0nm |  |  | 90度磁気結合 |
| Cr2.2nm |  |  | 強磁性結合   |

### 3.2 オルソゴナル構造における層間磁気結合の考察

この節では、六つのオルソゴナル構造の試料を作成した。一方、層間磁気結合を持つ Spacer が Cr 0.8nm、Cr 1nm、Cr 1.2nm、Cr 1.6nm、Cr 2.0nm の試料である。一方、1つは対照として Spacer が Cu5nm の試料である。対照試料には層間磁気結合がない。試料⑫-⑱の構造は以下の通りである。

基本膜構造：熱酸化 Si 基板(Si / SiO<sub>2</sub> 200 nm) / Ta 5 nm / Cr 1 nm / Pt 3 nm /  
(Co 0.7 nm / Pt 0.5 nm)<sub>4</sub> / Co 0.7 nm / Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub> 0.3 nm / Spacer /  
Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub> 2 nm / Cu 1 nm / Ta 5 nm

ここで、Ta 5 nm / Cr 1 nm / Pt 3 nm は Buffer 層であり、(Co 0.7 nm / Pt 0.5 nm)<sub>4</sub> / Co 0.7 nm / Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub> 0.3 nm は垂直異方性を持つ Bottom 層である。Spacer は Cu 5 nm あるいは Cr 1 nm で構成され、Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub> 2 nm は面内磁化を持つ Top 層である。Bottom 層と Top 層の磁化方向は互いに直交しており、オルソゴナル構造を形成している。この点については、次の節で検証する。

表 3.2.1 試料⑫と試料⑬の Spacer 材料と膜厚

| 試料名 | 材料 | 膜厚     |
|-----|----|--------|
| 試料⑫ | Cu | 5 nm   |
| 試料⑬ | Cr | 0.8 nm |
| 試料⑭ | Cr | 1 nm   |
| 試料⑮ | Cr | 1.2 nm |
| 試料⑯ | Cr | 1.6 nm |
| 試料⑰ | Cr | 1.8 nm |
| 試料⑱ | Cr | 2.0 nm |

### 3.2.1 SQUID による磁化曲線からの層間磁気結合係数算出

この節では、前節より大きな外部磁場を印加するために SQUID を用いて試料⑫-⑮の磁化曲線を測定した。そして、磁気結合と飽和磁場の評価を行った。磁場の印加方向は面内と面直の 2 つの方向で行い、結果を表 3.2.2 に示した。表 3.2.2 を示すように、すべての試料がオルソゴナル構造を維持している。次に、試料⑬-⑮の層間磁気結合係数  $A_{12}$  および  $B_{12}$  を求める。具体的なプロセスを以下に示す。

試料⑭を例として  $A_{12}$  および  $B_{12}$  を求める。まず試料⑫と⑭の磁化曲線を図 3.2.1 に示した。ここで図 3.2.1 (a) は磁場を面内方向にかけた場合の 2 つの試料の磁化曲線、図 3.2.1 (b) は磁場を面直方向にかけた場合の 2 つの試料の磁化曲線である。

次に、図 3.2.1 (a) に示した面内磁場を印加した磁化曲線から、ゼロ磁場付近では Cu 5 nm の磁化強度が Cr 1 nm の磁化強度よりも高いことが確認できる。これは、層間磁気結合が影響を与え、ゼロ磁場付近で Top 層の磁化の配列に影響を及ぼしたためである。また、図 3.2.1 (b) に示した垂直磁場を印加した磁化曲線で、磁化が飽和する飽和磁場に注目すると、Cr 1 nm の試料⑭の方が Cu 5 nm の試料⑫よりも高いことが分かる。これは層間磁気結合によって、結合磁場が印加された磁場と逆方向に働き、そのため層間磁気結合のない試料と比較して磁化が飽和する飽和磁場が高くなったためである。

このように、Cr 1 nm の試料⑭には層間磁気結合が強く存在することが示唆されたので、以下では定量的に考察する。面内構造において、Bilinear 結合磁場と Biquadratic 結合磁場は同一直線上にはないため、異なる方向に磁場を加えることで両者を区別することが可能である。しかし、オルソゴナル構造においては、Bilinear 結合磁場と Biquadratic 結合磁場が同一直線上にあるため、飽和磁場の測定だけでは Bilinear 結合磁場と Biquadratic 結合磁場を区別することができない。そこで、ここでは 2 つの方程式を構築した。

まず、面直方向に磁場を印加した際、Top 層の磁化が飽和する前の Top 層における磁場方向の磁化 $M_z$ と磁場との関係式は以下ようになる：

$$M_z = aH_z \quad (H_z < H_{sat}) \quad (3.2.1)$$

ここで、 $a$ は比例係数、 $H_z = H_{app} + H_{bl} + H_{bq}$ である。 $H_{app}$ は印加磁場、 $H_{bl}$ は Bilinear 結合磁場、 $H_{bq}$ は Biquadratic 結合磁場である。

Bottom 層の垂直方向の磁化が一定であると仮定すると、 $H_{bl}$ の大きさは変わらないということになる。一方、 $H_{bq}$ の大きさは $M_z$ に応じて変化し、次の関係式になる：

$$H_{bq} = \frac{2B_{12}}{M_s d_i} m_z \quad (3.2.2)$$

ここで、 $M_s$ は Top 層の飽和磁化、 $d_i$ は Top 層の膜厚である。 $\frac{2B_{12}}{M_s d_i}$ を $H_{bqmax}$ とすると、式 3.2.1 は以下のように変形できる。

$$M_z = a \left( H_{app} + H_{bl} + H_{bqmax} \frac{M_z}{M_s} \right) \quad (3.2.3)$$

整理すると、以下の式になる。

$$M_z = \frac{a}{1 - \frac{aH_{bqmax}}{M_s}} H_{app} + \frac{aH_{bl}}{1 - \frac{aH_{bqmax}}{M_s}} \quad (3.2.4)$$

このように、 $M_z$ が外部磁場とともにどのように変化するかという関係式を導出した。外

部磁場が 0 のとき、第 2 項  $\frac{aH_{bl}}{1 - \frac{aH_{bqmax}}{M_s}}$  は Spacer が Cu と Cr の場合、 $M_z$  の差に相当する。

これは SQUID の磁化曲線から読み取ることができる。その後、以下の式を連立して、

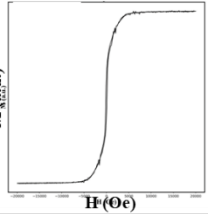
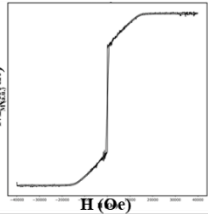
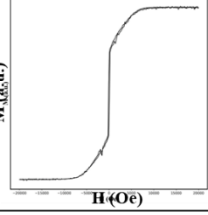
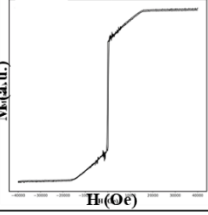
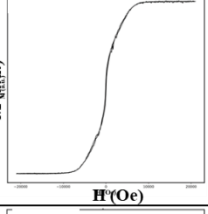
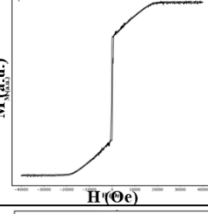
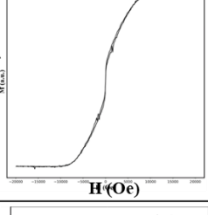
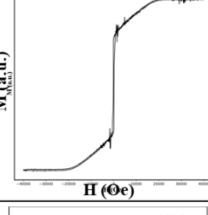
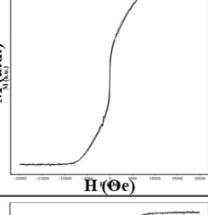
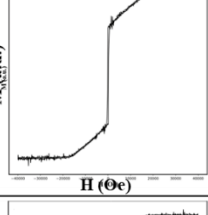
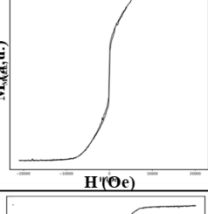
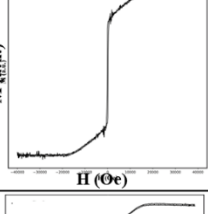
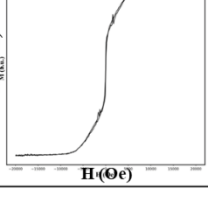
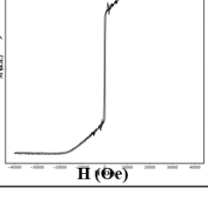
$$H_{sat,Cu} - H_{sat,Cr} = H_{bl} + H_{bq} \quad (3.2.5)$$

2 つの方程を構築した。

ここでは、比例係数  $a$  と  $H_{sat,Cu} - H_{sat,Cr}$  の値さえ分かれば、それぞれ  $H_{bl}$  と  $H_{bq}$  を求めることができる。これらの情報は、図 3. 2. 1 (b) 図から取得できる。ここまで、試料⑭の  $A_{I2}$  および  $B_{I2}$  を算出できる。他の試料も同じプロセスで算出した。

試料⑬-⑱取得した結果を表 3. 2. 3 にまとめ、 $H_{bl}$  と  $H_{bq}$  を算出して、 $A_{I2}$  と  $B_{I2}$  を算出した。算出した  $A_{I2}$  と  $B_{I2}$  と Cr 膜厚の関係は図 3. 2. 2 に示した。ここで、 $M_{0,Cu} - M_0$  はゼロ磁場付近での Cu 5nm の試料⑫と試料⑬-⑱の磁化の差であり、 $H_{sat,Cu} - H_{sat}$  は両者の飽和磁場の差である。しかし、SQUID による磁化曲線を用いて飽和磁場を測定することは、依然として精度が十分ではない。これは、磁化が飽和磁化に近づくにつれて、磁化と外部磁場の関係が線形ではなくなり傾きが小さくなったため、飽和磁場の大きさを正確に求めるのが難しい事に依る。そこで次の節では、強磁性共鳴 (FMR) を用いて飽和磁化を精密に測定し、試料⑭の  $H_{bl}$  と  $H_{bq}$  の値を求める。

表 3.2.2 試料⑫-⑮における Spacer 膜厚の変化に伴う磁化曲線

| Spacer   | In-plane                                                                            | Out of plane                                                                        | 構造の種類  |
|----------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|--------|
| Cu 5nm   |    |    | オルソゴナル |
| Cr 0.8nm |    |    | オルソゴナル |
| Cr 1.0nm |   |   | オルソゴナル |
| Cr 1.2nm |  |  | オルソゴナル |
| Cr 1.6nm |  |  | オルソゴナル |
| Cr 1.8nm |  |  | オルソゴナル |
| Cr 2.0nm |  |  | オルソゴナル |

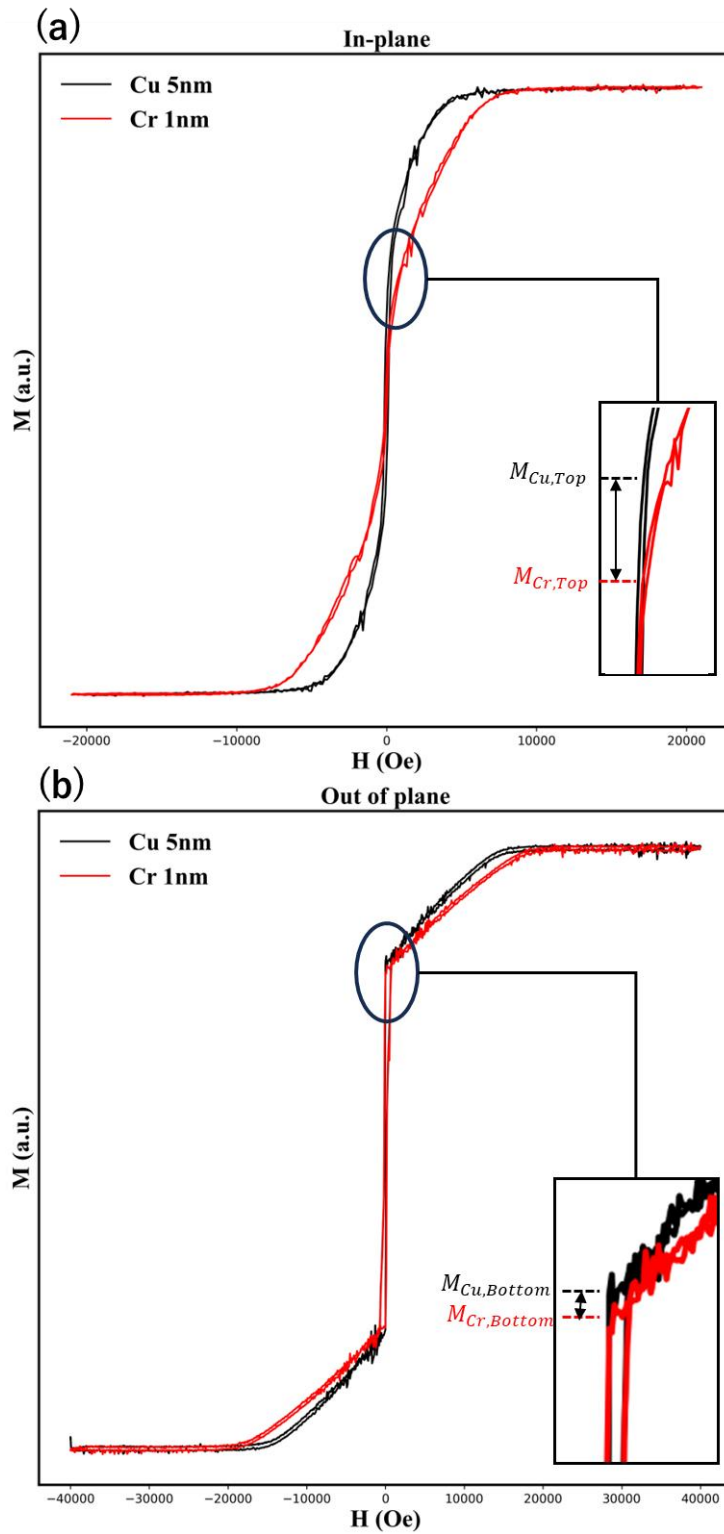


図 3.2.1 SQUID で測定した磁化曲線。(a)は磁場が面内方向の場合の 2 つの試料の磁化曲線、(b)は磁場が面直方向の場合の 2 つの試料の磁化曲線である。

表 3.2.3 Spacer が Cu 5nm と Cr 1nm の場合の各データの比較。 $M_{0,Cu} - M_0$ は 0 磁場付近で Cu5nm と Cr 1 nm の磁化強度の差であり、 $H_{sat,Cu} - H_{sat}$ は両者の飽和磁場の差である。

|          | $M_{0,Cu} - M_0$ (emu/cc) | $H_{sat,Cu} - H_{sat}$ (Oe) | $H_{bl}$ (Oe) | $H_{bq}$ (Oe) | $A_{12}$ (mJ/m <sup>2</sup> ) | $B_{12}$ (mJ/m <sup>2</sup> ) |
|----------|---------------------------|-----------------------------|---------------|---------------|-------------------------------|-------------------------------|
| Cu 5nm   | 0                         | 0                           | 0             | 0             | 0                             | 0                             |
| Cr 0.8nm | 52.540                    | -399                        | 602.154       | -1001.154     | 0.125                         | -0.104                        |
| Cr 1nm   | -22.840                   | -3699                       | -314.126      | -3384.874     | -0.065                        | -0.352                        |
| Cr 1.2nm | -46.253                   | -3899                       | -630.943      | -3268.057     | -0.131                        | -0.339                        |
| Cr 1.6nm | -11.690                   | -2199                       | -145.801      | -2053.199     | -0.030                        | -0.213                        |
| Cr 1.8nm | -3.626                    | -1699                       | -43.833       | -1655.167     | -0.009                        | -0.172                        |
| Cr 2nm   | 34.13                     | -1999                       | 438.295       | -2437.295     | -0.091                        | -0.253                        |

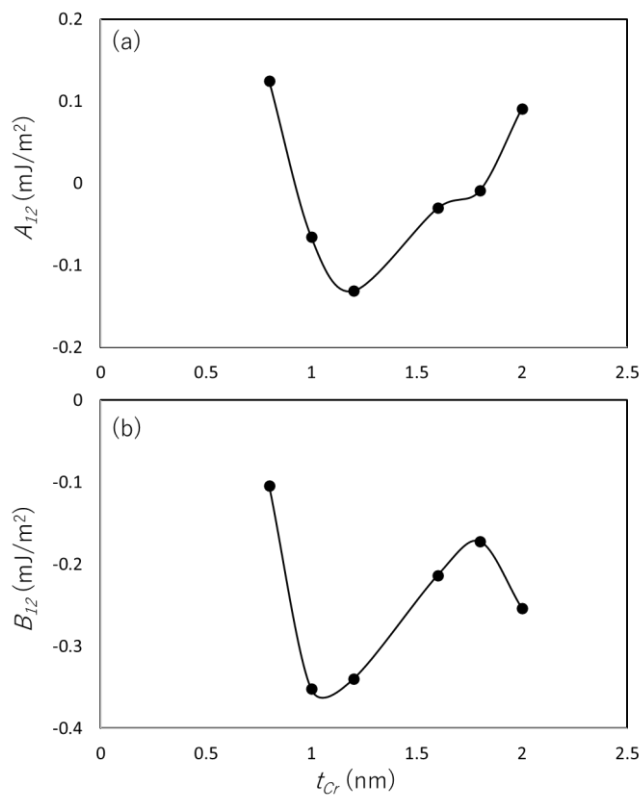


図 3.2.2 (a)Cr 膜厚と  $A_{12}$  の関係、(b)Cr 膜厚と  $B_{12}$  の関係

### 3.2.2 FMR による飽和磁場からの層間磁気結合係数算出

この節では、VNA-FMR 法を用いて、反射係数  $S_{11}$  を測定して、試料の飽和磁場を正確に測定する。VNA-FMR の測定方法については、第 2 章で詳述されている。測定する試料は前節と同じく、試料⑫と試料⑭である。試料⑫の Spacer は Cu 5nm、試料⑭の Spacer は Cr 1nm である。

まず、図 3.2.3(a) を示すように、Top 層の飽和磁化を求めるために、試料⑫に面内磁場 51 0e から 850 0e まで印加し、反射係数  $S_{11}$  と周波数の関係を測定した。次に、 $S_{11}$  の最小値をまとめて、印加磁場と周波数の関係を図 3.2.2(b) にプロットした。最後に、Kittel 方程式を用いて曲線を最小二乗法によりフィッティングし、Top 層の飽和磁化を算出した。図 3.2.3(b) に示すように、黒色の点は実験で得られたデータを示し、赤い線は Kittel 方程式を用いたフィッティング曲線を表している。フィッティングを用いて、最適な飽和磁化を求めた結果、その値は 1080 emu/cc となり、SQUID で測定した値 (1040 emu/cc) に充分近い結果が得られた。

その後、図 3.2.4 を示すように、試料⑫と試料⑭に面直方向の磁場 246 0e から 21700 0e まで印加し、反射係数  $S_{11}$  と周波数の関係を測定した。次に、 $S_{11}$  の最小値をまとめて、印加磁場と周波数の関係を図 3.2.4(b) にプロットした。

図 3.2.4 から、同じな磁場で、試料⑫の周波数は試料⑭より高いと見える。その原因は以下に説明する。

まず、オルソゴナル構造の試料において、面直方向の磁場を増加していくと、面内磁化膜の磁化歳差運動は、面内歳差運動から垂直歳差運動へと移行する。非常に強い垂直磁場の下では、その磁場-周波数 ( $H$ - $f$ ) 曲線は次の方程式に限りなく近づく。

$$f_1 = \gamma(H_{app} - H_d) \quad (3.2.6)$$

ここで、 $H_{app}$ は印加磁場であり、 $H_d$ は反磁場を表す。層間磁気結合磁場が存在する場合、方程式は次のように変化する。

$$f_1 = \gamma(H_{app} - H_d + H_{int}) \quad (3.2.7)$$

ここで、 $H_{int}$ は層間磁気結合磁場を指す。そのため、 $H_{int}$ が存在する試料では、 $H_{int}$ が存在しない試料に比べて、図 3.2.5(a)を示すように、同じ磁場における周波数が低くなる。

図 3.2.5(b)は、実験で測定した⑫試料と⑭試料の周波数と印加磁場の関係を示す。黒色のデータは試料⑫、赤いデータは試料⑭の印加磁場と周波数の関係を示す。それぞれ 18000 Oe 以上と 20000 Oe 以上の高磁場領域の実験データに対して、式 3.2.6 および式 3.2.7 を用いた線形フィッティングを行うことで、試料⑭の飽和磁場および層間磁気結合磁場、さらには層間磁気結合係数を求めた。以上、SQUID と FMR の結果を表 3.2.4 にまとめた。

