

令和元年6月24日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03832

研究課題名(和文) 電場駆動反強磁性ドメインダイナミクス

研究課題名(英文) Electric-field driven antiferromagnetic domain dynamics

研究代表者

白土 優 (Shiratsuchi, Yu)

大阪大学・工学研究科・准教授

研究者番号：70379121

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,200,000円

研究成果の概要(和文)：電気磁気効果を示すCr2O3薄膜の反強磁性磁区の可視化、ならびに磁化反転の際の磁壁移動プロセスを明らかにした。特に、反強磁性磁壁移動の駆動力として、電気磁気効果(静磁場+可変電圧)を用いた電界駆動磁壁のダイナミクスを明らかにした。主な成果として、(1)電気磁気効果による反強磁性体の磁化反転プロセスは、通常の強磁性体と同様に反転磁区の生成・磁壁移動によって進行することを明らかにし、また、(2)印加する電圧をパルス電圧とすることで反強磁性磁壁の移動速度を定量的に明らかにした。これらの成果は、論文発表とともにプレスリリースにより情報発信済みである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

反強磁性体のスピンの動作速度は、強磁性体のスピン動作速度と比較して約3桁高速であり、テラヘルツ領域にある。このため、反強磁性スピンの動的挙動(ダイナミクス)を制御することにより、現在の電子デバイスの数桁高速なデバイスの創生が期待できる。しかしながら、反強磁性体は強磁性体のように磁場による制御が困難であり、その制御方法が確立していない。本研究では、電気磁気効果と呼ばれる特殊な効果を利用することで、反強磁性スピンの集合体である磁区(ドメイン)の動作状態、動作速度を定量的に明らかにした。Society 5.0において、さらに重要になる超高速情報通信基盤材料の動作原理に繋がることが期待される。

研究成果の概要(英文)：Magnetic domain and magnetization reversal process of the magnetoelectric antiferromagnet, Cr2O3 was investigated. In particular, magnetoelectric (ME, static magnetic field + dynamic electric field) driven reversal was focused. Main findings of this work are

(1) Magnetization reversal was proceeded by nucleation of the reversed magnetic domain and propagation of the magnetic domain wall, similar to the ordinal ferromagnet.

(2) By using the pulsed voltage as a driving force, we clarified the antiferromagnetic domain wall velocity quantitatively.

研究分野：磁性薄膜、スピントロニクス

キーワード：反強磁性 磁壁 磁区 電気磁気効果 ダイナミクス

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは、電子の電荷とスピンを同時に利用することで、電荷のみ、あるいは、スピンのみでは実現不可能な革新的デバイスの創出を可能にする。従来のスピントロニクスは、スピが一方向に整列した強磁性体のスピンを制御することで発展してきた。一方、個々のスピが反対方向に向く反強磁性体では、スピンの駆動速度は強磁性スピンの動作速度と比較して数桁高速化できることが期待されている。しかしながら、反強磁性体は、スピン方向が補償されているため、外部磁場によるスピン制御が困難でありこれまでは制御不可能な磁性体と考えられてきた。本研究では、電気磁気効果と呼ばれる特殊な効果を利用することで、反強磁性体（ここでは、特に Cr_2O_3 ）の反強磁性スピに着目し、特に、スピンの集合体であるドメインの電界による動的（ダイナミック）駆動方法を構築することを目指した。

2. 研究の目的

電気磁気効果とは、電界による磁気分極、あるいは、相反効果として磁場による電気分極が生じる現象であり、非共役な物理量の制御が可能である。（交差相関） Cr_2O_3 は、電気磁気効果を示す材料として古くから知られているが、デバイスに必須となる薄膜化した Cr_2O_3 における電気磁気効果は、研究代表者のグループを含めて国内数グループのみが有する極めて高度な技術である。本研究では、この独自技術をベースとして反強磁性 Cr_2O_3 薄膜の電界駆動ドメインの反転過程ならびに、ドメイン駆動ダイナミクスを明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

使用した試料の典型的な構成は、Pt/Co/Au/ Cr_2O_3 /Pt 積層膜である。試料作製には、超高真空 DC マグネトロンスパッタリング装置を用いた。 Cr_2O_3 の電気磁気効果は、結晶構造と反強磁性スピン配列の相互作用によって生じる効果であるため、作製した Cr_2O_3 薄膜の結晶構造評価は、本研究における重要な因子となる。本研究では、上記成膜システム内に具備されている反射高速電子線回折 (RHEED)、X 線回折法によって、 Cr_2O_3 薄膜が電気磁気効果発現条件であるコランダム構造を有していること、反強磁性スピが膜面垂直方向に配列する(0001)双晶膜であることを確認している。作製した試料を、図 1 に示す電界印加可能な Hall 素子形状（あるいは、直径 200 μm のマイクロドット）に微細加工を施した。磁気特性評価には、上記の Hall 素子に対する異常 Hall 効果測定その他、振動試料型磁力計を用いた磁化曲線測定を行い、作製した試料の飽和磁化、膜面垂直方向への一軸磁気異方性エネルギーを求めた。また、反強磁性ドメインの観察のために、磁気光学 Kerr 効果顕微鏡、ならびに、高輝度放射光施設 SPring-8 BL25SU (固体分光ビームライン) において、走査型軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) 顕微鏡による磁区構造観察を行った。電気磁気効果を用いた磁壁移動プロセスについては、別紙（主な論文 2, 3, 4, 5 (2, 5 はオープンアクセス論文)）を参照されたい。

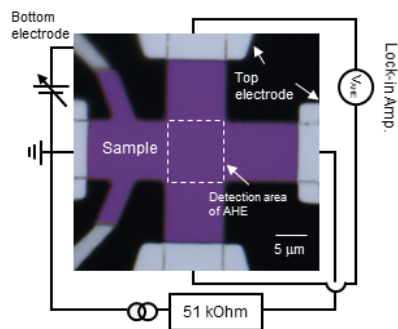


図 1 電気磁気効果測定に用いた微細加工素子の光学顕微鏡像と等価回路。[論文業績 3 より] 磁気光学 Kerr 顕微鏡観察には、図のホール素子を直径 200 μm のマイクロドット形状に変更したデバイスを用いた。

4. 研究成果

本報告書では、主要な成果として、異常 Hall 効果測定に基づく反強磁性ドメインの等温可逆反転結果、ならびに、走査型 XMCD 顕微鏡による反転プロセスの可視化結果について記す。電気磁気効果による反強磁性ドメインの制御プロトコルには、電気磁気冷却法 (MEFC) と等温反転法の 2 つがある。本研究では、2 つの方法の両方に対する反強磁性ドメイン反転プロセスを、磁区構造観察を基に明らかにした。（MEFC

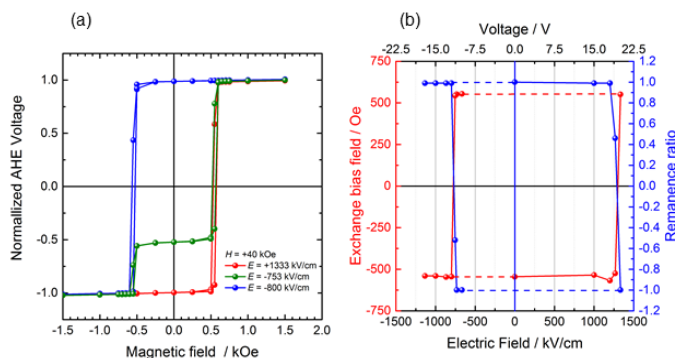


図 2 (a)異常ホール効果によって測定した磁化曲線, (b)(a)を基に整理した残留磁化比と交換バイアス磁場の電界依存性。[論文業績 3 より]

法による反転プロセス：論文成果 5, 等温反転法による反転プロセス：論文成果 3 (直流電界), 論文成果 2 (パルス電界) 特に, 等温反転法においては, その名称の示す通り, 反強磁性ドメイン反転のために温度変化を必要としないため (上述の (1) の結果に対応), 印加する電界を直流 (DC) 電界, あるいは, パルス電界とすることで, スタティックならびにダイナミックな反強磁性ドメイン反転プロセスにアクセスすることが出来る. 本報告書では, 特に, (1) との対応を重視して, 等温反転法における反強磁性ドメイン反転プロセスに関して得られた成果の概要を記す.

図 2 に, 異常ホール効果により測定した磁化曲線 (図 2(a)), 印加した電界に対する H_{EX} と M_R/M_S の変化 (図 2(b)) を示す. H_{EX} と M_R/M_S の符号が反転していることは, 図 2(a) に示した磁化曲線から明らかに理解できる. H_{EX} と M_R/M_S はともに, 電界強度に対して閾電界以上で符号が反転していることが分かる. また, 閾電界の存在, すなわち, ヒステリシスが生じていることから, 反強磁性ドメインの反転には, エネルギー障壁が存在する. 本研究では, 反強磁性ドメイン反転の閾電界の磁場依存性, Cr_2O_3 膜厚依存性, 温度依存性を基に, 反強磁性ドメイン反転のエネルギー式を明らかにすることにも至っている. (発表論文番号 4)

図 3 に, DC 電界印可後, 残留磁化状態 (電界, 磁場をともに除去した後) 磁区構造を示す. 電界印加時の磁場は, +40 kOe とし, 測定温度は 285 K (13 °C) とした. 印可電界強度の低下とともに, 図中の青で示した領域 (磁化が上向き, すなわち, 負の交換バイアスが生じる領域 (磁区)) が増加する. 一方, 印加電界強度が上昇すると赤で示した領域 (磁化が下向き, 正の交換バイアスが生じる領域 (磁区)) が増加する. この変化は, (1) に示した異常ホール効果による交換バイアス反転挙動と一致しており, 電気磁気効果による交換バイアスの極性反転が, 反強磁性体の磁壁移動によって生じていることを示している.

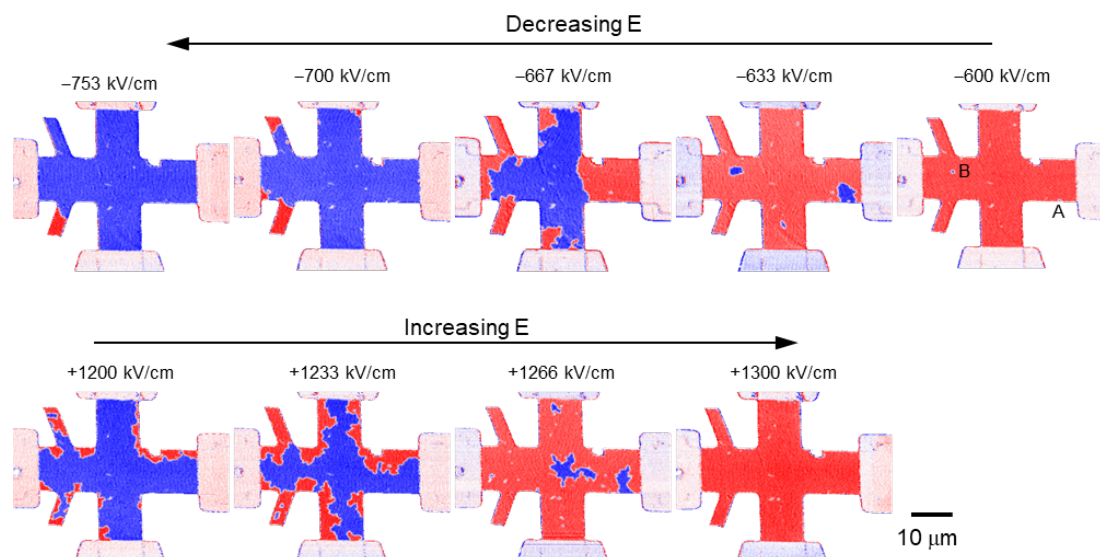


図 3 電気磁気効果による反強磁性磁区 (ドメイン) 反転過程. [論文業績 3 より] 赤の領域は, 強磁性磁化が下向き (反強磁性磁化が上向き), 青野領域は強磁性磁化が上向き (反強磁性磁化が下向き) の領域を表す.

図 3 に示した結果は, 直流 (DC) 電界を印加した場合の結果であるが, 印加電界をパルス電界とすることで, 磁壁移動のダイナミクス (磁壁伝搬速度) を評価することが出来る. 図 4 に, 種々のパルス幅 (電界印可時間) に対する磁壁伝搬距離を示したヒストグラム, ならびに, この結果を基に算出した磁壁伝搬速度の印加電界依存性を示す. パルス電界幅の増加により, 磁壁移動距離が線形に増加しており, 磁壁伝搬が電界印加中のみで生じている. また, 磁壁移動速度は, 印加電界の上昇とともに指数関数的に上昇していることが分かる. 磁壁移動速度の指数関数的上昇は, 磁壁伝搬がクリープ領域にあることを示しており, 試料内での磁壁ピンニングエネルギーが高いことを示唆する.

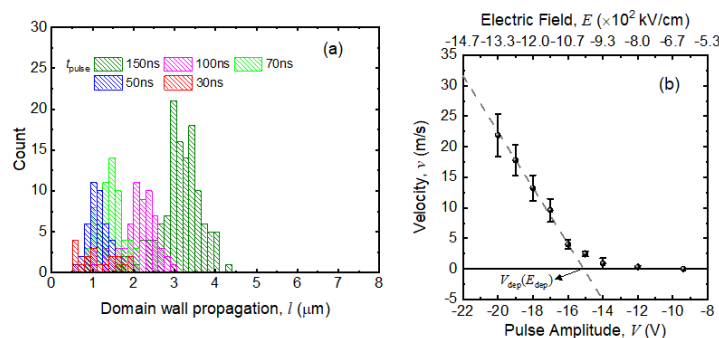


図 4 (a) 印可電圧パルス幅に対する磁壁移動量のヒストグラム, (b) 印加電圧パルス強度に対する磁壁移動速度の変化. [論文業績 2 より]

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 14 件)

1. スピントロニクスデバイスを基盤としてナノ磁気計測技術の開発と物質・材料研究への展開, 白土 優 *SPRING-8 利用者情報*, Vol. 24, No. 2, pp. 98–103 (2019). 査読有
2. Antiferromagnetic domain wall creep driven by magnetoelectric effect, Yu Shiratsuchi (筆頭著者), Ryoichi Nakatani (7 名中 7 番目), 他 5 名. *APL Materials*, Vol. 6, 121104 (9pp) (2018). DOI: 10.1063/1.5053928 査読有
3. Observation of the magnetoelectric reversal process of the antiferromagnetic domain Yu Shiratsuchi (筆頭著者), Ryoichi Nakatani (8 名中 5 番目), 他 6 名. *Applied Physics Letters*, Vol. 113, Issue 24, 242404 (5pp) (2018). DOI: 10.1063/1.5053925 査読有
4. Energy condition of isothermal magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt stacked films **【Editor's pick】** Yu Shiratsuchi (5 名中 2 番目, 責任著者), Ryoichi Nakatani (5 名中 5 番目), 他 3 名. *Journal of Applied Physics*, Vol. 124, Issue 23, 233902 (7pp) (2018). DOI: 10.1063/1.5047563 査読有
5. Frustration and relaxation of antiferromagnetic domains reversed by magneto-electric field cooling in a Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt-stacked film **【Editor's pick】**, Yu Shiratsuchi, S. Watanabe, S. Yonemura, T. Shibata and Ryoichi Nakatani. *AIP Advances*, Vol. 8, Issue 12, pp. 125313 (10pp) (2018). DOI: 10.1063/1.5053136, 査読有
6. Magnetoelectric control of antiferromagnetic domain state of Cr₂O₃ thin film toward spintronic application, Yu Shiratsuchi, T. V. A. Nguyen and Ryoichi Nakatani, *Journal of Magnetics Society of Japan*, Vol. 42, No. 6, pp. 119-126 (2018). DOI: 10.3379/msjmag.1811R001 査読有
7. Development of scanning soft X-ray microscope for magnetic imaging under high magnetic fields Y. Kotani, Yu Shiratsuchi (11 名中 10 番目), 他 9 名. *Journal of Synchrotron Radiation*, Vol. 25, pp. 1444-1449 (2018). DOI: 10.1107/S1600577518009177 査読有
8. Determination of specific ion positions of Cr³⁺ and O²⁻ in Cr₂O₃ thin films and their relationship to exchange anisotropy at Co/Cr₂O₃ interfaces, Yu Shiratsuchi (筆頭著者), Ryoichi Nakatani (8 名中 8 番目), 他 6 名. *Journal of Applied Physics*, Vol. 123, pp. 103903 (7pp) (2018). DOI: 10.1063/1.5020620 査読有
9. Magnetic field dependence of threshold electric field for magnetoelectric switching of exchange bias polarity, T. V. A. Nguyen, Yu Shiratsuchi, A. Kobane, S. Yoshida and Ryoichi Nakatani, *Journal of Applied Physics*, Vol. 122, Issue 7, pp. 073905 (5pp) (2017). DOI: 10.1063/1.4991053 査読有
10. Pulse-voltage-driven dynamical switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt thin film, T. V. A. Nguyen, Yu Shiratsuchi, and Ryoichi Nakatani, *Applied Physics Express*, Vol. 10, No. 8, pp. 083002 (4pp) (2017). DOI: 10.7567/APEX.10.083002 査読有
11. Simultaneous achievements of high perpendicular exchange bias and low coercivity by controlling ferromagnetic/antiferromagnetic interfacial magnetic anisotropy, Yu Shiratsuchi (筆頭著者), Ryoichi Nakatani (8 名中 8 番目), 他 6 名. *Journal of Applied Physics*, Vol. 121, Issue 8, pp. 073902 (7pp) (2017). DOI: 10.1063/1.4976568 査読有
12. 電気磁気効果を利用した垂直交換バイアス反転とそのダイナミクス T. V. A. Nguyen, 白土 優, 中谷亮一, *電気情報通信学会, 信学技報 (IEICE Technical Report)*, Vol. 117, No. 247, pp. 47-71 (2017). <https://www.ieice.org/ken/index/ieice-techrep-117-247.html> 査読無
13. Perpendicular exchange bias and magneto-electric control using Cr₂O₃(0001) thin film Yu Shiratsuchi and Ryoichi Nakatani, *Materials Transactions*, Vol. 57, Issue 6, pp. 781-788 (2016). DOI: 10.2320/matertrans.ME201506 査読有

〔学会発表〕(計 44 件)

1. Dynamic control of antiferromagnetic domain state based on magnetoelectric effect **【招待講演】**, 発表者: Yu Shiratsuchi, *Materials Research Meeting (MRM) 2019*, December 10–14, 2019. 講演予定.
2. Dynamic magnetoelectric control of Cr₂O₃ domain **【招待講演】**, 発表者: Yu Shiratsuchi, *The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PacRim13)*, 2019. 講演予定
3. Antiferromagnetic domain control by magnetoelectric effect **【基調講演】**, 発表者: Yu Shiratsuchi *The 10th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM10)*, August 18-22, 2019, Xi'an, China, 講演予定.
4. High-temperature regeneration of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt stacked films, 発表者・代表者: Yu Shiratsuchi, *Magnetic and Optics Research International Symposium (MORIS) 2019*, 2019, 講演予定.
5. Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 積層膜における垂直交換バイアスの高温再発現現象, 発表者: 白土 優 *日本金属学会 2019 年春期大会*, 2019 年 3 月 20 日～22 日.
6. Magnetic damping in Pt/Co/Cr₂O₃/Pt stack films with perpendicular magnetic anisotropy, 発表者: T. V. A. Nguyen, *2019 年第 66 回応用物理学会春季学術講演会*, 2019 年 3 月 9 日～12 日.
7. Magnetoelectric effect in Cr₂O₃ for electric field induced switching of interfacial magnetization in

- exchange biased films 【招待講演】，発表者：T. V. A. Nguyen, Seminar on synthesis and characterization of functional oxides for nonvolatile memory devices, 2018.
8. Ir/Spacer(=Au, Cu, Ti)/Cr₂O₃ 積層膜における非線形ホール効果，発表者：青野 晃
日本金属学会 2019 年秋期大会，2018 年 9 月 19 日～21 日。
 9. Temperature dependence of magnetoelectric switching condition of perpendicular exchange bias
発表者：T. V. A. Nguyen, 2018 年第 79 回応用物理学会秋季学術講演会，2018 年 9 月 18 日～21 日。
 10. Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 積層膜における電気磁気冷却による垂直交換バイアス反転過程，発表者：白土 優，第 42 回日本磁気学会学術講演会，2018 年 9 月 11 日～14 日。
 11. スピントロニクスデバイスを基盤としたナノ計測技術の開発と物質・材料研究への展開
発表者：白土 優，SPring-8 シンポジウム 2018，2018 年 8 月 25 日～26 日。
 12. Observation of reversal process of perpendicular exchange bias during magnetoelectric field cooling
発表者：Yu Shiratsuchi, International Conference on Magnetism 2018 (ICM2018), 2018.
 13. Dynamic control of antiferromagnetic domain state by magnetoelectric effect 【招待講演】，発表者：Yu Shiratsuchi, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (Thermec' 2018), 2018.
 14. Magneto-electric control of antiferromagnetic domain 【招待講演】，発表者：Yu Shiratsuchi
The 5th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (IcAUMS 2018), 2018.
 15. Pt/Cr₂O₃ 積層膜における非線形ホール効果と X 線 MCD 測定，発表者：白土 優
日本金属学会 2018 年春期大会，2018 年 3 月 19 日～21 日。
 16. Antiferromagnetic layer thickness dependence of magnetoelectric switching condition of perpendicular exchange bias，発表者：T. V. A. Nguyen, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会，2018 年 3 月 17 日～20 日。
 17. Dynamical magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt thin film using pulse voltage，発表者：Yu Shiratsuchi, 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2017.
 18. Magnetic field dependence of threshold electric field for magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias，発表者：Yu Shiratsuchi, 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2017.
 19. 電気磁気効果による界面反強磁性スピン反転とそのダイナミクス 【招待講演】，発表者：白土 優，応用物理学会／日本磁気学会スピントロニクス専門研究会，2017 年 11 月 22 日。
 20. Dynamic reversal of perpendicular exchange bias using magnetoelectric effect，発表者：T. V. A. Nguyen, 磁気記録・情報ストレージ研究会 (MR) 研究会，2017 年 10 月 19 日～20 日。
 21. Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 薄膜における電気磁気効果による交換バイアス反転過程，発表者：渡邊 駿介，日本金属学会 2017 年秋期 (第 161 回) 講演大会，2017 年 9 月 6 日～8 日。
 22. パルス電圧による交換磁気異方性反転過程の観察，発表者：吉田大哲，日本金属学会 2017 年秋期 (第 161 回) 講演大会，2017 年 9 月 6 日～8 日。
 23. スピントロニクスデバイスを基盤としたナノ計測技術の開発と物質・材料研究への展開，発表者：白土 優，SPring-8 シンポジウム 2017，2017 年 9 月 4 日～5 日。
 24. Dynamical magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias 【招待講演】，発表者：Yu Shiratsuchi, Asia Pacific Society for Materials Research (APSMR) Annual Meeting 2017, 2017.
 25. Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 垂直交換バイアス膜の磁化緩和過程，発表者：白土 優，日本金属学会 2017 年春期 (第 160 回) 大会，2017 年 3 月 15 日～17 日。
 26. Influence of Pt and Au spacer layer on perpendicular exchange bias and coercivity in Pt/Co/spacer/Cr₂O₃/Pt stacked films，発表者：T. V. A. Nguyen, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会，2017 年 3 月 14 日～17 日。
 27. 垂直交換磁気異方性の方位反転と放射光を用いた原理解明 【招待講演】，発表者：白土 優
東北大学金属材料研究所共同利用ワークショップ 3 GeV 高輝度放射光 SLiT-J と産学協創，2016 年 12 月 13 日～14 日。
 28. Magnetic field dependence of threshold electric field for switching exchange bias polarity，発表者：T. V. A. Nguyen, 第 40 回日本磁気学会学術講演会，2016 年 9 月 5 日。
 29. スピントロニクスデバイスを基盤としたナノ計測技術の開発と物質・材料研究への展開，発表者：白土 優，SPring-8 シンポジウム 2016，2016 年 8 月 29～30 日。
 30. Dynamical magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias 【招待講演】，発表者：Yu Shiratsuchi, The 27th Magnetic Recording Conference, 2016
 31. Interfacial spin reversal based on magnetoelectric effect in Pt/Co/Cr₂O₃/Pt films 【基調講演】，発表者：Ryoichi Nakatani, 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9), 2016.
 32. Observation of ferromagnetic and antiferromagnetic domains in perpendicular exchange-biased system using Cr₂O₃ thin film，発表者：Yu Shiratsuchi, 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9), 2016.
 33. 電気磁気効果を利用した電界誘起界面反強磁性スピン反転 【招待講演】，発表者：白土 優

第3回関西四国磁性研究会 (IEEE Magnetic Society, Japan Council, Kansai/Shikoku Joint Chapter 講演会), 2017年6月24日.

34. 電気磁気効果による Co/Cr₂O₃ 界面の垂直交換磁気異方性反転とそのダイナミクス【招待講演】, 発表者: 白土 優, 日本磁気学会第208回研究会, 2016年6月9日.
35. Magneto-electric switching of interfacial spins toward magnetic recording/memory【招待講演】
発表者: Yu Shiratsuchi, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (Thermec' 2016), 2016.

〔図書〕 (計1件)

1. 白土 優, 磁気便覧, 3.4.3項「スピントロニクス材料」(pp. 402-412), 丸善出版, 2016年1月27日発刊. ISBN-13: 978-4-621-30014-5

〔産業財産権〕

○出願状況 (計1件)

名称: 薄膜構造体、磁気記憶素子、磁気記憶装置及び薄膜構造体の製造方法

発明者: 白土 優, Nguyen Thi Van Anh, 中谷亮一

権利者: 国立大学法人 大阪大学

種類: 特許

番号: 特願 2016-146726

出願年: 2016年

国内外の別: 国内

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.mat.eng.osaka-u.ac.jp/mse2/MSE2-HomeJ.htm>

プレスリリース: 磁石につかない反強磁性体の磁化の動きを可視化-磁気デバイスの低消費電力化・高速化を加速-, プレスリリース日: 2018年12月19日

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 中谷 亮一

ローマ字氏名: Ryoichi Nakatani

所属研究機関名: 国立大学法人 大阪大学

部局名: 大学院工学研究科

職名: 教授

研究者番号 (8桁): 60314374

研究分担者氏名: 野村 光

ローマ字氏名: Hikaru Nomura

所属研究機関名: 国立大学法人 大阪大学

部局名: 大学院基礎工学研究科

職名: 講師

研究者番号 (8桁): 20506258

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。