

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13359

研究課題名(和文)極性酸化物上の金属超薄膜の磁性に関する研究

研究課題名(英文) Magnetism in ultra-thin metallic film deposited directly on a polar oxide

研究代表者

千葉 大地 (Daichi, Chiba)

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) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性体/酸化物積層構造は、スピントロニクスデバイスの性能を決める鍵の一つである。しかし、酸化物の電気的な極性が、隣接する強磁性層に与える効果はよく分かっていなかった。本研究では、ZnO基板のZn・O両極性面上に直接製膜したCo超薄膜の磁気的・構造的な特性を調べた。磁気異方性とキュリー温度は、異なる極性面上に製膜された試料間で全く異なることが分かった。Co/O極性面の界面はやや拡散的であり、Co/Zn極性面のそれは原子レベルで平坦であった。これらの結果は、極性表面が強磁性層の特性に重要な役割を果たすことを示す。このような新規の系は、スピントロニクスデバイスに新たな機能をもたらすものと期待される。

研究成果の概要(英文)：A ferromagnetic-metal/oxide stack is one of the key structures that determines the spintronic device performance. However, the effect of the electronic polarity of the oxide on the magnetic properties of the adjacent ferromagnetic layer has not been understood. In this study, we show the magnetic and structural properties of Co ultra-thin films deposited directly on the Zn- and O-polar surfaces of ZnO substrates. The magnetic anisotropy and Curie temperature show dramatic differences for films on these surfaces. We confirmed that the Co/O-polar-surface hetero-interface is rather diffusive, whereas that of the Co/Zn-polar-surface is atomically flat. These results suggest that the surface polarity plays an important role in determining the properties of the film. This novel FM-metal/polar-oxide system is expected to add new functionality to spintronic devices.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：界面 極性酸化物 強磁性超薄膜 金属強磁性体

### 1. 研究開始当初の背景

磁性を自在に操る手法の開拓が、著者が目指す広い研究ターゲットである。その強力な手段の一つが、電界効果である。著者らのこれまでの研究により、キャリア濃度が電界で比較的控制しやすい強磁性半導体[Nature 408, 944 (2000), Nature 455, 515 (2008)]だけでなく、数原子層の強磁性 3d 遷移金属においても、磁性を電界により制御できることが分かった[Nature Materials 10, 853 (2011)]。特に、身近に使われている Co の超薄膜に電界を加えることで、室温を挟んで 100 K もの温度範囲でその磁力がオン・オフできることがわかり[Appl. Phys. Lett. 100, 122402 (2012)]、一度作った磁石の性質を、後から電気的に自在に操る研究が広がりを見せ始めている。中でも電界による磁気異方性の制御は、電流を用いない(電荷の充放電を用いる)低電力な手法として、磁気記録の書き込み手法への応用が期待されている。

上記の研究には、強磁性金属超薄膜に主に酸化物からなる絶縁体を介して電界を加えるのが一般的である。また、強磁性層/絶縁酸化物層/強磁性層からなるトンネル磁気抵抗素子は、ハードディスクの読み出しヘッドや不揮発性磁気メモリの記憶素子としてすでに実用化されている。このように、強磁性金属層と酸化物の積層構造は、スピントロニクスデバイスの性能の鍵を握る重要な構造である。酸化物の中には、ZnO のように電気的な極性を有するものもあり、そのような極性酸化物と隣接する強磁性金属層にどのような効果が表れるかは、あまり調べられてこなかった。

このような構造では、極性酸化物上の金属超薄膜にビルトインされた内部電界が存在しているはずである(図 1)。つまり、極性酸化物と接する強磁性金属薄膜側界面に電界が加わり、極性の符号に依存してその磁性が異なる可能性がある。上述のように、磁気異方性は磁気記録応用にとって非常に重要な物性である。本研究を通して得られる知見は、磁性体における磁気異方性の新たなデザイン指針を与えるかもしれない。また、内部電界を有する強磁性金属薄膜は、近年注目を集めている強磁性体中でのラシュバ効果を検証する上でも、理想的な舞台となりうる可能性がある。

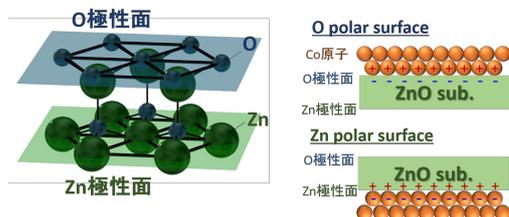


図 1: ZnO の結晶構造と O 極性面、Zn 極性面(左)。ZnO 極性面上に製膜した Co。

### 2. 研究の目的

本研究では、強磁性金属/極性酸化物という舞台を形成する一例として、原子レベルで平坦な表面を有する ZnO 基板と表面上に直接製膜した Co 超薄膜の系に注目する(図 1)。極性により Co 層の磁性が全く異なる可能性がある。これを観測し、その起源を多角的な実験により理解することが本研究の目的である。

