

新分野創成利用課題報告 ナノスケール実スピンデバイス開発に向けた新しい放射光利用

京都大学 化学研究所

代表責任者 小野 輝男

東北大学 多元物質科学研究所

分担責任者 岡本 聡

大阪大学 産業科学研究所

分担責任者 千葉 大地

名古屋大学 大学院工学研究科

分担責任者 水口 将輝

名古屋工業大学 大学院工学研究科

分担責任者 壬生 攻

Abstract

スピンと電荷の自由度を物質の多様な機能として活かすナノスピndeバイスの研究は、巨大磁気抵抗の発見とその磁気ヘッドへの応用に端を発し、不揮発性磁気メモリやマイクロ波発振器など多様な製品を産み出す学術基盤である。本研究計画では、磁気コンプトン解析 (BL08W)、核共鳴散乱解析 (BL09XU)、表面・界面 X 線回折 (BL13XU)、オペランドナノ電子状態解析 (BL25SU、BL39XU)、光電子分光 (BL09XU、BL17SU、BL47XU) など多岐にわたるビームラインを活用し、先端放射光ツールを駆使して構造・電荷・スピンへの包括的な解析アプローチを行った。本研究課題で得られた、個別の研究では実現しえない情報の共有やノウハウの蓄積によるシナジー効果の創出は、「放射光による物質デザイン・ナノデバイス創成」という新分野と位置づけられ、サステナブル社会の実現に必要な新規高性能機能性材料およびデバイスの開発に資するものである。

1. はじめに

スピンと電荷の自由度を物質の多様な機能として活かすナノスピndeバイスの研究は、巨大磁気抵抗の発見とその磁気ヘッドへの応用に端を発し、不揮発性磁気メモリやマイクロ波発振器など多様な製品を産み出す学術基盤として日本が世界をリードしている。本分野では先端計測基盤技術である SPring-8 の利活用についても多数の実績があるが、これまでは各大学・研究機関における小規模かつ個別の研究に限定され、ナノスピndeバイス分野が求める計測基盤技術としての役割が不明瞭であった。このような背景のもと、2015B 期より新分野創成利用「ナノスケール実スピンデバイス開発に向けた新しい放射光利用 (代表責任者：大野英男 (東北大学))」が採択され、研究者相互の触発が生み出すシナジー効果により新しい視点

での研究が展開され、放射光を利用した統合的研究スタイルの有用性が実証された。この2年間で得られた経験と研究成果をもとにさらに統合的研究を推し進めることで、飛躍的成果につながるため継続することとなった。

本研究計画では、磁気コンプトン解析 (BL08W)、核共鳴散乱解析 (BL09XU)、表面・界面 X 線回折 (BL13XU)、オペランドナノ電子状態解析 (BL25SU、BL39XU)、光電子分光 (BL09XU、BL17SU、BL47XU) など多岐にわたるビームラインを活用し、先端放射光ツールを駆使して構造・電荷・スピンへの包括的な解析アプローチを行った。このような個別の研究では実現しえない情報の共有やノウハウの蓄積によるシナジー効果の創出は、「放射光による物質デザイン・ナノデバイス創成」という新分野と位置づけられ、サス

テナブル社会の実現に必要な新規高機能性材料およびデバイスの開発に資するものである。

本新分野創成利用課題では、様々なビームラインでの多様な実験と、半年に一度の研究会による研究者間の情報交換を通して、基礎から実用にわたるスピントロニクス研究を効率的に進めた。研究実施体制として、分担責任者の壬生攻が、壬生攻グループ、櫻井浩グループから構成されるナノスピンドバイスのマイクロ磁性のチームを総括した。分担責任者の千葉大地が、千葉大地グループ、大野英男グループ、小野輝男グループから構成されるナノスピンドバイスの電界誘起物性のチームを総括した。分担責任者の岡本聡が、岡本聡グループ、佐藤利江グループ、野村光グループから構成されるナノスピンドバイスの超高速ダイナミクスのチームを総括した。分担責任者の水口将輝が、水口将輝グループ、桜庭裕弥グループ、遠藤哲郎グループから構成されるナノスピンドバイスの電子構造・結晶構造解析のチームを総括した。さらに各グループの下には共同実験者として若手の研究者や大学院生が参画した。各チーム間の連携は、代表責任者のリーダーシップのもと、主として分担責任者を通じて密接にとり行われた。なお、『期間内であればビームラインを追加でき、横断的に利用可能』、『実験責任者個人としてのみでなくグループとしても利用可能』という、新分野創成利用課題ならではの特徴を活かし、以下のような取り組みを行った。(i) 分野の裾野の拡大を意識し、いくつかのグループに4期の実施期間の途中から参画いただいた。これにより、2015B期には6ビームラインの利用であったが、最終的には8ビームラインへ利用を拡大した。(ii) いくつかのテーマは、複数グループの参画により行われた。このように、より有機的な研究成果を創成するための積極的な取り組みを行った。以下に、具体的な成果の一部を述べる。

