

令和元年5月29日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18991

研究課題名(和文)反強磁性体を用いた非磁性金属のスピン偏極

研究課題名(英文) Spin-polarization of nonmagnetic metal using antiferromagnet

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) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性源を使わない新しい磁性材料の創生手法として、表面磁化を示す反強磁性 Cr203(0001)薄膜とスピン軌道相互作用の大きいPtを積層することによるPtのスピン偏極の可能性について検討した。高感度な検出手法として、ホール効果を測定を行った結果、Cr203層のネール温度(反強磁性 常磁性転移温度)と考えられる300 K以上の温度領域で、明確な非線形ホール効果を観測した。X線磁気円二色性測定との関連を検討した結果、Pt層に明確なスピン偏極は観測されず、また、界面Crスピンの磁場に対する挙動とも整合しないため、新しい原理でのホール効果の可能性を示唆する結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性材料は発電、自動車、通信など現代社会のいたるところで利用されている。現在の磁石材料は、希土類に代表されるレアメタルによって良好な特性を得ることが多い。将来的な資源の枯渇に対応するため、これまでに想定されていなかった新しい手法での磁性材料の創生が必要とされる。本研究では、反強磁性体(ほとんどの酸化物)と重金属を原子レベルで積層させた界面に表れる特殊な効果を利用して、非磁性元素を磁性元素化する試みにチャレンジした。結果として、反強磁性Cr203/重金属Pt界面において、従来の原理では説明できないホール効果が発現することを見出し、磁性材料探索の新規原理の構築が期待される。

研究成果の概要(英文)：Toward the fabrication of magnetic material without using ferromagnetic element, the spin polarization of Pt with the strong spin-orbit interaction on the Cr203(0001) with the surface magnetization was explored. The Hall measurements, the high-sensitive detection method was adopted to detect the spin polarization of Pt. Above 300 K, i.e. the Neel temperature of Cr203, the obvious non-linear Hall effect was observed. Compared with the X-ray magnetic circular dichroism results, the observed non-linear Hall effect coupled with neither the Pt spin polarization nor the interfacial uncompensated Cr spins. The results implies that the new-type Hall effect was induced at the Pt/Cr203 interface.

研究分野：金属材料、磁性、スピントロニクス

キーワード：Cr203 Pt スピン偏極 ホール効果 XMCD

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

磁性材料は、パーメンジュール等の軟磁性体からネオジム磁石等の硬磁性体に渡って、様々な特性を有する材料が開発されているが、これらの材料に共通することは、Fe や Co を主成分として、種々の添加元素と合金化することで軟磁性や硬磁性の必要特性を実現している点にある。すなわち、周期表において単元素で強磁性体となり得る元素が限られているため、主成分となる磁性元素の選択制が低い。言い換えると、常磁性元素を Fe や Co 等の強磁性金属を用いず強磁性化することが可能になれば、全く新しい方法での磁性材料の開発指針が構築されることになる。本研究では、反強磁性体の表面磁化と非磁性金属の交換結合による非磁性金属のスピンの偏極の可能性について検討する。

2. 研究の目的

一般的な反強磁性体は、強磁性体とは異なり隣接するスピン（磁気モーメント）が反平行に配列するため、磁化が補償される。このため、反強磁性体に重金属を交換結合させた場合でも、補償されたスピンのために、重金属中に誘起されるスピン偏極も相殺され補償されることが予測される。本研究では、この課題を回避するために、電気磁気効果と呼ばれる特殊な効果を実現する反強磁性体を用いる。 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ は、電気磁気効果を示す典型的な材料であり、特に、 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3(0001)$ 上では、反強磁性スピンが面内で強磁性的に配列するとともに、内部とは異なる電子状態によって、表面第1層の反強磁性スピンが強磁性的にふるまう表面磁化を示す。本研究では、 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3(0001)$ 表面磁化と重金属 (Pt) を交換結合させることによる Pt のスピン偏極の可能性を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