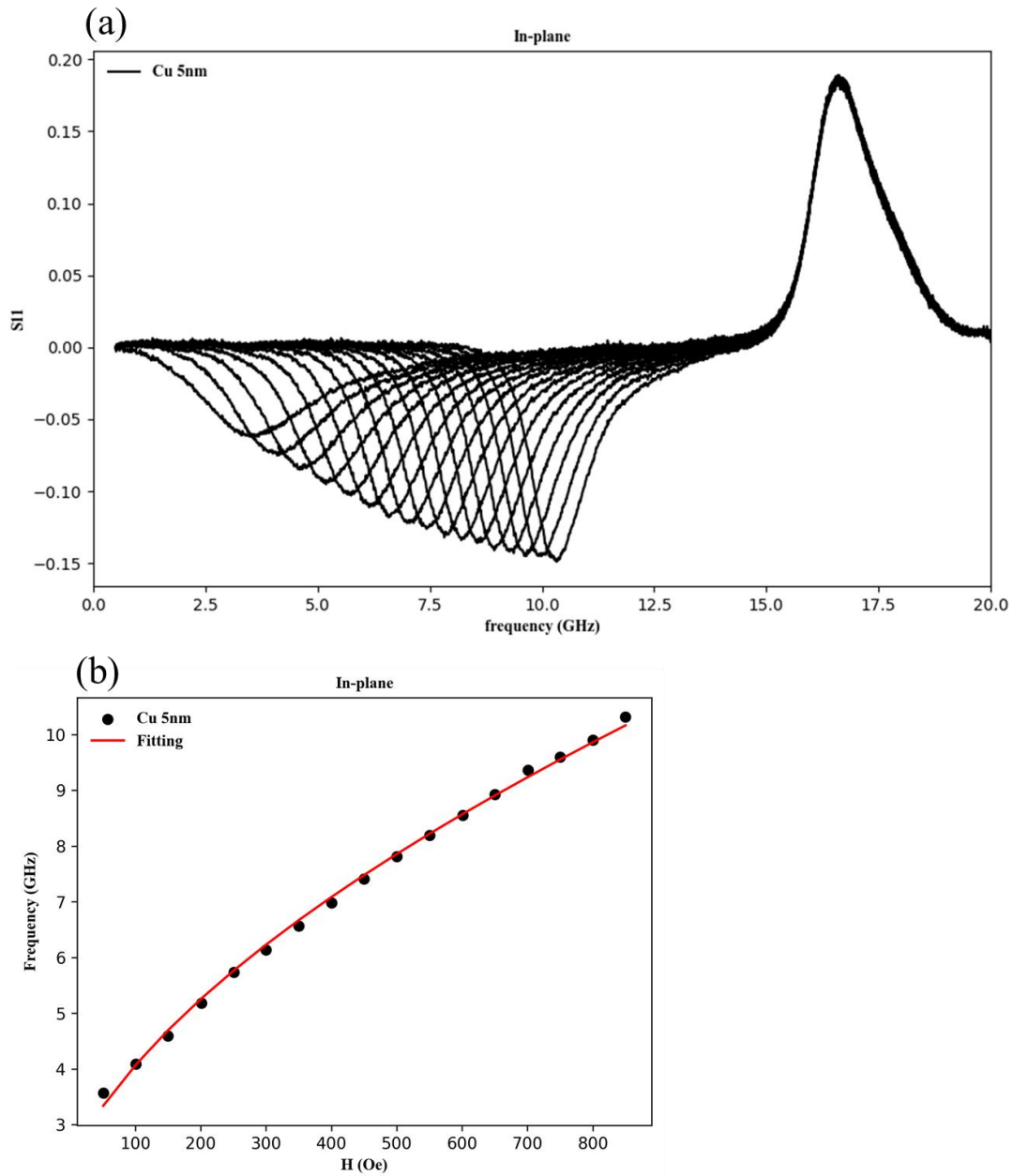


図 3.2.3 (a) 試料⑫に面内磁場を印加したとき VNA-FMR で測定した周波数と反射係数  $S_{11}$  の関係、(b) 試料⑫に面内磁場を印加したときの印加磁場と周波数の関係。黒色のドットは実験結果、赤い線は Kittel 方程式を用いたフィッティング曲線を表している。フィッティングを用いて求めた飽和磁化は 1080 emu/cc となる。

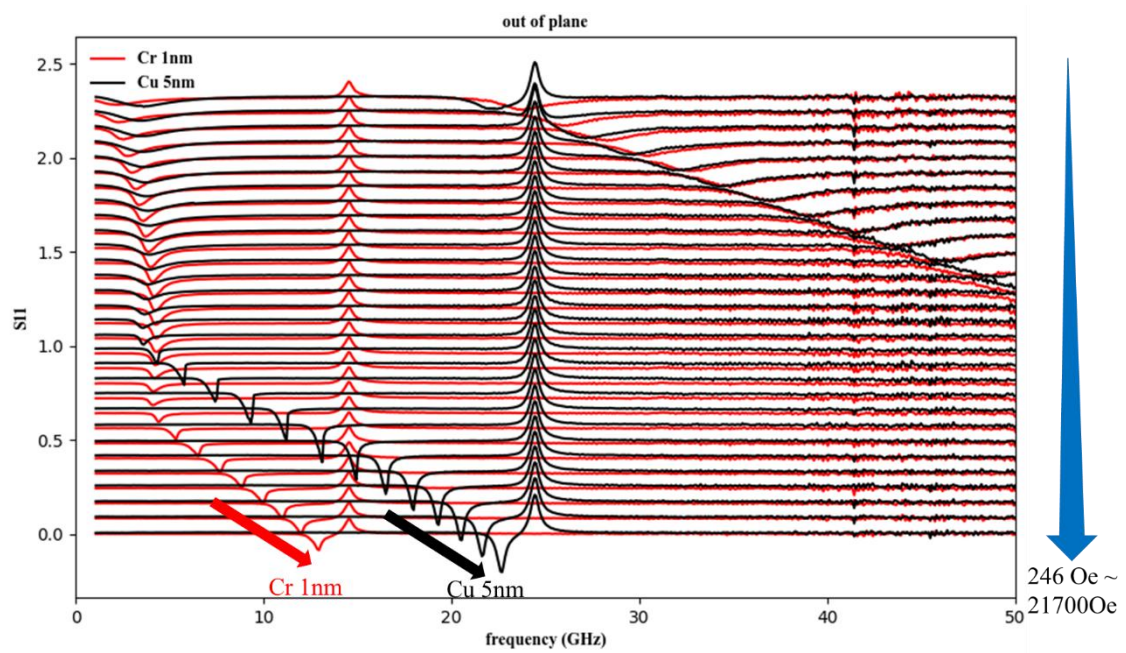


図 3. 2. 4 試料⑫と⑭に面直磁場を印加したとき VNA-FMR で測定した周波数と反射係数  $S_{11}$  の関係。

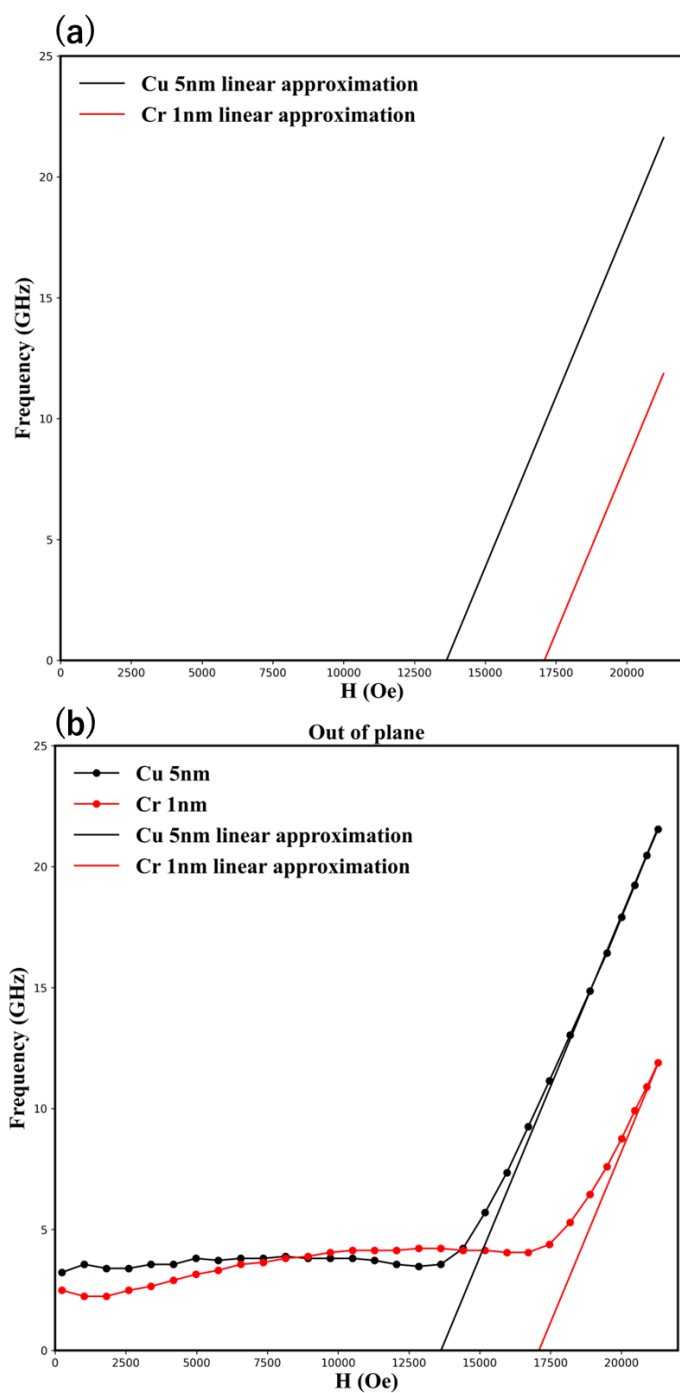


図 3. 2. 5 ⑫試料と⑭試料に面直方向の磁場を印加したときの周波数と印加磁場の関係。

(a) 非常に強い垂直磁場（200000e 以上）の磁場-周波数（H-f）曲線近似表示。(b) 実験で測定した試料⑫（黒色）と試料⑭（赤）の周波数と印加磁場の関係。直線はそれぞれ 18000 0e 以上、20000 0e 以上のデータに対する線形フィッティング結果。

表 3.2.4 SQUID および FMR 解析から算出した試料⑫と試料⑭の層間磁気結合磁場  $H_{sat,Cu} - H_{sat}$  および結合係数  $A_{12}$  と  $B_{12}$ 。FMR で測定したデータと SQUID で測定したデータがほぼ一致していることが確認できる。

|               | $H_{sat,Cu} - H_{sat} (Oe)$ | $H_{bl} (Oe)$ | $H_{bq} (Oe)$ | $A_{12} (mJ/m^2)$ | $B_{12} (mJ/m^2)$ |
|---------------|-----------------------------|---------------|---------------|-------------------|-------------------|
| Cr 1nm(SQUID) | -3699                       | -314.126      | -3384.874     | -0.065            | -0.352            |
| Cr 1nm(FMR)   | -3459.09                    | -306.265      | -3152.827     | -0.064            | -0.360            |

### 3.2.3 シミュレーションによる FMR 曲線のフィッティングからの層間 磁気結合係数算出

この節では、前述の FMR の実験から得られた飽和磁化 1080emu/cc、 $A_{12}=-0.064$ 、 $B_{12}=-0.360$  を用いて LLG 方程式によるシミュレーションを行い、FMR 周波数の垂直磁場依存性曲線に対するフィッティングを行う。前の節では、飽和磁場を線形近似の方法で求めた。この方法は、非常に強い磁場において、磁場と周波数の関係が線形になるため、線形方程式で近似できるという前提に基づいている。Spacer が Cu 5nm の試料⑫の場合、20000 0e 以上の磁場でこの条件が満たされており、実験結果とシミュレーション曲線が良好に一致している。

一方で、Spacer が Cr 1nm の場合、層間磁気結合磁場が加わることで飽和磁場がさらに増加し、20000 0e 程度の磁場ではこの線形条件が十分に満たされなくなる。これが、線形近似による誤差の一部原因となる可能性がある。そこで、以下ではフィッティングによって、より正確な層間磁気結合係数を求めることを目指す。

図 3.2.6 は、Spacer が Cu 5nm および Cr 1nm の試料⑫と試料⑭の実験曲線とシミュレーション曲線の関係を示す。

図 3.2.6 (a)図は、試料⑫の実験結果と、 $A_{12}$ および  $B_{12}$ を両方とも 0 に設定した場合のシミュレーション曲線である。この図からわかるように、Spacer が Cu 5nm の場合、実験曲線とシミュレーション曲線が良い一致を示しており、これは Cu 5nm 試料に層間磁気結合が存在しないことと矛盾しない。

図 3.2.6 (b)図では、試料⑫の実験結果と、 $A_{12}$ が $-0.064$ 、 $B_{12}$ が $-0.360$  と設定したときのシミュレーション曲線である。 $A_{12}$ と  $B_{12}$ は前の節で実験データから見積もった値である。しかし、この図からわかるように、磁場の増加につれて周波数が増加を開始する磁場が、実験曲線では 16463 0e であるのに対しシミュレーション曲線では 17208 0e と、ある程度の差が見られる。この遅れは、主に飽和磁場の見積誤差によるものと考え

られる。そこで、実験曲線にフィットするようにシミュレーションで用いる  $A_{I2}$  および  $B_{I2}$  を変化させた。ここで、 $A_{I2}$  の数値は小さいため、飽和磁場に対する影響はあまり大きくないと考え、ここでは  $B_{I2}$  のみを変化させて実験結果と一致するように最適化した。図 3.2.7 は、 $B_{I2}$  を最適化した後のシミュレーション曲線と実験曲線である。このときの  $B_{I2}$  の値は -0.327 であり、前の節で求めた -0.360 より絶対値が 4.8 %ほど小さくなった。

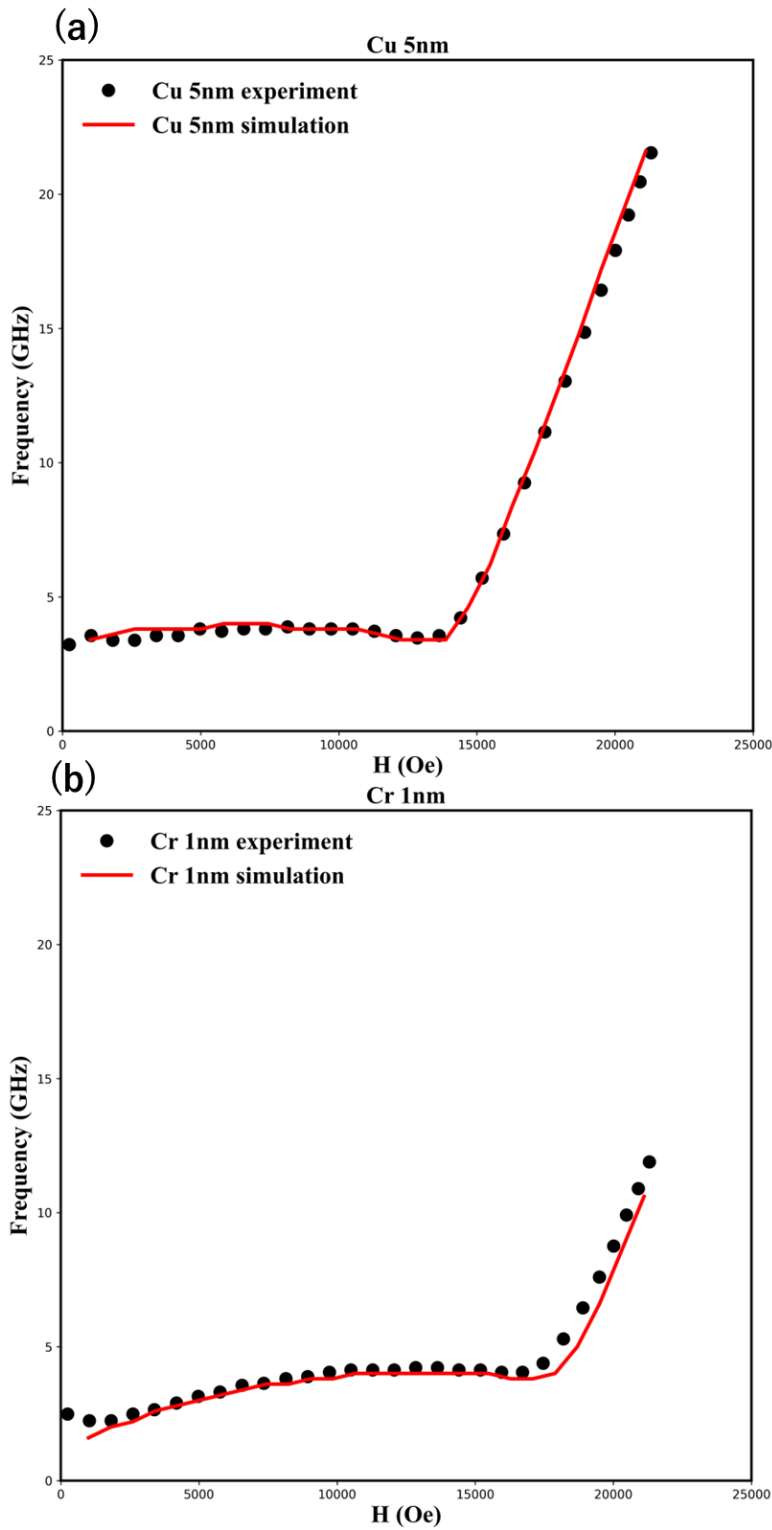


図 3. 2. 6 Spacer が Cu 5nm (試料⑫) (a)および Cr 1nm (試料⑭) (b)の実験曲線とシミュレーション曲線の関係。黒い点は実験結果、赤い線はシミュレーション曲線。

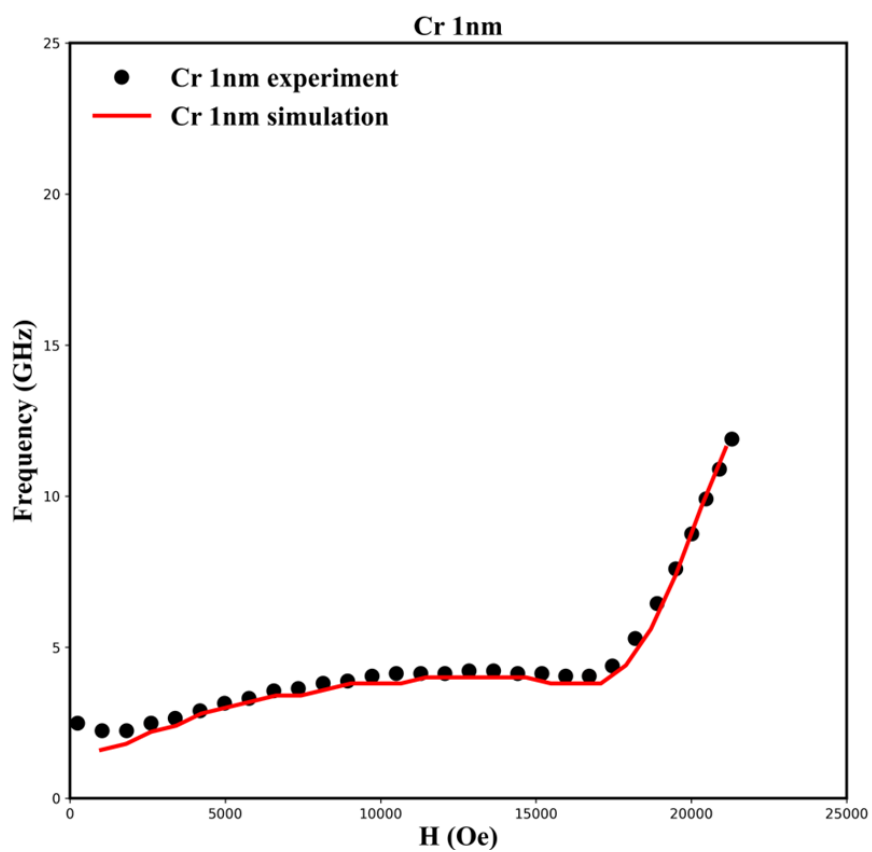


図 3.2.7 Cr 1nm の場合、 $B_{12}$ を微調整した後のシミュレーション曲線と実験曲線の比較を示しており、両者が良好に一致していることがわかる。

### 3.3 磁化オルソゴナル構造における層間磁気結合のまとめ

以上のように、3通りの方法で  $A_{12}$  および  $B_{12}$  を見積もった。結果を表 3.2.5 示す。3通りの方法による結果を比べると、その差は5%以内に収まっている。また、面内磁化膜で報告されている値の範囲内にあることから、妥当な値と考えられる。

以上、本章では磁化オルソゴナル構造において層間磁気結合が存在することを実証し、とりわけ磁化を $\pm 90$ 度に向かせる Biquadratic 結合を検出する事に成功した。さらに Spacer が Cr 1nm の場合の  $A_{12}$  および  $B_{12}$  の数値をより正確に求めることができた。

表 3.2.5 SQUID、FMR、Simulation で Cu 5nm の試料⑫と Cr 1nm の試料⑭の  $A_{12}$  および

$B_{12}$

|                          | SQUID  | FMR    | Simulation |
|--------------------------|--------|--------|------------|
| $A_{12} (\text{mJ/m}^2)$ | -0.065 | -0.064 | -0.064     |
| $B_{12} (\text{mJ/m}^2)$ | -0.352 | -0.360 | -0.327     |

## 第四章 LLG マイクロマグネティックシミュレーション

本章では、面内磁化膜 Top 層／Spacer 層／垂直磁化膜 Bottom 層からなるオルソゴナル構造において、その Spacer 層に Bilinear 結合と Biquadratic 結合を導入する事に依る Top 層の磁気構造と動的特性を、LLG マイクロマグネティックシミュレーションによって評価した。オルソゴナル構造を選択する理由は、第一章で述べたように、オルソゴナル構造では自由層である面内磁化膜の磁化が発振する際、その反磁場と層間磁気結合による有効磁場が同じ方向を向いているため、総計のバイアス磁場が強化されたためである。これにより実現可能な層間磁気結合の範囲内で周波数の効果的な向上が期待される。

4.1 で計算原理、計算条件や計算モデルについて説明する。4.2 では Bilinear 結合および Biquadratic 結合において重要なパラメーターである Bilinear 結合係数および Biquadratic 結合係数  $B_2$  用いて、シミュレーションにおける Bottom 層と Top 層の静的な磁化状態を計算し説明する。4.3 では、電流を流した場合の Bottom 層と Top 層の磁化状態および STO の発振周波数、振幅および初期状態に依存する立ち上がる時間などを議論する。

### 4.1 シミュレーションの基本事項

#### 4.1.1 LLG 方程式の解法

Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式 (LLG 方程式) は、2.1 で述べたように、磁場中における原子磁気モーメントの運動を記述する微分方程式である。LLG 方程式を解くことにより、強磁性体内の磁化状態の変化を求めることができる。LLG 方程式は次の式で表される。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}) - \frac{\alpha}{M} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) \quad (4.1.1)$$

ここで、 $\mathbf{M}$ は磁化、 $\mathbf{H}$ は実効磁場、 $\gamma$ は磁気回転比、 $\alpha$ はダンピング定数、 $M$ は磁化 $\mathbf{M}$ の大きさである。ここで、 $\mathbf{M}$ の単位ベクトルを $\mathbf{m}$ とし、 $\mathbf{M} = M\mathbf{m}$ と置き換え、LLG 方程式を再掲する。

$$M \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma M (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \frac{\alpha}{M} M^2 \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (4.1.2)$$