2. ミクロ磁性

核共鳴散乱ビームライン (BL09XU) では、反強磁性物質であるヘマタイト ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) の(0001)配向薄膜の原子磁気モーメントの方向制御の実験が試みられた。磁気記録やスピントロニクスの分野では、磁気記録ビットの安定化や磁気スイッチングの高速化などのために、反強磁性材料を実用デバイスに有効利用

する動きが活発化している。とりわけ、強磁性垂直磁化膜との整合性が良い、原子磁気モーメントの方向が膜面に垂直方向に向いた反強磁性薄膜の作製と、外的刺激によるその方向の制御が重要と考えられる。一般に、反強磁性構造を持つ超薄膜の磁気特性を実験的に調べることは容易ではない。そこで、原子核によるガンマ線あるいは X 線の共鳴吸収スペクトルを通じて固体の局所的な磁性を調べることが出来るメスバウアー分光法の活用が有望になってくる。メスバウアー分光測定は通常、放射性同位元素の線源を用いて行われるが、厚い基板に作製された超薄膜試料に関しては、放射光メスバウアー分光法(放射光核共鳴散乱法)の有効利用に期待が寄せられている。

BL09XUにおける実験では、 ^{57}Fe 核の共鳴エネルギーに合わせた単色パルス放射光を試料に入射し、試料中の ^{57}Fe 核によって共鳴散乱された放射光を時間スペクトルとして検出する測定法を用いた。ヘマタイト薄膜における低温領域での垂直磁気モーメント配向状態から高温領域での面内磁気モーメント配向状態への転移(モーリン転移)は、時間スペクトルのパターンの違いとして明瞭に観測される。

一連の実験の結果、サファイア (Al_2O_3) (0001)基板上に作製されたヘマタイト(0001)薄膜のモーリン転移温度が、膜厚の減少とともに下降すること、イリジウム (Ir) などの重金属ドーピングにより上昇すること、 Cr_2O_3 バッファ層の挿入により上昇することなどが示され、実用スピンドデバイスに必要な室温付近以上で垂直方向の原子磁気モーメントを持つ反強磁性ヘマタイト超薄膜の作製指針が得られた。

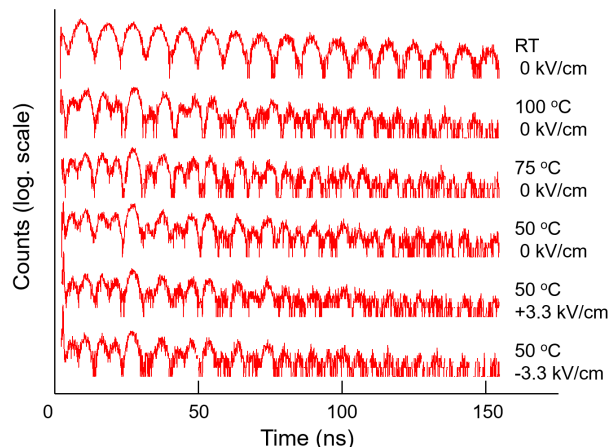


図1 イリジウムドーピングヘマタイト薄膜の核共鳴散乱時間スペクトルの温度依存性・印加電圧依存性。

一方、電圧印加により、ヘマタイト薄膜のモーリン転移を能動的に制御することが可能かどうかを探るため、モーリン転移温度前後の温度において膜面垂直方向に電圧を印加した際の核共鳴散乱時間スペクトルの変化が調べられた(図1)。薄膜の厚さを増やして薄膜の絶縁性を強化し、上部電極層の厚さを増やして電極接触の一様性を担保するなど、試料構造および電極構造に改良を加え、最大 5.0×10^3 kV/cm (100 V/200 nm) の電場を印加した状態で核共鳴散乱スペクトルを測定する実験を行った。しかしながら、図1中の印加電圧の異なる 50°C での3つのタイムスペクトルから分かるように、電圧の印加やその極性の切り替えに伴うスペクトルの変化が明確に観測されるには至らなかった。

コンプトン散乱ビームライン (BL08W) では、磁気コンプトン散乱測定を通じた CoFeB/MgO 界面や CoFeB/Ta 界面のスピ選択磁化曲線と軌道選択磁化曲線の分離や磁気量子数選択磁化曲線の測定が試みられた^{11,2)}。さらに、遷移金属-希土類金属合金薄膜における「角運動量補償温度」の実測が試みられた。後者の実験は、小野らのグループが $Gd_{23}Fe_{67}Co_{10}$ アモルファス合金の磁壁の移動速度の温度変化の観測において、全磁化がゼロになる「磁気補償温度」160 K とは異なる 230 K 近傍で移動速度が最大となることを見出し、この温度が、全角運動量がゼロとなる角運動量補償温度に対応する可能性を示唆したことを受けたもので^{3,4)}、本課題の研究会を通じて提案されたものである。

