

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K14193

研究課題名（和文）遷移金属カルコゲナイト二次元層状多結晶の強磁性とその応用

研究課題名（英文）Ferromagnetism in polycrystalline two-dimensional transition-metal chalcogenides and applications

研究代表者

宗田 伊理也 (Muneta, Iriya)

東京工業大学・工学院・助教

研究者番号：90750018

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000 円

研究成果の概要（和文）：(1) 多結晶MoS₂の磁化測定を実施し、磁化の成膜温度依存性を測定し、300 から500 までの傾向の観測に成功した。500 以上の温度については検討中である。
 (2) 多結晶MoS₂において磁気抵抗を観測し、加えて、磁気抵抗の磁場依存性が電流の大きさによって大きく変化することを観測した。強磁性が微小な電流によって変調されることを世界で初めて実証した。Scientific Reportsにて出版。
 (3) 多結晶MoS₂について強磁性の層数依存性を測定している。3層までは飽和磁化の層数依存性は一定であったが、3層を下回ると低下することを確認した。補足のデータを得るなどして論文化を準備中である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

不揮発性磁気メモリの超微細化、および、三次元化の実現には、表面が原子レベルで平坦なファンデアワールス強磁性体が重要である。私が推進するファンデアワールス層状物質の二硫化モリブデンのエッジ強磁性の研究はその一端を担い、産業を振興することに繋がる。また、4d軌道を起源に持つ強磁性体は珍しく、加えて、エッジ構造のトポロジカル欠陥に起源するものと予想されている。非磁性であった物質を強磁性にする基礎研究は、物質科学の進展に大きく寄与する。

研究成果の概要（英文）：(1) MoS₂ magnetometry was investigated. Magnetization was successfully measured on the samples grown at 300-500 degree. The sample grown above 500 is under consideration.
 (2) Magneto resistance of polycrystal MoS₂ was observed, and magnetic field dependence of it was largely changed according to current intensity. I demonstrated ferromagnetism modulation by ultra-low current in the first time in the world.
 (3) Layer-number-dependence of ferromagnetism in polycrystal MoS₂ is being measured. It was confirmed that saturated magnetization is constant above three layers, but it decreased under 3 layers. This result is to be published after preparing auxiliary data.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 層状半導体 ファンデアワールス強磁性体

1. 研究開始当初の背景

近年、製品化された磁気ランダムアクセスメモリー(MRAM)は DRAM を不揮発にする可能性を持つ不揮発性メモリーであり、電源をオフにしても値を保持できるため、低消費電力である。しかし、磁化方向を電気的に制御する際の消費エネルギーの低減が課題である。MRAM の素子である磁気トンネル接合には 3d 軌道遷移金属強磁性体が用いられており、3d 軌道電子は局在性が高く、電気的に制御が難しい。一方、4d 軌道電子は広がりを持ち、電気的な制御が容易ではないだろうかと命題を設定した。4d 遷移金属の化合物である MoS₂は、単結晶ではない結晶構造において強磁性を示すことが報告され、本研究のこれまでの取り組みにおいても、スパッタの多結晶薄膜において強磁性を観測しており、期待が持てる。

2. 研究の目的

原子層状物質である MoS₂の多結晶境界に起因する強磁性と応用について研究することを目的とした。基礎的な物性の理解と強磁性の電気的な変調の試みとして、下記の三つの課題を研究期間において主に遂行した。

- (1) 多結晶 MoS₂層状半導体の強磁性の成膜温度依存性
- (2) 多結晶 MoS₂層状半導体の磁気抵抗と微小電流による強磁性変調
- (3) 多結晶 MoS₂層状半導体の強磁性の層数依存性

3. 研究の方法

多結晶 MoS₂層状半導体は、スパッタ法により成膜した。用いたスパッタターゲットは、純度が 4N の MoS₂ 化合物ターゲットである。磁化測定を実施する試料においては、MoS₂ 層の上部に ALD により Al₂O₃ を成膜し、大気圧の Ar 雰囲気中において 700°Cでアニールを施した。磁気抵抗測定を実施する試料においては、ALD による Al₂O₃ 層の上部に、Ag 電極を蒸着し、2 端子抵抗測定を実施した。

