

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 5 月 17 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05199

研究課題名（和文）4d/5d金属薄膜中量子井戸状態の電氣的操作を用いた隣接磁性薄膜の磁気異方性制御

研究課題名（英文）Magnetic anisotropy control of adjacent magnetic thin films using electrical manipulation of quantum well states in 4d / 5d metal thin films

研究代表者

佐藤 徹哉（Sato, Tetsuya）

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・教授

研究者番号：20162448

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：PdとPt薄膜に生じる量子井戸状態を電場で操作して隣接する強磁性薄膜の磁気異方性制御を行う方法を提案し、実証することを目指した。

第一原理計算を用いてPd超薄膜の磁性の制御が界面電子状態の変調を介して可能であること、Fe/Pd多層膜においてPd層に形成される量子井戸がFeの磁気モーメントや軌道磁気モーメントの変化を介して変調されることを見出した。放射光実験によりPt(100)薄膜に見られる強磁性がPt固有であることは分かったが、純粋なPtの軌道磁気モーメントはPt化合物のものよりはるかに小さく、Ptと隣接磁性金属の接合で磁性金属の磁気異方性を大きく変調させることは困難なことが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁気デバイスの省エネルギー化への期待から磁気異方性の電場制御が注目され、これまで多くの手法が提案されている。しかし、現在までその物理的基盤が明確で広範に利用可能な磁気異方性の電場制御法は確立されていない。

本研究では、PtおよびPd薄膜中に形成される量子井戸状態の電場による操作を用いて、隣接する強磁性薄膜の磁気異方性の制御を実現する新たな手法を提案している。この手法の物理的基盤は明確であり、広範に利用可能である。しかし、純粋なPtの軌道磁気モーメントがPt化合物等に見られるものよりはるかに小さいことが分かり、この手法を用いた磁気異方性制御は容易ではないことが明らかにされた。

研究成果の概要（英文）：We aimed to propose and demonstrate a method for controlling the magnetic anisotropy of adjacent ferromagnetic thin films by manipulating the quantum well states generated in Pd and Pt thin films with an electric field.

First-principles calculations show that it is possible to control the magnetism of Pd ultrathin films using through modulation of interfacial electronic states, and the quantum wells formed in the Pd layer in Fe/Pd multilayer films are modulated through changes in the magnetic moment and orbital magnetism of Fe. Synchrotron radiation experiments have shown that the ferromagnetism found in Pt(100) thin films is Pt-specific, but the orbital magnetic moment of pure Pt is much smaller than that in Pt compounds. It was found that it is difficult to greatly modulate the magnetic anisotropy of the magnetic metal in joining of Pt and adjacent magnetic metals.

研究分野：磁気工学

キーワード：量子井戸 Pd超薄膜 Pt超薄膜 磁気異方性 電氣的手法 磁性制御 放射光実験

1. 研究開始当初の背景

記憶デバイスなどの磁気デバイスの省エネルギー化への期待から磁気異方性の電場制御が注目されている。これまで、電解質における電気2重層に生じる強電場を用いた FePt の異方性制御、Fe/MgO 接合を用いた Fe の異方性制御など多くの手法が提案されている。しかし、これらの報告では制御法の機構が十分に明確にされていない、またはその実現性が十分に検証されておらず、磁気異方性の電場制御の方向性は混沌としている。これより、物理的基盤が明確で広範に利用可能な磁気異方性の電場制御法の確立が強く望まれている。

本研究は、PtおよびPd薄膜中に形成される量子井戸(QW)状態の電場による操作を用いて隣接する強磁性薄膜の磁気異方性を制御する新しい制御法の実証することを目的としている。これまで計算により強磁性FePdの磁気異方性がPdキャップ層の膜厚に対して振動的に変化することが示され、この挙動は膜厚変化に伴うPd中QW状態の変化と関連する。それゆえ、電場によりPtおよびPd薄膜中のQW状態の操作が可能であるならば、隣接する強磁性体の磁気異方性の電場制御が可能であるものと考えられる。以上より、QW操作を用いた広範に利用可能な磁気異方性制御法の基盤の樹立が期待される。