ZnO は青色 LED で用いられている GaN などと同じく極性物質として知られており、可視光に対して透明であり紫外線を吸収する特性があることから、日焼け止めなどにも用いられている安価な材料である。一方、Co は、周期表では磁石として最もよく知られた鉄の隣に並んでいる物質で、ハードディスクの磁気記録媒体などに用いられている。このような身近な材料の組み合わせで、興味深い効果を見出すことも本研究の目的の一つである。

### 3. 研究の方法

東京電波製の ZnO 基板の O 極性面と Zn 極性面に、Co の超薄膜(0.4-3.6 nm)を直接スパッタ製膜し、Pt (2.4 nm)でキャップした。O 極性面と Zn 極性面は基板の表裏に存在するため、1.5 cm 角の ZnO 基板を二等分し、それぞれの表と裏に Co/Pt を製膜しただけである。X 線回折により、Co 層は fcc(111)もしくは hcp(0001)配向していることを確認した。原子間力顕微鏡により、試料表面は基板の原子ステップ&テラスがそのまま残っているほど平坦であることを確認した(図 2)。

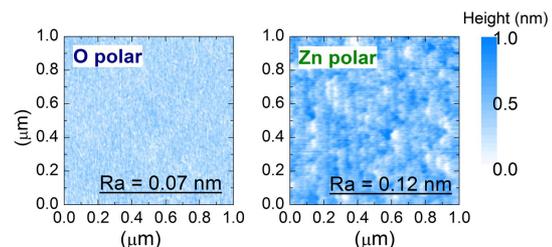


図 2: O・Zn 極性面上に製膜した試料の原子間力顕微鏡像。

### 4. 研究成果

本研究成果[Scientific Rep. 6, 38005 (2016).]のポイントは下記の 3 つである。

- ・全く同じ下地材料(基板)の上に全く同じ条件で製膜した磁石の膜が、基板表裏がもつ電氣的に異なる性質(極性)を反映して異なる性質をもつことが明らかになった。

- ・具体的には、ZnO 基板の表裏が異なる極性面(Zn 極性面と O 極性面)を有するとき、その基板の表裏に製膜した Co 薄膜は、構造的にも磁氣的にも全く異質であることが明らかになった。

・酸化物と金属の磁石を組み合わせた構造は、磁気記録素子や磁気センサにおいて広く用いられており、このような素子特性をデザインする上で、本結果は重要な指針を与えることが期待される。

本研究の興味深い結論は、同じ物質上に同じ物質を製膜しただけにもかかわらず、極性面が異なるだけで全く異なる磁氣的性質を示すことが分かったことである。Zn 極性面上の試料は明瞭な面内磁気異方性、O 極性上の試料は垂直磁気異方性を示し(図 3)、キュリー温度は Zn 極性面上の試料が約 60 K 高いことが分かった。また、Co の膜厚を変えた試料を準備し、磁気異方性の膜厚依存性を測定することで、ZnO/Co の界面磁気異方性と、Co のバルクの磁気異方性を切り分けることができた。その結果、界面磁気異方性の符号が両試料で逆転していることが明らかとなった。また、キュリー温度は、外部から故意に電界を加えた際の変化の方向[Nature Materials 10, 853 (2011)]と同じであった。

