

平成 30 年 5 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2013～2017

課題番号：25220604

研究課題名(和文)電界効果による磁性の制御と誘起

研究課題名(英文)Controlling and Inducing Magnetism with Electric Field Effects

研究代表者

千葉 大地 (Chiba, Daichi)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：10505241

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 176,900,000円

研究成果の概要(和文)：情報の爆発が危惧される昨今において、磁気記録への期待はますます高まっている。中でも、磁化の効率的な操作は情報記録技術の高度化・省エネ化に資する重要な要素である。本研究では、「電界」を用いたエネルギーコストの低い磁化操作技術の発展とその基本原理を解明することを主眼に研究を行った。多角的な実験により、金属磁性体や、自然界では磁力を帯びていない非磁性体における磁性の電界効果のメカニズムが明らかとなった。これらの知見を活かし、高効率な電界誘起磁化反転や、磁気記録素子への電界書込のデモンストレーションに成功した。電界以外の磁化操作法にも積極的に取り組み、ナノ磁性薄膜の磁気記録以外の用途への展開も拓いた。

研究成果の概要(英文)：Improving a magnetic storage technique is crucial for the coming information explosion era. In particular, an efficient manipulation of magnetization is the key to further reduce energy consumption of magnetic storage devices. In this research project, we have mainly focused on improving the way of an electric-field-induced magnetization manipulation and understanding its fundamental mechanism. Various experiments have unveiled the underlying mechanism of the electric field effect on magnetism in ferromagnetic and non-magnetic metals. Using the knowledge from these experiments, we have demonstrated the efficient electric-field-induced magnetization switching and the electrical information writing in a magnetic race track memory. As well as using an electric field, we have investigated other ways for manipulating magnetization and opened up a novel application of magnetic nano-films in addition to the magnetic storage application.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：電界効果 強磁性金属 金属磁性 キュリー温度 界面 非磁性金属

1. 研究開始当初の背景

磁気記録では、磁性体の磁化方向を制御するため、磁界やスピン偏極した高密度電流が用いられてきた。一方、磁性体に絶縁層を介して電界を加えることで、その性質が変化し、磁化を操作できることが分かってきた。磁性体における電界効果の歴史は、代表者らが報告した強磁性半導体におけるキュリー温度 T_C の制御[1]に始まる。弱磁場下/無磁場下で電界による磁化操作が可能であることも示し[2,3]、磁気記録の高度化に向けたデバイス動作の原理実証を行ってきた。強磁性半導体での実証は低温であったが、その後、身近な金属の磁石である Co の磁力を室温付近で消したり元に戻したりすることに成功した[4]。デバイス構造を工夫することで、 T_C の変化量は、室温を挟んで 100 K にも到達している[5]。

そもそも、強磁性金属の T_C の電界制御が可能であること自体が当時容易には予想できなかった現象であり、メカニズムの解明に興味が集まっている。金属では、トーマスフェルミの遮蔽効果により、表面一原子層程度の領域でのみ電子濃度の変化が起こっているはずである。それが T_C の変化の原因の一つであると推察される。つまり理解すべき現象の舞台は金属と絶縁膜の界面現象である。この理解を通じ、磁化を効率的に操作することで、情報の書込電力を削減するという応用上の側面からも、電界効果は大きな貢献ができる。

2. 研究の目的

本研究の根本にある狙いは、電氣的に材料の機能開拓を可能にする手段-電界効果-を、材料の枠を超えて活用し、省エネ・高効率な利用展開・材料間の融合的な新機能の創発を図るものである。本研究では、その広い枠組みの中でも、身近な金属の磁性を電界効果で自在に操る手法を確立し、その背景に眠るサイエンスの理解と応用展開を目指すことを目的に提案を行った。特に、金属における磁性の電界効果のメカニズム解明・自然界では非磁性体として知られている金属における磁性誘起・局所的な磁化反転や磁性の電界効果のナノ構造への展開を具体的目標とした。

3. 研究の方法

強磁性・非磁性金属薄膜を主な舞台に、誘電層を介して電界を加え、その磁性を制御できる構造を作製し、各種実験を行った。様々なバックグラウンドを有する 4 名の分担者には、主に効率の高い電界印加方法を実現するための誘電構造材料に関し強力なお力添えをいただいた。また、測定や素子加工の幅広い知見を活かしご協力いただいた。ラボ実験では不可能な、電界による電子構造変化の同定は、連携研究者と共同で Spring8 において放射光実験を行った。その他、研究開始当初想定していた枠組みを大きく超える多数の研究者とも共同研究を行うことで、素子加工・測定・考察の幅を広げるだけでなく、新

