

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：14401  
研究種目：若手研究  
研究期間：2021～2022  
課題番号：21K14196  
研究課題名（和文）反強磁性・強磁性相転移を利用した反強磁性スピン配列の電界制御と磁気メモリへの応用  
  
研究課題名（英文）Electric-field control of antiferromagnetic spin configuration via antiferromagnetic/ferromagnetic transition and applications for memory devices  
  
研究代表者  
宇佐見 喬政（Takamasa, Usami）  
  
大阪大学・大学院基礎工学研究科・特任研究員（常勤）  
  
研究者番号：30880273  
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：磁気記録素子の記録密度向上に向けて、電界による効率的な反強磁性スピン配列技術を実証するために、反強磁性・強磁性相転移材料と圧電材料を組み合わせた界面マルチフェロイク構造による制御手法を着想した。この手法では、圧電歪みを利用して反強磁性状態を強磁性状態に相転移させ、強磁性状態を介してスピン配列の変調を行うため、高効率に強磁性磁化ベクトルを電界により制御することが必要となる。代表者は種々の磁性材料を圧電体上に成長し、界面マルチフェロイク構造を作製することで、磁性層の面方位の選択と磁気異方性を適切な大きさに調整することが、電界による磁化ベクトルの高効率制御に重要であることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義  
電界により磁性を制御できる界面マルチフェロイク構造は、磁性メモリデバイスなどの低消費電力動作に資する技術と期待されているが、高効率な動作のための設計指針は未確立な部分が多い。本成果は、界面マルチフェロイク構造を利用した強磁性状態の磁化ベクトルの高効率制御を達成するために、磁性層の結晶面方位の選択ならびに磁気異方性の大きさの調整が重要な要素であることを見出しており、界面マルチフェロイク構造を利用したメモリデバイスの設計に資する成果であるといえる。

研究成果の概要（英文）：We proposed an electric-field (E) control of antiferromagnetic (AFM) spin configuration using multiferroic heterostructures composed of magnetic materials showing an AFM-ferromagnetic (FM) phase transition and piezoelectric materials. To demonstrate the electric-field (E) control, an efficient E control of the FM magnetization vectors by piezoelectricity is required. In this study, we find that the growth of the FM materials with an appropriate crystal orientation and the demonstration of moderate magnetic anisotropy are important for the efficient E control of the magnetization vectors.

研究分野：磁気工学

キーワード：界面マルチフェロイク構造 磁気メモリ 電界制御

### 1. 研究開始当初の背景

磁気記録素子の記録密度を向上させるために素子の微細化・集積化を行った際、磁気異方性エネルギーの減少や近接する素子間での磁気的な干渉により、素子に保存されている情報の安定性が保証できなくなる問題が生じる。そのため磁気状態が外的な擾乱に対して堅牢であり、正味の磁化を持たない反強磁性材料の利用が検討されている。しかし外的な擾乱に磁気状態が堅牢であるという特徴は、裏を返せば反強磁性スピン配列の外的制御が困難であることを意味し、反強磁性材料を記録素子に利用する上で大きな障壁となっていた。

研究代表者は反強磁性スピン配列の外的変調技術を確立するため、磁性薄膜と圧電体基板の積層構造で構成される界面マルチフェロイク構造を利用した、反強磁性スピン配列の電界制御手法を着想した。この手法は、強磁性・反強磁性相転移材料と圧電体基板を組み合わせた界面マルチフェロイク構造を用いる。本構造に電界を印加した際に誘起される圧電歪みを利用して反強磁性状態にある磁性層を強磁性状態に相転移させ、追加の歪みを印加することで強磁性磁化ベクトル方向を変調させる。再び反強磁性状態に相転移させた際に、強磁性状態の磁化ベクトル方向を反映して、異なる反強磁性スピン配列を取ることを利用し、電界による反強磁性スピン配列制御が可能となる。提案する手法を実現するためには、一度強磁性状態を介して磁化ベクトル方向を制御することから、強磁性状態の磁化ベクトルが圧電歪み操作により高効率に制御できることが必要となる。