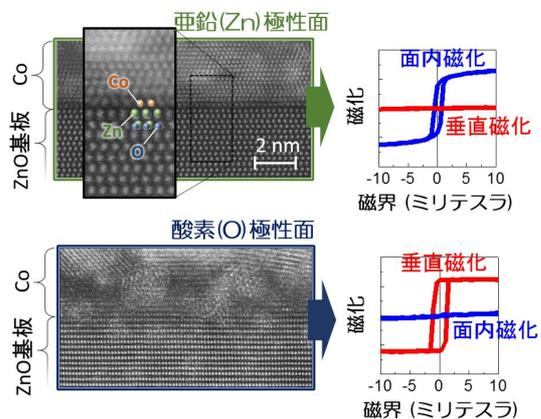


図 3: 試料の透過型電子顕微鏡像(左)と磁化曲線(右)。

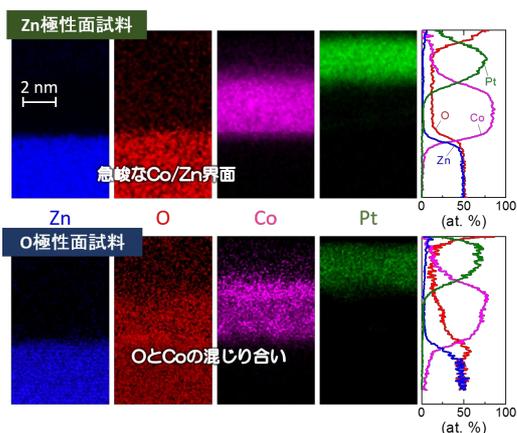


図 4: Zn・O 極性面上に製膜した試料のエネルギー分散型 X 線分析の結果。

透過電子顕微鏡を用いて界面付近の構造同定を行ったところ(図 3)、Zn 極性面上に製膜した試料は極めて良好な ZnO/Co 界面を有しており(図 3, 4)、Zn 終端面直上の Co の 1 原子層の面内の原子間隔は ZnO の a 軸の格子

定数と全く同じ(~0.32 nm)であった。これは、Co のバルクの原子間隔より 30%程度大きな値である。Co 膜厚 3.6 nm の試料では、Co は 2-3 原子層で格子緩和が起こり、バルクの格子定数に近づいた。また、6 原子層以降はほぼ完全な fcc(111)配向を示していることが分かった。一方で O 極性面上の Co は ZnO 基板との混じりあいが生じ(図 4)、多結晶もしくはアモルファス状の構造であった(図 3)。Co は O の直上に位置しやすいと考えられ、表面エネルギーが安定化するように構造を再構成し、そのために混じりあいが生じている可能性がある。磁気特性の違いは、Co の結晶性もしくは結晶構造、界面における Co の巨大な歪みに由来したものである可能性が高い。

以上のように、多角的な評価を通じて、極性基板上に直接製膜した強磁性金属薄膜の構造と磁気特性が明らかとなった。当初目論んだビルトイン内部電界が磁性に影響を及ぼしているかどうかまでを完全に理解するには至っていないが、Zn 極性面上の ZnO/Co の美しい界面は、ビルトインされた電界の存在を強く感じさせるものである。

本研究は、磁気記録やスピントロニクスの研究分野で広く用いられている酸化物と金属磁石の組み合わせをデザインする上で、重要な指針を与えるものである。また、上述のように ZnO 上の Co に電界がビルトインされている可能性は大いに考えられ、そのような内部電界は電子の運動に対して実効的な磁界を与えることが知られている。本研究はこのような性質を利用した物理的基礎研究や応用研究の舞台となる系を提供するものと期待される。本研究で人工的に作り出された自然界には存在しない金属磁石の原子層を用いて、物性の基礎的な理解が進み、新しい磁性の制御方法が拓けるものと期待される。

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 1 件)

D. Chiba, N. Shibata, and A. Tsukazaki, Co thin films deposited directly on ZnO polar surfaces、査読有、Scientific Reports 6, 38005 (2016).

DOI:10.1038/srep38005

[学会発表](計 5 件)

千葉大地、磁性に対する電界効果の最近の進展、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋、2015 年 9 月 15 日(招待)

千葉大地、金属超薄膜における磁性の電界効果、「スピントロニクス学術連携」研究報告会、仙台、2015 年 12 月 5 日(招待)

D. Chiba, Electric field control of magnetic properties in metallic ultra-thin films、第 25 回日本 MRS 年次大会、横浜、2015 年 12 月 10 日(招待)

千葉大地、金属超薄膜における磁性の電界

制御、日本磁気学会 第 205 回研究会/第  
56 回スピンエレクトロニクス専門研究会、  
2015 年 12 月 14 日(招待)

千葉大地、単結晶酸化物基板上に直接製膜  
した Co 超薄膜の磁性とその電氣的制御、  
東北大学電気通信研究所 共同プロジェ  
クト研究会、2017 年 1 月 31 日(招待)

[ その他 ]

東京大学工学系研究科物理工学専攻千葉  
研究室

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

東京大学工学部・プレスリリース：「酸化  
物の異符号極性面上の磁石は全く異なる  
性質を示すことが明らかに」

[http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws\\_20161130104231557269585593.html](http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_20161130104231557269585593.html)

## 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：1 0 5 0 5 2 4 1

### (2)研究分担者

なし

### (3)連携研究者

塚崎 敦 (TSUKAZAKI, Atsushi)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：5 0 4 0 0 3 9 6

柴田 直哉 (SHIBATA, Naoya)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：1 0 3 7 6 5 0 1