$M$ を削除して、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \alpha \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (4.1.3)$$

まずは、 $\mathbf{m}$ と $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ はお互いに垂直していることを証明して、

$$\mathbf{m} \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} = \mathbf{m} \cdot \left( -\gamma (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \alpha \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \right) = 0 \quad (4.1.4)$$

次に、式(4.1.3)の両辺に $\times \mathbf{m}$ の作用をして、

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = \mathbf{m} \times \left( -\gamma (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \alpha \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \right) \quad (4.1.5)$$

両辺に同時に $\alpha$ かけると、

$$\alpha \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) = -\alpha\gamma \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) + \alpha^2 \mathbf{m} \times \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (4.1.6)$$

さらに式 4.1.3 を足し合わせると、

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma (\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H})) + \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (4.1.7)$$

式(4.1.6)を式(4.1.3)に導入すると、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma(\mathbf{m} \times \mathbf{H}) - \alpha \left( -\gamma(\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H})) + \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (4.1.8)$$

図 4.1.1 において、 $(\mathbf{m} \times \mathbf{H})$ と $\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H})$ と $\mathbf{H}$ をそれぞれ、緑、青、オレンジ色の矢印で示す。 $\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H})$ と、そこから  $z$  方向に  $H$ だけ延ばした $\mathbf{H}$ と、この $\mathbf{H}$ と交わるまで延ばした $\mathbf{m}$ の延長ベクトルで出来る直角三角形を考えると、 $\mathbf{m}$ の延長ベクトルは $(\mathbf{m} \cdot \mathbf{H})\mathbf{m}$ であることが分かる。以上より、 $\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H})$ のベクトル表示は $(\mathbf{m} \cdot \mathbf{H})\mathbf{m} - \mathbf{H}$ である。

$\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ を左辺に移動して、整理すると、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2} \left( (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) + \alpha((\mathbf{m} \cdot \mathbf{H})\mathbf{m} - \mathbf{H}) \right) \quad (4.1.9)$$

と変形できる。ここで、 $c = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2}$ 、 $d = \mathbf{m} \cdot \mathbf{H} = m_x H_x + m_y H_y + m_z H_z$ とおくと、

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = c \left( (\mathbf{m} \times \mathbf{H}) + \alpha(d\mathbf{m} - \mathbf{H}) \right) \quad (4.1.10)$$

が得られる。したがって、式 4.1.8 を各成分で表すと

$$\frac{dm_x}{dt} = c \left( (m_y H_z - m_z H_y) + \alpha(dm_x - H_x) \right) \quad (4.1.11)$$

$$\frac{dm_y}{dt} = c \left( (m_z H_x - m_x H_z) + \alpha(dm_y - H_y) \right) \quad (4.1.12)$$

$$\frac{dm_z}{dt} = c \left( (m_x H_y - m_y H_x) + \alpha(dm_z - H_z) \right) \quad (4.1.13)$$

となる。

常微分方程式を解く方法として Euler 法と Runge-Kutta-Gill 法がある。Euler 法は、微分方程式  $\frac{dy(t)}{dt} = f(t, y)$  と初期値  $y(t_0) = y_0$  が与えられたとき、

$$\begin{cases} y(t_0) = y_0 \\ y(t + \Delta t) = y(t) + f(t, y)\Delta t \end{cases} \quad (4.1.14)$$

を用いて漸化的に  $y(t)$  を求める方法である。

一方、Runge-Kutta-Gill 法は、Euler 法と同様に微分方程式  $\frac{dy(t)}{dt} = f(t, y)$  と初期値  $y(t_0) = y_0$  が与えられたとき、

$$\begin{cases} y(t_0) = y_0 \\ y(t + \Delta t) = y(t) + \frac{1}{6}k_1 + \frac{1}{3}\left(1 - \frac{1}{\sqrt{2}}\right)k_2 + \frac{1}{3}\left(1 + \frac{1}{\sqrt{2}}\right)k_3 + \frac{1}{6}k_4 + O(\Delta t^5) \end{cases} \quad (4.1.15)$$

を用いて漸化的に  $y(t)$  を求める方法である。ここで、 $k_1$ - $k_4$  はそれぞれ

$$k_1 = \Delta t \cdot f(t, y(t)) \quad (4.1.16)$$

$$k_2 = \Delta t \cdot f\left(t + \frac{\Delta t}{2}, y(t) + \frac{k_1}{2}\right) \quad (4.1.17)$$

$$k_3 = \Delta t \cdot f\left(t + \frac{\Delta t}{2}, y(t) + \left(-\frac{1}{2} + \frac{1}{\sqrt{2}}\right)k_1 + \left(1 - \frac{1}{\sqrt{2}}\right)k_2\right) \quad (4.1.18)$$

$$k_4 = \Delta t \cdot f\left(t + \frac{\Delta t}{2}, y(t) - \frac{1}{\sqrt{2}}k_2 + \left(1 + \frac{1}{\sqrt{2}}\right)k_3\right) \quad (4.1.19)$$

である。4 次の Runge-Kutta-Gill 法は、打ち切りの誤差のオーダーが  $\Delta t^5$  となり精度が高い。本研究では式(4.1.9)-(4.1.11)を解くために Runge-Kutta-Gill 法を用い、 $k_1$ - $k_4$  の計算においては Euler 法を用いた。

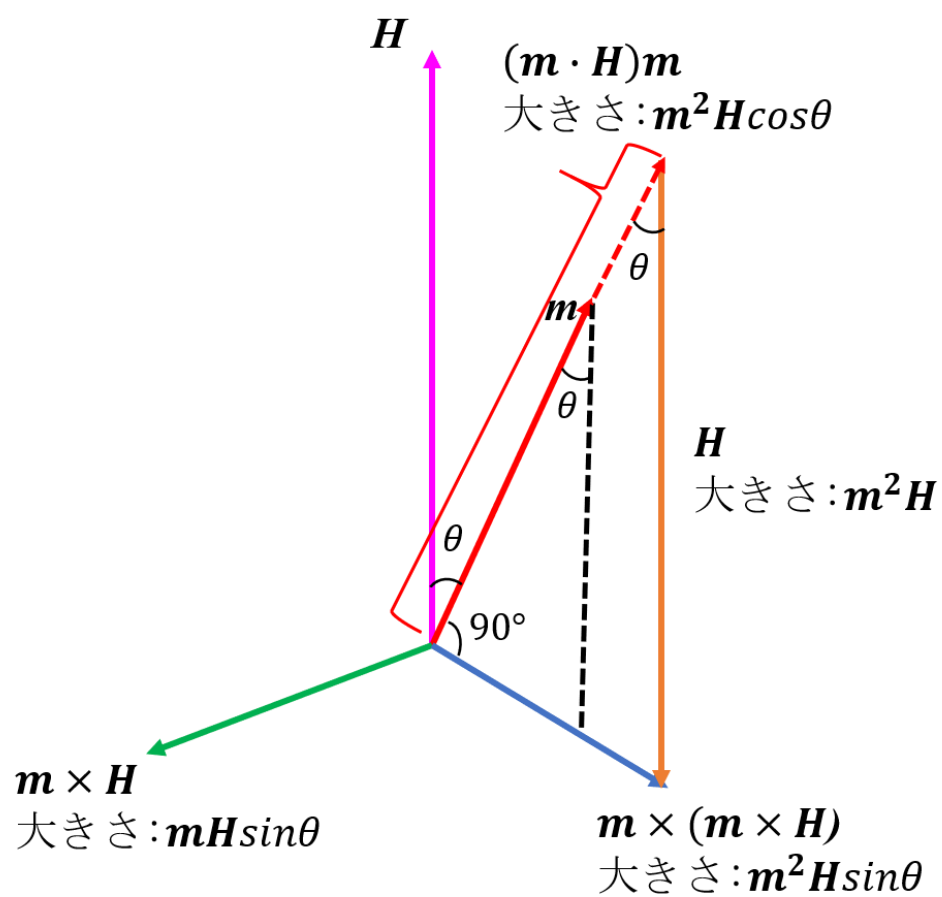


図 4.1.1 外積からベクトル表示に変換する説明図

#### 4.1.2 実効磁場

磁性体の磁気モーメントには様々な磁気エネルギーが存在しており、本研究においては結晶磁気異方性エネルギー、交換結合エネルギー、静磁エネルギー、ゼーマンエネルギー、層間磁気結合エネルギーを考慮している。これらのエネルギーを磁場に換算することにより、原子磁気モーメントに加わる磁場の効果として考えることができる。このように、実効的に原子磁気モーメントに加わる磁場のことを実効磁場という。

本研究における実効磁場は、以下の式に示す。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_{\text{ani}} + \mathbf{H}_{\text{ex}} + \mathbf{H}_{\text{app}} + \mathbf{H}_{\text{d}} + \mathbf{H}_{\text{bl}} + \mathbf{H}_{\text{bq}} \quad (4.1.19)$$

ここで、 $\mathbf{H}_{\text{ani}}$ は結晶磁気異方性磁場、 $\mathbf{H}_{\text{ex}}$ は交換結合磁場、 $\mathbf{H}_{\text{app}}$ は外部の印加磁場、 $\mathbf{H}_{\text{d}}$ は反磁場、 $\mathbf{H}_{\text{bl}}$ はBilinear 結合磁場、 $\mathbf{H}_{\text{bq}}$ はBiquadratic 結合磁場である。 $\mathbf{H}_{\text{bl}}$ と $\mathbf{H}_{\text{bq}}$ が層間磁気結合を示す本テーマに特有の磁場である。

結晶磁気異方性エネルギーは、磁化が特定の結晶軸に向こうとする内部エネルギーである。ここで一軸異方性を持つ磁性材料の場合を考え、単位体積あたりの結晶磁気異方性エネルギー $E_{\text{ani}}$ は次の式で表される。

$$E_{\text{ani}} = -K_u(\mathbf{a} \cdot \mathbf{m})^2 \quad (4.1.20)$$

ここで、 $K_u$ は結晶磁気異方性定数、 $\mathbf{a}$ は磁化容易軸方向の単位ベクトル、 $\mathbf{m}$ は磁化単位ベクトルである。そして、これを偏微分することで

$$\mathbf{H}_{\text{ani}} = -\frac{\partial E_{\text{ani}}}{\partial \mathbf{M}} = -\frac{1}{M_s} \frac{\partial E_{\text{ani}}}{\partial \mathbf{m}} \quad (4.1.21)$$

となり、結晶磁気異方性磁場 $\mathbf{H}_{\text{ani}}$ が得られる。ここで、 $M_s$ は飽和磁化である。

交換結合エネルギーは、隣接する原子磁気モーメント間で働くエネルギーであり、交換相互作用が強くなると隣接原子間の磁化方向が揃いやすくなる。交換結合エネルギー $E_{\text{ex}}$ は次の式で表される。

$$E_{\text{ex}} = A(\nabla \mathbf{m})^2 \quad (4.1.22)$$

ここで、 $A$ は交換結合定数である。これを偏微分することにより、

$$\mathbf{H}_{\text{ex}} = -\frac{\partial E_{\text{ani}}}{\partial \mathbf{M}} = -\frac{1}{M_s} \frac{\partial E_{\text{ex}}}{\partial \mathbf{m}} \quad (4.1.23)$$

となり、交換結合磁場 $\mathbf{H}_{\text{ex}}$ が得られる。

ゼーマンエネルギーは、外部から印加される磁場 $\mathbf{H}_{\text{app}}$ によるエネルギーである。

静磁エネルギーは、磁性材料内の磁化における、静磁的相互作用のエネルギーである。

静磁エネルギー $E_{\text{st}}$ は次の式で表される。

$$E_{\text{st}} = -\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{d}} \quad (4.1.24)$$

ここで、 $\mathbf{H}_{\text{d}}$ は反磁場である。

Bilinear 結合磁場  $\mathbf{H}_{\text{bl}}$ と Biquadratic 結合磁場 $\mathbf{H}_{\text{bq}}$ は、層間磁気結合エネルギーである Bilinear 結合エネルギーと Biquadratic 結合エネルギーをそれぞれ磁場に換算したものである。層間磁気結合エネルギーは、Bilinear 結合係数  $A_{12}$ と Biquadratic 結合係数  $B_{12}$ を用いて次の式で表される。

$$\begin{aligned}
E_{int} &= E_{bl} + E_{bq} \\
&= -A_{12}m_i \cdot m_j - B_{12}(m_i \cdot m_j)^2
\end{aligned} \tag{4.1.25}$$

2 層の強磁性層をそれぞれ  $i$ 、 $j$  とし、強磁性層  $i$  にかかる Bilinear 結合磁場と Biquadratic 結合磁場をそれぞれ  $\mathbf{H}_{bl,i}$ 、 $\mathbf{H}_{bq,i}$ 、強磁性層  $j$  にかかる Bilinear 結合磁場と Biquadratic 結合磁場をそれぞれ  $\mathbf{H}_{bl,i}$ 、 $\mathbf{H}_{bq,i}$  とする。このとき、 $\mathbf{H}_{bl,i}$ 、 $\mathbf{H}_{bq,i}$  はそれぞれ式(4.1.25)、式(4.1.26)で表される。

$$\mathbf{H}_{bl,i} = -\frac{1}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} E_{bl} \tag{4.1.26}$$

$$\mathbf{H}_{bl,i} = -\frac{1}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} E_{bq} \tag{4.1.27}$$

式 4.1.24 の  $E_{bl}$  と  $E_{bq}$  を式 4.1.26 と式 4.1.27 に導入すれば、

$$\mathbf{H}_{bl,i} = \frac{A_{12}}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} m_i \cdot m_j \tag{4.1.28}$$

$$\mathbf{H}_{bq,i} = \frac{B_{12}}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} (m_i \cdot m_j)^2 \tag{4.1.29}$$

ここで、 $m_i$  と  $m_j$  はベクトルとして、 $m_{i,x} + m_{i,y} + m_{i,z}$  と  $m_{j,x} + m_{j,y} + m_{j,z}$  にすれば、

$$\mathbf{H}_{\text{bl},i} = \frac{A_{12}}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} (m_{i,x}m_{j,x} + m_{i,y}m_{j,y} + m_{i,z}m_{j,z}) \quad (4.1.30)$$

$$\mathbf{H}_{\text{bq},i} = \frac{B_{12}}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} (m_{i,x}m_{j,x} + m_{i,y}m_{j,y} + m_{i,z}m_{j,z})^2 \quad (4.1.31)$$

式 4. 1. 30 と式 4. 1. 31 を簡略化すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\text{bl},i} &= \frac{A_{12}}{M_{s,i}d_i} (m_{j,x} + m_{j,y} + m_{j,z}) \\ &= \frac{A_{12}}{M_{s,i}d_i} m_j \end{aligned} \quad (4.1.32)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\text{bq},i} &= \frac{B_{12}}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} \frac{1}{\partial m_{i,x}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,y}} \\ \frac{1}{\partial m_{i,z}} \end{pmatrix} \left[ (m_{i,x}m_{j,x})^2 + m_{i,x}m_{j,x}(m_{i,y}m_{j,y} + m_{i,z}m_{j,z}) \right] \\ &\quad + \left[ (m_{i,y}m_{j,y})^2 + m_{i,y}m_{j,y}(m_{i,x}m_{j,x} + m_{i,z}m_{j,z}) \right] \\ &\quad + \left[ (m_{i,z}m_{j,z})^2 + m_{i,z}m_{j,z}(m_{i,x}m_{j,x} + m_{i,y}m_{j,y}) \right] \\ &= \frac{2B_{12}}{M_{s,i}d_i} \begin{pmatrix} m_{i,x}m_{j,x}^2 + m_{j,x}(m_{i,y}m_{j,y} + m_{i,z}m_{j,z}) \\ m_{i,y}m_{j,y}^2 + m_{j,y}(m_{i,x}m_{j,x} + m_{i,z}m_{j,z}) \\ m_{i,z}m_{j,z}^2 + m_{j,z}(m_{i,x}m_{j,x} + m_{i,y}m_{j,y}) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.1.33)$$

ここで、 $d_i$ 、 $A_{i2}$ 、 $B_{i2}$ はそれぞれ強磁性層  $i$  の膜厚、Bilinear 結合係数、Biquadratic 結合係数である。また、 $\mathbf{H}_{\text{bl},i}$ 、 $\mathbf{H}_{\text{bq},i}$ は、式(4.1.32)、(4.1.33)において  $i$  と  $j$  を入れ替えた式となる。

### 4.1.3 シミュレーションモデル

LLG マイクロマグネティックシミュレーションでは、素子の形状をピラーとして計算を行う。図 4.1.2 に本研究におけるシミュレーションモデルを示す。本モデルでは 3 層構造を考えており、下から強磁性体である Bottom 層、非磁性体である Spacer 層、強磁性体である Top 層である。Bottom 層と Top 層における Spacer 層を介して Biquadratic 磁気結合を入れる。Bottom 層は、強い垂直磁気異方性により磁化が+z 方向にほぼ固定されている。ここでは、FePt を選択した。Top 層は、面内磁気異方性を持つ強磁性体である。ここでは、飽和磁化が異なる 3 種類の強磁性体、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> と Ni を選択した。セルのサイズは 5nm × 5nm × 2nm とした。毎層セルの数は面内に 64×64 とした。また、使用した各材料の物性値および計算条件を表 4.1.1 に示す[97, 118-121]。

マイクロマグネティックシミュレーションは、有限差分法を用いてマイクロマグネティック問題を解くために設計された Python ライブラリである magnum.np を使用して、LLG 方程式を解くことで実行された。このライブラリは PyTorch に基づいており、GPU および CPU の両方で効率的な計算が可能である[122]。

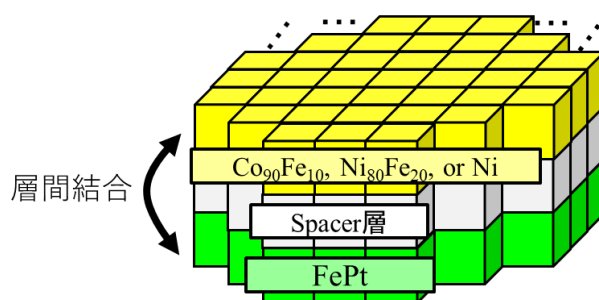


図 4.1.2 シミュレーションモデル

表 4.1.1 各種材料の物性値と計算条件

|                |       |                                                 |                                |        |
|----------------|-------|-------------------------------------------------|--------------------------------|--------|
| 交換結合定数 $A$     |       | $1 \times 10^{-6} \text{erg/cm}$                |                                |        |
| 磁気回転比          |       | $1.76 \times 10^7 \text{Oe}^{-1} \text{s}^{-1}$ |                                |        |
| 計算ステップ $dt$    |       | $1 \times 10^{-14} \text{s}$                    |                                |        |
|                | FePt  | $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$                  | $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ | Ni     |
| $H_k$ (Oe)     | 15000 | 35                                              | 2                              | 2      |
| $\alpha$       | 0.1   | 0.035                                           | 0.008                          | 0.0088 |
| $M_s$ (emu/cc) | 800   | 1450                                            | 825                            | 4.10   |

#### 4.1.4 層間磁気結合を有するオルソゴナル磁気構造

4.1.3 で述べるように、オルソゴナル構造は Bottom 層/Spacer/Top 層の 3 層構造において、Bottom 層が垂直磁気異方性を持ち、Top 層が面内磁気異方性を持つ。オルソゴナル構造において、Top 層の磁化が発振する際、その反磁場と層間磁気結合の磁場が同じ方向を向いているため、層間磁気結合の影響が大幅に強化される。これにより、合理的な層間磁気結合係数の範囲内で周波数の効果的な向上が期待される。ここでは、更に有効磁場が ST0 に与える影響について整理する。

オルソゴナル構造に電流を流すと、磁化発振の場合、Top 層の磁化は  $z$  軸の周りを回転するため、Top 層にかかる有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  は式 4.1.19 で表される。

初めに層間磁気結合が無い場合を考える。すると、 $\mathbf{H}_{\text{exf}}$ 、 $\mathbf{H}_{\text{bl}}$  と  $\mathbf{H}_{\text{bq}}$  はゼロとなり、さらに  $\mathbf{H}_{\text{k}}$  と  $\mathbf{H}_{\text{ex}}$  が相対的に小さいことを考えると、有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  の中で支配的な磁場は反磁場  $\mathbf{H}_{\text{d}}$  となる (図 4.1.3)。反磁場  $\mathbf{H}_{\text{d}}$  は膜面垂直方向であり、Top 層の磁化が STT によって向く方向とは逆であるため、ST0 を抑制する方向となる。しかしながら、オルソゴナル構造において、式 4.1.32 と式 4.1.33 は以下の式になる。

$$\mathbf{H}_{\text{bl,top}} = \frac{A_{12}}{M_{s,\text{top}}d_{\text{top}}} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ m_{z,\text{bottom}} \end{pmatrix} \quad (4.1.34)$$

$$\mathbf{H}_{\text{bq,top}} = \frac{2B_{12}}{M_{s,\text{top}}d_{\text{top}}} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ m_{z,\text{top}} \end{pmatrix} \quad (4.1.35)$$

つまり、図 4.1.4 に示すように、反磁場と層間磁気結合の  $\mathbf{H}_{\text{bl}}$  および  $\mathbf{H}_{\text{bq}}$  は同じ方向を向いている (ただし、 $A_{12} > 0$  場合に限り逆方向になるが、Spacer の膜厚を調整することで  $A_{12}$  を変えることができる)。これにより、層間磁気結合の影響が大幅に強化され、

