

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 27 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25706007

研究課題名(和文) 電界による界面反強磁性スピン反転

研究課題名(英文) Interfacial antiferromagnetic spin reversal by electric field

研究代表者

白土 優 (Shiratsuchi, Yu)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70379121

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,800,000円

研究成果の概要(和文)：低消費電力・高速スピントロニクスデバイスへの応用を目指して、強磁性層/電気磁気反強磁性(Cr2O3)層積層膜における、電界誘起界面スピン制御について検討した。主な成果として、これまでバルク(鉱物)でのみ観測されてきたCr2O3の電気磁気効果を、全薄膜系にも適用可能とすることが出来、さらに、界面Crスピンと交換結合した強磁性スピンを反転出来ることを示した。これらの成果は、Applied Physics Lettersを始め、当該分野の一流学術雑誌に掲載されており、また、日本金属学会第12回村上奨励賞等として、国内外で評価されている。

研究成果の概要(英文)：Electric-field induced interfacial spin reverseal in ferromagnetic/magnetoelectric Cr2O3 stacked films were investigated. As main results, we developed the magnetoelectric effect of Cr2O3 in all-thin-film devices and demonstrated that the simlutaneous spin reversal of ferromagnetic spin exchange-coupled with interfacial antiferromagnetic spins. These achievements were published in some journals such as Applied Physics Letters. Partly for these achevements, The Japan Institute of Metals and Materials Murakami Young Researcher Award was awarded.

研究分野：ナノ材料、スピントロニクス

キーワード：反強磁性体 電界 Cr2O3 スピントロニクス 界面

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは、電子の電荷とスピンを同時に利用する学理であり、これを利用することで従来の半導体デバイスを凌駕できる革新的デバイス（低消費電力、高速、大容量、高耐久、不揮発など）が実現できるものと期待されている。特に、年々増加するデジタル情報量と IT 機器の消費電力の増加は、スピントロニクスに対する期待に拍車をかける状況になっている。

磁気ランダムアクセスメモリ (Magnetic Random Access Memory: MRAM) は、スピントロニクスを利用したデバイスの代表例であり、上記のような革新的機能を実現するには、低消費電力かつ高速な情報書き込み技術が一つの課題とされている。MRAM を始めとするスピントロニクスデバイスでは、磁性体の磁化(N-Sの向き)がデバイス機能を担うため、動作時の消費電力化は、如何に磁化の向きを低消費電力で制御するか、が重要となる。磁性体の磁化は、磁場やスピン偏極電流によって直接制御することが出来るが、電圧と直接相互作用することはない。しかしながら、Cr₂O₃ 等の材料では電気磁気効果と呼ばれる効果によって、電圧と磁化の相互作用が可能である。研究代表者は、Cr₂O₃ のスピンを電圧によって制御し、それをデジタル情報の記録層となる強磁性層に伝搬することが出来ることを提案している。

2. 研究の目的

本研究では、研究代表者の独自アイデアに対して、強磁性層 / Cr₂O₃ (電気磁気反強磁性体) を含む全薄膜系素子に対して、電圧による反強磁性 Cr スピン反転を実証し、また、その反転メカニズムを磁気エネルギーの観点から明確にする。

3. 研究の方法

本研究に用いた試料の基本的な積層構造は、Pt/Co/(spacer)/Cr₂O₃/Pt とした。試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング装置を用いた。本研究のキーマテリアルである Cr₂O₃ の製膜には、これまでに実績のある反応性スパッタリング法とした。試料作製方法の詳細は、本研究課題のシーズとなっている研究代表者の既報告 (例えば、Y. Shiratsuchi et al., Applied Physics Express, 3 (2010) 113001. など) を参照されたい。

作製した試料に対して、X 線回折法 (高角 X 線回折測定, X 線反射率測定), 反射高速電子線回折を用いて、適切な試料構造が作製されていることを実験的に確認した。

本研究の主眼である磁気特性評価については、磁化測定を振動試料型磁力計, 反強磁性 / 強磁性交換結合を磁気光学 Kerr 効果による交換磁気異方性エネルギー測定により実施した。また、電気磁気効果を利用した反強磁性スピン反転については、上記の作製した試料を、フォトリソグラフィ法, Ar イオ