しいアイデアや知見を得やすい研究体制を整えた。

4. 研究成果

(1) 磁性の電界効果のメカニズム (図 1)

電界効果を支配する電荷蓄積と酸化還元、強磁性金属に誘電体を介して電界を加えると、電荷蓄積により磁性が変化するが、条件によっては酸化還元反応が起こる。化学反応は高速な磁化操作には不適であり、条件を明らかとすべきである。本研究で明らかとなった化学反応が起こる条件は下記の二点である：(i) 誘電体としてイオン液体を用い、強磁性金属の Co が陰極となったとき [Appl. Phys. Express (2016)]、(ii) 誘電体として、酸素などのモバイルイオンが含まれる固体誘電体 (HfO) を意図的に使用した際 [Appl. Phys. Lett. (2018)]。以降の結果は基本的には電荷蓄積モードでのものである。

保磁力と磁気異方性
Co 薄膜の保磁力が、磁壁移動と磁区の核生成のどちらによって決まるかによって、電界による保磁力と磁気異方性の変化の方向は必ずしも一致しないことを示した [Phys. Rev. B (2017)]。また、 T_C に近い温度と T_C より十分に低い温度で、磁気異方性の電界による変化の方向は逆転することが分かった [Appl. Phys. Express (2013)]。これは、 T_C の変化の方向と磁気異方性の変化の方向が根本的に逆であることを示しており、理論予測[6]とも矛盾しないことを示した。

ひずみと磁気異方性
基板と、その上に製膜した強磁性金属薄膜の熱膨張係数の差から、低温では強磁性金属薄膜に内部ひずみが生じ、電子状態が変化する。これに起因し、Si と GaAs 基板上の強磁性金属では、磁気異方性の電界効果が温度により大きく異なることを見出した [Appl. Phys. Express (2018)]。これは、ビルトインひずみの付与が、高い制御効率への指針となることを示す重要な結果である。

誘電材質と磁気異方性
超高誘電率を示す SrTiO₃ を用い、低温ではあるが従来の磁気異方性の変調効率を 3 桁上回る超巨大磁気異方性変調を観測した [Appl. Phys. Lett. (2017)]。まさに電荷蓄積量が異方性変調を決定づける結果である。



図1 多角的に磁性の電界効果を解明。

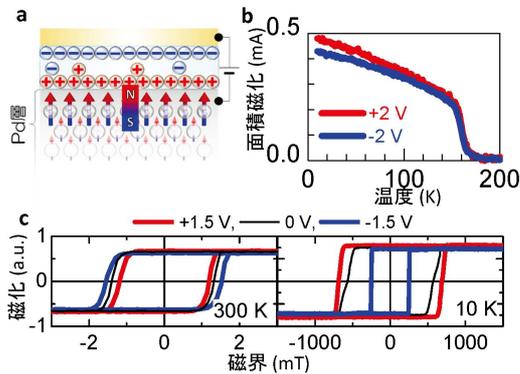


図2 (a)素子構造の模式図。(b)Pdの磁気モーメントがゲート電圧で変化していることを示す結果。(c)低温で巨大な保磁力変化を示す結果。

交換相互作用の変化

磁区幅や磁化の温度依存性の電界による変化から、交換スティフネスや交換定数が変化していることを示した[Appl. Phys. Lett. (2016), Appl. Phys. Express (2018)]。つまり、 T_C の変化は交換相互作用の変化によってもたらされていることを実験により明らかにした。その変化の方向は、 T_C の電界変化の方向[4,5]や理論予測[6]と同じであった。

電子構造変化

X線吸収スペクトルや、X線磁気円二色性測定により、強磁性状態にある金属(Pt)の電子状態が電界により変化していることを実験的に明らかとした[Phys. Rev. Lett. (2018)]。理論計算との比較により、Ptのフェルミレベルと5d-6sp軌道の混成が電界で変化していることを議論した。これにより、強磁性状態にある金属における磁性の電界効果は、フェルミレベルシフトと、電子構造そのものの変化によってもたらされ、これが交換相互作用や磁気異方性の変化の根源となることを実験的に示した。

(2)非磁性金属における磁性誘起と電界効果

Pd(図2)