磁化振動の周波数が向上する。

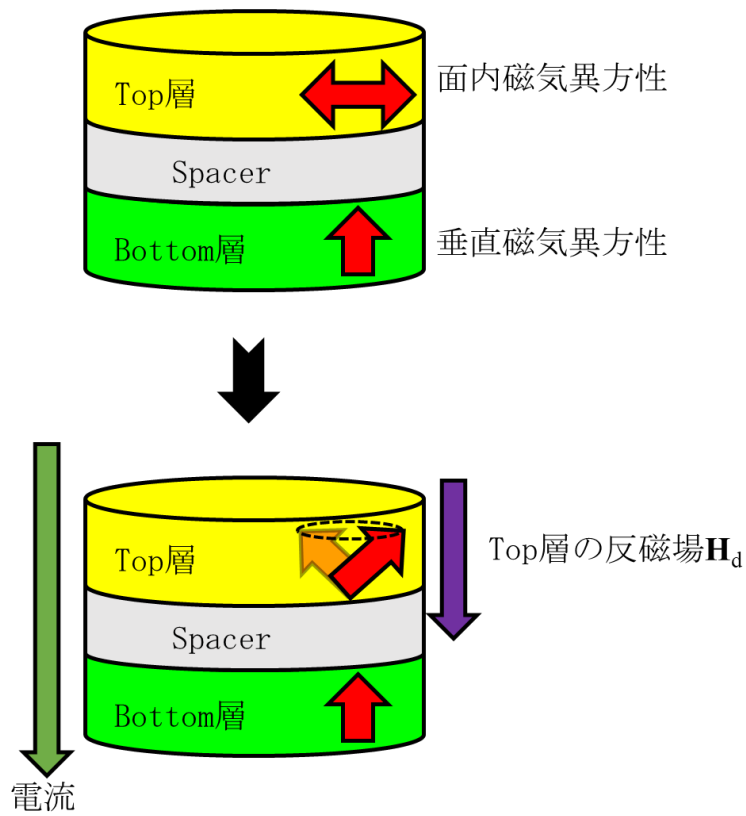


図 4. 1. 3 オルソゴナル構造と発振する時の磁化と磁場方向

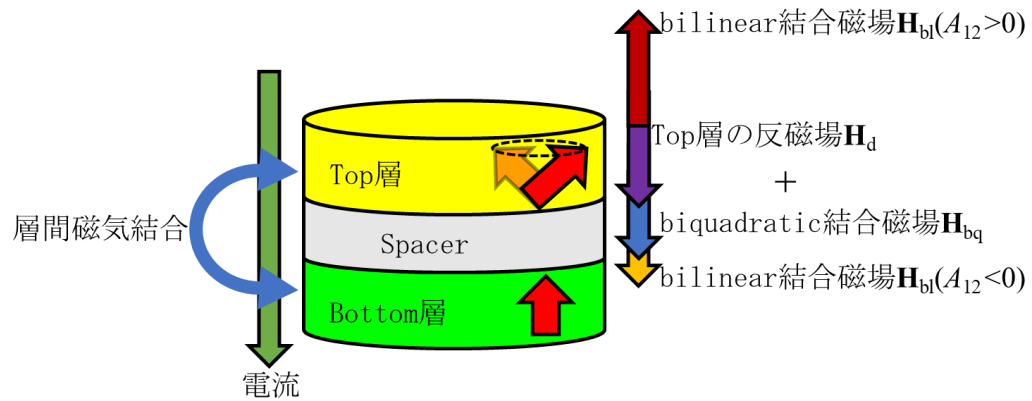


図 4. 1. 4 層間磁気結合を有するオルソゴナル構造

## 4.2 初期磁化状態の設定と緩和後静的な磁化状態

前節で述べた Top 層の初期磁化状態を以下の 3 条件とする。

条件 I: Bilinear 結合係数  $A_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup>

条件 II: Bilinear 結合係数  $A_{12}=-1.2$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup>

条件 III: Bilinear 結合係数  $A_{12}=$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup>

4.2.1 で条件 I と条件 II を比較し、Bilinear 結合係数  $A_{12}$  の磁気緩和への影響を調べる。4.2.2 で条件 I と条件 III を比較し、Biquadratic 結合係数  $B_{12}$  の磁気緩和への影響を調べる。いずれの場合も Top 層の初期磁化をすべて+y 方向とし、各種磁性材料における磁気構造を観察する。緩和条件を  $dE < 10^{-6}J$  とした。なお、全ての場合において Bottom 層の初期状態における磁化は+z 方向とした。サンプルのセルの数は  $64 \times 64 \times 3$ 、セルサイズは  $5 \text{ nm} \times 5 \text{ nm} \times 2 \text{ nm}$  とした。

### 4.2.1 Bilinear 結合の静的磁気構造への影響

条件 I における緩和後の計算結果を図 4.2.1 に示す。図 4.2.1 (a)–(c) は Top 層の磁化を上から見た平面図、(d)–(f) は Bottom 層の磁化を上から見た平面図である。ここで、(a) と (d) は Ni の磁気構造、(b) と (e) は Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> の磁気構造、(c) と (f) は Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の磁気構造である。図中の  $x$  軸と  $y$  軸はそれぞれ  $x$  軸および  $y$  軸方向のセルの数を表し、右側のカラーバーは  $z$  軸方向の磁化成分に対応している。図から分かるように、Bilinear 結合がない場合、Top 層の磁化方向は主に面内に向き、Bottom 層の磁化方向は面内に対して垂直になり、安定したオルソゴナル構造を形成している。

一方、図 4.2.2 は条件 II における磁気緩和後であり、(a)–(c) は Top 層の磁化を上から、(d)–(f) は Bottom 層の磁化を上から見た磁気緩和後の平面図である。図から、材料

の $M_s$ が増加すると、Top 層と Bottom 層の磁化が面直の反平行状態から面内の反平行状態に移行することがわかる。これは $H_{bl}$ の方程式から説明できる。

$$\mathbf{H}_{bl,top} = \frac{A_{12}}{M_{s,top}d_{top}}m_{bottom} \quad (4.2.1)$$

$$\mathbf{H}_{bl,bottom} = \frac{A_{12}}{M_{s,bottom}d_{bottom}}m_{top} \quad (4.2.2)$$

式(4.2.1)により、 $M_{s,top}$ が小さいとき、Top 層の磁化は面内に垂直な下向きの $\mathbf{H}_{bl,top}$ が大きい。このとき、 $m_{top}$ は基本的に $z$ 軸に沿っており、式(4.2.2)により、Bottom 層が受ける $\mathbf{H}_{bl,bottom}$ の方向も $z$ 軸になる。この場合、Bottom 層の有効磁場は面内に垂直な方向になるため、 $M_s$ が小さいときは、Top 層と Bottom 層の磁化が面内に垂直な反平行状態であるときにエネルギーが最も低くなる。

一方、 $M_s$ が大きいときは、Top 層の磁化が受ける面に垂直な下向きの $\mathbf{H}_{bl,top}$ が小さい。このとき、 $m_i$ は基本的に面内方向になる。したがって、Bottom 層が受ける $\mathbf{H}_{bl,bottom}$ の方向も面内になる。面内磁場の影響を受けるため、Bottom 層の磁化方向は面内に傾き、 $M_s$ が大きいときは、Top 層と Bottom 層の磁化が面内の反平行状態であるときにエネルギーが最も低くなる。

条件 I と条件 II の比較より、条件 I では、Top 層と Bottom 層が緩和後の静的磁気構造はオルソゴナル構造を維持できるが、条件 II では、飽和磁化が増加するにつれて、Top 層と Bottom 層が緩和後の静的磁気構造は、面直方向での互いに反平行な状態から面内方向での互いに反平行な状態へ移行するという事が分かった。

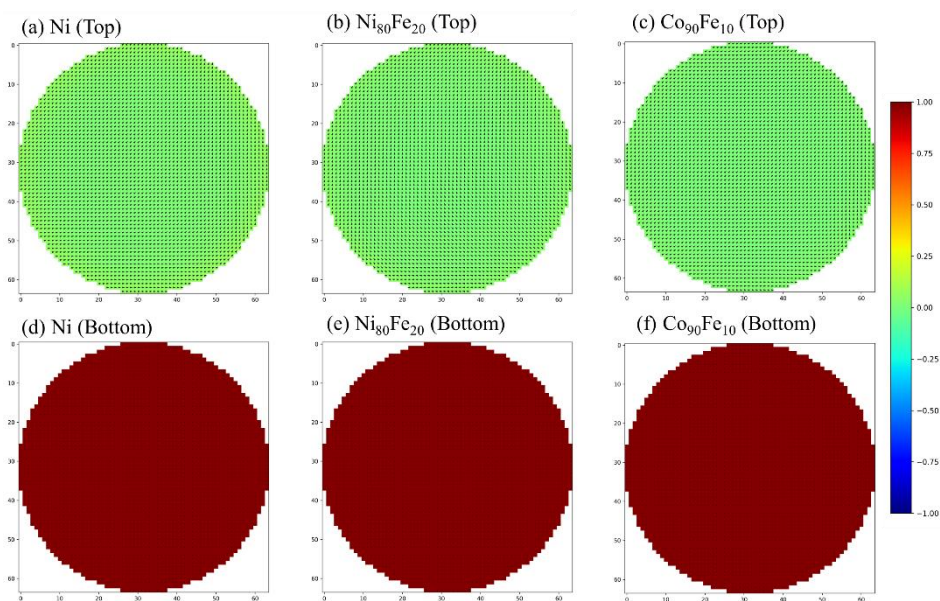


図 4.2.1 条件 I (Bilinear 結合係数  $A_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup>)

における Top 層を上から見た磁化平面図(a)-(c)と Bottom 層を上から見た平面図(e)-(f)。

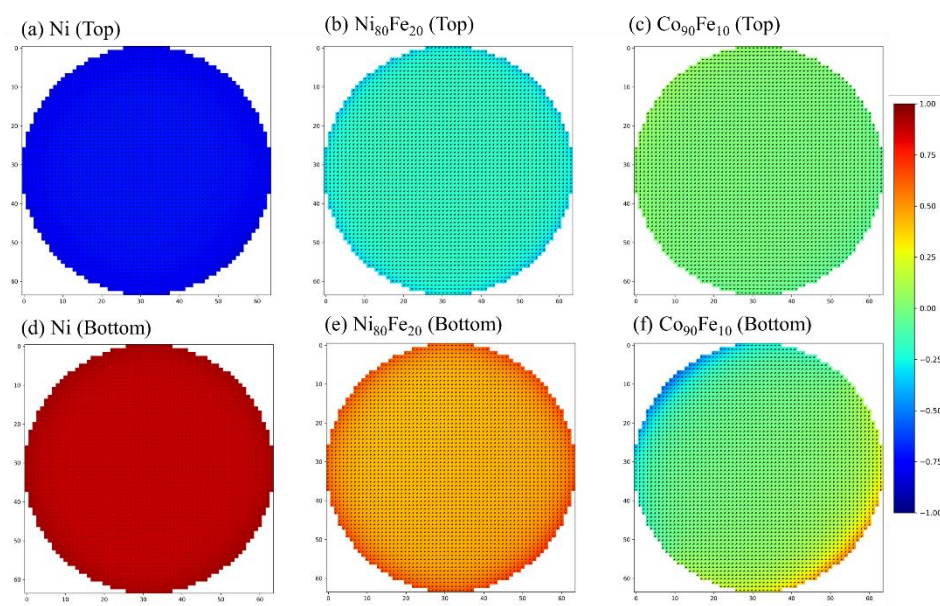


図 4.2.2 条件 II (Bilinear 結合係数  $A_{12}=-1.2$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12}=0$

mJ/m ) における Top 層を上から見た磁化平面図(a)-(c)と Bottom 層を上から見た磁化平面図(e)-(f)。

#### 4.2.2 Biquadratic 結合の静的磁気構造への影響

本項では、条件 III における緩和後の磁気構造計算結果を図 4.2.3 に示す。図 4.2.3 (a)–(c) は、Top 層の磁化を上から見た平面図、(d)–(f) は Bottom 層の磁化を上から見た平面図である。ここで、(a) と (d) は Ni の磁気構造、(b) と (e) は  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  の磁気構造、(c) と (f) は  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の磁気構造である。図から、すべての材料がオルソゴナル構造を維持していることがわかる。これは、Biquadratic 結合が Top 層と Bottom 層の磁化を 90 度に配列させる傾向があるためである。そして、二つ磁性層の異方性エネルギーは両層の磁化が 90 度になるため、この状態でエネルギーが最も低くなる。

条件 I と条件 III の比較より、条件 I でも条件 III でも、Top 層と Bottom 層が緩和後の静的磁気構造はオルソゴナル構造を維持することができるという事が分かった。

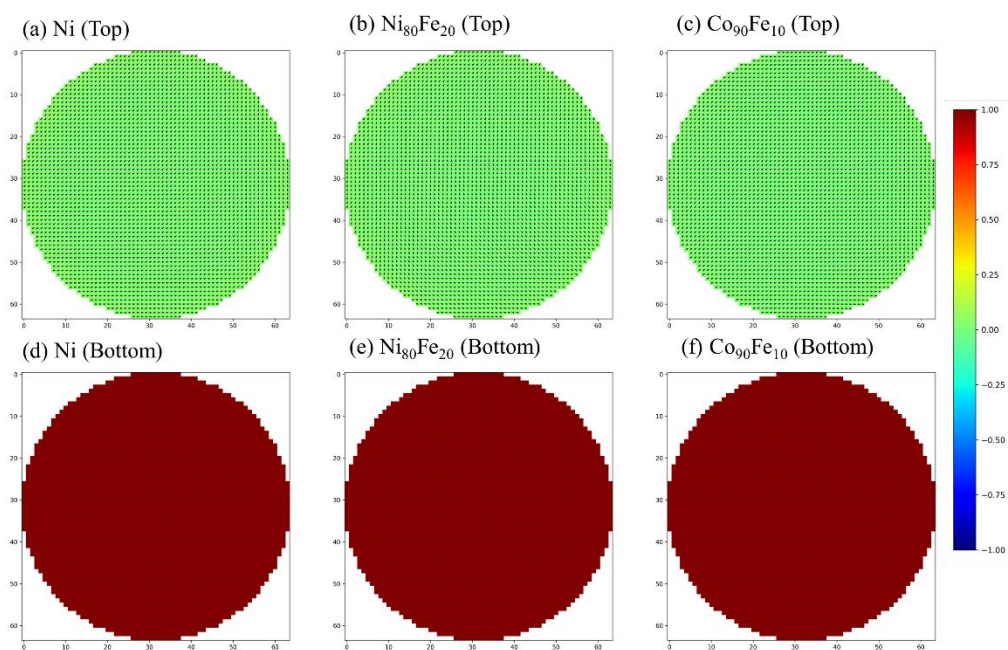


図 4.2.3 Biquadratic 結合がある場合、Top 層と Bottom 層の磁化の平面図である。

(a)–(c)は Top 層を上から見た平面図。(e)–(f)は Top 層を上から見た平面図。

### 4.3 層間磁気結合応じた磁気緩和状態に起因した磁化発振状態の違い

本節では、4.2 で計算した層間磁気結合によって異なる緩和後の静的な磁気構造に対し、膜面垂直電流をナノピラーに導入し、Ni、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>、または Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> からなる Top 層の発振状態を計算し、その計算結果を評価する。

ここでは、スピントランスファートルク (STT) の効果を考察するので、磁性薄膜層に垂直に電流を流して得られるスピントランスファートルク (STT) の項  $\tau_{STT}$  を LLG 方程式に加える。

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2}(\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \frac{\gamma\alpha}{1+\alpha^2}\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \tau_{STT} \quad (4.3.1)$$

$\tau_{STT}$  の表現については、ここでは Slonczewski 表現を使用する。式は以下に示す。

$$\tau_{STT} = -\frac{\gamma_0 \hbar}{\mu_0 M_s^2} \frac{1}{d_i} \frac{J}{e} g(\theta) (\mathbf{m} \times (\mathbf{m}_p \times \mathbf{m})) \quad (4.3.2)$$

ここで、 $\gamma_0 = \mu_0 \frac{g\mu_B}{\hbar}$ 、 $J$  は電流密度、 $M_s$  は Top 層の飽和磁化、 $d_i$  は Top 層の膜厚である。 $g(\theta)$  は STT の効率係数で、これはスカラー関数であり、電子のスピンの極率  $P$  や角度  $\theta$  に依存する。ここで、 $\theta$  は Top 層の磁化  $\mathbf{m}$  と Bottom 層の磁化  $\mathbf{m}_p$  との間の角度を表す。スピバルブが対称構造の場合、 $g(\theta)$  の式は次のようになる：

$$g(\theta) = \frac{\Lambda P}{4 \left( \Lambda \cos^2 \left( \frac{\theta}{2} \right) + \Lambda^{-1} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right) \right)} \quad (4.3.3)$$

ここで、 $\Lambda = 1 + \chi_a$  は構造の対称性を表す係数、 $\chi_a$  は GMR の非対称パラメータであり、

$\chi_a = 0$ の場合、完全に対称なスピバルブ構造に対応する。そのため、対称なスピバルブ構造の場合、上記の STT の式は次のように簡略化される：

$$\tau_{STT} = -\frac{\gamma_0 \hbar}{\mu_0 M_s^2} \frac{1}{d_i} \frac{J P}{e} \left( \mathbf{m} \times (\mathbf{m}_p \times \mathbf{m}) \right) \quad (4.3.4)$$

次に、式 (4.3.4) の中で  $J$  と飽和磁化  $M_s$  だけに注目すると、電流密度  $J$  と飽和磁化  $M_s$  は正比例とする。つまり、飽和磁化  $M_s$  を小さくすると、電流密度  $J$  が低くなる。以上により、飽和磁化  $M_s$  の最も小さい Ni は発振するために必要な電流密度が低いことが示唆される。そこで、計算に用いる電流密度の領域を、3 種類の Top 層の材料で変えて、Ni と  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  を低め、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  を高めとした。具体的には、Top 層が Ni のときに電流密度範囲は、 $0.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> から  $6.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> までである。 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  のときに電流密度範囲は、 $0.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> から  $6.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> までである。 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  のときに電流密度範囲は  $0.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> から  $20.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> までである。

次の 4.3.1 節では以上に述べた電流密度を流し、Bilinear 結合があるが Biquadratic 結合がない場合、Ni、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の発振状態を観察する。4.3.2 では Bilinear 結合がないが Biquadratic 結合がある場合、Ni、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の発振状態を観察する。

#### 4.3.1 $A_{12} = -1.2$ mJ/m<sup>2</sup> かつ $B_{12} = 0$ mJ/m<sup>2</sup> の場合、材料による Top 層の発振状態の観察

本項では、三層膜のオルソゴナル構造に電流を通し、前節と同じ 3 条件で議論する。

条件 I: Bilinear 結合係数  $A_{12} = 0$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12} = 0$  mJ/m<sup>2</sup>

条件 II : Bilinear 結合係数  $A_{12} = -1.2$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12} = 0$  mJ/m<sup>2</sup>

条件 III : Bilinear 結合係数  $A_{12} = 0$  mJ/m<sup>2</sup>、Biquadratic 結合係数  $B_{12} = -0.6$  mJ/m<sup>2</sup>

Bilinear 結合を持つが Biquadratic 結合がない場合 (条件 II) の Top 層の Ni、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の発振状態を観察し、層間磁気結合がない場合 (条件 I) の発振状態と比較する。電流の方向は、Top 層から Bottom 層に向かっている。電流密度の範囲について、Ni および Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> では電流範囲を 0 から  $6.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> に、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> では 0 から  $20.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> に設定している。これは、材料の飽和磁化の違いにより、飽和状態に達する電流密度が異なるためである。

実験データが多いため、図 4.3.1、図 4.3.2、図 4.3.3 では各材料の中で最も代表的な三つの発振状態のみを示し、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> また  $-1.2$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> また  $-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> による違いを示す。具体的には、Ni の電流密度は  $0.5 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、 $2.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、 $6.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> の電流密度は  $1.5 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、 $3.5 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、 $6.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の電流密度は  $8.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、 $15.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>、 $20.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> の計算結果に着目する。その後、図 4.3.4 で全ての電流密度における周波数をまとめている。図 4.3.1、図 4.3.2、図 4.3.3 では、(a)、(b)、(c) がそれぞれ三つの電流密度における Top 層の発振状態を示し、(d)、(e)、(f) は対応する高速フーリエ変換 (FFT) スペクトルを示す。図中の青い線「Normal」は  $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合を示し、オレンジの線「With BL」は  $A_{I2}=-1.2$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合を示す。

すべての材料の Top 層において、低い電流密度下では、層間磁気結合がない条件 I も Bilinear 結合がある条件 II も ST0 が観察された。そして、Bilinear 結合がある条件 II に比べて、層間磁気結合がない条件 I の周波数はより高くなる。これは、Bilinear 結合があり電流密度が低い場合、磁化方向が面内に垂直に下向きであり、反磁場と Bilinear 結合磁場の方向が逆になるため、層間磁気結合がない場合よりも有効磁場が低くなる結果、層間磁気結合がない場合の方は周波数が高くなるからである。しかし、Bilinear 結合がある場合の強度 (Intensity) は、層間磁気結合がない場合よりも高くなる。電流密

度を増加させると、(b)に示すように、層間磁気結合がない場合は磁化の運動が徐々に減衰するが、Bilinear 結合がある場合では依然として ST0 が観察された。これは、Bilinear 結合を導入することで、ST0 が発生するために必要な電流密度の範囲を広げられることを示す。さらに電流密度を増加させると、(c)に示すように、両者の磁化運動はともに減衰し、電流密度が飽和に達したことを示す。

次に、図 4.3.4 に示すように、三種類の材料の Top 層における全ての電流密度下での周波数および強度を示す。(a)、(b)、(c)はそれぞれ Ni、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の Top 層の周波数と電流密度の関係を表し、(d)、(e)、(f)はそれに対応する強度と電流密度の関係を示す。図からわかるように、層間磁気結合がない場合と比べて、Bilinear 結合を導入することで調整可能な周波数範囲が大幅に拡大し、また、その強度も層間磁気結合がない場合よりも高くなっている。

(b)、(c)の図から、Top 層が  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  や  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  である場合、層間磁気結合がない条件 I と比べて、Bilinear 結合を導入した条件 II では閾値電流が明らかに増加することがわかるが、Top 層が Ni である場合はこの現象が見られない。この理由は、4.2.1 で述べたように、Top 層が  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  や  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の場合、サンプルの構造がオルソゴナル構造から面内構造に変化し、それにより閾値電流が増加するためである。一方、Top 層が Ni の場合はオルソゴナル構造を維持しているため、閾値電流は増加しない。