### 2. 研究の目的

研究代表者が提案する強磁性・反強磁性相転移を利用した反強磁性スピン配列の電界制御のために、強磁性状態における電界による高効率な磁化ベクトル制御技術を確立することが必要であることから、本研究では種々の磁性材料を代表的な圧電体である PMN-PT 基板に成長して界面マルチフェロイク構造を作製し、高効率な電界による磁化ベクトル制御のための条件を調査する。

### 3. 研究の方法

分子線エピタキシー (MBE) 法を用いて、種々の強磁性材料を圧電体である PMN-PT 基板に成長し、界面マルチフェロイク構造を作製する。ここでは強磁性材料としては、研究代表者らが比較的大きな電界変調を実現している  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  [1] や、磁気異方性を Co 層の膜厚を調整により制御が可能な Co/Pd 多層膜を選択した。薄膜の構造評価には、反射高速電子線回折 (RHEED) と X 線回折 (XRD) を用いた。磁気特性の評価には振動試料型磁力計や磁気光学カー (MOKE) 効果を利用した。また、電界による磁性変調効果 (磁気電気結合効果) を測定するために、試料の積層方向に電界を印加できるセットアップを構築し、電界印加状態における MOKE 効果測定や異常ホール効果測定などを実施した。

### 4. 研究成果

#### (1) 磁気電気結合効果の面方位依存性

強磁性状態における磁化ベクトル方向を圧電歪み操作により効率的に制御する上で、強磁性層の面方位の違いが磁気電気結合効果に影響を及ぼすことが予想されるが、詳細な面方位依存性については検討されていなかった。研究代表者らは以前に PMN-PT (001) 上に (001) 配向したエピタキシャル  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  薄膜を成長し、比較的大きな磁気電気結合効果が発現することを見出している [1]。この材料の組み合わせに着目し、PMN-PT 単結晶基板の面方位を変化させて異なる方位の  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  薄膜を成長し、磁気電気結合効果を調査した。初めに MBE 法により PMN-PT (011) 基板上への  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  薄膜作製条件を探索した。PMN-PT (011) 上に  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  薄膜を直接成長すること

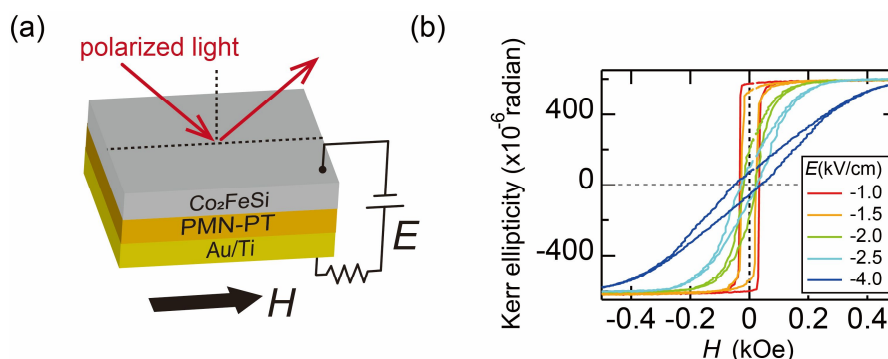


図 1. (a) 電気磁気結合効果評価の模式図. (b)  $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(011)$  構造における Kerr 楕円率の面内磁場依存性の電界効果.