磁気コンプトン散乱プロファイルの温度依存性の測定は、182.6 keV の円偏光 X 線を用いて、 $Gd_{23}Fe_{77}$ アモルファス垂直磁化膜に対して行われた。スピ磁化(スピ角運動量)の温度変化および軌道磁化の温度変化を求め、 g 因子の見積もりから「角運動量補償温度」を実験的に求めることに挑戦した。この試料では、飽和磁化が 131 K 付近でゼロとなり、この温度が磁気補償温度に対応する。磁気補償温度より高温側および低温側での磁気コンプトンプロファイルを、フィッティングにより純 Fe の磁気コンプトンプロファイルと Gd 4f の磁気コンプトンプロファイルに分離した。その結果、磁気補償温度より高温側では Fe が磁場の方向を向き、低温側では Gd が磁場の方向を向くことが分かった。

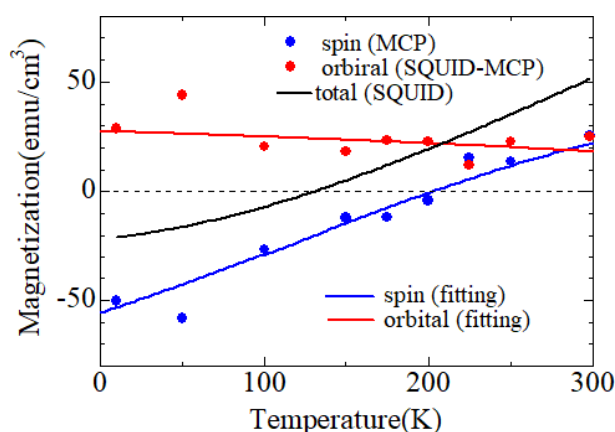


図2 磁気コンプトン散乱と SQUID 磁力計で求めたスピ磁化、軌道磁化および全磁化の温度依存性。

さらに、磁気コンプトンプロファイルの積分値からスピ磁化を求めた(図2)。スピ磁化は 207 K 付近でゼロとなり、この温度がスピ磁気補償温度に対応することが示された。また、フィッティングによる解析から、Fe、Gd のスピ磁化の大きさを求めると各々 1100 emu/cm^3 、 1200 emu/cm^3 程度となり、温度変化はほとんどみられなかった。全磁化とスピ磁化の差から軌道磁化を求めると 25 emu/cm^3 程度となり、温度変化は同様に少なかった。軌道磁化が Fe に起因すると考えると、Fe スピ磁化に対する軌道磁化の寄与は 2%であった。この値は $Gd_{40}Fe_{60}$ アモルファス合金の先行研究(軌道磁化の寄与 1.6%)と矛盾しない。これらの結果から g 因子を見積もると、 $g = 2.04$ 程度と $g = 2$ に近くなった。以上の結果を用いて角運動量補償温度を求めると 202 K となった。すなわち磁気補償温度、スピ磁気補償温度、角運動量補償温度が異なることを実験的に示唆するものである⁵⁾。

3. 電界誘起物性

反強磁性体は、原子スケールでマイクロな磁化を有するが、隣り合う磁化が互いに打ち消しあうように整列しているため漏れ磁場が発生せず、外部磁場に対しても磁気モーメントはほとんど応答しない。その性質から、強磁性体に比べて、磁化方向を制御・検出することが一般的に困難であると考えられてきた。しかしながら、最近の研究結果⁶⁾から、強磁性体と同様に、スピ流と反強磁性体の磁化との相互作用(スピトルク効果)が存在することが実験的に示唆されており、ス

ピン流による反強磁性体の磁化方向の制御、磁化ダイナミクスの制御などの研究が盛んに行われている^[7]。

我々は、図3(a)の概念図のようなPt/NiO/Ptの三層構造からなる試料を作製した^[8]。NiOは、(111)面内でスピニングが平行に揃い、隣接する(111)面間のスピニングが反平行となる絶縁性の反強磁性体であり、MgO(111)基板上に作製することで図のような成長方向に互い違いのスピニングが実現する。図ではNiOのスピニング軸は電流と平行となっているが、この状態とスピニング軸と電流が垂直な状態とは区別できるはずである。電流

