

平成30年6月5日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03562

研究課題名(和文) 外場摂動印加時の磁気分光を用いた軌道磁気モーメントの操作に関する研究

研究課題名(英文) Manipulation of orbital magnetic moments probed by x-ray magnetic spectroscopy under external fields

研究代表者

岡林 潤 (Okabayashi, Jun)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・准教授

研究者番号：70361508

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：薄膜界面における空間対称性の破れによる軌道磁気モーメントの増大を精密観測し、操作することを目的として研究を展開してきた。このために内殻励起磁気分光測定装置を改造し、スピンと軌道磁気モーメントの計測を進めた。これにより、CoとPdの界面での垂直磁気異方性の起源を明確にし、非磁性体Cuに誘起される垂直磁化の精密測定に成功した。さらに、電圧を印加した状態での磁気分光法を開発し、Niにおいて格子ひずみによる磁気異方性の変化と軌道磁気モーメントの変調を捉えることに成功した。これらの成果は、軌道磁気モーメントを操作する新しい研究分野「スピンオービトロニクス」の展開に道を拓くことになる。

研究成果の概要(英文)：We have investigated precise measurements of orbital magnetic moments at the interfaces. We developed novel x-ray magnetic spectrometry which enables the measurements under external fields. We clarified the mechanism of perpendicular magnetic anisotropy in Co/Pd interface and we succeeded in the detection of perpendicular magnetism in non-magnetic Cu. Further, we succeeded in the manipulation of orbital moments in strained Ni under external electric fields. These results contribute to the novel researches of spin-orbitronics.

研究分野：磁気分光、軌道分光

キーワード：電子分光 磁気分光 軌道磁気モーメント 界面

1. 研究開始当初の背景

低消費電力にて動作する磁気デバイスの創出が求められている。中でも、垂直磁気異方性を用いた高密度な磁気記録の達成がスピントロニクスにおける必須の課題となっている。3d 遷移金属磁性薄膜において、磁化は通常、面内方向を容易軸として安定化する。しかし、MgO など絶縁体層との界面では、空間反転対称性の破れに伴う有限の軌道磁気モーメントを利用することで、磁化の垂直磁気異方性を誘起できる。垂直磁気異方性の安定化エネルギーを K_{perp} 、異方的な軌道磁気モーメント ([001] と [100] 方向の差) を ΔM_{orb} で表すと、 $K_{\text{perp}} \approx \xi \Delta M_{\text{orb}}$ (式 1) (ξ : スピン軌道相互作用係数) の関係を満たすことが Bruno により理論的に示された。したがって、界面での ΔM_{orb} の大小が巨大な磁気異方性の起源を理解する上で決定的な役割を果たす。しかし、軌道磁気モーメントを計測できる実験手法が限られていることから、垂直磁気異方性の研究は世界的に進んでいないのが現状である。

本研究では、磁気モーメントのスピンと軌道成分を元素別に導出できる X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定のための新しい展開を目指した。XMCD とは、左右円偏光の軟 X 線放射光による内殻吸収スペクトルの差分を表す。そして、磁気光学総和則を用いて、スピン、軌道磁気モーメントを導出できる。元素別なスピン・軌道磁気モーメントを計測し、異方性の起源を調べることは材料設計に直結する。これまでに進めてきた XMCD 測定を平衡状態の磁気分光と捉え、電圧や力学的歪みによる外場摂動を導入した際の非平衡状態の XMCD を実現できないだろうか、また、この新測定手法を用いて初めて解明できる物性につなげられないだろうかという着想から本研究の提案に至った。外場の印加と XMCD を組み合わせる世界初の素子動作中 (オペランド) 電子分光法を開発し、従来の分光手法に物性パラメータを追加する全く新しい実験手法となり、(式 1) の関係を外場摂動に対して書き換えることに着目した。

2. 研究の目的

今までに立ち上げてきた XMCD 装置を改良し、軌道磁気モーメントの精密測定及び操作を実現するためのシステムを建設することを目的とした。そして、このシステムを用いて、軌道磁気モーメントが重要な役割を果たす界面における軌道磁性のメカニズムの解明、軌道磁気モーメントの操作を実現させ