2. 研究の目的

これまでPd超薄膜の磁性を調べ、膜厚に対して周期的に強磁性が発現することを見出した。これは膜中に形成されたQW準位がフェルミエネルギーと交差する膜厚でストーナの強磁性発現条件が満足されるためであると理解される。Pt薄膜に対しても同様の磁性が期待される。QW由来の強磁性発現条件から、原子層厚、フェルミエネルギー（フェルミ波数）、界面位相シフトを操作することで磁性を変調させることが可能である。これより、電場によりフェルミエネルギーまたは界面位相シフトを変調させてQW状態を操作することが可能であるならば、隣接強磁性体の磁気異方性を制御できるものと期待される。

以上のことを明らかにするために(1) 電子構造計算を用いて、QW状態の位相シフトを変化させることでPd超薄膜の磁性をスイッチングできることを理論的に検証し、(2) 放射光実験を行うことでこれまで明らかにされていないPt超薄膜のQWに基づく強磁性の発現を明らかにすると共に、(3) 放射光実験を詳細に解析することで、強磁性Pt超薄膜の磁気異方性の起源を調べて磁気異方性制御の実現性を検討する。

3. 研究の方法

以下の項目について研究を遂行した。

(1) QW状態の位相シフトの変化に伴うPd超薄膜の磁性スイッチングの理論的検証

密度汎関数計算を使用した界面電子状態の変調を介して、*d*-電子QWによって誘発された強磁性を示すPd (100) 超薄膜の磁性が制御されることを検討する。位相モデルに基づいた分析を用いてAu/Pd (100) 界面とAl/Pd (100) を形成した際の散乱位相シフトの変調の相違を見積もる。これにより、波動関数の混成を使用して界面の電子状態を調整することによって位相シフトが変化することでPd 薄膜のフェルミエネルギー付近の状態密度が変化し、常磁性と強磁性のスイッチングが可能であることを検証する。

(2) Pt超薄膜のQWに基づく強磁性発現の検証

チタン酸ストロンチウム基板上に蒸着した Pt(100)薄膜の磁性を磁気測定で調べ、放射光を用いた X 線磁気円二色性測定を行って Pt 薄膜に発現する強磁性が Pt 固有のものであるか否かを調べる。さらに、この強磁性の膜厚依存性を詳細に議論するために第一原理計算を行い、Pt 薄膜に発現する強磁性の起源が量子井戸状態に起因する可能性を検討する。

(3) 強磁性 Pt 超薄膜の磁気異方性の起源に基づく近接強磁性薄膜の磁気異方性制御実現性の検討

Pt(100)薄膜の X 線磁気円二色性測定結果を総和則を用いて検討することで、純粋な Pt の軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントを評価する。この結果を基に Pt(100)薄膜に大きな磁気異方性が発現するか否かを検討する。これにより、Pt(100)薄膜と近接した強磁性薄膜の磁気異方性を制御することの実現性について検討する。

4. 研究成果

(1) QW状態の位相シフトの変化に伴うPd超薄膜の磁性スイッチングの理論的検証

密度汎関数理論(DFT)計算を用いて、遷移金属が積層された効果によって引き起こされる量子井戸誘起強磁性を伴うPd (100) 超薄膜の磁気的変化を調べた。図1のようなスラブモデルを用いて計算を行った。