ホール効果は、素子に磁場を印加した場合に電流と磁場の両方に直交する方向に電圧が発生する現象である。非磁性体においては、ホール電圧は磁場に対して直線的に変化する。(正常ホール効果)これに対して、強磁性体などの磁化を有する材料では、ホール電圧は素子に垂直宝庫鵜の磁化に比例する異常ホール効果が表れる。異常ホール効果は、特に時価の低い材料においては、磁化測定と比較して各段に高精度に磁化の挙動を検出することが出来ることから、近年ではナノ磁性材料の磁気特性評価に広く用いられている。本研究でも、Pt のスピン偏極の可能性を検討する第一段階として、Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 積層膜に対するホール効果計測を行った。特に、本研究で使用する系では、 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ が絶縁体であるためホール電圧のセンス電流は Pt のみに流れることから検出されるホール効果は、Pt 層内 (Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 界面を含む) で生成されるものである。ホール測定のために、図1に示す素子をフォトリソグラフィー法によって作製した。

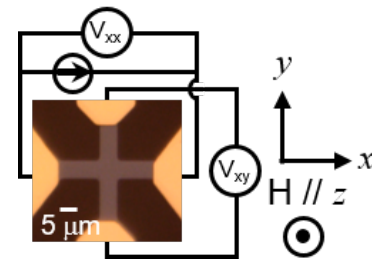


図1 異常ホール効果測定用微細加工素子の光学顕微鏡像と測定に用いた等価回路。

また、Pt 層のスピン偏極、および、界面 Cr スピン (表面磁化) の影響を直接的に計測するために、高輝度放射光施設 SPring-8 において X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行った。なお、XMCD 測定においては、入射する X 線のエネルギーを元素の吸収端に合わせることで、元素選択的にスピン情報を検出することが出来る。本研究では、Pt 層の XMCD 計測に硬 X 線、界面 Cr に対する XMCD 計測に軟 X 線を用いた。

4. 研究成果

図2(a)に、Pt 膜厚を 1 nm とした Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 積層膜に対するホール効果測定結果を示す。260 K 以下においては、ホール電圧はほぼ直線的に変化することに対して、300 K 以上では明確な非線形を示す。また、約 1 T の磁場においてホール電圧が飽和している。こうしたホール電圧の

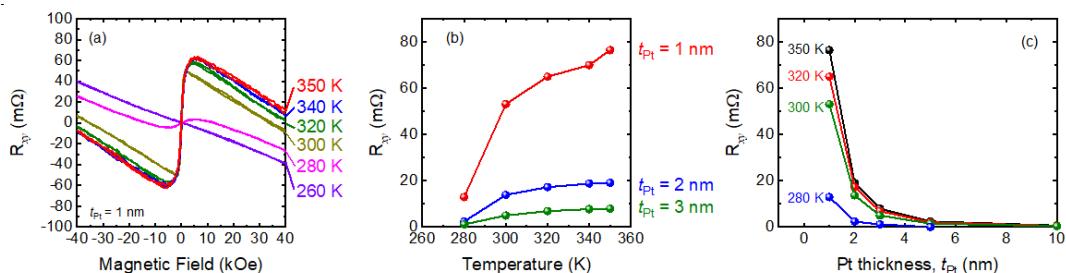


図2 (a) Pt 膜厚を 1 nm とした Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 積層膜のホール効果曲線と異常ホール電圧の (b) 温度依存性、および (c) Pt 膜厚依存性。(学会発表番号 5.)