ることを目指した。具体的には下記の 3 件を主に進めた。

- (1) Co と Pd から成る多層膜において、界面垂直磁気異方性を生じる起源について、元素別な軌道磁気モーメントの精密評価を行う。
- (2) Co と Pt に挟まれた Cu 層に誘起されるスピン、軌道磁気モーメントを元素別に計測する。
- (3) Ni 薄膜に格子ひずみを印加し、軌道磁気モーメントの操作を実現させる。

これらを通じて、軌道磁気モーメントの関わる軌道磁性から「界面スピンオービトロニクス」の新しい学術の展開を目指してきた。

3. 研究の方法

(1) 電子・磁気分光装置の開発

X 線吸収分光 (XAS) と XMCD 装置の開発を行い、高効率に試料の測定を進められる環境を整備した。高エネルギー加速器研究機構放射光施設 (KEK-PF) ビームライン BL-7A (東大理スペクトル化学研究センターつくば分室内) にて、 ± 1.2 T まで印加できる電磁石を用いた XMCD 装置を建設した。また、検出器については、通常の電子収量法のみならず、部分蛍光収量法を行うためのシリコンドリフト検出器を導入し、試料内部の元素別な磁気情報を得ることが可能となった。

この装置を用いて、軟 X 線領域の XAS, XMCD 測定および元素別磁化曲線を測定について高効率に行えるようになり、様々な試料 (特に 3d 遷移金属を含む試料) に適用され、成果を挙げている。

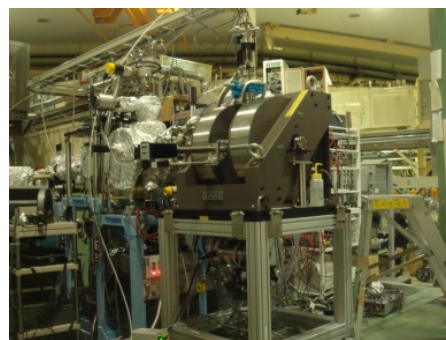


図 1: 本研究課題にて立ち上げた XAS, XMCD 装置 (KEK-PF, BL-7A: 東大理)。

(2) 電圧印加時の XMCD 測定のためのマニピュレータ開発

誘電体基板の表面と裏面に電極を取り付け、電圧を印加できるシステムを設計し、電圧印加時の XMCD 測定を行えるようにした。図 2 に示すように、試料ホルダーと絶縁させ、

電圧印加時に XMCD を蛍光収量法により測定できるシステムを設計した。これにより、電圧印加による軌道磁気モーメントの変調を直接調べることのできる電場印加 XMCD (EXMCD) 法を完成させた。

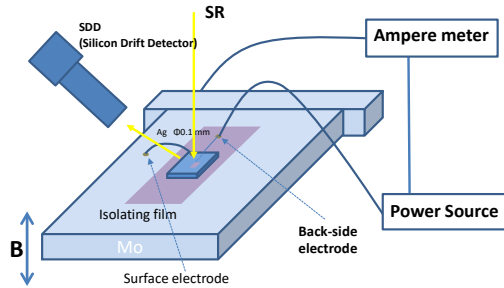


図 2: 本研究課題にて立ち上げた電圧印加 XMCD システム。

4. 研究成果

(1) Co と Pd から成る薄膜界面にて磁化を膜垂直方向に揃える界面電子軌道の形が明らかに — スピン軌道工学に道—

(2018年5月29日プレスリリース)

強磁性体と非磁性体を交互に堆積した構造（磁気接合）は、磁気メモリーなどの記録素子やハードディスク内の磁気センサーとして広く用いられ、特に、薄膜の面に垂直方向に磁化の向きを揃えて磁気記録を行う技術は、高記録密度を達成するために重要となる。本来は膜に平行方向に磁化が揃うことでエネルギーが低くなり安定化する。しかし、膜に垂直方向に揃う方が安定する Co/Pd 界面のような特殊な物質も存在する。Co/Pd 界面は、Co のスピンと Pd の重い元素としての性質が合わさって垂直磁化を示す。しかし、強磁性体 Co と非磁性体 Pd が接合した界面にて磁化が垂直方向に誘起される電子論的なメカニズムについて、今まで明確ではなかった。特に、Pd のスピン軌道相互作用が重要な役割を果たすとされてきましたが、軌道の役割については詳細については調べられてこなかった。