を試みたところ、RHEED 像から配向性のない多結晶に成長することが明らかになった。配向性の高い試料の作製のために成長条件のさらなる検討を行った結果、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}$  界面に Fe を 2 原子層挿入することで、配向性の高い  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  薄膜の作製に成功した。XRD による構造評価から  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  薄膜は主に (422) 面に配向して成長していることが判った。

この試料構造の磁気電気結合効果を評価するために、図 1(a) に示すように積層方向に電界を印加しながら MOKE 測定を行った。図 1(b) には、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(011)$  の室温における Kerr 楕円率の面内磁場依存性の電界効果を示す。電界印加に伴う明瞭な MOKE 曲線の変化が観測されており、磁気異方性変調に伴う磁化ベクトルの方向が  $90^\circ$  回転していることが明らかになった。この測定結果から電界に対する残留磁化をプロットし、界面マルチフェロイク構造の性能指標である磁気電気結合係数 ( $\alpha_E$ ) を算出したところ、 $\sim 1.8 \times 10^{-5}$  s/m という値が得られ、磁歪材料などを用いた界面マルチフェロイク構造が示す値 ( $2.0 \times 10^{-5}$  s/m) に匹敵する大きな値が実現していることが判った [2]。またこの結果は、以前報告している  $\text{Co}_2\text{FeSi}(001)/\text{PMN-PT}(001)$  構造よりも大きな値であり、高効率な磁性制御を実現するために、強磁性層の面方位の選択が重要であることを示唆している。この研究成果は NPG Asia Materials 誌に掲載された [NPG Asia Mater. **14**, 43 (2022).]。

## (2) 磁気異方性と電界変調効果

面方位に加えて、磁性層に発現する磁気異方性の大きさも電界変調効果に影響を与えると考えられるため、磁気異方性と電界変調効果の大きさの関係について調査を行った。そのために Co 層の膜厚を変調することで磁気異方性が人為的に制御可能な Co/Pd 多層膜を磁性材料として選択し、PMN-PT(011) 基板上に成長した。図 2(b) に [Co/Pd]/PMN-PT(011) 構造における Kerr 回転率の面直磁場依存性を示す。Co 膜厚 ( $t_{\text{Co}}$ ) が薄い  $0.5 \sim 0.7$  nm の試料では、垂直磁気異方性が発現している。 $t_{\text{Co}}$  を増加させ変化するに伴い、 $t_{\text{Co}}$  が  $0.8 \sim 0.9$  nm の試料では磁化方向が垂直から面内に遷移し始め、 $t_{\text{Co}}$  が  $1.0$  nm 以上では面内磁気異方性が生じることが判った。ここで得られた  $t_{\text{Co}}$  に対する磁気異方性の変化は、MgO 基板上に作製された Co/Pd 多層膜 [3] と同様な傾向を示しており、今回作製した Co/Pd 多層膜が圧電体上においても精密な膜厚制御が実現できていると判断できる。磁気異方性と磁気電気結合効果の関係を明らかにするために、磁化方向が垂直から面内に遷移する膜厚領域である  $t_{\text{Co}}$  が  $0.7 \sim 0.9$  nm の試料に対して、電界を印加しながら異常ホール効果測定を実施した。すべての試料において電界を印加したことによって磁気異方性が変調されていることが明らかになったが、とりわけ  $0.8$  nm の試料において最も大きな変調効果を実現した。先行研究 [4] では、垂直磁気異方性の起源が Co の軌道磁気モーメントの異方性に起因するものと議論されている。今回の垂直磁気異方性が生じている  $t_{\text{Co}}=0.8$  nm の試料においても、同様に軌道モーメントの異方性が実現しており、この異方性が歪みにより変調されたことで磁気電気結合効果が生じたと考えられる。一方で、 $t_{\text{Co}}=0.9$  nm 試料では面内異方性が優位であり軌道モーメントの異方性が小さいため歪みの効果が小さかったものと考えている。一方で、 $t_{\text{Co}}$  が  $0.7$  nm に関しては、軌道モーメントの異方性が生じていると考えられるが、発現した磁気異方性が強すぎるため、歪みにより変調できなかつたと考えられる。以上の結果より、磁気電気結合効果を得るためには、Co の軌道モーメントの異方性と適度な大きさの磁気異方性の両方が実現することが重要であることを見出した。この研究成果は Journal of Magnetism and Magnetic Materials 誌に掲載された [J. Magn. Magn. Mater. **570**, 170532 (2023).]。