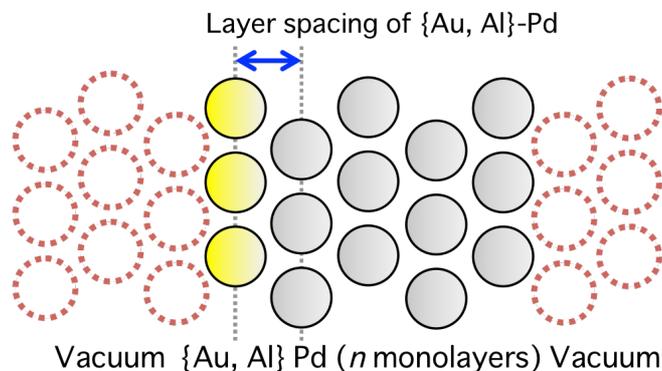


図1.計算の用いたスラブモデルの概念図

Au層の場合には、電子がd電子QW上に積み重ねられた状態で量子井戸によって誘発された強磁性の変化が観察された。この現象は、積層されたd電子とd電子量子井戸状態のバンド分散間の波動関数の混成を介した逆格子空間の関数としての界面散乱位相シフトの変化によって説明される。閉じ込められた $d_{xz,yz}$ 電子の場合では、その変化はゾーンの端の周囲でのみ発生し、バンド分散の形状が変化した。s電子のみを含むAlの積層ではフェルミエネルギーの周囲でs電子とd電子の間に混成軌道が存在しないため、d電子量子井戸状態のバンド分散の形状が変更しない。この発見は金属ナノ構造の界面電子状態変化を利用して磁性を制御するための機構を示唆し、この機構は他の磁性材料にも拡張することが可能であるものと考えられる。

(2) Pt超薄膜のQWに基づく強磁性発現の検証

Pt薄膜の作製には分子線エピタキシー法を用いた。Base pressureが 10^{-9} Torr台に保たれた真空下でSTO基板上にエピタキシャルなPt薄膜を作成した。初めに目標膜厚の20%を653 Kにて蒸着し、残りの80%を室温下で蒸着した。その後高速電子線回折(RHEED)画像を確認しながら573 Kでアニールを行った。図2に示されるように、作成したPt(100)薄膜のRHEED像にシャープなストリークが観測されたために、PtはSTO基板上にエピタキシャルに成長し、原子層単位で平坦な薄膜であると判断される。作製した試料は大気に晒さずに超高真空中で石英管中に封入し、そのままの状態での磁気測定を行った。300 Kにおいて測定したPt(100)薄膜のSTOの反磁性成分を差し引いた初磁化曲線を求めた。図3に示すヒステリシスループから、膜厚3.97 nmの試料ではPt(100)薄膜の保磁力は100-200 Oeであることが確認された。

磁気測定で見られたPt薄膜の強磁性の挙動はPt固有のものであることを確認するために、SPring-8のビームラインBL39XUにおいてPtのL吸収端を用いて、膜厚3.17 nmのPt(100)薄膜のX線吸収スペクトル(XAS)、X線磁気円二色性(XMCD)、元素選択的磁化(ESM)を測定した。図4にXAS, XMCD, ESMの測定結果を示す。