本研究では、XMCD によって、Co L 端と PdM 端を 1 回の測定にて、同条件で比較できる特徴があることに着目し、軌道の異方性を詳細に調べた。方位に依存した軌道磁気モーメントの分布をそれぞれの元素について調べ、Co では異方的な分布をしており、Pd では等方的な分布であることが判った。この解釈は、XMCD のみでなく、第一原理計算により明らかになった。特に、界面の Co と Pd 原子

中の電子の軌道混成により、Co の軌道磁気モーメントが膜垂直方向に大きくなることを見出した。また、Pd 原子中の電子では、スピンが反転した状態が電気四極子のように分布していることが安定であることを見出した。これらのことは、Fe や Co などの 3d 元素と Pd, Pt などの貴金属の元素の性質が合わさって出現する垂直磁化の起源に迫るものであり、今後のデバイス設計に向けた界面の電子状態の理解に指針を与えるものとなる。

本研究は、磁気記録やスピントロニクスの研究にて広く用いられている CoPd を用いた材料設計、素子設計を行う上で、極めて重要な指針を与える。また、近年注目を集めている界面でのトポロジカルな性質の観測、操作にも有用な研究基盤になりうる。垂直磁化を用いた高記録密度を可能にする素子設計、近接効果をもたらす界面での誘起磁性に関する研究の進展に繋がり、今後、界面のスピンと軌道状態を人工的に設計することができ、今までにない新しい「スピンオービトロニクス」に関する研究が拓ける。

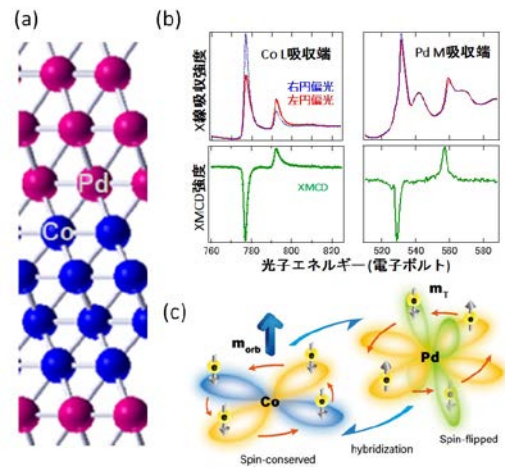


図 3 (a) 設計した構造の模式図。Co と Pd 層が原子レベルで堆積している。(b) Co, Pd の各元素における円偏光による X 線吸収スペクトル(上段)と X 線磁気円二色性スペクトル(下段)。赤(実線)と青(点線)は左右円偏光の違いに相当する。(c) XMCD および第一原理計算から得られた界面近傍の Co と Pd 原子の軌道状態の模式図。

(2) 銅の薄膜内に人工的に誘起した磁化が膜面に垂直方向を向くことを実証

(2017年4月13日プレスリリース)

強磁性体と非磁性体が接合した界面にて非磁性体に磁化が垂直方向に誘起されるメカニズムについて、今まで明確ではなかった。これまでに、非磁性体である Cu におい

て、膜面に平行な方向への磁化の誘起については研究が進んできたが、薄膜の面に垂直な方向の磁化観測とその設計に関する知見は得られていなかった。

本研究では、垂直磁化を示す Co/Pt 界面に膜厚の異なる Cu を人工的に挿入し、各元素の磁気特性を調べることに着目した。Co/Pt 界面は、Co のスピンの Pt の大きなスピン軌道相互作用により垂直磁化を示す。この界面に非磁性体 Cu を原子層レベルで挿入すると、3 原子層の厚さまでは Cu にも垂直方向に磁化が誘起されることが判った。非磁性体に誘起される微弱な磁気シグナルについて、放射光を用いることによって初めて捉えることができた。Cu の膜厚をさらに増やすと、Co と Pt の間の相互作用がなくなり、近接効果が及ばないことも明らかにした。また、近接効果により Cu に垂直磁化が発現することは、第一原理計算によっても再現した。これらにより、原子層レベルで人工的に設計した構造において、磁気特性を操作できることを実証した。