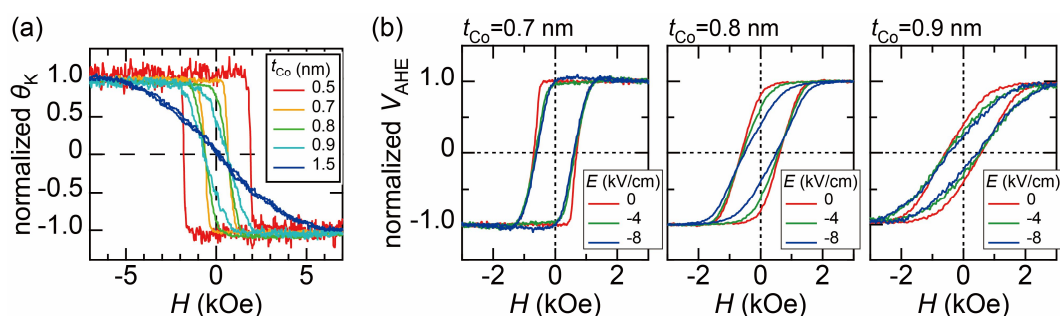


図 2. (a) [Co/Pd]/PMN-PT(011) 構造における Kerr 回転率の面直磁場依存性. (b) [Co/Pd]/PMN-PT(011) 構造における異常ホール曲線の電界依存性

## < 引用文献 >

- [1] T. Usami *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 142402 (2021).
- [2] P. B. Meisenheimer *et al.*, Nat. Commun. **12**, 2757 (2021).
- [3] K. Tobar *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 1059 (2012).
- [4] J. Okabayashi *et al.*, Sci. Rep. **8**, 8303 (2018).

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 1件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Fujii Shumpei, Usami Takamasa, Shiratsuchi Yu, Kerrigan Adam M., Yatmeidhy Amran Mahfudh, Yamada Shinya, Kanashima Takeshi, Nakatani Ryoichi, Lazarov Vlado K., Oguchi Tamio, Gohda Yoshihiro, Hamaya Kohei	4. 巻 14
2. 論文標題 Giant converse magnetoelectric effect in a multiferroic heterostructure with polycrystalline Co <sub>2</sub> FeSi	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 43-1-43-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-022-00389-1	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 該当する