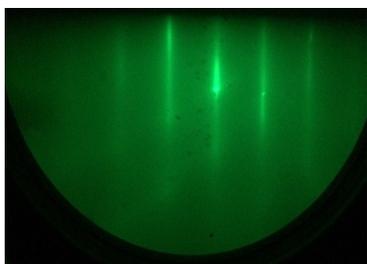


図 2. 作成した Pt(100)薄膜の RHEED 像

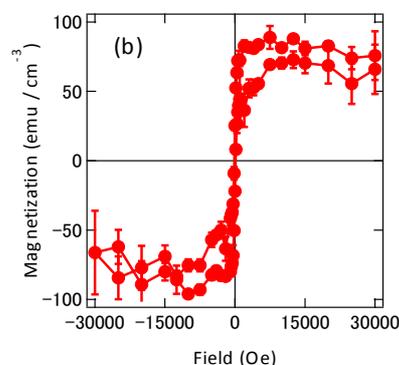


図 3. 膜厚 3.97 nm の Pt(100)薄膜試料のヒステリシス曲線

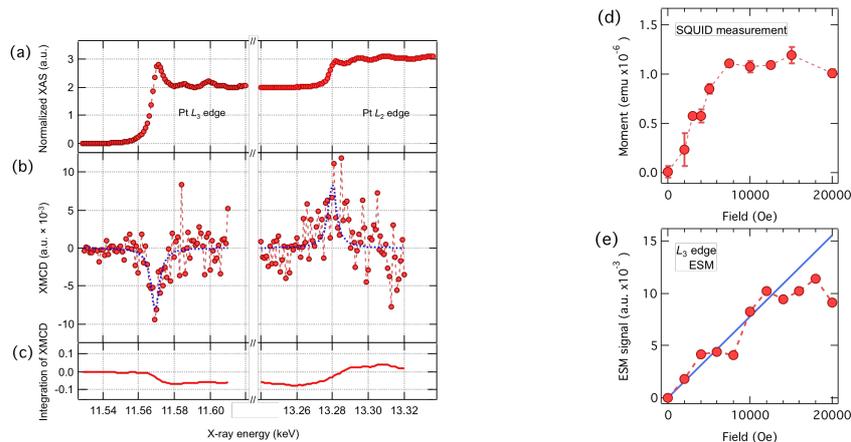


図 4. 膜厚 3.17 nm の Pt(100)薄膜の XAS, XMCD, EMS の測定結果

XMCD 測定のピークが生じるエネルギーと信号の符合から、作成した Pt(100)薄膜は Pt 固有の磁化を示すことが明らかである。図 4(d)と(e)には XMCD 信号から得られる EMS の磁場依存性と磁気測定で得られた磁化の磁場依存性を比較して示した。両者が飽和する磁場はほぼ一致しており、これは Pt が他の強磁性体との近接効果なしで強磁性を示すことを意味する。

また、Pt 薄膜において強磁性が発現する膜厚依存性は第一原理計算から求めた結果と一致することが分かった。この結果から、Pt 薄膜の強磁性は QW に起因するものであることが明らかである。

(3) 強磁性 Pt 超薄膜の磁気異方性の起源に基づく近接強磁性薄膜の磁気異方性制御実現性の検討
 強磁性を示す Pt 薄膜の XAS・XMCD 測定の結果から総和則を用いて軌道磁気モーメント m_{orb} と有効スピン磁気モーメント m_{spin}^{eff} を見積もった結果、 $m_{orb} = 0.000 \pm 0.001 \mu_B$ 、 $m_{spin}^{eff} = 0.018 \pm 0.002 \mu_B$ であり、全磁気モーメントは $m_{tot} = 0.019 \pm 0.002 \mu_B$ と見積もられた。この値は、Pt/STO 試料の磁気測定結果である $m_{tot} = 0.06 \sim 0.07 \mu_B$ に比較して小さい。軌道磁気モーメントと有効スピン磁気モーメントの大きさの比は、 $\frac{m_{orb}}{m_{spin}^{eff}} = 0.015$ であり、強磁性金属との近接効果で強磁性が発現した Pt に報告される (Co/Pt: 0.14、YIG/Pt: 0.087) と比較して小さい。

Pt(100)薄膜は $L1_0$ FePt に見られるような大きな保磁力を有しない。これは、Pt(100)薄膜の軌道磁気モーメントが微小であるため軌道角運動量とスピン角運動量の内積で与えられるスピン軌道相互作用が小さく、それに伴って Pt(100)薄膜の保磁力が小さくなった、すなわちスピン軌道相互作用と関連している磁気異方性が非常に小さくなったものと考えられる。この結果は多くの Pt を含む化合物に見られる大きな磁気異方性の起源は Pt のスピン軌道相互作用のみでは説明されないことを意味する。これより、Pt と隣接強磁性金属との接合で磁性金属の磁気異方性を大きく変調させることが容易ではないことが示唆される。

5. 主な発表論文等

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

| | |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名 Shunsuke Sakuragi, Hiroyuki Kageshima, and Tetsuya Sato | 4. 巻 101 |
| 2. 論文標題 Switching of magnetism via modifying phase shift of quantum-well states by tailoring the interface electronic structure | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Phys. Rev. B | 6. 最初と最後の頁 014410/1-9 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.014410 | 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 - |

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 落合敬祐, 佐藤徹哉 |
| 2. 発表標題 Pt(100)超薄膜に発現する強磁性の膜厚依存性 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会 |
| 4. 発表年 2019年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

| |
|---|
| Sato Lab - 佐藤研究室 慶應義塾大学理工学部物理情報工学科 http://www.az.appi.keio.ac.jp/satohlab/ 検索結果 ウェブ検索結果 Sato Lab - 佐藤研究室 慶應義塾大学理工学部物理情報工学科 http://www.az.appi.keio.ac.jp/satohlab/ |
|---|

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 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

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 |
|---------|---------|
|---------|---------|