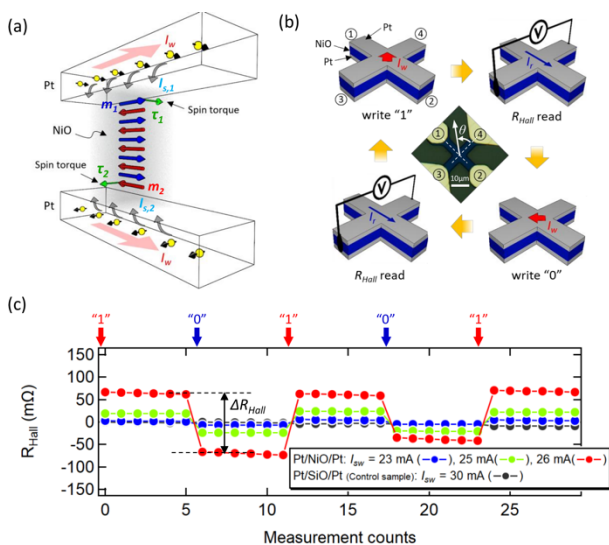


図3 (a)Pt/NiO/Pt 三層構造において、Ptのスピニング効果によりスピントルク効果を受けてNiOの磁気モーメントが回転する原理、(b)電流書き込み(“1”および“0”)・読み出し方法、(c)書き込み操作後のホール抵抗の変化。

(I_w)を流すとPtのスピニング効果によって生じたスピニングがNiO界面に流れ込み、スピントルク効果によりNiOの磁気モーメントを回転させる。図1(b)に示したような書き込み・読み出し手法を用いて、実際に書き込みにより素子のホール抵抗が変化することを示している(図3(c))。

図4は、5 μm 幅の素子における書き込み電流印加後のサンプル表面の磁気線二色性光電子顕微鏡画像(XMLD-PEEM画像)である。実験はBL17SUに設置されているSPELEEM装置を用いて直線偏光X線を素子に入射し、Ni-L₂端スペクトルの変化を画像化した。コントラストはそれぞれ図示した方向のネールベクトルを持つNiO磁気ドメインに対応している。実は、書き込みにおいてすべてのNiOのネールベクトルが一斉回転しているわけではなく、ドメインを作り一部のみが回転していることが見て取れる。これは、図3(a)に示したような状況がサンプルの一部でのみ実現しているということを示唆している。本実験や他の報告で得られているネールベクトル回転の閾電流密度は概ね $10^6 \sim 10^7$ A/cm²程度であり、強磁性体の磁化反転に必要なそれと同程度である。

フレキシブル基板上へ形成したスピニング素子へ応力を加えると、原子間隔が変化するとともに、磁性も変化する。特にナノ薄膜では、%オーダーの大きなひずみを加えても磁気特性がリバーシブルに変化する。単純な例としてはひずみによる磁化方向変化を磁気トン

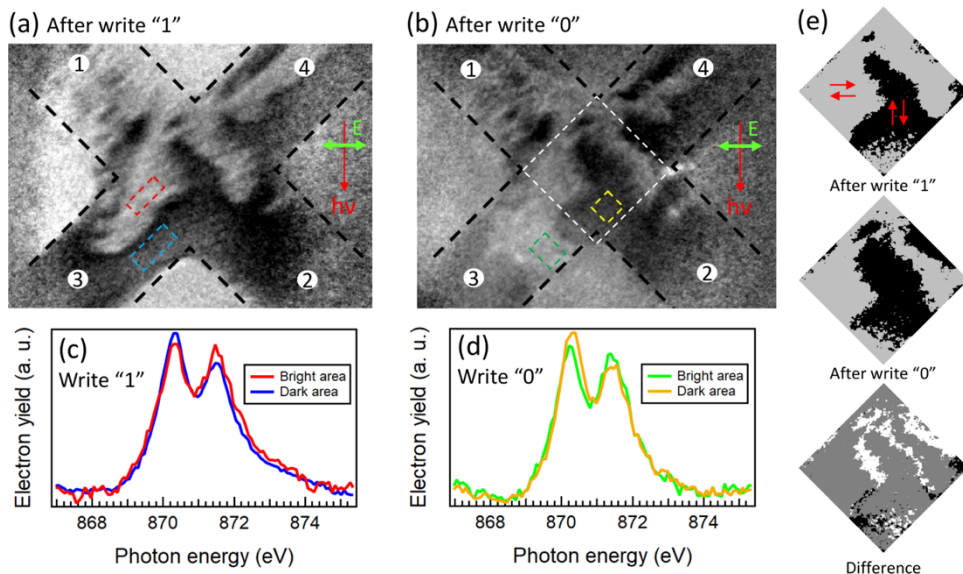


図4 書き込み“1”および“0”後のXMLD-PEEM画像(a,b)、およびNi-L₂端のスペクトル(c,d)。(a,b)の明暗を強調したもの、および“1”状態と“0”状態の差分(e)。赤矢印はドメイン内での磁気モーメントの方向。