4. 研究成果

(1) 強磁性の成膜温度依存性

スパッタ堆積時の成膜温度 300°Cから 500°Cまでについて、多結晶 MoS₂の強磁性の飽和磁化が成膜温度の上昇とともに増大することを確認した。500°C以上の成膜温度については、ばらつきがあり、結晶構造との関連性などの確認を検討中である。

(2) 磁気抵抗と微小電流による強磁性変調

磁気抵抗は、4Kにおいて測定した。磁場は面直と電流に直交する方向の面内に印加し、印加する電流を 1 nA から 0.56 mA まで変えた。図 1 に示す通り、磁気抵抗の磁場依存性が観測され、強磁性であると確認できる。さらに、磁気抵抗の磁場依存性の形状が印加した電流の大きさによって大きく変化することが分かる。加えて、面直磁場と面内磁場でも磁気抵抗の形状と電流依存性が異なり、磁気異方性を持つことが分かる。電流による強磁性の変調に成功した。その要因は強磁性の起源である Mo の 4d 軌道の占有状態が微小な電流により変化したためではないかと考えている。本成果は Scientific Reports にて出版した[1]。

(3) 層数依存性

多結晶 MoS₂の磁化の磁場依存性を層数の異なる試料において測定した(図 2)。層数が 1.5 層、2 層、3 層

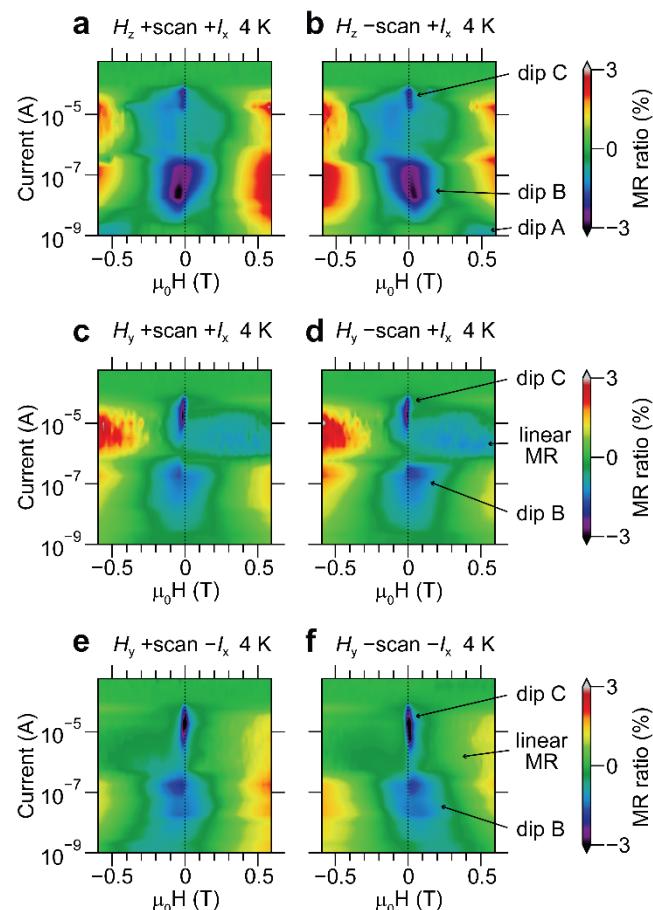


図 1 多結晶 MoS₂薄膜における磁気抵抗の印可電流依存性。a,b 面直磁場、c,d 面内磁場(+電流)、e,f 面内磁場(−電流)。Reference: [1]

と増大すると、飽和磁化が増大していた(図 3)。3 層以上においては、飽和磁化は一定となると推測できる。室温において、原子レベルの膜厚で強磁性を示すファンデアワールス強磁性体は例が少なく、本研究結果は期待が持てる。

Reference:

- [1] I. Muneta, T. Shirokura, P. N. Hai, K. Kakushima, K. Tsutsui, and H. Wakabayashi, “Ferromagnetism modulation by ultralow current in a two-dimensional polycrystalline molybdenum disulphide atomic layered structure”, *Scientific Reports* **12**, 17199 (2022).
- [2] T. Shirokura, I. Muneta, K. Kakushima, K. Tsutsui, and H. Wakabayashi, “Strong edge-induced ferromagnetism in sputtered MoS₂ film treated by post-annealing,” *Appl. Phys. Lett.* **115**, 192404 (2019).