ンミリング法を用いて、ゲート電圧印加可能なホール素子形状に微細加工し、微細加工された素子に対して異常ホール効果測定を行うことで検討した。

4. 研究成果

(A) 作製したホール素子の電気特性評価

電界によるスピン反転の前提は、反強磁性層が十分な絶縁性を有していることにある。(例えば、金属には、スクリーニングのため「電界」は印加できない。) 下記に記す電気磁気効果に関する実験に先立ち、作製した素子が本測定に適した電気抵抗を有していることを確認した。

図 1 に、作製した素子の光学顕微鏡像と計測系、電流-電圧特性、ならびに、電気抵抗率の温度依存性を示す。

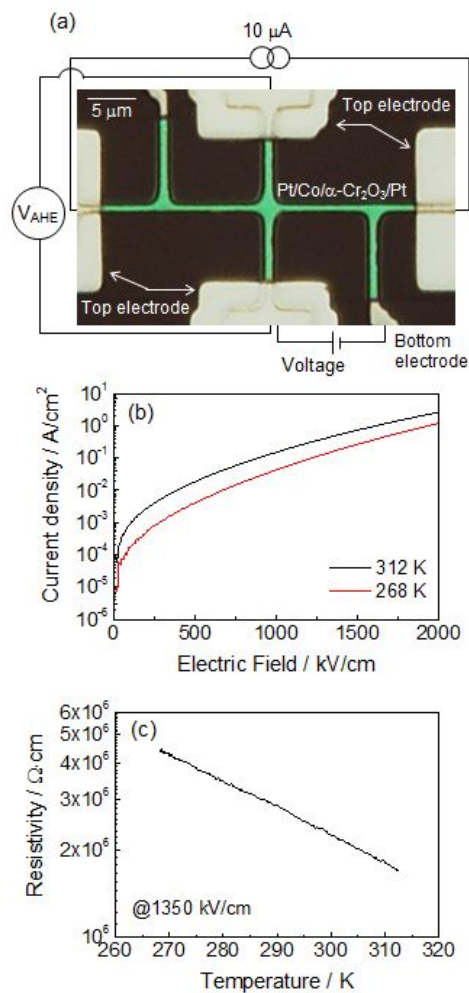


図 1(a) 作製した素子 (Pt/Co/Cr₂O₃/Pt 積層膜) の光学顕微鏡像, (b) 312 K および 268 K で測定した電流-電圧曲線, (c) 1350 kV/cm の固定電界で測定した電気抵抗率の温度依存性。

本研究での最高測定温度である 312 K においても 2000 kV/cm 以上の耐電圧を有しており、また、2000 kV/cm の高電界でも 1 A/cm² 台の低いリーク電流密度を示しており、良好な絶縁性を有している。(図 1(b)) また、温度低下により電気抵抗率は指数関数的に上昇す

ることから, Cr_2O_3 層が絶縁特性を有していることが分かる. このことは, 以下に記す電界誘起スピン反転が, 電流誘導磁場やスピントルク等の電流誘起のメカニズムによるものではないことを示す結果である.

(B) 電気磁気効果による反強磁性スピン反転

電気磁気効果を利用した反強磁性スピン反転手法は, 大別して(1) 電気磁気冷却法と(2) 等温反転法の2種類がある. 前者は, 一度, 素子を反強磁性層の磁気転移温度(ネール温度)以上まで昇温した後, 冷却過程において電界と磁界を同時に印可しながら冷却する方法であり, 後者は, その名の示す通り, 温度を固定した状態で電界と磁界を同時印加する方法である. いずれの場合も, 電界と磁界の強度と符号によって反強磁性スピンの向きが決まる. 以下に, それぞれの手法で検討した反強磁性スピン反転実験の結果を示す.

(B-1) 電気磁気冷却法

電気磁気冷却法においては, 反強磁性スピン反転条件は, 強磁性スピン-反強磁性スピン反転の交換結合強度によって変化することが予測される. このため, 本研究では強磁性層/反強磁性層界面に, 交換結合強度を制御可能な適当なスペーサ層を挿入すること, Cr_2O_3 層の結晶性を制御することで界面交換結合強度を変化させた数種類の試料に対して, 反強磁性スピン反転条件を検討した.

図2に, 冷却中の印可電界強度を変化させた際の交換磁気バイアス磁場の変化, ならびに, 交換バイアスの極性反転の閾電圧の磁場依存性を示す. なお, 交換バイアスとは強磁性スピンと反強磁性スピンの界面交換結合エネルギーの指標であり, 界面交換結合によって発生する磁気異方性(界面交換磁気異方性)を磁場に換算したものであり, その極性(正負)は, 界面の反強磁性スピンの向きによって決定される.