ネル接合の抵抗変化として拾うひずみゲージへの応用が考えられるが⁹⁾、ナノ薄膜やその積層構造を舞台とするスピントロニクスセンシング範囲を、磁界から力学量へと広げる大きな意義がある。広域X線吸収微細構造(Extended X-ray Absorption Fine Structure: EXAFS)により、フレキシブル基板上に製膜したFeやCo薄膜の平均的な原子間隔変化を元素選択的に観測したところ、下地層の厚みなどにもよるが、基板へ意図的に加えたひずみの30-60%程度がこれらの薄膜にトランスファしていることが分かった¹⁰⁾。このように、正確なひずみ量を計測することで、磁気弾性結合との関係性などを議論することが可能となった。

また、ひずみによる物性変化の観点からも興味が尽きないが、例えばフレキシブル基板上的TbFeフェリ磁性薄膜においては、その補償温度がひずみにより変化することを見出した(図5(a))。ひずみをON/OFFした試料をX線磁気円二色性(X-ray Magnetic Circular Dichroism: XMCD)測定することにより、Fe、Tbともにスピン磁気モーメントがひずみにより有意に変化していることが分かった(図5(b))。結果とシミュレーション結果を比較考察することにより、原子間のexchange couplingが変化していることが補償温度変化の起源である可能性が示唆された¹¹⁾。

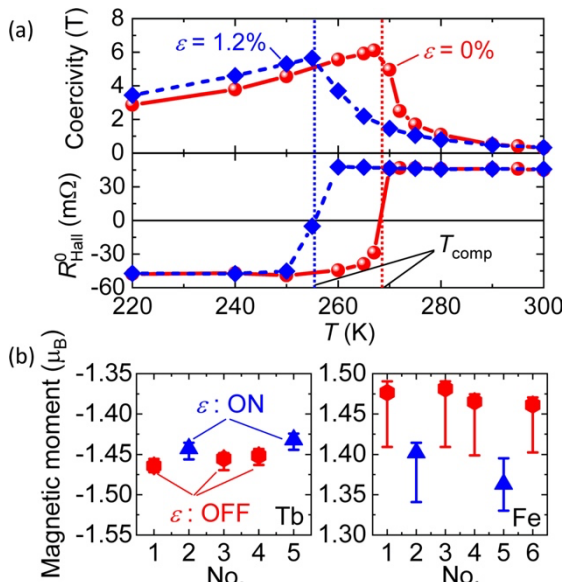


図5 フレキシブル基板上的TbFeフェリ磁性薄膜における補償温度のひずみによる変化(a)。 (a)の上のパネルは保磁力、下のパネルはゼロ磁場における異常ホール抵抗の温度依存性である。XMCDによって観測したTbとFeのスピン磁気モーメント(b)。

4. 超高速ダイナミクス

以下、ナノスケールでの磁気イメージングの結果を紹介する。まず、図6(a)に示すナノサイズのスピントロジカル構造である磁気Skyrmionは、その構造安定性ならびに、熱などにより容易に運動できることから次世代スピントロニクスデバイスへの応用が期待されている。しかしながら、このSkyrmionは外部磁場に敏感であり、高空間分解能磁化測定手法として一般的に用いられている磁気力顕微鏡法では、その状態を変化させてしまうという問題がある。そこで図7に示すナノXMCD/Scanning Probe Microscopy (SPM)複合装置を用いることでSkyrmionの観察を実施した。本装置は、原子間力顕微鏡プローブをナノビーム集光

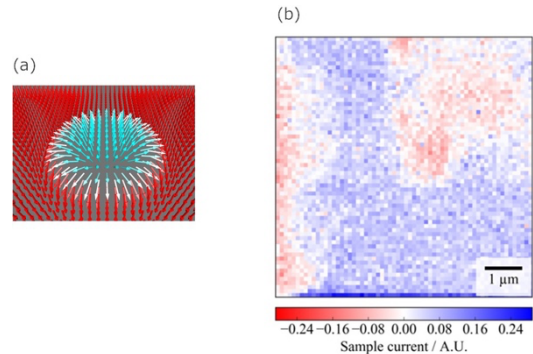


図6 (a)磁気Skyrmionのイメージ図(b)ナノXMCD/SPM複合装置によって観測した磁気Skyrmion。

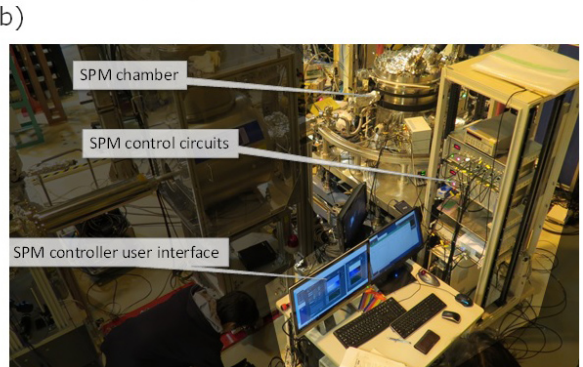
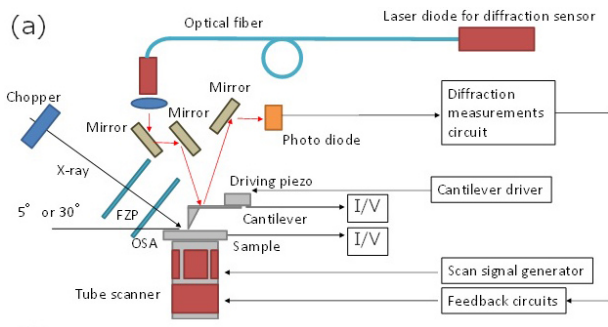