本研究は、磁気記録やスピントロニクスの研究にて広く用いられている Cu を用いた材料設計、素子設計を行う上で、極めて重要な指針を与え、垂直磁化を用いた高記録密度を可能にする素子設計、近接効果がもたらす界面での誘起磁性に関する研究の進展が期待される。今後、Cu 膜厚に依存した垂直磁化の大きさと向きを操作できれば、人工的に原

子層レベルにて構造を設計することができ、今までにない新しい誘起磁性に関する研究が拓けるものと考えられる。

(3) 電圧印加 XMCD 法による強誘電体の格子ひずみを用いた軌道磁気異方性の操作

本研究では、電場による電子数の変調ができれば、3d 準位の占有数を調整でき、軌道磁気モーメントを操作できることに着目している。これは、スピンオービトロニクスの学術および技術の発展に直結する。しかし、電圧による電子数の占有数の操作は数 10 meV 程度と小さく、界面への電圧印加による電子数変調とその観測は大変難しい課題である。そこで、電圧印加により格子歪みを誘発させ、その結果として軌道磁気モーメントを操作できるかどうかを検討した。そのために、誘電体と磁性体の融合を試みた。

誘電体と磁性体の界面でのマルチフェロイクス現象を用いて、電圧による格子ひずみの印加とその上の磁性薄膜の電子・磁気状態の変化を調べた。誘電体 BaTiO₃ 上に堆積された Ni/Cu 多層構造において、これに電圧を印加した状態での XMCD 測定を行った。試料ホルダーを設計し、誘電体への電圧印加により、ドメイン構造を操作し、上部の磁性薄膜に格子ひずみを印加する構造となっている。この電圧を印加できる試料ホルダーを XMCD 装置に導入し、電圧印加時の XMCD (EXMCD 法と名付けた) による測定を行った。EXMCD によって可逆的な軌道磁気モーメントの変調を観測できた。電圧により BaTiO₃ の格子定数が約 1 %程度ひずむことから、それにより磁性層の化学結合長が変調され、結果として Ni の軌道磁気モーメントが変化したものと考えられる。これは、スピントロニクスデバイスでの電荷量の変調に伴う磁気異方性の変化とは異なる物理的起源と考えられ、格子ひずみによる軌道角運動量の操作に相当するものであり、全く新しい概念である。

(4) 今後の展望

薄膜界面での空間反転対称性の破れを利用して、重い元素を用いることなく軌道磁気モーメントを誘起する研究は、スピントロニクスを超えたスピンオービトロニクスの発展に重要な役割を果たす。そして、XMCD を用いた軌道磁気モーメントの観測と操作は新物性の創出に必須の技術となりうる。さらに、格子ひずみにより誘起される軌道混成の変調と軌道磁気モーメントの相関を明確にすることは、新しい学術分野

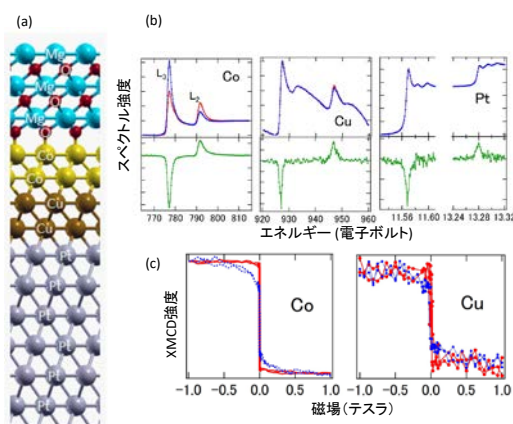


図 4: (a) 設計した構造の模式図。表面の酸化マグネシウム (MgO) 層は Co 層を保護する役割をする。(b) Co, Cu, Pt の各元素における円偏光による X 線吸収スペクトル (上段) と X 線磁気円二色性スペクトル (下段)。赤 (実線) と青 (点線) は左右円偏光の違いに相当する。(c) Co および Cu の L_3 吸収ピークにおける元素別な磁気特性の変化。面直方向 (実線 (赤)) と面内方向 (点線 (青)) の形状の違いから、磁石が面直方向を向いていることを示している。