冷却中の電界強度が低い(< 1000 kV/cm)の場合, 交換バイアスは負方向に発現する. これは, 冷却中に同時印加している磁場が正方向であるためであり, 通常の磁場中冷却に類似した現象が生じているためである. 電界強度が上昇すると, 閾電界以上で交換バイアスの符号が負から正に反転していることが分かる. これは, 電界印加によって界面の反強磁性スピンの向きが反転したことを意味している. さらに, 図2(a)には, 冷却時の磁界強度が上昇すると, 交換バイアス反転に必要な閾電界が低下していることが分かる. 図2(b)に, 交換バイアスの極性反転に必要な閾電界と印可磁界強度(磁界の逆数)の関係を示す. 図から分かるように, 閾電界強度は, 印可磁場の逆数に比例して上昇する. これは, 交換バイアスの反転条件が, (電界) \times (磁界) = 一定の条件を満たすことを意味してお

り, 電気磁気効果によるエネルギー利得が, (電界) \times (磁界)に比例することに一致する. すなわち, 交換バイアスの極性反転が電気磁気効果によって誘起されている.

また, 図2(b)の傾きは, 交換バイアス反転に必要なエネルギー密度を表わす指標であり, 傾きが大きい程, 投入エネルギーが大きい. 図2(b)から, 交換磁気異方性エネルギーが高い程, 交換バイアス反転に必要なエネルギーが高いことが分かり, このことは, 電気磁気効果による界面反強磁性スピン反転には, 強磁性スピンとの界面交換結合エネルギーと電気磁気効果のエネルギー的競合によって閾条件が決定されていることを示唆する. 本考察の定量的検討には, 界面交換結合エネルギーを定量評価することが必要であるが, これが今後の課題となる.

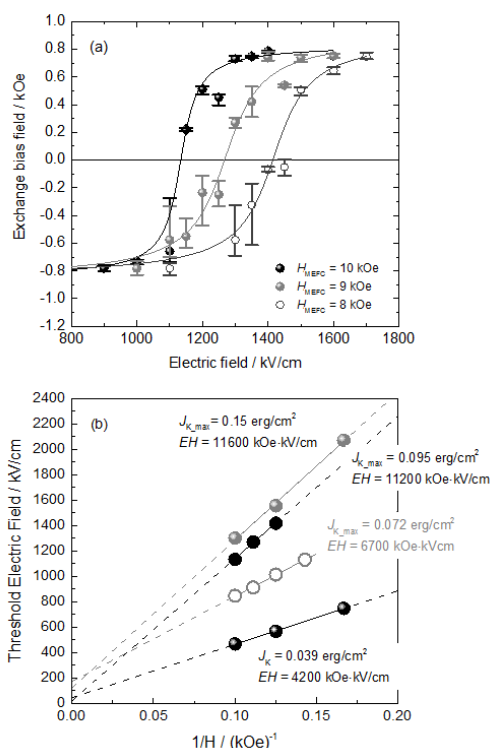


図2 (a)電気磁気冷却過程における印加電界強度による交換バイアス磁場の変化. (b)交換バイアス反転に要する閾電界と印可磁界(図では磁界の逆数)の関係.

(B-2) 等温反転法

(B-1)に記した電気磁気冷却法は, 反強磁性スピンの向きが冷却過程の反強磁性秩序の形成過程で決定されるため, 各素子に対して最も低いエネルギー密度での反転を可能にする. 一方で, 交換バイアスの極性反転には温度ヒステリシスが必要である.(この方法でも, 例えば, 熱アシスト法との組み合わせには有効.) 電気磁気冷却法と異なり, 温度を一定とした条件で, 電界と磁界を同時印加することで反強磁性スピンを反転させる手法が等温反転法である. この方法では, 電気磁気冷却法と異なり, 反強磁性スピン反転条件の温度依存性, パルス電界を印加するこ