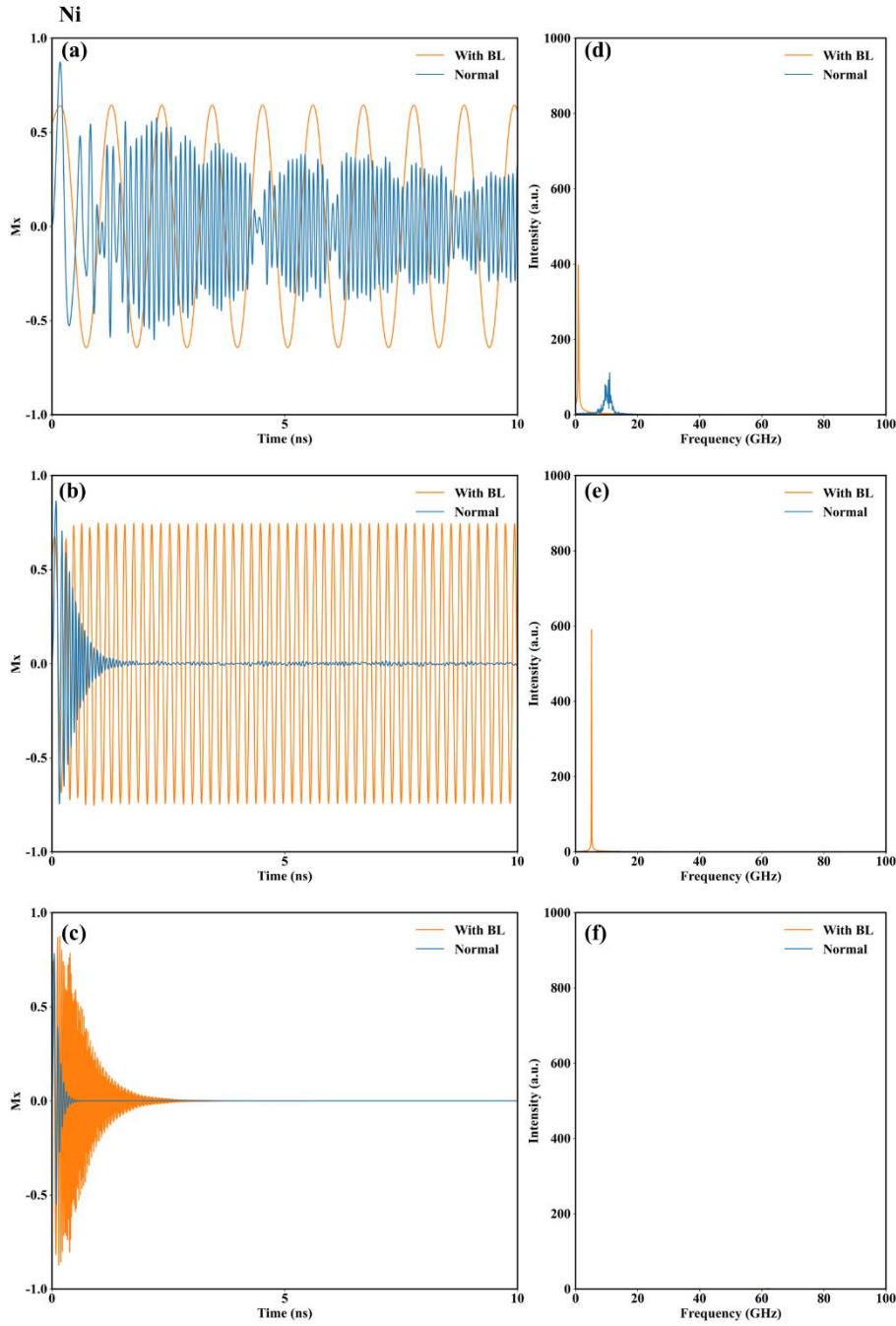


図 4.3.1 条件 I ( $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$ ) と条件 II ( $A_{I2} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$ ) 場 Top 層 Ni の磁化発振状態。(a)–(c) 時間領域磁化歳差  $M_x$ 、(d)–(f) 対応する FFT 図である。青い線「Normal」は条件 I、オレンジの線「With BL」は条件 II の結果。

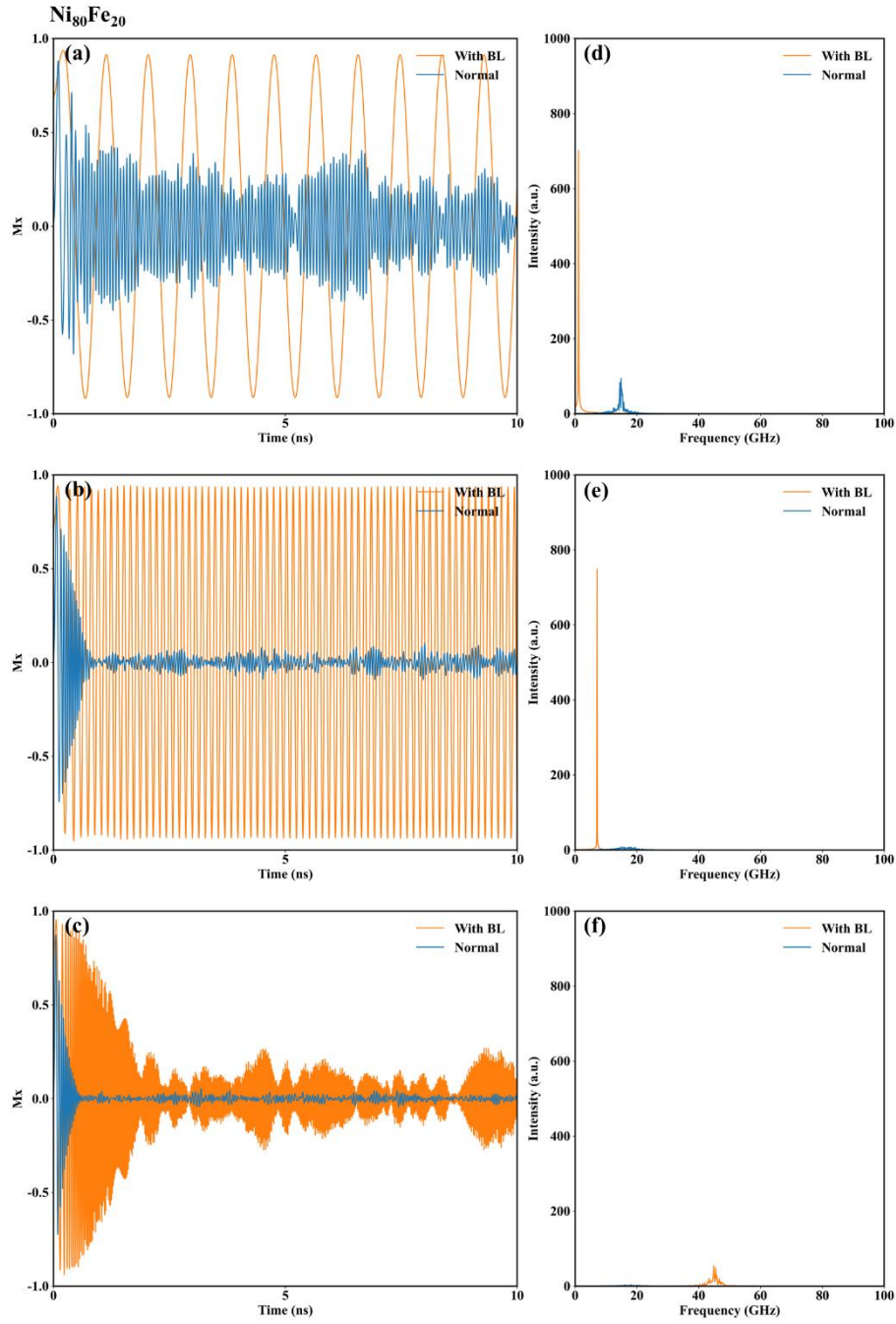


図 4.3.2 条件 I ( $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$ ) と条件 II ( $A_{I2} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$ ) 場 Top 層  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  の磁化発振状態。(a)–(c) 時間領域磁化歳差  $M_x$ 、(d)–(f) 対応する FFT 図である。青い線「Normal」は条件 I、オレンジの線「With BL」は条件 II の結果。

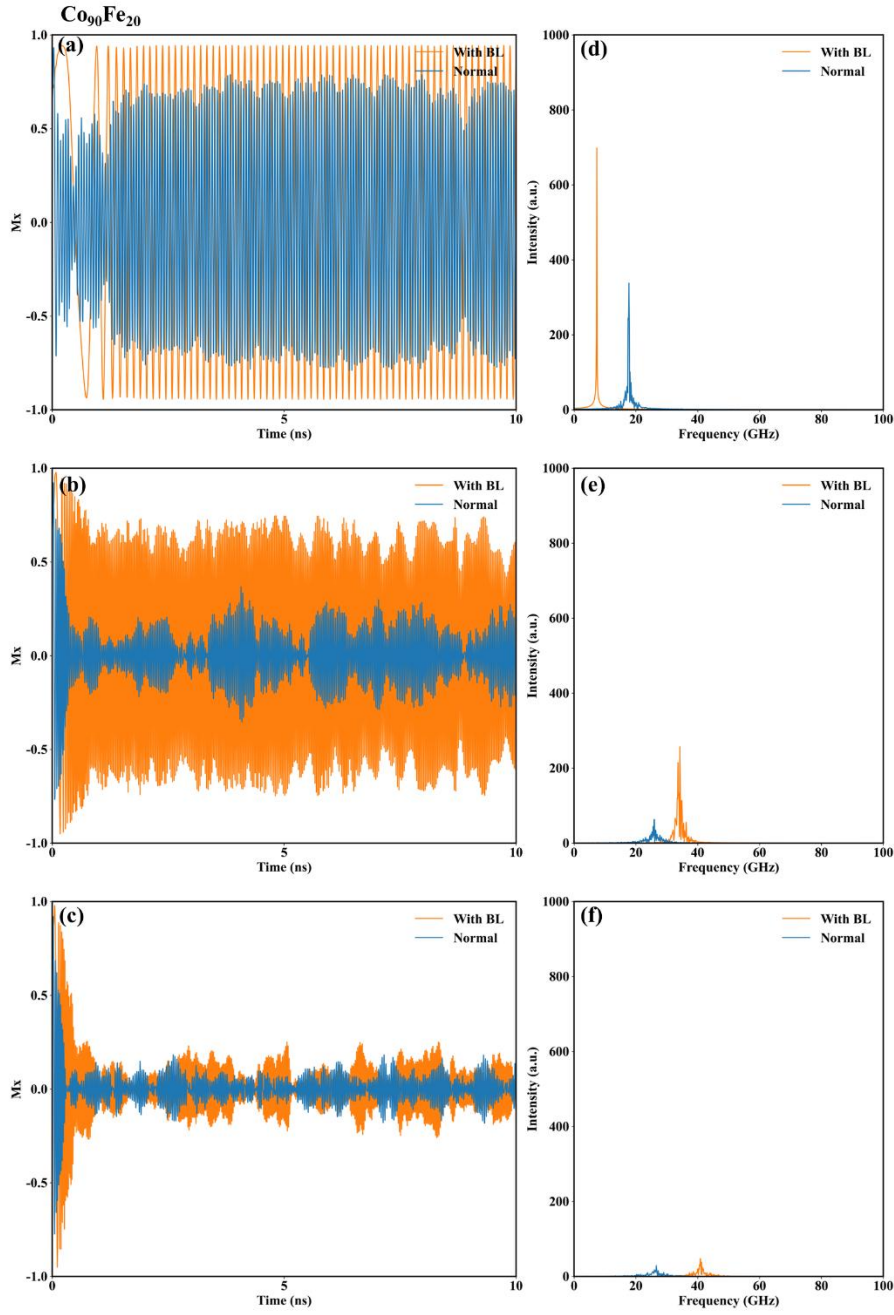


図 4.3.3 条件 I ( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ ) と条件 II ( $A_{12} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ ) 場 Top 層  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の磁化発振状態。(a)–(c) 時間領域磁化歳差  $M_x$ 、(d)–(f) 対応する FFT 図である。青い線「Normal」は条件 I、オレンジの線「With BL」は条件 II の結果。

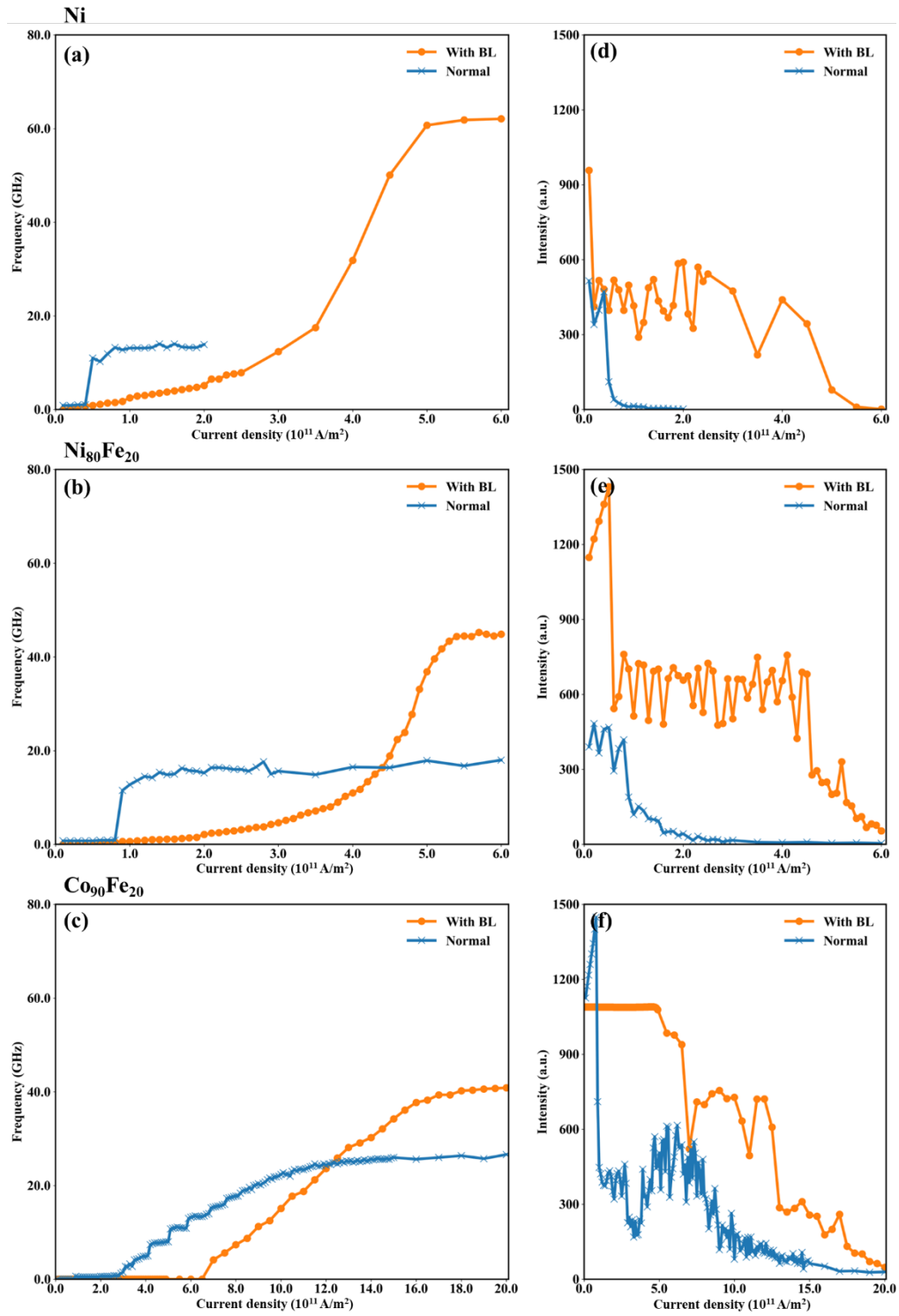


図 4.3.4 Top 層の STT 発振周波数 (a-c) および発振強度 (d-f) の電流密度依存性。

条件 I が青、条件 II がオレンジ。(a) (d) Ni、(b) (e)  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、(c) (f)  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 。

#### 4.3.2 $A_{I2}=0$ mJ/m<sup>2</sup>かつ $B_{I2}=-0.6$ mJ/m<sup>2</sup>における Top 層材料にを变えた場合の磁化発振状態の観察

本項では、三層膜のオルソゴナル構造に電流を通し、条件 III ( $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>かつ  $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup>) の Top 層の Ni、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の発振状態を観察し、条件 I ( $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>かつ  $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>) の発振状態と比較する。電流の方向および電流範囲は、すべて 4.3.1 と同じである。

4.3.1 と同じに、図 4.3.5、図 4.3.6、図 4.3.7 では各材料の中で最も代表的な三つの発振状態のみを示し、層間磁気結合の条件 I と条件 III による違いを示す。電流密度の選択は 4.3.1 と同じにした。その後、図 4.3.8 で全ての電流密度における周波数をまとめている。図 4.3.5、図 4.3.6、図 4.3.7 では、(a)、(b)、(c) がそれぞれ三つの電流密度における Top 層の発振状態を示し、(d)、(e)、(f) は対応する高速フーリエ変換 (FFT) スペクトルを示す。図中の青い線「Normal」は  $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> を示し、オレンジの線「With BQ」は  $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合を示す。

4.3.1 と同じように、すべての材料の Top 層において、低い電流密度下では、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> また  $-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合の ST0 が観察された。Ni の場合、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合と比べて、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合の周波数は低くなる。これは発振モードの違いによるものである。これは後の節で論述する。また、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合の強度は大きくなる。Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> の場合、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の時、周波数が高くなる。これは、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合で飽和磁場が高くなり、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合にはすでに飽和磁場に達しているため、 $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合で有効磁場は  $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合よりも高くなり、周波数が増加するためである。Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の場合、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の反磁場が大きいため、低電流下では  $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合も  $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合も飽和磁場に達しておらず、両者の有効磁場はほぼ同じである。そ

のため、周波数も同程度になる。電流をさらに増加させると、三種類の材料の Top 層すべてで 4.3.1 と同じ現象が見られる。これは、 $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合で STO に必要な電流密度の範囲を広げられることを示す。

次に、図 4.3.4 に示すように、三種類の材料の Top 層における全ての電流密度下での周波数および強度を示す。(a)、(b)、(c)はそれぞれ Ni、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の Top 層の周波数と電流密度の関係を表し、(d)、(e)、(f)はそれに対応する強度と電流密度の関係を表す。4.3.1 と同様に、 $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  の場合と比べて、 $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合で調整可能な周波数範囲が大幅に拡大し、強度も  $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  の場合よりも高くなる。しかし、 $A_{I2}=-1.2 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  の場合とは異なり、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  と  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の場合、 $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$  の時に閾値電流に大きな変化は見られない。これは、 $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合はオルソゴナル構造を維持できる一方で、 $A_{I2}=-1.2 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  の場合は面内構造に傾くため、閾値電流が増加するからである。また、 $A_{I2}=-1.2 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  の場合とは異なり、 $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合、電流密度が増加すると周波数に突発的な変化が見られる。これはスピン波発振モードが変化したことを示しており、これについては節 4.4 で論述する。

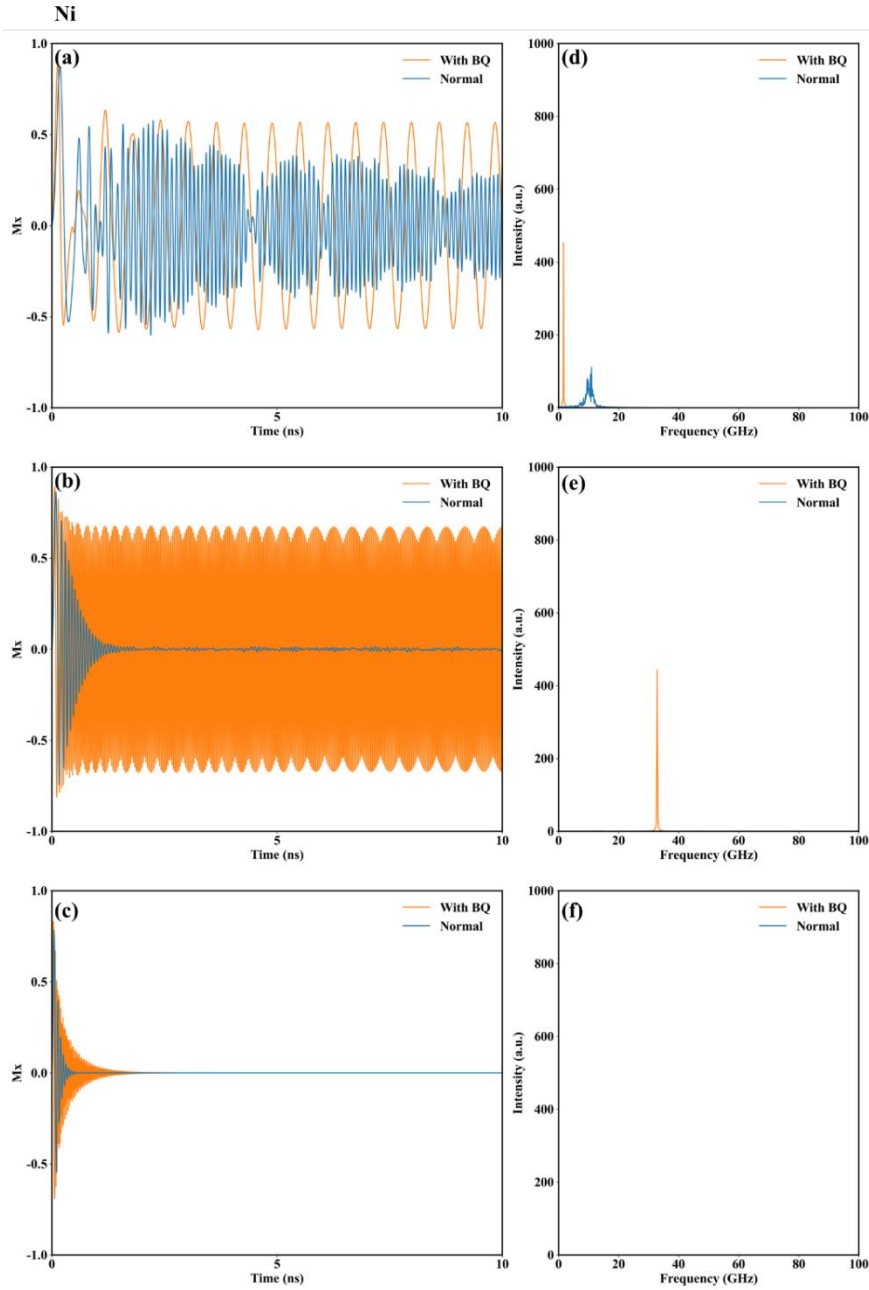


図 4.3.5 条件 I ( $A_{I2}=B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>) と条件 III ( $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup>) における Ni の磁化発振状態である。(a)–(c)時間領域磁化歳差  $M_x$ 、(d)–(f) 対応する FFT 図である。青い線「Normal」は条件 I、オレンジの線「With BQ」は条件 III の結果。

