

整理番号	H27-J-134	報告者氏名	白土 優
------	-----------	-------	------

研究課題名

電界誘起磁化反転を目指した電界応答金属強磁性体/絶縁性反強磁性体界面の作製

<代表研究者> 機関名：大阪大学大学院工学研究科 職名：准教授 氏名：白土 優

<共同研究者> 機関名：大阪大学大学院工学研究科 職名：教授 氏名：中谷 亮一

機関名： 職名： 氏名：

機関名： 職名： 氏名：

機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

超高密度かつ超低消費電力磁気デバイスに適用可能な新規磁化制御手法の一つとして、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜の電気磁気効果を利用した電界誘起界面スピン等温可逆反転技術を開発した。本研究で総せた成果の概要を下記に記す。

(1) Pt/Co/Au/ $\text{Cr}_2\text{O}_3$ /Pt 積層膜を用いて等温かつ可逆界面磁化 (スピン) 反転を実証

従来技術では、電界による強磁性・反強磁性スピン反転の内、負→正への一方反転のみが達成されていたが、正→負、負→正への可逆反転が達成された。また、開発した技術は、印加電界の向きに対して完全な双方向反転性を示す (電界の向きと界面スピンの向きが完全に 1 対 1 に対応する) 点で、従来技術に対する優位性を示した。(論文投稿準備中) 本技術のキーポイントの一つは、スペーサ層として極薄 Au 層 (約 2 原子層) を反強磁性層/強磁性層界面に挿入したことにより、Au 層の挿入により、高い界面交換結合と、強磁性層の低い磁化反転障壁を両立できることを見出したことにある。(右図. 論文掲載決定済み. 成果番号 13)

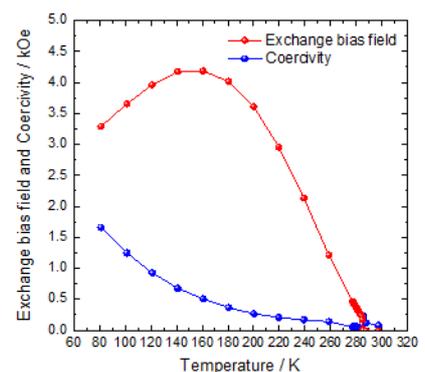


図 Au 層を挿入した薄膜における交換バイアス磁場と保磁力の温度依存性. [Y. Shiratsuchi et al., J. Appl. Phys. in press. 成果番号 13]

(2) パルス電界を用いた 10 ns 超高速界面磁化反転の実現

(1) で達成された技術は、静磁場+DC 電場による等温可逆反転であったが、実デバイスでは MHz ~GHz での高速動作が必要である。本研究では、印加する電界としてパルス電界を用いることで、約 10 ns での超高速界面磁化・スピン反転が可能であることを実証した。

上記の結果を、国内外での学術講演会 (計 11 件, 内 7 件招待講演), 論文誌発表 (2 件), 特許出願 (1 件) として成果報告済みであり, (2) の結果については, 現在論文投稿準備を進めている段階にある。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