の創出と共に、磁歪効果の軌道磁気モーメント版となる新しい現象を創出する。

電圧印加によりマルチドメインが形成される場合、局所的に磁気異方性が異なることになる。これを高精度に計測するには、空間分解が必要となり、局所的に絞られた光源が必要となる。そのため、イメージング技術とあわせた顕微 XMCD の技術が必要になると考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 13 件)

1. Anatomy of interfacial spin-orbit coupling in Co/Pd multilayers using X-ray magnetic circular dichroism and first-principles calculations, Jun Okabayashi, Yoshio Miura, and Hiro MuneKata, *Sci Rep.* **8**, 8303 1-9 (2018). プレスリリースあり、日経新聞等にも掲載 (2018/5/29)
DOI:10.1038/s41598-018-26195-w
 2. Interfacial exchange coupling between transition metals and Mn_{1.5}Ga studied by X-ray magnetic circular dichroism, Jun Okabayashi, K. Z. Suzuki, and S. Mizukami, *J. Mag. Mag. Mater.* **460**, 418-423 (2018).
DOI:10.1016/j.jmmm.2018.03.060
 3. Induced perpendicular magnetization in a Cu layer inserted between Co and Pt layers revealed by x-ray magnetic circular Dichroism, Jun Okabayashi, Tomohiro Koyama, Motohiro Suzuki, Masahito Tsujikawa, Masafumi Shirai & Daichi Chiba, *Scientific Reports* **7**, 46132 (2017). プレスリリースあり、日経新聞, 日刊工業新聞等にも掲載 (2017/4/14) DOI:10.1038/srep46132
 4. Pressure-induced two-step spin crossover in a double-layered elastic model, Daisuke Taniguchi, Jun Okabayashi, and Chisa Hotta, *Phys. Rev. B* **96**, 174104 (2017).
DOI:10.1103/PhysRevB.96.174104
 5. Detection of induced paramagnetic moments in Pt on Y₃Fe₅O₁₂ via x-ray magnetic circular dichroism, Takashi Kikkawa, Motohiro Suzuki, Jun Okabayashi, Ken-ichi Uchida, Daisuke Kikuchi, Zhiyong Qiu, and Eiji Saitoh, *Phys. Rev. B* **95**, 214416 (2017).
DOI:10.1103/PhysRevB.95.214416
 6. Structural and magnetic properties of epitaxial thin films of the equiatomic quaternary CoFeMnSi Heusler alloy, Lakhan Bainsla, Resul Yilgin, Jun Okabayashi, Atsuo Ono, Kazuya Suzuki, and Shigemi Mizukami, *Phys. Rev. B* **96**, 094404 (2017).
DOI:10.1103/PhysRevB.96.094404
 7. Inter-diffusion in epitaxial ultrathin Co₂FeAl/MgO heterostructures with interface-induced perpendicular magnetic anisotropy, Zhenchao Wen, Jason Paul Hadorn, Jun Okabayashi, Hiroaki Sukegawa, Tadakatsu Ohkubo, Koichiro Inomata, Seiji Mitani, and Kazuhiro Hono, *Appl. Phys. Express* **10**, 013003 (2016).
DOI:10.7567/APEX.10.013003
 8. Perpendicular magnetic tunnel junction with a strained Mn-based nanolayer, K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, J. Okabayashi, Y. Miura, A. Sugihara, H. Tsuchiura and S. Mizukami, *Scientific Reports* **6**, 30249 (2016). DOI:10.1038/srep30249
 9. Investigating Orbital Magnetic Moments in Spinel-Type MnV₂O₄ Using X-ray Magnetic Circular Dichroism, J. Okabayashi, S. Miyasaka et al., *Journal of the Physical Society of Japan* **84**, 104703 (2015).
DOI:10.7566/JPSJ.84.104703
- 他

[学会発表] (計 23 件)