強磁性金属Coと誘電層の間にPdを挟むと、強磁性近接効果によりPdに磁気モーメントが誘起される。その磁気モーメントが電界で制御できることを、磁化測定により直接観測した[Scientific Rep. (2015)]。これにより、自然界では強磁性を示さない物質の強磁性化への道を拓くとともに、強磁性近接効果の電界制御という新たな知見を得た。上記の試料においては、低温で巨大な磁気異方性の電界変調を示し[Appl. Phys. Lett. (2016)]、それが内部ひずみの温度依存性による電子構造の変化に起因する可能性があることを(1)の実験で示した。

Pt

磁気モーメントを有するPtにおいて、(1)の結果を得るに至った。

Cu

強磁性CoとPtの間にCuを挿入すると、Pt中の誘導磁気モーメントが消失する反面、

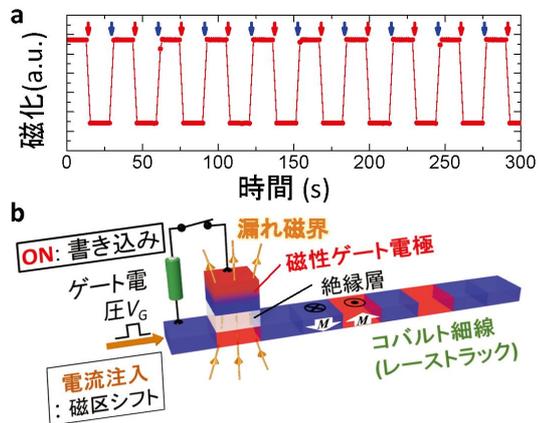


図3 (a) のタイミングの電界パルスによる磁化反転を示す実験結果。(b)レーストラックメモリへの電界書込。

Cu層に垂直磁気モーメントが生じることを放射光実験によって明らかにした[Scientific Rep. (2017)]。また、磁気モーメントを有するCuにおいて、磁気特性の電界による変化を観測した。

(3)電界磁化反転とナノ構造への展開

電界誘起磁化反転(図3a)

強磁性半導体(Ga,Mn)Asにおいて、無磁場で電界による磁化反転を観測することに成功した[Appl. Phys. Lett. (2013)]。これは、二つの磁化安定状態間のエネルギー障壁が電界により変調された結果であることを示した。

磁区の核生成と磁壁移動

強磁性Coに電界を加えることで、磁区の核生成と移動が引き起こせることを示した[Appl. Phys. Express (2016)]。

レーストラックメモリへの電界書込(図3b)

レーストラックメモリは、強磁性ナノ細線中に導入された磁区を情報ビットとし、それらを電流でシフトさせることで情報へアクセスする。情報書込には局所電流磁界を用いていた。本研究では電界で磁性細線の一部の磁化を反転させ、書込動作が行えることを実証した[Appl. Phys. Express (2018)]。書込電力の大幅な削減が期待できる。

以上に示すように、研究開始当時不明であった強磁性金属における磁性の電界効果のメカニズムの多くを明らかにし、それを非磁性金属へと広げた。また、電界誘起磁化反転の発展やそのナノ構造への展開を行い、当初の具体的目標をほぼ全て達成した。また、下記のような当初の目標を超える知見も得た。

(4)研究開始当初予期していなかった成果

ファラデー効果の電界スイッチ(図4)

強磁性体薄膜を透過する光の偏光面はファラデー効果により回転する。電界により強磁性-常磁性状態をスイッチすることで、ファラデー効果そのものをオンオフすることに成功した[Appl. Phys. Express (2017)]。超小型の光スイッチや光集積回路などへの道を拓くものと期待される。

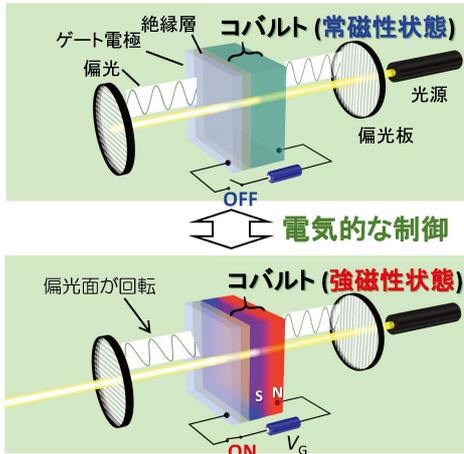


図4 ファラデー効果の電界制御を利用した光スイッチの原理。

極性物質上の Co 超薄膜 (図5)