図7 ナノXMCD/SPM複合装置の、(a)模式図と、(b)装置写真。

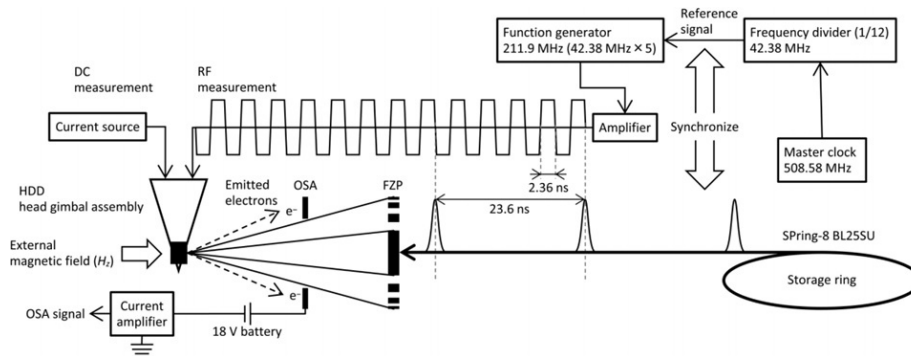


図8 HDD 記録ヘッド主磁極の実時間計測のためのセットアップ概略図。

された軟 X 線磁気円二色性検出器として用いるものであり、装置およびプローブも独自開発し、BL25SU に設置した。さらに制御系に Python3/Jupyter notebook を使用することにより、実験手順と実験結果の併記が可能であり、さらに実験結果を Python で解析、次のコマンド指示まで自動化可能となった。その結果、放射光位置合わせなどのプロセスにかかる時間を半減することができた。さらに制御手法の再利用も容易であることも特徴である。本装置を用いた観測結果の一例を図 6(b) に示す。明瞭なナノスケールの磁気コントラスト像が確認できている。このサイズは想定される磁気 Skyrmion と同程度であることから、本計測手法によって磁気 Skyrmion の観測に成功したものと判断している。

次に、ハードディスクドライブ (HDD) の記録ヘッドの実時間観測について紹介する。HDD はデータセンターにおける大容量情報ストレージデバイスとして現代の情報インフラの重要な一旦を担っている。最先端 HDD の記録ヘッド先端の主磁極はナノサイズに達しており、GHz 帯の高速での磁化スイッチング動作を行っているが、その駆動状態の観測は極めて困難であった。この課題に対して、BL25SU に設置されたナノ X 線磁気円二色性顕微鏡を用いて、さらに X 線パルスとヘッド駆動周波数の同期をとることで、記録ヘッドの駆動状態の実時間計測を試みた。図 8 に測定セットアップ概略図を示す。記録ヘッドは大振幅の高周波電流で励磁されるため、一般的な全電子収量法の適用が困難である。そのため、試料と FZP の間に設置され、高次回折光遮蔽に用いられる OSA を 2 次電子検出器として利用する新たな測定法を採用した。本測定法は、スピントロニクス素子のように電流・電圧

印可される素子に対して広く適用可能な手法として BL25SU で開発されたものである^[12]。図 9 に HDD 記録ヘッドの概略図と今回用いた記録ヘッドの記録面側から見た主磁極 (Main pole) 付近の SEM 像を示す。実際の測定には、コンタミネーション除去や駆動アンプをチャンバーの外側に移動するなど、様々な工夫が必要であったが、最終的に図 10 に示すように、記録ヘッド主磁極の磁化状態のスナップショット像を得ることに成功し、サブナノ秒での磁化スイッチング動作を確認できた^[13]。これは世界で初めての成果である。これにより、HDD のさらなる高性能化を可能とする次世代記録ヘッド開発への貢献が期待できる。