1. 岡林潤【招待講演】、元素別なスピンと軌道磁気モーメントの観測と操作 電気学会 (福岡 2018年3月)
2. 岡林潤他、Deconvolution of two kinds of Mn sites in spin and orbital magnetic moments of Mn_{3-*x*}Ga 応用物理学会 (早稲田 2018年3月)
3. 岡林潤他、Relationship between Strain and Orbital Magnetic Moments in Ni/Cu Multilayers Studied by Electric-Field-Induced XMCD and First-Principle Calculation 応用物理学会 (福岡 2017年9月)
4. 岡林潤他、磁気Ni/Cu多層構造の電場誘起 XMCD 日本磁気学会 (福岡 2017年9月)
5. J. Okabayashi【招待講演】、Tailoring spin and orbital in complexed materials probed by x-ray magnetic spectroscopy, Collaborative Congress in Magnetic Research (Jeju 2017年6月)
6. 岡林潤【招待講演】、磁気学会非磁性体界面に誘起される軌道磁性 日本磁気学会専門研究会 (東京 2017年5月)
7. 岡林潤他、Ni/Cu 多層構造の電場誘起 XMCD, 放射光学会、神戸 (2017. 1)
8. Jun Okabayashi et al., Co L-edge and Pd M-edge XMCD in perpendicular magnetic anisotropy system: Co/Pd multilayers, *Mag. Mag. Mater.* (New Orleans 2016. 11)
9. Jun Okabayashi et al., Interfacial

- Exchange Coupling in FeCo/MnGa Studied by X-ray Magnetic Circular Dichroism, Mag. Mag. Mater. (New Orleans 2016.11)
10. J. Okabayashi (invited), Element-Specific Characterization in Spin-Orbit-Coupled Interfaces Using X-Ray Magnetic Circular Dichroism (XMCD), Solid State Chemistry 2016, (Prague 2016.9)
 11. J. Okabayashi et al., Interfacial Exchange Coupling between Transition Metal and MnGa Studied by X-ray Magnetic Circular Dichroism, 応用物理学会 (Niigata 2016.9)
 12. 岡林潤他, Co/Pd 多層構造の元素別軌道磁気モーメントの異方性, 日本磁気学会, (金沢 2016.9)
 13. J. Okabayashi et al., Interfacial Exchange Coupling in FeCo/MnGa Studied by X-ray Magnetic Circular Dichroism, 応用物理学会 (東工大 2016.3)
 14. J. Okabayashi et al., Electric-Field-Induced X-ray Magnetic Circular Dichroism for Studying Perpendicularly Magnetized Ni/Cu Multilayers, 応用物理学会 (東工大 2016.3)
 15. 岡林潤他, Co/Cu/Pt の界面に誘起された Cu の垂直磁化の観測, 第 29 回放射光学学会 (柏の葉 2016 年 1 月)
 16. J. Okabayashi, Interface Perpendicular Magnetic Anisotropy between FeCo Alloy and MgO Studied by XMCD, The 15th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces (ICSFI-15) (Hiroshima 2015 年 11 月)
 17. 岡林潤, XMCD から見た磁気接合界面における軌道磁気モーメントと垂直磁気異方性の相関, 日本物理学会シンポジウム講演 (関西学院大 2015 年 9 月)
 18. J. Okabayashi (invited), Manipulating Orbital Magnetic Moments Probed by X-ray Magnetic Circular Dichroism, IEEE distinguished lectures (Tokyo 2015.7)
 19. J. Okabayashi, Enhancement of perpendicular magnetic anisotropy at the interface between FeCo alloy and MgO revealed by x-ray magnetic circular dichroism, Energy and Material Nanotechnology (EMN-Qingdao 2015 年 6 月)
- 他

[図書] (計 1 件)

1. Jun Okabayashi, Tailoring spins and orbitals probed by x-ray magnetic circular dichroism, Progress of Photon Sciences, Edited by Kaoru Yamanouchi,

Springer-Verlag, in press.

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.chem.s.u-tokyo.ac.jp/~spectrum/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡林 潤 (OKABAYASHI JUN)

東京大学・大学院理学系研究科・准教授

研究者番号：70361508

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし