

令和 5 年 6 月 18 日現在

機関番号：13903

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05302

研究課題名（和文）反強磁性超薄膜における磁気異方性の能動的制御法の確立

研究課題名（英文）Active control of magnetic anisotropy in ultrathin antiferromagnetic films

研究代表者

壬生 攻（Mibu, Ko）

名古屋工業大学・工学（系）研究科（研究院）・教授

研究者番号：40222327

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：

物質中で原子がもつ磁気モーメントの方向が打ち消し合っている反強磁性体を、より能動的な磁性材料にするため、反強磁性超薄膜の磁気異方性（原子磁気モーメントの方向）を、静的または動的に制御することを目的とした。代表的反強磁性体であるヘマタイトの薄膜を主たる対象とし、その磁気異方性に対し、異種元素ドーピング、膜厚制御、エピタキシャル歪みなどの静的変調の影響を調べるとともに、電圧印加などの外的刺激による制御を試みた。その結果、静的変調に対する系統的なデータが蓄積されるとともに、リチウム化合物薄膜と積層化した薄膜において、電圧印加により磁気異方性が動的に変化することを示唆するデータを得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

外部に磁束を出さないため実用磁性材料の主役にはならないと考えられてきた反強磁性体の薄膜において、磁気異方性の静的制御法を確立するとともに、新たな動的制御方法を提示し、反強磁性体を能動的な実用材料として利用する上でひとつの有望な選択肢を拓いた。

研究成果の概要（英文）：

Methods to control the magnetic anisotropy (the directions of atomic magnetic moments) of antiferromagnetic films, statically and dynamically, were investigated to make antiferromagnets, where the magnetic moments of the constituent atoms are canceled out, more active and fascinating magnetic materials. It was tried, mainly for hematite, a typical antiferromagnet, to control the magnetic anisotropy through static modulations, such as doping of hetero-elements, control of the thickness, application of epitaxial strains, and dynamical modulations, such as electric voltage applications. Systematic data on the static modulations were accumulated, and data which suggest the change in magnetic anisotropy through the voltage applications were obtained for layered films with a lithium-containing compound.

研究分野：磁性薄膜

キーワード：反強磁性体 超薄膜 磁気異方性 スピントロニクス メスbauer分光

## 1. 研究開始当初の背景

物質中で原子がもつ磁気モーメントが打ち消し合って配列している「反強磁性体」は、外部に磁束を出さないため、長い間、実用磁性材料にはならないと考えられてきたが、「ナノテクノロジー」や「スピントロニクス」の発展に伴い、ヘテロ接合積層膜の界面での磁気結合を通じて強磁性薄膜の磁気モーメントの方向を固定するために使われるなど、実用的な役割を付与されつつあった。研究開始当初には、スピントロニクス素子への応用において、外部に磁束を出さないことが、隣接する素子に磁気的影響をおよぼさないという意味で、むしろ利点になると考えられるようになりつつあり、また、強磁性体より速い原子磁気モーメントのダイナミクスを利用した高速磁気スイッチング素子への応用などにも期待が寄せられつつあった。このような背景のもと、強磁性体以上に多様な物質群を抱える反強磁性体を、実用磁性材料として有効利用する研究のニーズが高まっていた。

## 2. 研究の目的

本研究では、反強磁性体の「超薄膜」の「磁気異方性」（原子磁気モーメントの方向）を、静的または動的に制御する方法を確立することを目的とした。まず、異種元素（不純物）のドーピング量や膜厚やエピタキシャル歪み量を変化させることにより、反強磁性薄膜の磁気異方性をどの程度（静的に）制御することが可能かを探った。次に、スピン流の注入や電圧の印加など、外的刺激により磁気異方性を（動的に）制御する方法を探り、スピントロニクスの黎明直後から「受動的な」磁性材料として用いられてきた反強磁性薄膜を、より「能動的な」磁性材料として用いる可能性を拓くことに挑戦した。

磁気関連素子において脇役と考えられてきた反強磁性薄膜の原子磁気モーメントの方向を、スピン流や電圧で直接制御することができれば、例えば、反強磁性薄膜に強磁性薄膜を接合し界面で磁気結合させることにより、任意の強磁性物質ナノ薄膜の磁化方向を、反強磁性層の磁気モーメントの方向の制御を通じて制御できる可能性などが拓かれ、スピントロニクス素子に新たな機能性を加えることが期待できる。

他の反強磁性薄膜研究と比較した際の本研究の独自性は、ヘマタイト ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ) に代表的にみられる「モーリン転移」を積極的に利用しようとする点にある。六方結晶族のヘマタイトでは、反強磁性磁気モーメントの方向が、263 K 前後で c 軸方向（低温相）から c 面内方向（低温相）に転移（モーリン転移）することが知られている。この転移は、低温で優勢な局所的結晶電場起因する c 軸方向の磁気異方性と、高温で優勢な磁気双極子相互作用に起因する c 面方向の磁気異方性の、2 つの磁気異方性の競合によって引き起こされるとされており、転移温度は不純物や歪みにより敏感に変化するといわれている。したがって、わずかな外的刺激により磁気モーメントの方向を制御することができると期待している。

## 3. 研究の方法

代表的反強磁性体であるヘマタイトの薄膜を中心的な研究対象とし、反強磁性超薄膜の磁気異方性に対する異種元素ドーピング、膜厚制御、エピタキシャル歪みなど静的な変調の影響を系統的に調べたのち、スピン流や電圧などの外的刺激による動的な制御に挑戦した。

反強磁性体の超薄膜（厚さ 20 nm 程度以下）を、パルスレーザー堆積装置を用いて作製し、研究の対象とした。蒸発源となるターゲット材料と基板の間にシャドウマスクを挿入して、ターゲットから直接飛翔するドロップレットの基板への付着を防ぐことにより、原子層レベルで平滑なエピタキシャル薄膜の作製を行った。高品質な超薄膜の作製には、このノウハウが不可欠である。

ヘマタイト薄膜の磁気モーメントの方向は、一般に、面内磁気モーメントを示す際に現れる（ジャロシンスキー-守谷相互作用による）磁気モーメントの完全反平行配置からの微小な傾きに付随する「弱強磁性」を測定することによって検出されるが、磁化信号が非常に小さくなる超薄膜領域では、これまでほとんど探査が行われておらず、古くから知られている物質であるにもかかわらず、その超薄膜の基礎物性は謎につつまれてきた。そこで本研究では、原子核によるガンマ線の共鳴吸収スペクトルより反強磁性体の局所的磁気モーメントの方向がわかる「メスバウアー分光法」を有効利用した。最近のシンクロトロン放射光メスバウアー分光法（核共鳴散乱法）の発展とともに低いプローブ核濃度の試料に対する実験が容易になりつつあり、超薄膜試料に対する低温・高温における測定、磁場中での測定、電場中での測定が可能になってきた。この機会をとらえ、メスバウアー核を含む反強磁性超薄膜の磁気異方性を、スピン流注入や電流印加によってコントロールすることが可能かどうかについて探った。さらに、メスバウアー分光法

でも十分な信号が稼げない、より薄い超薄膜に対し、電気伝導を通じてモーリン転移の検出を行う方法の開発を試みた。

#### 4. 研究成果

ヘマタイト薄膜を主たる対象とし、磁気異方性に対する異種元素ドーピング、膜厚制御、エピタキシャル歪みなどの静的変調の影響を系統的に調べるとともに、重金属ドーピングヘマタイト薄膜の室温付近での磁気異方性を電圧印加（外的刺激）によって動的に制御する実験を試みた。これらの過程で、メスバウアー分光法を駆使するとともに、より簡便な電気伝導測定を通じた反強磁性磁気モーメントの方向の検出方法を確立した。後者に関しては、絶縁体であるヘマタイト薄膜の上部に蒸着したプラチナ（Pt）薄膜の電気抵抗を、面内印加磁場の方向を変えながら測定した際の電気抵抗変化を捉える、「スピンホール磁気抵抗効果」の活用が有効であることが示された。

磁気異方性に対する静的変調の研究は順調に進み、系統的なデータが蓄積された。イリジウム（Ir）やルテニウム（Ru）をドーピングしたヘマタイトの薄膜では、モーリン転移温度の上昇がみられ、ドーピング濃度を適切に制御すると、室温付近で垂直磁気モーメントをもつ反強磁性薄膜を安定化することが可能であることがわかった。一方、膜厚を薄くした場合には、厚みの低下に伴うモーリン転移温度の低下がみられた。さらに、Irドーピング系の超薄膜に対しては、温度の上昇・下降に対して磁気異方性の非可逆な変化がみられ、超薄膜の実用デバイス利用にはRuドーピング系の方が適していることがわかった。なお、モーリン転移温度の上昇に対してより効果的なドーピング元素の探索も行ったが、研究期間中には、上記の2元素を凌駕する元素の発見には至らなかった。

動的変調に関しては、ヘマタイト薄膜の下部に蒸着した非磁性金属電極層に流す電流をOn/Offし、ヘマタイト薄膜に電流方向と垂直な方向のスピンの流（スピンホール効果に起因する）を注入した際や、ヘマタイト薄膜に垂直に印加する電圧をOn/Offした際の、反強磁性磁気モーメントの方向変化を調べる実験を、放射光メスバウアー分光法などを用いて試みた。その際、静的変調の研究で得られた情報を有効活用し、ドーピング元素の種類や量・膜厚を制御し、モーリン転移温度を室温付近にコントロールすることにより、室温付近でc軸方向とc面方向の磁気異方性が拮抗した状態を作り出した。いくつかの条件で重金属ドーピングヘマタイト薄膜単層膜に対する測定を試みたが、電流や電圧のOn/Offにより反強磁性磁気モーメント方向が動的に変化することを明瞭に示すデータを得るには至らなかった。そこで、研究期間の終盤には、リチウム（Li）化合物薄膜と積層化したヘマタイト薄膜において、積層膜の垂直方向への電圧印加実験を行った。界面付近でのLiイオンの出入りにより、ヘマタイト薄膜の磁気異方性が変化することを狙ったものである。その結果、モーリン転移温度が、電圧印加によりわずかに変化することを示すデータを得るに至り、最終年度は、その裏付け実験を重点的に推進した。

以上の成果は、共著の解説論文3報として国内専門誌に公表されるとともに、国際学会で1件、国内学会・研究会で5件の発表に結びついている。また、国際学術論文の原稿が完成し、まもなく投稿をおこなう予定である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 増田 亮、野崎 友大、Pati Satya Prakash、齋藤 真器名、三井 隆也、瀬戸 誠、佐橋 政司、壬生 攻	4. 巻 10
2. 論文標題 放射光メスパウアー線源法による $\text{-Fe}_{2/3}\text{O}_3$ 薄膜の Morin 転移評価とそのため の小型高温チャンバーの開発	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 SPRING-8/SACLA利用研究成果集	6. 最初と最後の頁 426 ~ 430
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.18957/rr.10.5.426	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 小野輝男、岡本聡、千葉大地、水口将輝、壬生攻（ONO Teruo、OKAMOTO Satoshi、CHIBA Daichi、MIZUGUCHI Masaki、MIBU Ko）	4. 巻 65
2. 論文標題 放射光で観たスピントロニクス材料と物性（Spintronic Materials and Their Properties Investigated by Synchrotron Radiation）	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 表面と真空（Vacuum and Surface Science）	6. 最初と最後の頁 218 ~ 223
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1380/vss.65.218	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 小野輝男、岡本聡、千葉大地、水口将輝、壬生攻	4. 巻 26
2. 論文標題 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	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 SPRING-8/SACLA利用者情報	6. 最初と最後の頁 101 - 108
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 壬生攻	
2. 発表標題 放射光メスパウアー分光法のさまざまな応用 - 放射性同位体線源 vs. 放射光 -	
3. 学会等名 第15回SPRUC核共鳴散乱研究会	
4. 発表年 2022年	

1. 発表者名 古田旭宏, 横山幸季, 藤井一樹, 田中雅章, 壬生攻
2. 発表標題 スピンホール磁気抵抗効果を用いたRuドーピング-Fe2O3薄膜におけるモーリン転移温度の膜厚依存性調査
3. 学会等名 IEEE Magnetism Society 名古屋支部若手研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Mibu
2. 発表標題 Mossbauer Spectroscopic Studies on Antiferromagnetic Thin Films for Spintronics Applications
3. 学会等名 International Conference on the Applications of the Mossbauer Effect 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中雅章, 横山幸季, 石井千森, 藤井一樹, 古田旭宏, 壬生攻
2. 発表標題 不純物をドーピングしたヘマタイト薄膜のモーリン転移のスピンホール磁気抵抗効果による検出
3. 学会等名 第45回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Ishii, K. Yokoyama, G. Takehara, M. A. Tanaka, and K. Mibu
2. 発表標題 Detection of Morin Transition in Pt/Ru-Doped-Hematite Bilayers Using Spin Hall Magnetoresistance
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 横山幸季, 石井千森, 竹原玄貴, 田中雅章, 壬生攻
2. 発表標題 スピンホール磁気抵抗効果を用いた不純物ドーピング-Fe2O3薄膜のモーリン転移の検出
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

壬生・田中研究室 研究紹介 <a href="http://mibulab.web.nitech.ac.jp/research/">http://mibulab.web.nitech.ac.jp/research/</a>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	田中 雅章  (Tanaka Masaaki)  (50508405)	名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授    (13903)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------