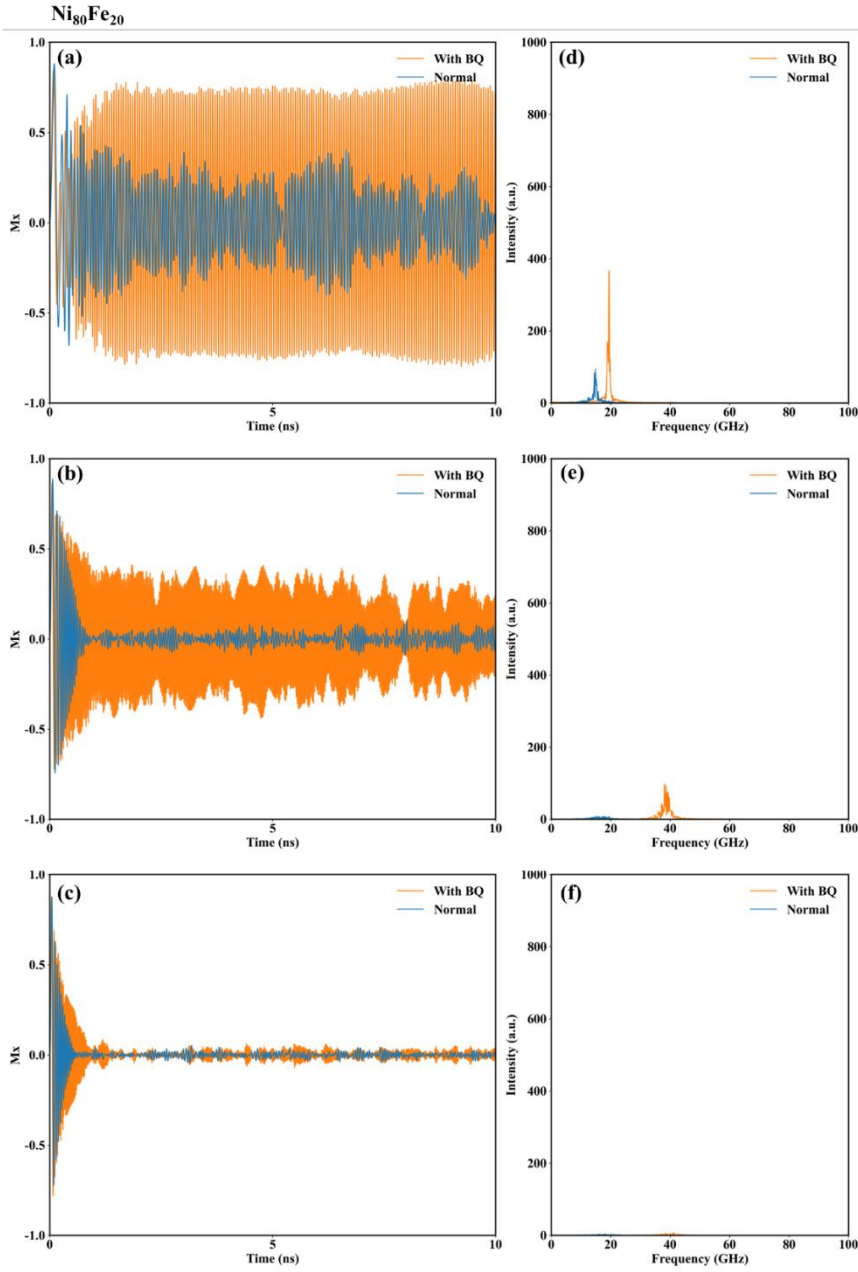
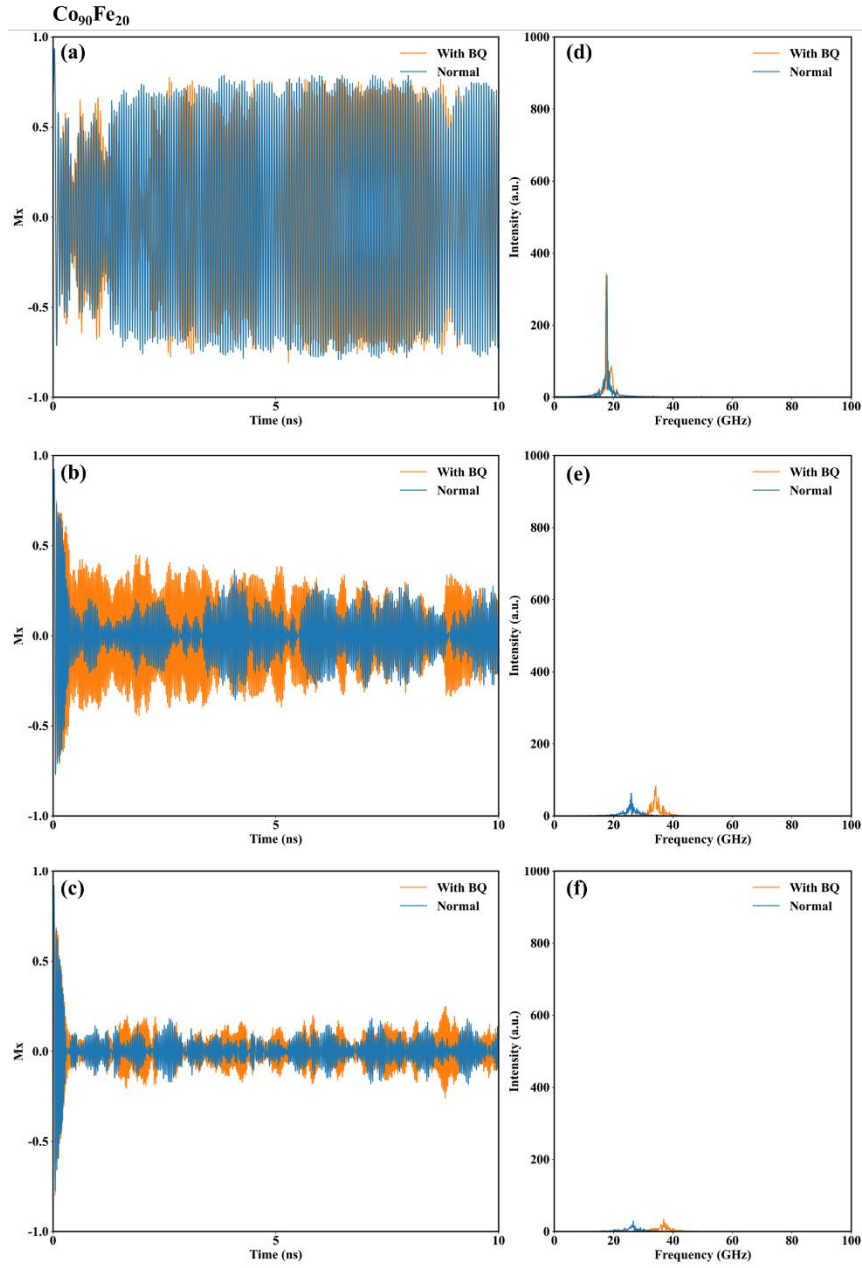


図 4.3.6 条件 I ( $A_{12}=B_{12}=0 \text{ mJ/m}^2$ ) と条件 III ( $A_{12}=0 \text{ mJ/m}^2$ ,  $B_{12}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$ ) における  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  の磁化発振状態である。(a)–(c) 時間領域磁化歳差  $M_x$ 、(d)–(f) 対応する FFT 図である。青い線「Normal」は条件 I、オレンジの線「With BQ」は条件 III の結果。



4.3.6 条件 I ( $A_{I2}=B_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>) と条件 III ( $A_{I2}=0$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{I2}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup>) における Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の磁化発振状態である。(a)–(c) 時間領域磁化歳差  $M_x$ 、(d)–(f) 対応する FFT 図である。青い線「Normal」は条件 I、オレンジの線「With BQ」は条件 III の結果。

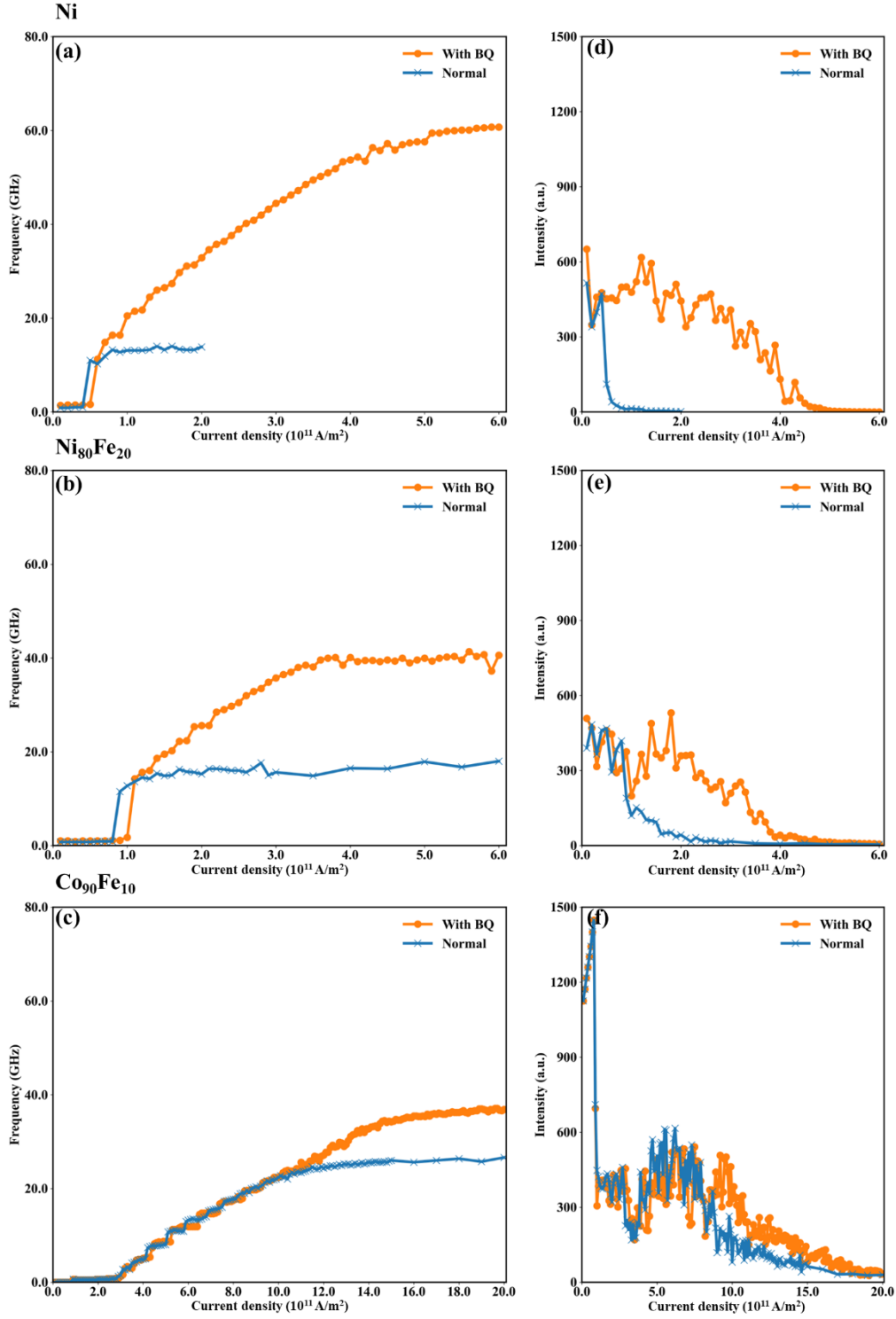


図 4.3.8 Top 層の STT 発振周波数 (a-c) および発振強度 (d-f) の電流密度依存性。

条件 I が青、条件 II がオレンジ。(a) (d) Ni、(b) (e)  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、(c) (f)  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ 。

#### 4.4 スピン波の観察

この節では、スピン波発振モードが発振周波数に与える影響について議論する。4.3 節からわかるように、 $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の条件 I や  $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の条件 III の場合、電流密度が低いときは電流密度を増加させても発振周波数が変わらず維持される。しかし、 $A_{I2} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の条件 II ではこの現象は見られない。

ここでは Ni を例にとり、一定の電流密度下における Top 層の磁化の  $z$  成分に対して高速フーリエ変換 (FFT) を行った。図 4.4.1 に示すように、(a) は  $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の条件 I の電流密度  $0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  における Top 層の平面図、(b) は  $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の条件 III の電流密度  $0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  における Top 層の平面図である。 $A_{I2} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の条件 II では、電流密度  $0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  では Top 層の磁化に発振が見られないため、ここでは電流密度  $4.5 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  における Top 層の平面図を (c) に示す。(d)、(e)、(f) はそれぞれ対応する特定の周波数における FFT スペクトルである。

(a)、(b) 電流密度が低い場合、 $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の条件 I や  $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の条件 III の Top 層は、Vortex のような発振モードを示す。これを Vortex モードと呼ぶこととする。(c) と (f) からわかるように、 $A_{I2} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の条件 II の Top 層は定常波が、唸りが出る。(d) と (e) から、Vortex はディスクの縁に沿って周期的に運動しており、その発振周波数が Vortex モードの周波数であることがわかる。一般的に Vortex モードでは、発振周波数の電流密度依存性が小さい[35]。これが、 $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の場合や  $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の条件 III で電流密度に依らず発振周波数が変わらない理由である。

$A_{I2} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の場合で Top 層磁化の発振モードは比較的単純なため、ここでは  $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  または  $-0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合のみに焦点を当て

て探究を続ける。4.3 節の図 4.3.8 では、Ni の場合、電流密度をさらに増加させると、 $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合で Top 層の磁化の発振周波数は電流増加に応じて線形に増加し、最終的に磁化が完全に反転する。一方、 $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  の場合で Top 層の磁化は磁化の発振周波数が増加する線形モードを経ることなく、直接磁化反転する。

直接的な磁化反転を防ぎ、発振周波数が増加する領域が得られる条件に、STT と逆向きに磁化を向ける有効磁場の存在がある。このような有効磁場は、磁性体の磁化に依存する反磁場があるが、それに加え磁化オルソゴナル構造では、Biquadratic 結合磁場も反磁場と同じ向きを持つ。反磁場の効果は、 $M_s$  の小さい Ni、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  では発振周波数が増加する領域が見られないのに対し、 $M_s$  の大きい  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  では発振周波数が増加する線形モードが見られる事に示される。Biquadratic 結合磁場の効果は、 $M_s$  の小さい Ni や  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  でも、Biquadratic 結合磁場を導入すれば発振周波数が増加する線形モードが得られる事に示されている。つまり、Vortex モードから線形モードへ移行できるかどうかの鍵は、こうした反磁場と Biquadratic 結合磁場があるかどうかにある。磁化オルソゴナル構造において、Biquadratic 結合による磁場と反磁場の方向は一致しており、その大きさは  $M_z$  に比例する。そのため、Ni の場合でも、Biquadratic 結合を導入することで、Top 層の発振モードを Vortex から線形モードに変化させることが可能である。

図 4.4.2 は、 $A_{I2} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合、線形モードにある Top 層の磁化の平面図(a)および対応する FFT スペクトル(b)を示す。図(c)は、5ns から 10ns まで(a)の y 軸中心に沿った x 軸方向の全磁化ベクトルの z 軸成分を示したものである(図(a)の中で黒い線で囲まれた部分)。(c)の x 軸は円盤の直径、y 軸は z 軸方向の磁化成分である。(a)と(b)からわかるように、電流密度が増加する段階で、スピン波は定在波の特徴を示す。(c)から、この現象は、電流密度が大きい場合に円盤の両端に逆方向に進行波の波源が急速に形成され、これらの波が干渉して円盤の中心に定在波が形成され

ることによるものである。

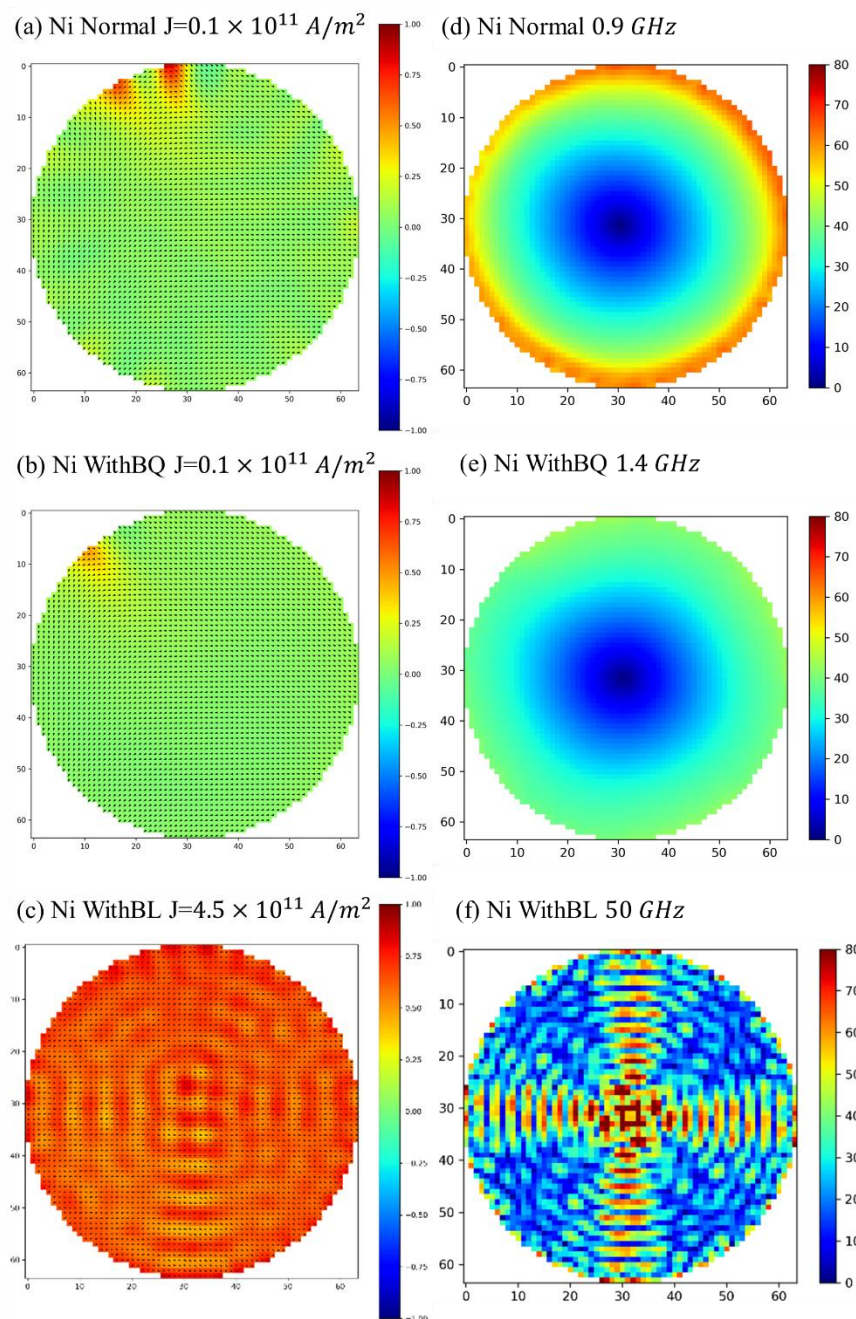


図 4.4.1 一定の電流密度下における Top 層の磁化の  $z$  成分の平面図および対応している FFT。(a)条件 I ( $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$ ) の場合の電流密度  $0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  における Top 層の平面図、(b)条件 III ( $A_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$ ) の場合の電流密度  $0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  における Top 層の平面図、(c)  $A_{I2}=-1.2 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{I2}=0 \text{ mJ/m}^2$  の場合の電流密度  $4.5 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  における Top 層の平面図。(d)-(f) はある周波数における (a)-(c) に対応している FFT。