極性酸化物である ZnO の Zn 極性面と O 極性面上に製膜した Co 超薄膜の磁気特性は大きく違うことを示した [Scientific Rep. (2016)]。Zn 極性面上の Co は単結晶状態にあり、界面一原子層はバルク状態に比べ30%も大きな原子間隔を有していることが分かった。また、界面にはビルトイン電界が備わっており、これも磁気特性に影響を及ぼしている可能性があることを示した。

スピン軌道トルクによる磁化操作の発展
非磁性重金属に電流を流すことで生じるスピンホール効果起因のスピン流や、強磁性/非磁性体界面におけるラシュバ効果由来の磁化へのトルクはスピン軌道トルクとして知られ、高速かつロバストな磁化反転手法として注目されている。本研究により、強磁性/非磁性積層構造の表面 [Appl. Phys. Lett. (2017)]・界面酸化がトルク効率を大きく向上させることを示した。また、スピン軌道トルクによる多磁区単磁区化 [Scientific Rep. (2017)] や、トルクの有効磁界を定量的に計測する新たな手法を開拓 [Phys. Rev. B (2015)] した。(4)- のビルトイン電界を有する界面を用いた研究の発展も期待できる。

フレキシブルスピントロニクスへの展開
(1)- や(4)- において、ひずみと電界効果や磁性の関係が新たな知見として得られ、

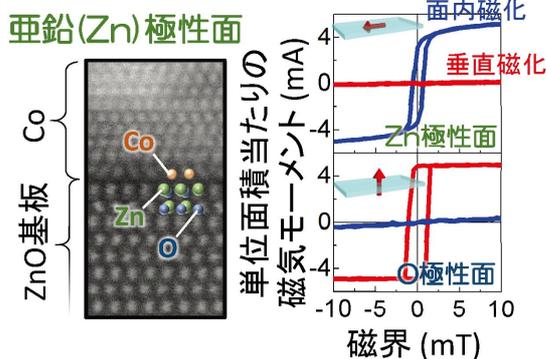


図5 極性 ZnO 表面上の Co 薄膜の構造と磁気特性。

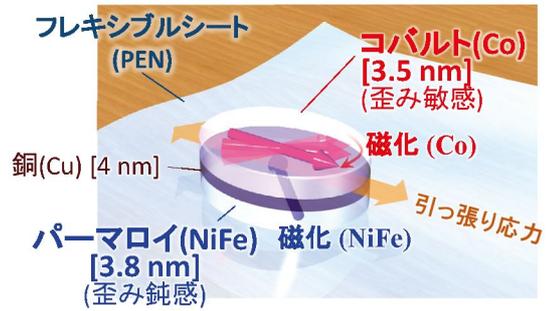


図6 ひずみ方向を検出するフレキシブル基板上の巨大磁気抵抗素子。

これらの理解を進める目的で、フレキシブル基板上に製膜した磁性金属薄膜を用いてひずみをリバーシブルに加える実験を開始した。その結果、%オーダのひずみ加えることに成功し、史上最大級のリバーシブルなひずみによる磁気異方性の変化を実現した [Appl. Phys. Express (2016), J. Appl. Phys. (2016)]。また、ひずみに対して鈍感・敏感な強磁性層を組み合わせた巨大磁気抵抗素子を作製し (図6)、ひずみの方向をセンシングするデバイス動作を実証した [Nature Electronics (2018)]。当初の方向性と良い意味で異なる方向へ研究が進み、スピントロニクスとフレキシブルエレクトロニクスの融合により、スピントロニクスの磁気記録応用以外の新たな方向性を切り開いた。

上記以外にも、最新の知見を継続して得ており、鋭意論文投稿している。

< 引用文献 >

- [1] H. Ohno and D. Chiba *et al.*, “Electric-field control of ferromagnetism”, *Nature* **408**, 944 (2000).
- [2] D. Chiba *et al.*, “Electrical Manipulation of Magnetization Reversal in a Ferromagnetic Semiconductor”, *Science* **301**, 943 (2003).
- [3] D. Chiba *et al.*, “Magnetization vector manipulation by electric fields,” *Nature* **455**, 515 (2008).
- [4] D. Chiba *et al.*, “Electrical control of the ferromagnetic phase transition in cobalt at room temperature”, *Nature Mater.* **10**, 853 (2011).
- [5] K. Shimamura and D. Chiba *et al.*, “Electrical control of Curie temperature in cobalt using an ionic liquid film”, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 122402 (2012).
- [6] M. Oba *et al.*, “Electric-Field-Induced Modification of the Magnon Energy, Exchange Interaction, and Curie Temperature of Transition-Metal Thin Films”, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 107202 (2015).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文(査読有)] (計54件、10件抜粋)
K. T. Yamada, D. Chiba, and T. Ono *et al.*, “Microscopic investigation into the electric

field effect on proximity-induced magnetism in Pt”, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 157203 (2018).