とによるダイナミクスへの展開等、基礎物理と共に応用上も有用な知見が得られる。本研究課題では、第一段階として、交換バイアス反転条件の温度依存性について検討した。

図3に、Pt/Co/Cr₂O₃/Pt 薄膜に対して測定した交換バイアス反転条件の温度依存性を示す。反転条件の算出は、固定磁場を+10 kOe として測定した結果である。図には、各温度での反転前の交換バイアス磁界も併せて示した。図から分かるように、温度の低下により、交換バイアスの反転電界と交換バイアス磁界は共に上昇する。Cr₂O₃層に対する磁気エネルギーの観点から単純に交換バイアス反転の反転条件を算出すると、

$$\alpha EH = K - \frac{H_{EX}}{M_S t_{FM} \cdot t_{Cr2O3}}$$

となる。(αは電気磁気効果係数、Eは印加電界強度、Hは印加磁界強度、KはCr₂O₃層の磁気異方性エネルギー、H_{EX}は交換バイアス磁界、M_Sは強磁性層の飽和磁化、t_{FM}は強磁性層膜厚、t_{Cr2O3}はCr₂O₃層の膜厚)

図3に示したように、温度低下によって交換バイアス磁界が上昇する場合、上式を基にすると交換バイアスの反転に必要な電界は低下することが予測される。また、測定温度領域では、温度低下によってME効果係数も上昇することから、図3に示した温度低下による反転電界の上昇は、界面反強磁性スピンの反転が、Cr₂O₃層内部のスピン反転に必要なエネルギー障壁によって支配されていることを示唆する結果である。現在は、図3に示した交換バイアス反転条件のより詳細な検討とパルス電圧による反転ダイナミクスの研究に着手している。

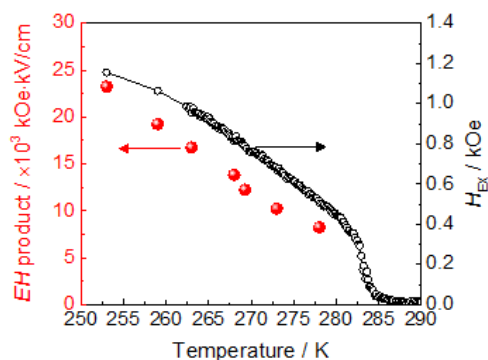


図3 交換バイアスの反転電界(赤丸)と交換バイアス磁場(○)の温度依存性。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計4件)

Kentaro Toyoki, Yu Shiratsuchi, Atsushi Kobane, Chiharu Mitsumata, Yoshinori Kotani, Tetsuya Nakamura,

and Ryoichi Nakatani, Magnetolectric switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/ α -Cr₂O₃/Pt stacked films, Applied Physics Letters, 106 (2015) 162404. 査読有。

DOI:http://dx.doi.org/10.1063/1.4918940

Yu Shiratsuchi, Yoshinori Kotani, Saori Yoshida, Yasunori Yoshikawa, Kentaro Toyoki, Atsushi Kobane, Ryoichi Nakatani, and Tetsuya Nakamura, Direct observations of ferromagnetic and antiferromagnetic domains in Pt/Co/Cr₂O₃/Pt perpendicular exchange biased film, AIMS Materials Science, 2 (2015) 484. 査読有。

DOI: 10.3934/matersci.2015.4.484

Kentaro Toyoki, Yu Shiratsuchi, Atsushi Kobane, Shotaro Harimoto, Satoshi Onoue, Hikaru Nomura, and Ryoichi Nakatani, Switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Pt/ α -Cr₂O₃/Pt layered structure using magneto-electric effect, Journal of Applied Physics, 117 (2015) 17D903. 査読有。

DOI: 10.1063/1.4906322

Yu Shiratsuchi and Ryoichi Nakatani, Perpendicular exchange bias ant magneto-electric control using Cr₂O₃(0001) thin film, Materials Transaction, 57 (2016) 781. 査読有。 DOI: 10.2320/matertrans.ME201506

[学会発表](計15件)

Ryoichi Nakatani and Yu Shiratsuchi, Interfacial spin reversal based on magnetolectric effect in Pt/Co/Cr₂O₃/Pt films, 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (基調講演), 2016年8月1日~5日(講演決定), 京都国際会館(京都市)

Yu Shiratsuchi, Dynamical switching of perpendicular exchange bias, The 27th Magnetic Recording Conference(招待講演), 2016年8月17日~19日(講演決定), スタンフォード大学(米国). Yu Shiratsuchi, Yoshinori Kotani, Saori Yoshida, Yasunori Yoshikawa, Kentaro Toyoki, Atsushi Kobane, Ryoichi Nakatani, and Tetsuya Nakamura, Observations of ferromagnetic and antiferromagnetic domains in perpendicular exchange-biased system using Cr₂O₃ thin film, 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (基調講演),