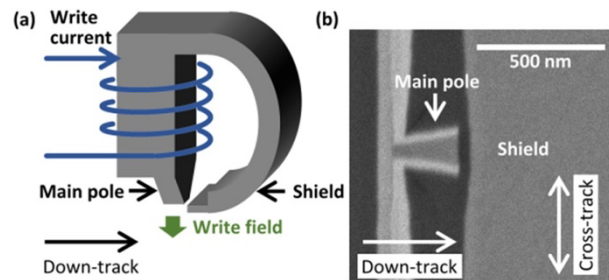


図9 (a) HDD 記録ヘッドの概略図と、(b) 記録面から見た主磁極 (Main pole) 付近の SEM 像。

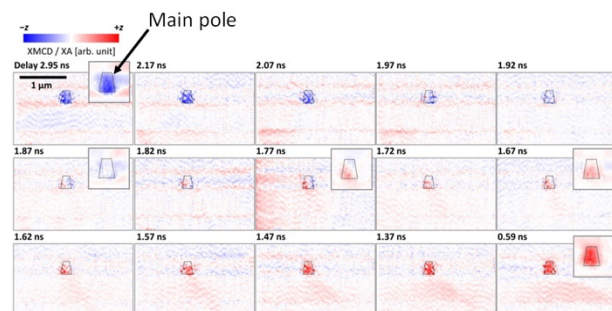


図10 HDD 記録ヘッドの主磁極 (Main pole) の磁化状態のスナップショット像。

5. 電子構造・結晶構造解析

スピントロニクス分野において、結晶の原子規則度とその電子構造が物性におよぼす影響は重要である。例えば、ハーフメタリックホイスラー合金材料をスピン偏極電子源へ応用する場合、スピン偏極度に原子規則度や電子構造が大きく寄与する (図 11)。以下に、様々なアニール温度で作製した $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ge}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})$ (CFGG)ホイスラー合金薄膜の原子秩序と電子構造を異常分散 X 線回折 (AXRD) を使用して調査した結果を紹介する。マグネトロンスパッタ法によって作製した CFGG 薄膜を異なるアニール温度 T_{an} (300~600°C) で 30 分間アニールした複数の試料を用いた。Cu-K α 源を使用したラボの XRD 測定において、002 と 004 のピークのみが観察され、CFGG 薄膜の(001)配向のエピタキシャル成長が確認された。また T_{an} の増加に伴い、ピーク位置がより低い角度にシフトすることが分かった。これは、格子定数が面外方向に拡大していることを示しており、この傾向は、MgO 基板との格子不整合によって引き起こされる CFGG 薄膜の面内引っ張り応力の解放によって説明できる。図 12 は、CFGG

ホイスラー合金 X_2YZ , XYZ

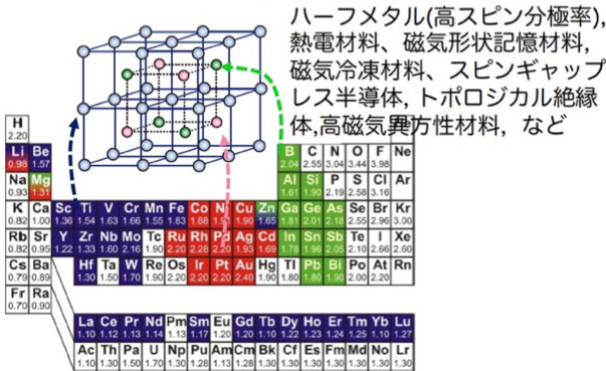
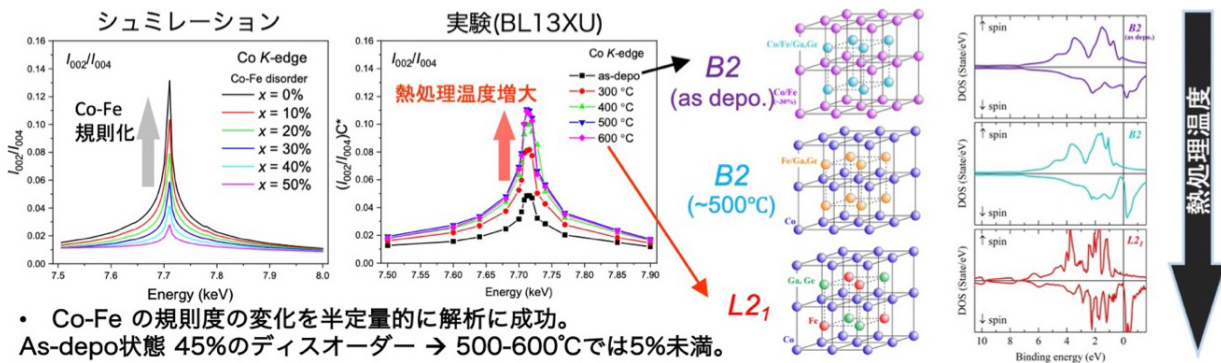