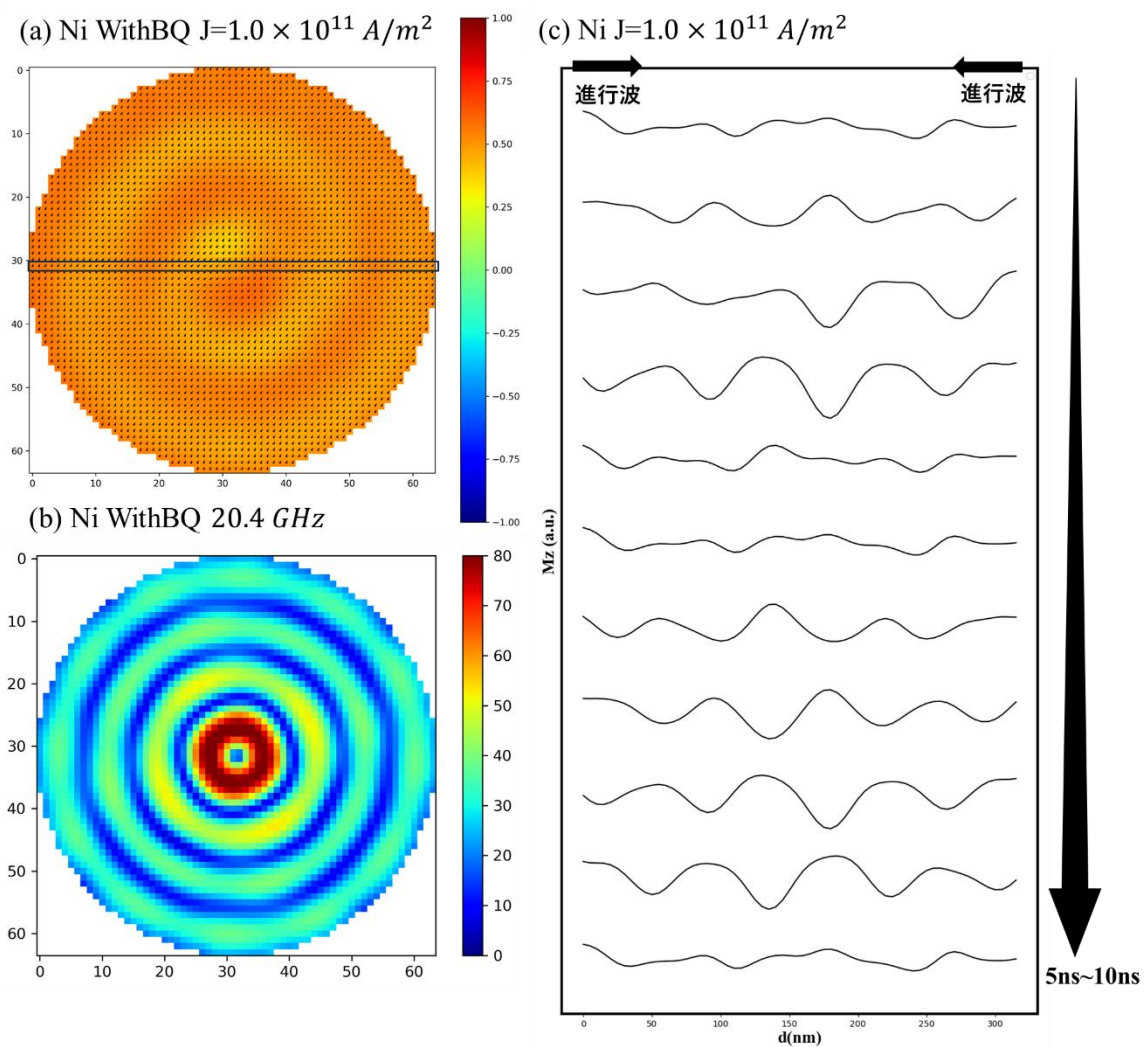


図 4.4.2 (a)  $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$  かつ  $B_{12} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$  の場合の線形モードにおける Top 層磁化の平面図。(b) 対応する FFT スペクトル。(c) 5ns から 10ns における (a) の中で黒い線で囲まれた部分の磁化ベクトルの  $z$  軸成分。

## 4.5 シミュレーションのまとめ

この節では、シミュレーション段階で行った結果についてまとめる。具体的には、Top 層材料が Ni、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>、Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の場合に層間磁気結合が  $A_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup> また  $-1.2$  mJ/m<sup>2</sup>、 $B_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup> また  $-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> という条件下での可変周波数範囲や閾値電流について総括する。これらを表 4.4.1 にまとめる。条件 I, II, III 下での可変周波数範囲は図 4.4.3 にまとめる。

まず、表 4.4.1 に示すように、 $A_{12}= -1.2$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> と Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> の Top 層の磁化発振閾値電流が大きくなっている。これは、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> と Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> ではオルソゴナル構造を維持できず、面内構造に変化したためである。一方、その他の場合ではオルソゴナル構造を維持できたため、閾値電流は明らかな増加は見られなかった。

次に、Bilinear 結合と Biquadratic 結合の両方が、発振周波数の可変範囲を拡大できることを示した。式 4.1.34 と式 4.1.35 からわかるように、Top 層に掛かる Bilinear 結合磁場は Bottom 層の  $M_z$  が変わらない限り一定の値であり、Top 層の磁化に依らない。しかし、Biquadratic 結合磁場の大きさは Top 層の  $M_z$  に比例するため、 $A_{12}= -1.2$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{12}=0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合と  $A_{12}= 0$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{12}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合で、同じ電流密度における発振周波数は異なる。

最後に、 $A_{12}= 0$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{12}= 0$  mJ/m<sup>2</sup> の場合と  $A_{12}= 0$  mJ/m<sup>2</sup> かつ  $B_{12}=-0.6$  mJ/m<sup>2</sup> の場合を比較する。Biquadratic 結合磁場と反磁場はともに Top 層の  $M_z$  に比例し、比例係数が異なるだけである。そのため、低電流密度では同じ発振モードを示すが、電流が増加するにつれて、 $M_s$  の小さい材料は Biquadratic 結合磁場による磁化反転の抑制がないため飽和する。一方、 $M_s$  が高い Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> では反磁場が、Biquadratic 結合がある場合は Biquadratic 結合磁場が存在するため、スピン波のモードは Vortex から線形モードに移行するものと考えられる。これより、Bilinear と Biquadratic 結合の電流密度-周波数曲線の違いを解釈した。

以上を基に、シミュレーションを用いてオルソゴナル構造 STO に層間磁気結合を導入することで、STO の最大周波数を向上させることに成功し、目的を達成した。

表 4.4.1 各材料の Top 層における条件 I, II, III 下での可変周波数範囲や閾値電流

| 層間結合条件                                                                    | Top層材料                         | 周波数範囲    | 閾値電流                                 |
|---------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|----------|--------------------------------------|
| 条件I<br>( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ )      | Ni                             | 0~11 GHz | $< 0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ |
| 条件II<br>( $A_{12} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ )  | Ni                             | 0~62 GHz | $0.2 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$   |
| 条件III<br>( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$ ) | Ni                             | 0~60 GHz | $< 0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ |
| 条件I<br>( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ )      | $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ | 0~15 GHz | $< 0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ |
| 条件II<br>( $A_{12} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ )  | $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ | 0~45 GHz | $0.6 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$   |
| 条件III<br>( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$ ) | $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ | 0~40 GHz | $< 0.1 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ |
| 条件I<br>( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ )      | $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ | 0~26 GHz | $0.9 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$   |
| 条件II<br>( $A_{12} = -1.2 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ )  | $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ | 0~41 GHz | $7.0 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$   |
| 条件III<br>( $A_{12} = 0 \text{ mJ/m}^2$ , $B_{12} = -0.6 \text{ mJ/m}^2$ ) | $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ | 0~37 GHz | $0.9 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$   |

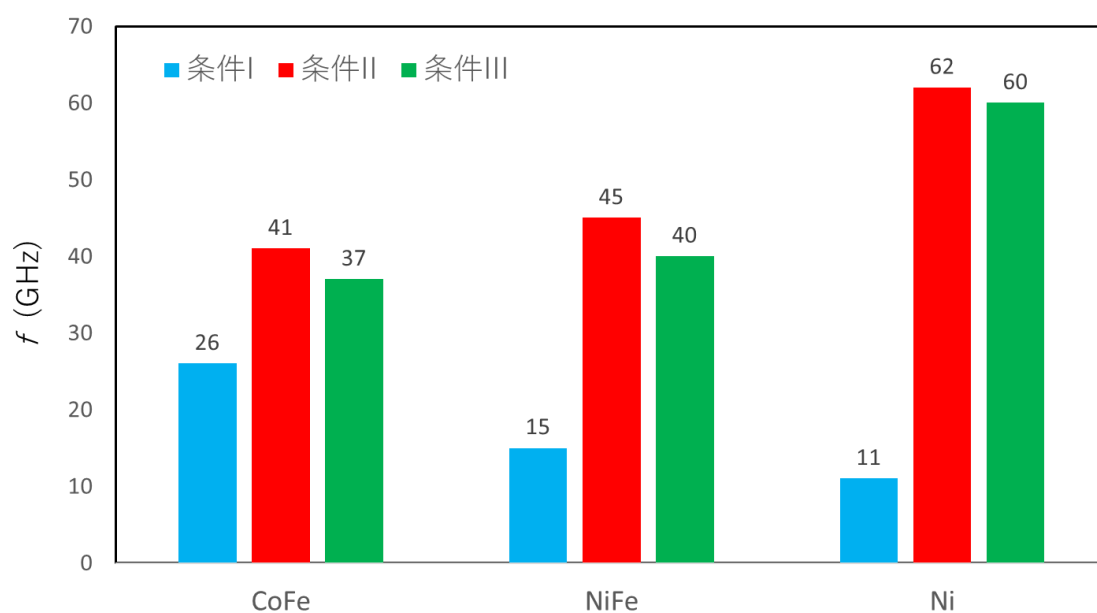


図 4.4.3 各材料の Top 層における条件 I, II, III 下での可変周波数範囲

## 第五章 結論と展望

本章では、本研究で行った作業の総括と今後の展望について述べる。

本研究では、以下の成果を得た。

実験部分では、 $\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}/\text{Cr}/\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$  の面内構造において層間磁気結合を発見し、Spacer の Cr の膜厚を変えることで、層間磁気結合の種類が以下のように変化することを確認した。具体的には、強磁性結合、90 度磁気結合、反強磁性結合、90 度磁気結合、強磁性結合の順に変化した。Cr 膜厚が 0.6nm から 0.8nm のときは強磁性結合、0.9nm から 1.0nm のときは 90 度磁気結合、1.1nm から 1.6nm のときは反強磁性結合、1.8nm から 2.0nm のときは再び 90 度磁気結合、2.2nm のときには強磁性結合に戻った。

次に、オルソゴナル構造における Bilinear 結合と Biquadratic 結合が Cr 膜厚に応じてどのように変化するかを探究するため、Spacer が Cr 0.8 nm、1 nm、1.2 nm、1.6 nm、1.8 nm、2.0 nm の試料を選び、これをオルソゴナル構造の試料として作製した。そして、Spacer が Cu 5nm の試料を対照試料として作製した。

オルソゴナル構造の試料について、まず SQUID を用いて面内 2 T までの外部磁場を印加して、Top 層の飽和磁化を測定した。次に、面直 4 T までの外部磁場を印加して、Bottom 層の飽和磁化および試料の飽和磁場を測定した。層間磁気結合の影響を考慮した Top 層の飽和磁化、Bottom 層の飽和磁化および試料の飽和磁場の関係式を導き、層間磁気結合係数  $A_{I2}=-0.0653 \text{ mJ/m}^2$  および  $B_{I2}=-0.352 \text{ mJ/m}^2$  と算出した。しかし、磁化曲線からは飽和磁場を正確に識別することが難しい事が分かったため、強磁性共鳴 (FMR) を用いて試料の飽和磁場を測定した。

FMR における周波数の磁場依存性に対して線形近似法を用いて飽和磁場を計算し、層間磁気結合係数  $A_{I2}=-0.0637 \text{ mJ/m}^2$  および  $B_{I2}=-0.36 \text{ mJ/m}^2$  を算出した。この数値は、SQUID による磁化曲線から見積もった係数と比較して、 $A_{I2}$  がわずか 2.5%、 $B_{I2}$  がわずか 2.3% の差に留まった。ただし、この方法にも欠点があり、Cr 1 nm の試料では 2.2 T と

いう高磁場領域で磁場-周波数曲線が完全に線形ではないという問題があった。そこで、FMR シミュレーションを使用して磁場-周波数曲線をフィッティングし、 $B_{12}$  の値を最適化した。最終的に、Cr1nm の試料に対して、層間磁気結合係数  $A_{12}=-0.0637 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{12}=-0.327 \text{ mJ/m}^2$  という値が得られた。FMR の線形近似から求めた飽和磁場による  $B_{12}=-0.36 \text{ mJ/m}^2$  より絶対値が 4.8 %ほど小さくなった。

以上を基に、磁化オルソゴナル構造において層間磁気結合が存在することを実証し、とりわけ磁化を  $\pm 90$  度に向かせる Biquadratic 結合を検出する事に成功した。さらに Spacer が Cr 1nm の場合の  $A_{12}$  および  $B_{12}$  の数値をより正確に求めることができた。

STO シミュレーションでは、飽和磁化の異なる Ni、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 、 $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$  の 3 種類の材料を Top 層として選定し、それぞれに対して層間磁気結合係数を以下のように設定した：条件 I  $A_{12}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{12}=0 \text{ mJ/m}^2$  または条件 II  $A_{12}=-1.2 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{12}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、または条件 III  $A_{12}=0 \text{ mJ/m}^2$ 、 $B_{12}=-0.6 \text{ mJ/m}^2$ 。この設定により、層間磁気結合における Bilinear 結合と Biquadratic 結合が STO に与える影響を個別に検討した。

まず、静的な磁化状態に関して、bilinear 結合のみが存在する条件 II の場合、磁性材料の飽和磁化が増加するにつれて、Top 層と Bottom 層の磁化は膜面に垂直の反平行状態から膜面内での反平行状態に遷移する。一方で、Biquadratic 結合のみが存在する条件 III の場合、いずれの飽和磁化を持つ材料でも Top 層の磁化は膜面垂直、Bottom 層の磁化は膜面内となって相互に直交し、オルソゴナル構造を形成する。これは、Bilinear 結合と Biquadratic 結合の異なる特性によるものである。

次に、電流を流した場合、層間磁気結合がない条件 I の場合では、飽和磁化の異なる 3 種類の材料の可変周波数範囲はそれぞれ 0-11GHz、0-15GHz、0-26GHz となった。Bilinear 結合のみが存在する条件 II の場合では、可調周波数範囲はそれぞれ 0-62GHz、0-45GHz、0-41GHz となり、Biquadratic 結合のみが存在する条件 III の場合では、それ

ぞれ 0-60GHz、0-40GHz、0-37GHz となった。これにより、飽和磁場を増大させ可変周波数範囲が拡大したことが確認された。また、材料の飽和磁化が小さいほどその効果が顕著であることが分かった。

Bilinear 結合とは異なり、Biquadratic 結合の場合、STO の振動モードとして 2 種類のスピン波モードが現れることを確認した。これらは Vortex モードと線形定在波モードであり、その原因についても検討を行った。ディスクの端部と中心部のエネルギーが異なるため、スピン波はまずディスクの端部で励起され、端部を周回するように運動する。電流がさらに増加すると、端部でのスピン励起の速度が増加し、2 つの進行波が相互に干渉して定在波を形成する。

以上を基に、シミュレーションを用いてオルソゴナル構造 STO に層間磁気結合を導入することで、STO の最大周波数を向上させることに成功し、目的を達成した。

最後に、実験によってオルソゴナル構造においても層間磁気結合が存在することを確認し、層間磁気結合係数を算出した。また、シミュレーションにより、層間磁気結合がオルソゴナル構造型 STO の可調周波数範囲を拡大することを証明した。これにより、高周波 STO の製造に向けた今後の方向性が示された。

## 参考文献

- [1]. S. I. Kiselev, et al., "Microwave oscillations of a nanomagnet driven by a spin-polarized current," *Nature* **425**, 380-383 (2003).
- [2]. W. H. Rippard, et al., "Direct-current induced dynamics in  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  point contacts," *Phys Rev Lett* **92** (2), 027201 (2004).
- [3]. J.C. Slonczewsk, "Current-driven excitation of magnetic multilayers," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **159** (1-2), L1-L7 (1996).
- [4]. L. Berger, "Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current," *Physical Review B* **54** (13), 9353 (1996).
- [5]. A. Meo, et al., "Spin-transfer and spin-orbit torques in the Landau–Lifshitz–Gilbert equation," *J. Phys.: Condens. Matter* **35** (2), 025801 (2023).
- [6]. G. Bihlmayer, O. Rader and R. Winkler, "Focus on the Rashba effect," *New Journal of Physics* **17** (5), 050202 (2015).
- [7]. Z. Zeng, G. Finocchio, and H. Jiang, "Spin transfer nano-oscillators," *Nanoscale* **5** (6), 2219-2231 (2013).
- [8]. J. Torrejon, et al., "Neuromorphic computing with nanoscale spintronic oscillators," *Nature* **547** (7664), 428-431 (2017).
- [9]. <https://storage.toshiba.com/news/pr/toshiba-achieves-world-s-first-demonstration-of-substantial-improvements-in-hdd-recording-performance-with-microwave-assisted-switching---microwave-assisted-magnetic-recording-%28mas-mamr%29>
- [10]. Klaus D Sattler, *Handbook of nanophysics: functional nanomaterials*. (CRC press, 2010).
- [11]. D. Yang and M. Tonouchi, "Understanding terahertz emission properties from a metal insulator–semiconductor structure upon femtosecond laser illumination," *Journal of Applied Physics* **130** (5) (2021).

- [12].L. Landau and E. Lifshitz, "On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies," *Phys. Z. Sowjetunion* **8** (153), 101-114 (1935).
- [13].TL Gilbert and JM Kelly, presented at the Conf. Magnetism and Magnetic Materials, Pittsburgh, PA, 1955 (unpublished).
- [14].T. L. Gilbert, "Classics in Magnetism A Phenomenological Theory of Damping in Ferromagnetic Materials," *IEEE Transactions on Magnetism* **40** (6), 3443-3449 (2004).
- [15].Sergei Vasil'evich Von Sovskii, *Ferromagnetic resonance*. (Elsevier, 1966).
- [16].VK Arkad'yev, J. Russ. Soc., "Absorption of electric waves in parallel wires," *Phys, Chem. Soc.* **44**, 165 (1912).
- [17].JHE. Griffiths, "Anomalous high-frequency resistance of ferromagnetic metals," *Nature* **158** (4019), 670-671 (1946).
- [18].Charles Kittel, "Interpretation of Anomalous Larmor Frequencies in Ferromagnetic Resonance Experiment," *Physical Review* **71** (4), 270-271 (1947).
- [19].Charles Kittel, "On the Theory of Ferromagnetic Resonance Absorption," *Physical Review* **73** (2), 155-161 (1948).
- [20].D. C. Ralph and M. D. Stiles, "Spin transfer torques," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **320** (7), 1190-1216 (2008).
- [21].Alina M. Deac, et al., "Bias-driven high-power microwave emission from MgO-based tunnel magnetoresistance devices," *Nature Physics* **4** (10), 803-809 (2008).
- [22].A. Giordano, et al., "Spin-Hall nano-oscillator: A micromagnetic study," *Applied Physics Letters* **105** (4) (2014).
- [23].V. E. Demidov, et al., "Nanoconstriction-based spin-Hall nano-oscillator," *Applied Physics Letters* **105** (17) (2014).
- [24].V. E. Demidov, et al., "Synchronization of spin Hall nano-oscillators to external microwave

- signals," *Nat Commun* **5**, 3179 (2014).
- [25]. C. Safranski, et al., "Spin caloritronic nano-oscillator," *Nat Commun* **8** (1), 117 (2017).
- [26]. T. Chen, et al., "Spin-Torque and Spin-Hall Nano-Oscillators," *Proceedings of the IEEE* **104** (10), 1919-1945 (2016).
- [27]. S. Bonetti, et al., "Spin torque oscillator frequency versus magnetic field angle: The prospect of operation beyond 65 GHz," *Applied Physics Letters* **94** (10) (2009).
- [28]. F. B. Mancoff, et al., "Phase-locking in double-point-contact spin-transfer devices," *Nature* **437** (7057), 393-395 (2005).
- [29]. E. Bankowski, et al., presented at the Proceedings of the 2011 Ground Vehicle Systems Engineering and Technology Symposium (GVSETS), 2011.
- [30]. I. Y. Oh, et al., "Wireless Spintronics Modulation With a Spin Torque Nano-Oscillator (STNO) Array," *IEEE Microwave and Wireless Components Letters* **24** (7), 502-504 (2014).
- [31]. H. Maehara, et al., "Large Emission Power over 2  $\mu$ W with High Q Factor Obtained from Nanocontact Magnetic-Tunnel-Junction-Based Spin Torque Oscillator," *Applied Physics Express* **6** (11) (2013).
- [32]. W. Rippard, et al., "Current-driven microwave dynamics in magnetic point contacts as a function of applied field angle," *Physical Review B* **70** (10) (2004).
- [33]. Q. Mistral, et al., "Current-driven microwave oscillations in current perpendicular-to-plane spin-valve nanopillars," *Applied Physics Letters* **88** (19) (2006).
- [34]. Alexey V. Nazarov, et al., "Spin transfer stimulated microwave emission in MgO magnetic tunnel junctions," *Applied Physics Letters* **88** (16) (2006).
- [35]. I. N. Krivorotov, et al., "Large-amplitude coherent spin waves excited by spin-polarized current in nanoscale spin valves," *Physical Review B* **76** (2) (2007).
- [36]. V. S. Pribiag, et al., "Magnetic vortex oscillator driven by d.c. spin-polarized current," *Nature*

Physics **3** (7), 498-503 (2007).