2016年8月1日~5日(講演決定), 京都国際会館(京都市, 京都市)

Yu Shiratsuchi, Magneto-electric switching of interfacial spins toward magnetic recording/memory, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (招待講演), 2016年5月29日~6月3日(講演決定), グラーツ(オーストリア)

Yu Shiratsuchi, Electric-field induced switching of antiferromagnetic spins, BIT's 2nd Annual world congress of smart materials-2016 (招待講演), 2016年3月4日~6日, シンガポール(シンガポール)

Yu Shiratsuchi, Yoshinori Kotani, Saori Yoshida, Yasunori Yoshikawa, Ryoichi Nakatani, and Tetsuya Nakamura, Direct observations of ferromagnetic and antiferromagnetic domains in perpendicular exchange biased system, 2016 MMM-INTERMAG Joint Conference, 2016年1月11日~15日, サンディエゴ(米国)

Yu Shiratsuchi, Kentaro Toyoki, Saori Yoshida, Atsushi Kobane, and Ryoichi Nakatani, Polarity reversal of perpendicular exchange bias using magnetoelectric effect of Cr_2O_3 thin film, 25th Annual meeting of MRS-J (2015) (招待講演), 2015年12月8日~10日, 横浜情報文化センター(神奈川県, 横浜市)

Yu Shiratsuchi, Switching of perpendicular exchange bias using magneto-electric effect of Cr_2O_3 , The 1st ImPACT International Symposium on Spintronic Memory, 2015年6月21日~22日, 東京国際交流会館(東京都, 江東区)

白土 優, 電気磁気効果による $\text{Co}/\text{Cr}_2\text{O}_3$ 界面の垂直交換磁気異方反転とそのダイナミクス, 日本磁気学会第208回研究会(招待講演), 2016年6月9日(講演決定), 中央大学(東京都, 千代田区).

白土 優, 吉田沙織, 中谷亮一, 小谷佳載, 豊木研太郎, 中村哲也, 三俣千春, 集光軟X線ナノビームを用いた $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Spacer}/\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Pt}$ 薄膜の磁化過程観察, 日本金属学会2016年春期(第158回)大会, 2016年3月23日~25日, 東京理科大学(東京都, 葛飾区)

白土 優, 電気磁気効果によるスピントロニクス材料 $\text{Co}/\text{Cr}_2\text{O}_3$ の界面スピン制御, 第1回 SPring-8 先端利用技術ワークショップ(招待講演), 2016年3月10日, グランパークプラザ(東京都, 港区).

白土 優, 電気磁気効果に基づく垂直交

換磁気異方性の電界誘起方位反転, 第3回エレクトロニクス薄膜研究会(招待講演), 2015年9月18日, 九州大学(福岡県, 福岡市).

白土 優, 電気磁気効果を示す反強磁性 Cr_2O_3 薄膜による垂直交換磁気異方性, 日本金属学会2015年秋期講演大会(受賞記念講演), 2015年9月16日~18日, 九州大学(福岡県, 福岡市).

吉田沙織, 豊木研太郎, 小羽根淳志, 白土 優, 中谷亮一, 小谷佳載, 中村哲也, 軟X線ナノビームを用いた XMCD 測定に基づく $\text{Pt}/\text{Co}/\text{Cr}_2\text{O}_3$ 垂直磁化膜の磁区構造観察, 日本金属学会2015年秋期講演大会, 2015年9月16日~18日, 九州大学(福岡県, 福岡市).

白土 優, 加藤剛志, 鈴木義茂, 三輪真嗣, 野崎隆行, 荒河一渡, スピントロニクスデバイスを基軸としたナノ磁気計測技術の開発と物質・材料研究への展開, SPring-8 シンポジウム2015, 2015年9月13日~14日, 九州大学(福岡県, 福岡市).

[図書](計1件)

白土 優(分担執筆), 磁気便覧, 丸善, 2015年, 総ページ数888頁(内, 分担ページ402-412).

[産業財産権]

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]

ホームページ等

大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 中谷研究室ホームページ

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

白土 優 (SHIRATSUCHI, Yu)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 70379121

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し