図 11 ホイスラー合金の模式図。

薄膜における I_{002}/I_{004} の X 線エネルギー依存性のシミュレーション結果と実験結果を示す。X 線エネルギーは、Co-K 吸収端周辺のエネルギー帯域である 7.5 から 7.9 keV の範囲で変化させた。シミュレーション結果は、Co-K 吸収端での I_{002}/I_{004} の強度比が不規則度 x の減少とともに増加することを示している。興味深いことに、Co-K 吸収端において as-depo 状態から $T_{\text{an}} = 500^\circ\text{C}$ まで T_{an} が増加すると、 I_{002}/I_{004} の増加が明確に検出され、Co-Fe の規則化が徐々に促進されることが示された。実験とシミュレーションの比較をすることにより、as-depo の試料の規則度と x は、それぞれ 0.66 と 0.46 と推定された。この結果は、as-depo の CFGG 薄膜がほぼランダムな Co-Fe 規則度を持っていることを示している。 T_{an} の増加に伴い、規則度は増加し、500°C でほぼ 1 になり完全な Co-Fe 秩序が形成されることを示している。また、 x も 500°C から 600°C まで変化しないことも分かった。以上の結果から、in-situ の CFGG 薄膜では Y/Z サイトに Ga 原子と Ge 原子がほぼランダムに存在する Co-Fe 無秩序状態にあると考えられる。 T_{an} が 500°C まで上昇すると、Co と Fe が B2 構造に規則化される。従って、Co と Fe はそれぞれ X サイトと Y/Z サイトを占める傾向が強まる。500°C では、Fe と Ga/Ge がほぼ秩序化し、600°C で部分的な B2 無秩序構造を含む L2_1 構造になると考えられる。この振る舞いは、原子空孔と各原子の交換活性化エネルギー計算により説明できる。Fe 原子はポテンシャル障壁が低いために Co サイトに形成される空孔に容易に移動できるが、Ga および Ge 原子は Co サイトを占有するエネルギーの不安定性のために移動がしにくい。これが、アニールによって Co-Fe 原子秩序が促進されるメカニズムである。Ga 原子と



・ Co-Fe の規則度の変化を半定量的に解析に成功。
As-depo 状態 45% のディスオーダー → 500-600°C では 5% 未満。

図 12 $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ 単結晶薄膜における X 線回折ピークのシミュレーションおよび実験結果。規則度との関係を示している。

Ge原子はFeサイトの空孔に移動し、L2₁構造を形成する必要があり、そのポテンシャル障壁はCoサイトの空孔へのFeの移動よりもはるかに高くなる。従って、CFGG薄膜でL2₁構造を形成するためには、500°Cを超える高いT_{an}が必要になると考えられる。以上のように、様々なアニール温度により作製したCFGG薄膜におけるCo-Feの規則化のメカニズムを、放射光を用いた異常分散X線回折により捉えることに成功した。これにより、ハーフメタリックホイスラー合金を使用した各種スピントロニクスデバイスのパフォーマンス向上のための知見が得られた^[14]。

水口 将輝 MIZUGUCHI Masaki

名古屋大学 大学院工学研究科

e-mail : mizuguchi.masaki@material.nagoya-u.ac.jp

壬生 攻 MIBU Ko

名古屋工業大学 大学院工学研究科

e-mail : k_mibu@nitech.ac.jp

参考文献

- [1] M. Yamazoe *et al.*: *J. Phys. Condens. Matter* **28** (2016) 436001.
- [2] H. Sakurai *et al.*: *Mater. Res. Express* **6** (2019) 96114.
- [3] K.-J. Kim *et al.*: *Nat. Mater.* **16** (2017) 1187-1192.
- [4] Y. Hirata *et al.*: *Phys. Rev. B* **97** (2018) 220403(R).
- [5] T. Ikebuchi *et al.*: *Magn. Soc. Jpn.* **45** (2021) 1-5.
- [6] P. Wadley *et al.*: *Science* **351** (2016) 587-590.
- [7] V. Baltz *et al.*: *Rev. Mod. Phys.* **90** (2018) 015005.
- [8] T. Moriyama *et al.*: *Sci. Rep.* **8** (2018) 14167.
- [9] S. Ota *et al.*: *Appl. Phys. Express* **12** (2019) 053001.
- [10] S. Ota *et al.*: *J. Appl. Phys.* **127** (2020) 173901.
- [11] S. Ota *et al.*: *Sci. Rep.* **11** (2021) 6237.
- [12] H. Suto *et al.*: *Appl. Phys. Express* **13** (2020) 043002.
- [13] H. Suto *et al.*: *J. Appl. Phys.* **128** (2020) 133903.
- [14] K. Goto *et al.*: *Phys. Rev. Mater.* **4** (2020) 114406.

小野 輝男 ONO Teruo

京都大学 化学研究所

〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

TEL : 0774-38-3103

e-mail : ono@scl.kyoto-u.ac.jp

岡本 聡 OKAMOTO Satoshi

東北大学 多元物質科学研究所

e-mail : satoshi.okamoto.c1@tohoku.ac.jp

千葉 大地 CHIBA Daichi

大阪大学 産業科学研究所

e-mail : dchiba@sanken.osaka-u.ac.jp