- [37].D. Houssameddine, et al., "Spin transfer induced coherent microwave emission with large power from nanoscale MgO tunnel junctions," *Applied Physics Letters* **93** (2) (2008).
- [38].Q. Mistral, et al., "Current-driven vortex oscillations in metallic nanocontacts," *Phys Rev Lett* **100** (25), 257201 (2008).
- [39].Alexey V. Nazarov, et al., "Microwave generation in MgO magnetic tunnel junctions due to spin transfer effects (invited)," *Journal of Applied Physics* **103** (7) (2008).
- [40].D. Houssameddine, et al., "Spin torque driven excitations in a synthetic antiferromagnet," *Applied Physics Letters* **96** (7) (2010).
- [41].Patrick Villard, et al., "A GHz Spintronic-Based RF Oscillator," *IEEE Journal of Solid-State Circuits* **45** (1), 214-223 (2010).
- [42].Z. M. Zeng, et al., "Enhancement of microwave emission in magnetic tunnel junction oscillators through in-plane field orientation," *Applied Physics Letters* **99** (3) (2011).
- [43].Z. Zeng et al., "High-power coherent microwave emission from magnetic tunnel junction nano-oscillators with perpendicular anisotropy," *ACS Nano* **6** (7), 6115-6121 (2012).
- [44].C. H. Sim, et al., "Current driven oscillation and switching in Co/Pd perpendicular giant magnetoresistance multilayer," *Journal of Applied Physics* **109** (7) (2011).
- [45].T. Seki, et al., "Magnetization reversal by spin-transfer torque in 90° configuration with a perpendicular spin polarizer," *Applied Physics Letters* **89** (17) (2006).
- [46].D. Houssameddine, et al., "Spin-torque oscillator using a perpendicular polarizer and a planar free layer," *Nat Mater* **6** (6), 441-447 (2007).
- [47].V. E. Demidov, S. Urazhdin, and S. O. Demokritov, "Direct observation and mapping of spin waves emitted by spin-torque nano-oscillators," *Nat Mater* **9** (12), 984-988 (2010).
- [48].H. Liu, et al., "Ultrafast switching in magnetic tunnel junction based orthogonal spin transfer

- devices," *Applied Physics Letters* **97** (24) (2010).
- [49]. William H. Rippard, et al., "Spin-transfer dynamics in spin valves with out-of-plane magnetized CoNi free layers," *Physical Review B* **81** (1) (2010).
- [50]. F. Macia, A. D. Kent, and F. C. Hoppensteadt, "Spin-wave interference patterns created by spin-torque nano-oscillators for memory and computation," *Nanotechnology* **22** (9), 095301 (2011).
- [51]. S. M. Mohseni, et al., "High frequency operation of a spin-torque oscillator at low field," *physica status solidi (RRL) – Rapid Research Letters* **5** (12), 432-434 (2011).
- [52]. H. Liu, et al., "Precessional reversal in orthogonal spin transfer magnetic random access memory devices," *Applied Physics Letters* **101** (3) (2012).
- [53]. H. Suto, et al., "Magnetization dynamics of a MgO-based spin-torque oscillator with a perpendicular polarizer layer and a planar free layer," *Journal of Applied Physics* **112** (8) (2012).
- [54]. H. Kubota, et al., "Spin-Torque Oscillator Based on Magnetic Tunnel Junction with a Perpendicularly Magnetized Free Layer and In-Plane Magnetized Polarizer," *Applied Physics Express* **6** (10) (2013).
- [55]. Z. Zeng, et al., "Ultralow-current-density and bias-field-free spin-transfer nano-oscillator," *Sci Rep* **3**, 1426 (2013).
- [56]. S. M. Mohseni, et al., "Magnetic droplet solitons in orthogonal nano-contact spin torque oscillators," *Physica B: Condensed Matter* **435**, 84-87 (2014).
- [57]. R. Sbiaa, "Magnetization reversal dependence on magnetic properties of a spin torque oscillator with in-plane anisotropy free layer and orthogonal polarizer," *Current Applied Physics* **14** (11), 1521-1525 (2014).
- [58]. R. Sbiaa, "Magnetization reversal driven by a spin torque oscillator," *Applied Physics Letters*

**105** (9) (2014).

- [59].L. Ye, et al., "State diagram of an orthogonal spin transfer spin valve device," *Journal of Applied Physics* **117** (19) (2015).
- [60].S. Bosu, et al., "Reduction of critical current density for out-of-plane mode oscillation in a mag-flip spin torque oscillator using highly spin-polarized  $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$  spin injection layer," *Applied Physics Letters* **108** (7) (2016).
- [61].S. Chung, et al., "Magnetic droplet nucleation boundary in orthogonal spin-torque nano-oscillators," *Nat Commun* **7**, 11209 (2016).
- [62].N. Rahman and R. Sbiaa, "Thickness dependence of magnetization dynamics of an in-plane anisotropy ferromagnet under a crossed spin torque polarizer," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **439**, 95-100 (2017).
- [63].S. Jiang, et al., "Magnetodynamics in orthogonal nanocontact spin-torque nano-oscillators based on magnetic tunnel junctions," *Applied Physics Letters* **115** (15) (2019).
- [64].D. K. Lee, B. G. Park, and K. J. Lee, "Antiferromagnetic Oscillators Driven by Spin Currents with Arbitrary Spin Polarization Directions," *Physical Review Applied* **11** (5) (2019).
- [65].M. Riou, et al., "Temporal pattern recognition with delayed feedback spin-torque nano-oscillators," *Phys Rev Appl* **12** (2) (2019).
- [66].G. E. Rowlands, et al., "A cryogenic spin-torque memory element with precessional magnetization dynamics," *Sci Rep* **9** (1), 803 (2019).
- [67].C. Zheng, et al., "Spin torque nano-oscillators with a perpendicular spin polarizer," *Chinese Physics B* **28** (3) (2019).
- [68].C. Li, et al., "Spin-torque nano-oscillators based on radial vortex in the presence of interface Dzyaloshinskii-Moriya interaction," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **498** (2020).

- [69].S. Zhou, et al., "Skyrmion-based spin-torque nano-oscillator in synthetic antiferromagnetic nanodisks," *Journal of Applied Physics* **128** (3) (2020).
- [70].C. O. Avci, et al., "Chiral Coupling between Magnetic Layers with Orthogonal Magnetization," *Phys Rev Lett* **127** (16), 167202 (2021).
- [71].C. Liu, et al., "Spin Transfer Torque Oscillation in Orthogonal Magnetization Disks," *IEEE Transactions on Magnetics* **58** (2), 1-5 (2022).
- [72].S. Jiang, et al., "Field-Free High-Frequency Exchange-Spring Spin-Torque Nano-Oscillators," *Nano Lett* **23** (4), 1159-1166 (2023).
- [73].C. Liu, et al., "High-frequency spin torque oscillation in orthogonal magnetization disks with strong biquadratic magnetic coupling," *Sci Rep* **13** (1), 3631 (2023).
- [74].C. Liu, et al., "Biquadratic magnetic coupling effect in CoPt/Cr/Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub> orthogonal structures," *Japanese Journal of Applied Physics* **63** (2) (2024)
- [75].N. T. Phan, et al., "Unbiased random bitstream generation using injection-locked spin-torque nano-oscillators," *Physical Review Applied* **21** (3) (2024).
- [76].R. H. Koch, J. A. Katine, and J. Z. Sun, "Time-resolved reversal of spin-transfer switching in a nanomagnet," *Phys Rev Lett* **92** (8), 088302 (2004).
- [77].R. Okura, et al., "High-power rf oscillation induced in half-metallic Co<sub>2</sub>MnSi layer by spin-transfer torque," *Applied Physics Letters* **99** (5) (2011).
- [78].A. S. Núñez, et al., "Theory of spin torques and giant magnetoresistance in antiferromagnetic metals," *Physical Review B* **73** (21) (2006).
- [79].S. Urazhdin and N. Anthony, "Effect of polarized current on the magnetic state of an antiferromagnet," *Phys Rev Lett* **99** (4), 046602 (2007).
- [80].Z. Wei, et al., "Changing exchange bias in spin valves with an electric current," *Phys Rev Lett* **98** (11), 116603 (2007).

- [81].P. M. Haney and A. H. MacDonald, "Current-induced torques due to compensated antiferromagnets," *Phys Rev Lett* **100** (19), 196801 (2008).
- [82].Z. Wei, et al., "Spin-transfer interactions in exchange-biased spin valves," *Journal of Applied Physics* **105** (7) (2009).
- [83].T. Moriyama, et al., "Anti-damping spin transfer torque through epitaxial nickel oxide," *Applied Physics Letters* **106** (16) (2015).
- [84].N. Roschewsky, et al., "Spin-orbit torques in ferrimagnetic GdFeCo alloys," *Applied Physics Letters* **109** (11) (2016).
- [85].Y. Yamane, J. Ieda, and J. Sinova, "Spin-transfer torques in antiferromagnetic textures: Efficiency and quantification method," *Physical Review B* **94** (5) (2016).
- [86].R. Khymyn, et al., "Antiferromagnetic THz-frequency Josephson-like Oscillator Driven by Spin Current," *Sci Rep* **7**, 43705 (2017).
- [87].X. Z. Chen, et al., "Antidamping-Torque-Induced Switching in Biaxial Antiferromagnetic Insulators," *Phys Rev Lett* **120** (20), 207204 (2018).
- [88].T. Jungwirth, et al., "The multiple directions of antiferromagnetic spintronics," *Nature Physics* **14** (3), 200-203 (2018).
- [89].Ivan Lisenkov, et al., "Subterahertz ferrimagnetic spin-transfer torque oscillator," *Physical Review B* **100** (10) (2019).
- [90].V. Puliafito, et al., "Micromagnetic modeling of terahertz oscillations in an antiferromagnetic material driven by the spin Hall effect," *Physical Review B* **99** (2) (2019).
- [91].H. Wang, et al., "Oscillatory interlayer exchange coupling in epitaxial  $\text{Co}_2\text{MnSiCrCo}_2\text{MnSi}$  trilayers," *Applied Physics Letters* **90** (14) (2007).
- [92].T. Seki, et al., "Coupled-Mode Excitations Induced in an Antiferromagnetically Coupled Multilayer by Spin-Transfer Torque," *Applied Physics Express* **3** (3) (2010).

- [93]. S. Bosu, et al., "Effect of chemical ordering on 90° interlayer coupling in epitaxial Co–Fe/Cr/Co–Fe thin films," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **369**, 211-218 (2014).
- [94]. E. Montebancho, et al., "Spin transfer torque nano-oscillators based on synthetic ferrimagnets: Influence of the exchange bias field and interlayer exchange coupling," *Journal of Applied Physics* **121** (1) (2017).
- [95]. M. Romera, et al., "Influence of interlayer coupling on the spin-torque-driven excitations in a spin-torque oscillator," *Physical Review B* **95** (9) (2017).
- [96]. G. Nagashima, et al., "Quasi-antiferromagnetic multilayer stacks with 90 degree coupling mediated by thin Fe oxide spacers," *Journal of Applied Physics* **126** (9) (2019).
- [97]. Shuu Horiike, et al., "Magnetic dynamics of quasi-antiferromagnetic layer fabricated by 90°magnetic coupling," *Japanese Journal of Applied Physics* **59** (SG) (2020).
- [98]. Y. Zhong, et al., "Determination of fine magnetic structure of magnetic multilayer with quasi antiferromagnetic layer by using polarized neutron reflectivity analysis," *AIP Advances* **10** (1) (2020).
- [99]. R. Arun, et al., "Effect of interlayer exchange coupling in spin-torque nano oscillator," *Journal of Applied Physics* **132** (9) (2022).
- [100]. I. Volvach, et al., "Spin-Transfer-Torque Oscillator with an Antiferromagnetic Exchange-Coupled Composite Free Layer," *Physical Review Applied* **18** (2) (2022).
- [101]. R. Arun, et al., "High-frequency oscillations in a spin-torque nano-oscillator due to bilinear coupling," *Physical Review B* **107** (22) (2023).
- [102]. M.A. Kuznetsov, et al., "Anisotropy of Neel “orange-peel” coupling in magnetic multilayers," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **474**, 104-106 (2019).
- [103]. K.-S. Moon, et al., "Exchange-biased magnetic tunnel junctions: Dependence of offset field on junction width," *Applied Physics Letters* **74**, 3690-3692 (1999).

- [104]. <https://hep.ph.liv.ac.uk/~jbland/JBland-Thesis-2002/node71.html#fig:rkky.pdf>
- [105]. P. Grunberg, et al., "Layered magnetic structures: Evidence for antiferromagnetic coupling of Fe layers across Cr interlayers," *Phys Rev Lett* **57** (19), 2442-2445 (1986).
- [106]. S. O. Demokritov, "Biquadratic interlayer coupling in layered magnetic systems," *Journal of Physics D: Applied Physics* **31**, 925-941 (1998).
- [107]. M. Rühlig, et al., "Domain Observations on Fe/Cr/Fe Layered Structures. Evidence for a Biquadratic Coupling Effect," *Physica Status Solidi (a)* **125** (2), 635-656 (1991).
- [108]. A. Fuss, et al., "Short-and long period oscillations in the exchange coupling of Fe across epitaxially grown Al-and Au-interlayers," *Journal of magnetism and magnetic materials* **103** (3), L221-L227 (1992).
- [109]. CJ. Gutierrez, et al., "Strong temperature dependence of the 90° coupling in Fe/Al/Fe (001) magnetic trilayers," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **116** (3), L305-L310 (1992).
- [110]. B. Heinrich, et al., "Bilinear and biquadratic exchange coupling in bcc Fe/Cu/Fe trilayers: Ferromagnetic-resonance and surface magneto-optical Kerr-effect studies," *Phys Rev B Condens Matter* **47** (9), 5077-5089 (1993).
- [111]. M. E. Filipkowski, et al., "Giant Near-90 degrees Coupling in Epitaxial CoFe/Mn/CoFe Sandwich Structures," *Phys Rev Lett* **75** (9), 1847-1850 (1995).
- [112]. PAA. Van der Heijden, et al., "Evidence for roughness driven 90 coupling in Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/NiO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> trilayers," *Physical Review Letters* **82** (5), 1020 (1999).
- [113]. S. S. Yan, P. Grünberg, and L. M. Mei, "Magnetic phase diagrams of the trilayers with the noncollinear coupling in the form of the proximity magnetism model," *Journal of Applied Physics* **88** (2), 983-987 (2000).
- [114]. H. Fukuzawa, et al., "Specular spin-valve films with an FeCo nano-oxide layer by ion-

- assisted oxidation," *Journal of Applied Physics* **91** (10), 6684-6690 (2002).
- [115]. C. H. Lai and K. H. Lu, "Biquadratic coupling through nano-oxide layers in pinned layers of IrMn-based spin valves," *Journal of Applied Physics* **93** (10), 8412-8414 (2003).
- [116]. J.C. Slonczewski, "Overview of interlayer exchange theory," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **150** (1), 13-24 (1995).
- [117]. S.O. Demokritov, "Biquadratic interlayer coupling in layered magnetic systems," *Journal of Physics D: Applied Physics* **31** (8), 925 (1998).
- [118]. Y. Tanaka, et al., "Influence of surface ligands on saturation magnetization of FePt nanoparticles", *Applied Physics Letters* **92**, (9) (2008).
- [119]. T. Shima, et al., "Preparation and magnetic properties of highly coercive FePt films," *Applied Physics Letters*. **81**, 1050-1052 (2002).
- [120]. R. Bonin, et al., "Dependence of magnetization dynamics on magnetostriction in NiFe alloys," *Journal of Applied Physics* **98**, (12) (2005).
- [121]. M. Venkatesh, et al., "Study of terahertz emission from Ni films of different thicknesses using ultrafast laser pulses," *Optical Materials Express* **6**, 2342-2350 (2016).
- [122]. F. Bruckner et al., "magnum.np: a PyTorch based GPU enhanced finite difference micromagnetic simulation framework for high level development and inverse design," *Sci Rep* **13**, (12) (2023).

## 謝辞

本論文の完成にあたり、多くの方々から多大なるご指導、ご支援をいただきました。ここに深く感謝の意を表します。

まず初めに、指導教員である九州大学の湯浅裕美教授に、心より感謝申し上げます。湯浅教授に初めてお会いしたころ、「研究」の入り口に立ったばかりの私にとって、教授は雲の上の存在であり、新進気鋭の若手研究者として憧れの的でした。湯浅先生は、研究の方向性を示してくださり、多くの建設的な助言をいただきました。特に、困難な局面に直面した際には、理論的な考察や実験の進め方についての的確なアドバイスをいただき、研究を続ける原動力となりました。その寛容で熱心なご指導がなければ、この研究を成し遂げることはできませんでした。その懐の深さには感嘆するとともに、この恩義は一生忘れることができません。偉大な恩師を目の前にすると、時々眩暈がするほど遠く感じることもありますが、大きな目標としてその背中を追いかけたいと思っています。今後も研究を始めとして、様々な面で、ご指導、ご助力を頂ければこの上ない幸せです。

次に、黒川雄一郎助教には、心より感謝申し上げます。私が修士課程1年次に入学した当時、スピントロニクスについてほとんど知識がなかった私に、黒川先生は常に忍耐強く、熱心にご指導くださいました。そのおかげで、スピントロニクスの魅力を深く理解することができました。また、黒川先生は実験計画の立案や結果解析においても多大な助けをくださいました。特に、研究の詳細に関して具体的で的確な助言をいただき、それによって本研究の精度を大きく向上させることができました。黒川先生の助言は、研究を推進する上で非常に貴重なものであり、深く感謝しております。

また、研究を支えてくださった技術スタッフの皆様にも、厚く御礼申し上げます。特に千田功様には、実験環境の整備、装置の保守点検、機器のメンテナンスにおいて多大なご尽力をいただきました。千田様は古希を迎えられた現在も、日本の学术界のために

そのエネルギーを燃やし続けておられます。まさに、東漢時代の曹操が詠んだ詩、「老驥櫪に伏すとも、志千里に在り」を体現されている方です。千田様の全面的なご協力があってこそ、実験を円滑に進めることができました。この場を借りて、心より感謝の意を表します。

さらに、岡崎美紀様にも深く感謝申し上げます。岡崎様の秘書業務におけるきめ細やかなご対応のおかげで、書類提出に関する煩雑な作業から解放され、研究に集中することができました。それだけでなく、出張費の精算に関しても多大なご助力をいただきました。これらのサポートのおかげで、私は研究活動に専念することができました。岡崎様の温かいご支援に心より感謝申し上げます。

また、慶應義塾大学理工学部物理学科の能崎幸雄教授と山野井一人助教にも深く感謝申し上げます。私が慶應義塾大学で実習を行った際、お二方には多大なるご支援をいただきました。能崎教授は、VNA-FMR 実験装置を提供してくださっただけでなく、私の実験を細やかにご指導いただき、建設的なアドバイスを惜しみなくくださいました。また、能崎教授は非常にユーモアがあり、親しみやすい方であり、教授という肩書きにとらわれることなく、気さくに接していただきました。さらには、おすすめのアニメまで教えていただき、非常に楽しい時間を過ごすことができました。一方、山野井助教は実験の際に細心の注意を払いながら指導してくださり、その丁寧なサポートのおかげで、実験において多くの成長を遂げることができました。お二方の温かいご指導とご支援に、心より感謝申し上げます。

また、LLG マイクロマグネティックシミュレーションでプログラムをはじめとしたご支援を賜りました九州大学システム情報科学研究院 田中輝光准教授に深く感謝いたします。磁場中アニール装置や試料振動型磁力計等の実験装置を使わせていただき、多くの交流の場を設けてくださいました九州大学理学研究院物理学部門 木村崇教授に深く感謝いたします。SQUID 装置を用いた磁化測定にご協力いただいた九州大学大学院

工学研究院エネルギー量子工学部門 河江達也准教授と光田暁弘准教授に深く感謝いたします。

また、先導的人材育成フェローシップ支援室 福田晃教授、小林薫様に深く感謝いたします。

また、論文審査会の主査システム情報科学研究所 電気システム工学部門吉田敬教授に深く感謝いたします。

また、日本学術振興会 (JSPS)、科研費 (KAKENHI) (Grant No. JP23K22827, JP22KK0056, JP24H00030, JP24H02235, JP24H02235)、文部科学省の次世代新型統合回路センター設立のためのイニシアティブ (X-NICS)、大阪大学スピントロニクス研究ネットワークセンター (Osaka)、科学技術革新の創造に向けた大学フェローシップの確立のための JST (JST 創造的学術研究支援制度) (Grant No. JPMJFS2132)、慶應義塾大学物理学科、慶應義塾大学スピントロニクス研究ネットワークセンターに感謝いたします。

D2 へ

また、D2 の仲間である張麟さん、Nur Amirah binti Zahrin さん、そして Cheng Tsz Chung (Jed) さんにも感謝の意を表します。これまでの数年間、三人の存在が私の研究生活を支えてくれました。三人の研究テーマに関する知識を理解し吸収する過程で、私自身の研究キャリアに多大な恩恵を受けることができました。それに加え、物理という未知の大陸に対する興味をさらに深めることができました。特に、Jed さんにはコンピューターに関する知識の面で多くの助言をいただきました。そのおかげで、自身の研究課題において大きな進展を遂げることができました。このような助け合いがあったからこそ、研究生活をより充実したものにすることができました。三人の友情とサポートに、心から感謝いたします。

M2 へ

また、M2 の大石晟矢さんと徳永和彦さんにも感謝申し上げます。お二人の存在が私の研究生活において大きな支えとなりました。徳永さんとは、特に夜遅くまで量子力学に

ついて議論を交わす時間が非常に刺激的でした。その過程は、まさに「千金は手に入れやすいが、知己は求め難い」、さらに「高山流水を曲に作り、それがわかる人に出遭う」という表現がぴったりの体験でした。同じテーマを深く理解し、共有できる相手がいることの喜びを強く感じました。一方、大石さんは車やビデオゲームが大好きで、この二つの趣味は私自身の興味とも一致していました。研究の合間や食事の後に、大石さんと趣味について話し合う時間は、私の研究生活に多くの楽しさをもたらしてくれました。お二人のおかげで、研究以外の時間も充実し、楽しい思い出が数多くできました。この場を借りて、心より感謝の意を表します。

M1、B4 へ

M1 の田口正宗さん、唐宇健さん、山下航平さん、そして B4 の長谷川博一さん、佐原脩飛さんにも感謝申し上げます。皆さんと共に過ごした日々の中で、かつての自分自身を思い出す瞬間が多くありました。皆さんの若い情熱とエネルギーに触れるたびに、私自身も刺激を受け、初心に立ち返ることができました。「青は藍より出でて藍より青し」のように、さらに成長し、新たな高みを目指して行ってほしいと心から願っています。特に佐原さん、大石さん、そして私の3人で、毎週のグループミーティング後に美味しいラーメン店を探しに行った時間は、私にとって特別な思い出です。そんな楽しいひとときが、研究生活の中での大切な息抜きとなりました。このような思い出を胸に、これからも皆さんのご活躍を楽しみにしています。本当にありがとうございました。

愛する家族へ

私の研究期間中、心身ともに支えてくださった家族に深く感謝申し上げます。父の愛は山のように揺るぎなく、母の愛は水のように尽きることがありません。そのような無償の愛と育ててくださった恩を、私は一生忘れることはありません。ここまで成長できたのは、あなたたちの子どもとして生まれ育つことができた私の幸運です。「孝は百行の本なり」という言葉があるように、親孝行こそがすべての徳の基本であると感じてい

ます。これからもその教えを胸に刻みつつ、皆さんへの感謝を忘れず歩んでいきます。  
改めて深い敬意と心からの感謝を捧げます。ありがとうございました。

最愛の彼女へ

最後に、私の研究期間中、精神的な励ましとサポートをしてくれた彼女に深く感謝の気持ちを伝えたいと思います。留学という理由で遠く離れた場所にいても、あなたは私を支え続け、何の不満も言わず、一緒に歩んでいくことを選んでくれました。これからもあなたが私の人生の道のりで力になってくれることを心から願っています。あなたへの感謝の気持ちは言葉では表しきれませんが、心から感謝しています。いつもありがとう。