磁場依存性は、Pt 層内で異常ホール効果が発現していることを強く示唆する。図 2(b)に示したように、異常ホール電圧は 300 K において急激に発現すること、また、 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ のネール温度 (反強磁性 - 常磁性転移温度) が 307 K であることから、観測された異常ホール効果は、 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ の常磁性温度領域で観測されているものと考えられる。さらに、図 2(c)に示したように一定温度における異常ホール電圧は、Pt 膜厚の低下とともに単調に増加する。これは、ホール電圧が Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 界面で生じていることを示唆する結果である。本研究では、異常ホール効果の起源として、以下の 2 つの可能性について検討した。

(1) Pt 層のスピンの偏極

Pt 層のスピンの偏極は、Pt に対する XMCD 計測により直接的に評価することが出来る。図 3 に、Pt L_{III} 吸収端における硬 X 線吸収スペクトルと XMCD スペクトルを示す。測定に用いた試料は、図 2 で使用した試料と同一である。吸収スペクトルには明確な吸収が観測され、また、吸収ピークの強度から Pt 層の酸化は無視できるレベルに小さいことが分かる。また、XMCD スペクトルには、 L_{III} 吸収端においても有意なシグナルが観測されない。ノイズレベルから解析した Pt 層に誘起される最大の磁気モーメントは、Pauli 常磁性と同レベルであることから、Pt 層内への交換結合によるスピンの偏極は、少なくとも膜面垂直方向に強磁性的に配列する成分は無視できるものと考えられる。

(2) Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 界面でのスピンホール磁気抵抗効果

Pt 層のスピンの偏極が非線形ホール効果の直接的な起源ではない場合、他の可能性として Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 界面におけるスピンホール磁気抵抗効果を考える。スピンホール磁気抵抗効果は、界面スピンから重金属層に流入するスピン流と Pt 層内でのスピン蓄積の相互作用を起源としている。この場合、スピン流の元となる界面 Cr スピンの磁場に対する挙動によって非線形ホール効果が説明できるものと期待される。一方で、冒頭で述べたように、反強磁性体は内部でスピンの補償されているため、反強磁性スピンによる磁気シグナルを検出することは、一般的には困難である。研究代表者らは、これまでに蓄積した成果を基に、軟 X 線磁気円二色性測定によって $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3(0001)$ の Cr スピンの XMCD シグナルを検出できることを示しており

(Y. Shiratsuchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 109, 077202 (2012).), 本研究でもこの手法を用いることで、Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 界面の Cr スピンを検出することを試みた。図 4(a)に、Cr L_{III} 吸収端での軟 X 線吸収スペクトルと XMCD スペクトルを示す。図 3 に示した Pt に対する XMCD スペクトルとは異なり、明確な XMCD シグナルが観測される。これは、 $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ は反強磁性体であるため局所的な磁気モーメントが存在することによる。本研究における検討で重要な項目は、上述の通り、界面 Cr スピンに磁場に対する応答にある。図 4(b)に、XMCD 強度の磁場依存性を示す。XMCD 強度は磁場に対して直線的に増加していることが分かる。XMCD 強度は、磁気モーメントの磁場方向の成分と解釈することが出来るため、XMCD 強度の直線的な増加は、反強磁性体の本質的な帯磁率を検出しているものと考えられる。図 4(b)に示した XMCD の磁場依存性は、図 2 に示した異常ホール効果曲線とは一致せず、このことから、スピンホール効果起源の異常ホール効果であった場合にも、Pt 層内のスピン蓄積を

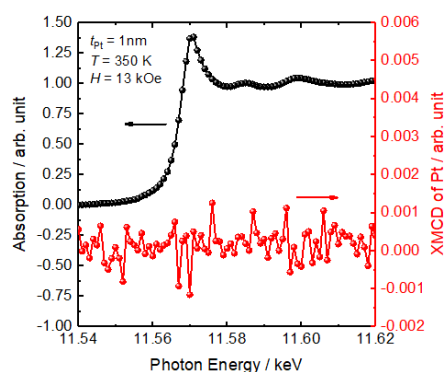


図 3 Pt 膜厚を 1 nm とした Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 積層膜における Pt L_{III} 吸収端での硬 X 線吸収スペクトル (黒) および XMCD スペクトル (赤)。測定温度は、非線形ホール効果が観測できる 350 K、印加磁場は異常ホール電圧が飽和する 13 kOe とした。(学会発表番号 5.)