1. 著者名 Usami Takamasa, Fujii Shumpei, Yamada Shinya, Shiratsuchi Yu, Kanashima Takeshi, Nakatani Ryoichi, Hamaya Kohei	4. 巻 58
2. 論文標題 Converse Magnetoelectric Effect in Epitaxial Co <sub>2</sub> MnSi/Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> ) <sub>03</sub> -PbTiO <sub>3</sub> Multiferroic Heterostructures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Magnetics	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1109/TMAG.2022.3145521	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 Usami T., Sanada Y., Shiratsuchi Y., Yamada S., Kanashima T., Nakatani R., Hamaya K.	4. 巻 570
2. 論文標題 Converse magnetoelectric coupling coefficient greater than 10 <sup>-6</sup> s/m in perpendicularly magnetized Co/Pd multilayers on Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> ) <sub>03</sub> -PbTiO <sub>3</sub>	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 170532 ~ 170532
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jmmm.2023.170532	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13件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Yuichi Murakami, Takamasa Usami, Yu Shiratsuchi, Yuya Sanada, Shinya Yamada, Ryoichi Nakatani, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Growth and magnetoelectric effect of epitaxial Co <sub>3</sub> Mn films on piezoelectric Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> ) <sub>03</sub> -PbTiO <sub>3</sub> (001)
3. 学会等名 Intermag 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Jun Okabayashi, Takamasa Usami, Amran Yatmeidhy, Yoshihiro Gohda, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Operando XMCD and EXAFS spectroscopies for orbital control by reversible strain at Co <sub>2</sub> FeSi/PMN-PT interface
3. 学会等名 Intermag 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuichi Murakami, Takamasa Usami, Yu Shiratsuchi, Yuya Sanada, Shinya Yamada, Ryoichi Nakatani, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Converse magnetoelectric effect in bcc Co <sub>3</sub> Mn/PMN-PT(001) multiferroic heterostructures
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Jun Okabayashi, Takamasa Usami, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Operando XMCD for magnetic anisotropy control by reversible strain at Fe <sub>3</sub> Si/PMN-PT interface
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Jun Okabayashi, Takamasa Usami, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Operando XMCD and EXAFS Spectroscopies for Orbital Control by Reversible Strain at Co <sub>2</sub> FeSi/PMN-PT Interface
3. 学会等名 2022 MRS Fall Meeting & Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takamasa Usami, Shumpei Fujii, Yu Shiratsuchi, Amran Yatmeidhy, Shinya Yamada, Takeshi Kanashima, Ryoichi Nakatani, Yoshihiro Gohda, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Giant Converse Magnetoelectric Effect in Co <sub>2</sub> -Heusler Alloy/Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> -PbTiO <sub>3</sub> Multiferroic Heterostructures
3. 学会等名 2022 MRS Fall Meeting & Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuya Sanada, Takamasa Usami, Shinya Yamada, Takeshi Kanashima, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Converse magnetoelectric effect in perpendicularly magnetized [Co/Pd] <sub>5</sub> /Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> -PbTiO <sub>3</sub> (011) multiferroic heterostructures
3. 学会等名 2022年第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 Takamasa Usami, Shumpei Fujii, Amran Mahfudh Yatmeidhy, Yoshihiro Gohda, Jun Okabayashi, Shinya Yamada, Takeshi Kanashima, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Converse magnetoelectric effect in Co-based Heusler alloy/PMN-PT(011) multiferroic heterostructures
3. 学会等名 2022年第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 Takamasa Usami, Shumpei Fujii, Shinya Yamada, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani, Kohei Hamaya
2. 発表標題 Co <sub>2</sub> MnSi/Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> -PbTiO <sub>3</sub> interfacial multiferroic heterostructures
3. 学会等名 2022 Joint MMM-INTERMAG (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 真田祐彌 , 宇佐見喬政 , 山田晋也 , 金島岳 , 白土優 , 中谷亮一 , 浜屋宏平
2. 発表標題 Co/Pd多層膜/PMN-PT構造における垂直磁気異方性の電界変調
3. 学会等名 第26回半導体スピン工学の基礎と応用
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shumpei Fujii , Takamasa Usami , Shinya Yamada , Yu Shiratsuchi , Ryoichi Nakatani , Kohei Hamaya
2. 発表標題 Electric-field modulation of magnetic anisotropy in epitaxial Co <sub>2</sub> FeSi/Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> -PbTiO <sub>3</sub> multiferroic heterostructures
3. 学会等名 The Material Research Meeting 2021 (MRM2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takamasa Usami , Hiroyoshi Itoh , Shumpei Fujii , Takeshi Kanashima , Kohei Hamaya
2. 発表標題 Piezoelectric effect on anisotropic magnetoresistance in epitaxial CoFe films
3. 学会等名 2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shumpei Fujii , Takamasa Usami , Shinya Yamada , Takeshi Kanashima , Yu Shiratsuchi , Ryoichi Nakatani , Kohei Hamaya
2. 発表標題 Crystal orientation dependence of converse magnetoelectric effect in Co <sub>2</sub> FeSi/Fe/Pb(Mg <sub>1/3</sub> Nb <sub>2/3</sub> )O <sub>3</sub> -PbTiO <sub>3</sub> multiferroic heterostructures
3. 学会等名 2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021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
---------	---------