doi:10.1103/PhysRevLett.120.157203

S. Ota, A. Ando, and D. Chiba, “A flexible giant magnetoresistive device for sensing strain direction”, *Nature Electronics* **1**, 124-129 (2018).

doi:10.1038/s41928-018-0022-3

T. Koyama and D. Chiba, “Influence of the magnetization reversal mechanism on the electric field modulation of coercivity in Pt/Co structures”, *Phys. Rev. B* **96**, 224409 (2017).

doi:10.1103/PhysRevB.96.224409

Y. Hibino, S. Ono, M. Kohda, and D. Chiba et al., “Electric-field-induced on/off switching of the Faraday effect”, *Appl. Phys. Express* **10**, 123201 (2017).

doi:10.7567/APEX.10.123201

J. Okabayashi, and D. Chiba et al., “Induced perpendicular magnetization in a Cu layer inserted between Co and Pt layers revealed by x-ray magnetic circular dichroism”, *Scientific Rep.* **7**, 46132 (2017).

doi:10.1038/srep46132

S. Nakazawa, A. Obinata, D. Chiba, and K. Ueno, “Electric field control of magnetic anisotropy in a Co/Pt bilayer deposited on a high- κ SrTiO₃”, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 062406 (2017).

doi:10.1063/1.4976028

D. Chiba, N. Shibata, and A. Tsukazaki, “Co thin films deposited directly on ZnO polar surfaces”, *Scientific Rep.* **6**, 38005 (2016).

doi:10.1038/srep38005

T. Koyama and D. Chiba, “Determination of effective field induced by spin-orbit torque using magnetic domain wall creep in Pt/Co structure”, *Physical Review B* **92**, 220402(R) (2015).

doi:10.1103/PhysRevB.92.220402

A. Obinata, S. Ono, and D. Chiba et al., “Electric-field control of magnetic moment in Pd”, *Scientific Rep.* **5**, 14303 (2015).

doi:10.1038/srep14303

D. Chiba, T. Ono, F. Matsukura, and H. Ohno, “Electric field control of thermal stability and magnetization switching in (Ga,Mn)As”, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 142418 (2013).

doi:10.1063/1.4821778

[学会発表] (計 188 件、5 件抜粋)

D. Chiba, “Strain Direction Sensor Using Magnetoelastic and Magnetoresistive”, Innovative Non-Destructive Testing for Civil Engineers (INDTCE 2017) (2017).[招待]

D. Chiba, “Electric field effect on magnetism in Pt/Co system”, 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS9) (2016).[招待]

D. Chiba, “Electric field effect on magnetic properties in metallic ultrathin films”, International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies (2016).[招待]

D. Chiba, “Electric field control of ferromagnetism in transition metals”, 2013 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM) (2013).[招待]

D. Chiba, “Electric field effect on ferromagnetism in ultra-thin transition metal films”, The 8th International Symposium on Metallic Multilayers(MML 2013) (2013).[招待]

[その他]

新聞紙面報道:「光の透過 磁力で制御」,日経産業新聞, 2017年12月1日 他 10件
ホームページ:

<http://chiba-lab.t.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

千葉 大地 (CHIBA, Daichi)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号: 10505241

(2) 研究分担者

上野 和紀 (UENO, Kazuonri)

東京大学・大学院総合文化研究所・准教授

研究者番号: 10396309

小野 新平 (ONO, Shimpei)

電力中央研究所・上席研究員

研究者番号: 30371298

好田 誠 (KOHDA, Makoto)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 00420000

塚崎 敦 (TSUKAZAKI, Atsushi)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号: 50400396

(3) 連携研究者

関口 康爾 (SEKIGUCHI, Koji)

横浜国立大学・理工学部・准教授

研究者番号: 00525579

小野 輝男 (ONO, Teruo)

京都大学・化学研究所・教授

研究者番号: 90296749