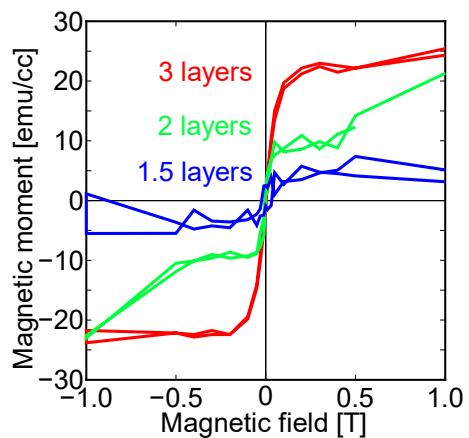


図 2 多結晶 MoS₂ における磁化の磁場依存性のヒステリシス。

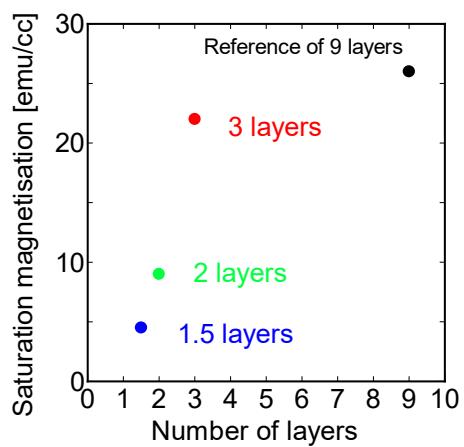


図 3 多結晶 MoS₂ における飽和磁化の層数依存性 (Reference は[2]のデータ)。

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 1件)

| | |
|--|---------------------|
| 1. 著者名 Iriya Muneta; Takanori Shirokura; Pham Nam Hai; Kuniyuki Kakushima; Kazuo Tsutsui; Hitoshi Wakabayashi | 4. 巻 12 |
| 2. 論文標題 Ferromagnetism modulation by ultralow current in a two-dimensional polycrystalline molybdenum disulphide atomic layered structure | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Scientific Reports | 6. 最初と最後の頁 17199 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-22113-3 | 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5件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 宗田 伊理也, 白倉 孝典, PHAM NAM HAI, 角嶋 邦之, 筒井 一生, 若林 整 |
| 2. 発表標題 Ferromagnetism and current control of magnetoresistance in two-dimensional polycrystalline MoS ₂ |
| 3. 学会等名 第63回フラー・レン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 宗田 伊理也, 白倉 孝典, ファム ナムハイ, 角嶋 邦之, 筒井 一生, 若林 整 |
| 2. 発表標題 強磁性を示す二次元多結晶層状物質MoS ₂ における非対称線形磁気抵抗 |
| 3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 宗田伊理也, 白倉 孝典, ファム ナムハイ, 角嶋 邦之, 筒井 一生, 若林 整 |
| 2. 発表標題 二次元多結晶二硫化モリブデン原子層状膜における超低電流強磁性変調 |
| 3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 岡村 俊吾, 宗田 伊理也, 白倉 孝典, 若林 整 |
| 2. 発表標題 MoS ₂ 極薄膜における磁化特性の層数依存性 |
| 3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Iriya Muneta, Takanori Shirokura, Pham Nam Hai, Kuniyuki Kakushima, Kazuo Tsutsui, Hitoshi Wakabayashi |
| 2. 発表標題 Ferromagnetism modulation by ultralow current in a two-dimensional polycrystalline molybdenum disulfide atomic layered structure |
| 3. 学会等名 Intermag 2023 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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