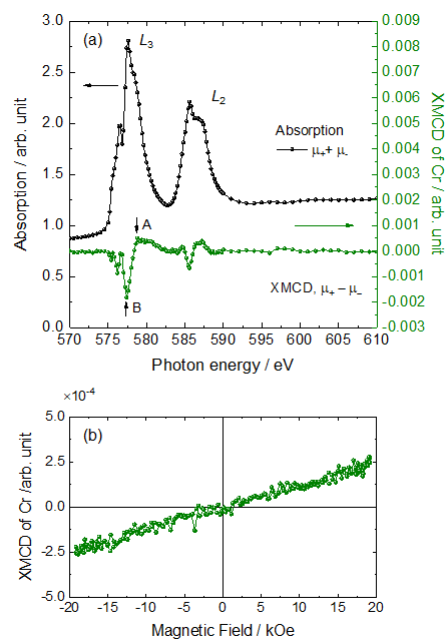


図 4 Pt 膜厚を 1 nm とした Pt/ $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ 積層膜における (a) Cr L_{III} 吸収端での軟 X 線吸収スペクトル (黒) および XMCD スペクトル (緑)。 (b) XMCD の印加磁場依存性。シグナル - ノイズ比の向上のために、XMCD スペクトル中に A, B で示した光子エネルギーで測定した値の差分を示している。測定温度は、非線形ホール効果が観測できる 300 K、印加磁場は異常ホール電圧が飽和する 19 kOe とした。(学会発表番号 5.)

反転させている磁気秩序については、明らかになっていない。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 12 件)

1. Resistive detection of the Néel temperature of Cr_2O_3 thin film, Tatsuya Iino, Takahiro Moriyama, Hiroyuki Iwaki, Hikaru Aono, Yu Shiratsuchi and Teruo Ono, Applied Physics Letters, Vol. 114, 022402 (4pp) (2019). DOI: 10.1063/1.5058222. 査読有

〔学会発表〕(計 27 件)

1. スピンホール磁気抵抗効果を用いた Cr_2O_3 薄膜のネール点検出, 発表者: 飯野達也, 森山貴広, 岩城宏侑, 青野 晃, 白土 優, 小野輝男, 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.
2. Ir/Spacer(=Au, Cu, Ti)/ Cr_2O_3 積層膜における非線形ホール効果, 発表者: 青野 晃, 白土 優, 中谷亮一, 森山貴広, 飯野達也, 小野輝男, 日本金属学会 2019 年秋期大会, 2019 年 9 月 19 日~21 日.
3. Determination of the Néel temperature by the spin Hall magnetoresistance, 発表者: Tatsuya Iino, Takahiro Moriyama, Hikaru Aono, Yu Shiratsuchi, Teruo Ono, International Conference on Magnetism 2018 (ICM2018), July 15–20, 2018.
4. スピンホール磁気抵抗効果を利用した磁気相転移の検出, 発表者: 飯野達也, 森山貴広, 青野 晃, 白土 優, 小野輝男, 日本物理学会第 73 回年次大会, 2018 年 3 月 22 日~25 日.
5. Pt/ Cr_2O_3 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, 青野晃, 森山貴広, 鈴木基寛, 中村哲也, 小野輝男, 中谷亮一, 日本金属学会 2018 年春期大会, 2018 年 3 月 19 日~21 日.

〔その他〕

ホームページ等

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

6. 研究組織

(1) 研究分担者

該当なし

(2) 連携研究者

研究分担者氏名: 森山 貴広

ローマ字氏名: Takahiro Moriyama

所属研究機関名: 国立大学法人 京都大学

部局名: 化学研究所

職名: 准教授

※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。