口頭発表

1. Yu Shiratsuchi, Dynamical magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias **【招待講演】**, The 27th Magnetic Recording Conference, August 17-19, 2016, Stanford, California, U.S.A
2. Yu Shiratsuchi, Yoshinori Kotani, Saori Yoshida, Yasunori Yoshikawa, Kentaro Toyoki, Atsushi Kobane, Ryoichi Nanakatani and Tetsuya Nakamura, Observation of ferromagnetic and antiferromagnetic domains in perpendicular exchange-biased system using Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film, 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9), August 1-5, 2016, Kyoto.
3. Yu Shiratsuchi, Magneto-electric switching of interfacial spins toward magnetic recording/memory **【招待講演】**, International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (Thermec' 2016), May 29- June 3, 2016, Graz, Austria.
4. Yu Shiratsuchi, Electric-field induced switching of antiferromagnetic spins **【招待講演】**, BIT's 2nd Annual world congress of smart materials-2016, March 4-6, 2016, Singapore.
5. Yu Shiratsuchi, Kentaro Toyoki, Saori Yoshida, Atsushi Kobane and Ryoichi Nakatani, Polarity reversal of perpendicular exchange bias using magnetoelectric effect of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film **【招待講演】**, 25th Annual meeting of MRS-J (2015), December 8-10, 2015, Yokohama.
6. 白土 優, 垂直交換磁気異方性の方位反転と放射光を用いた原理解明 **【招待講演】**, 東北大学金属材料研究所共同利用ワークショップ 3 GeV 高輝度放射光 SLiT-J と産学協創, 東北大学 (仙台), 2016年12月13日~14日.
7. Thi Van Anh Nguyen, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani, Magnetic field dependence of threshold electric field for switching exchange bias polarity, 第40回日本磁気学会学術講演会, 金沢大学 (金沢), 2016年9月5日.
8. 白土 優, 電気磁気効果による Co/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 界面の垂直交換磁気異方性反転とそのダイナミクス **【招待講演】**, 日本磁気学会第208回研究会, 中央大学 (東京), 2016年6月9日.
9. 白土 優, 電気磁気効果によるスピントロニクス材料 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co の界面スピン制御**【招待講演】**, 第1回SPRING-8先端利用技術ワークショップ~放射光の偏光特性を活用した磁気分光物性研究の最前線~, グランパークプラザ (東京), 2016年3月11日.

ポスター発表

10. Thi Van Anh Nguyen, Yu Shiratsuchi, Wataru Kuroda, Yoshinori Kotani, Kentaro Toyoki, Tetsuya Nakamura, Motohiro Suzuki, Kohji Nakamura and Ryoichi Nakatani, Influence of Pt and Au spacer layer on perpendicular exchange bias and coercivity in Pt/Co/spacer/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt stacked films, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 横浜 (神奈川), 2017年3月14日発表予定.
11. Thi Van Anh Nguyen, Yu Shiratsuchi and Ryoichi Nakatani, Dynamical magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/spacer/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt stacked films, 第63回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学 (東京), 2016年3月19日~22日.

論文発表

12. Yu Shiratsuchi and Ryoichi Nakatani, Perpendicular exchange bias and magneto-electric control using Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) thin film, *Materials Transactions*, Vol. 57, Issue 6, pp. 781-788 (2016).
13. Yu Shiratsuchi, Wataru Kuroda, Thi Van Anh Nguyen, Yoshinori Kotani, Kentaro Toyoki, Tetsuya Nakamura, Motohiro Suzuki, Kohji Nakamura, and Ryoichi Nakatani, Simltaneous achievements of high perpendicular exchange bias and low coercivity by controlling ferromagnetic/antiferromagnetic interfacial magnetic anisotropy, *Journal of Applied Physics*, Accepted for publication.

上記の他, 投稿準備中論文, 知財出願あり.

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

## 1. 研究の目的

IoT, ユビキタス等と評される昨今では, 日々取り扱うデジタル情報量は増加しており, 今後も減少することはないものと思われる. 実際に, 2007年以降, デジタルデータ量は総ストレージ量を超える状況が続いている. 記憶容量と共にデジタル情報を保持するデバイスの消費電力の増大も課題となっており, 国内においては2025年には, 2400億kWhもの電力が必要になるとの予測もある. こうした状況において, 莫大なデジタル情報の低消費電力・長期保存を可能にする超高密度磁気記録の開発が急務とされている.

現在の磁気記録は, ハードディスクドライブ (HDD) に代表されるように磁場を用いた情報書き込みをベースとしている. 一部の磁気ランダムアクセスメモリにおいて, 電流書き込み方式が量産化されつつあるが, いずれの場合も, 情報書き込みに電流を必要とするため, 有限の電力消費が避けられない. こうした中, 近年, 電流を必要としない電界を用いた情報書き込み, すなわち, 電界誘起磁化・スピン反転手法が注目されている. 一般に, 磁化やスピンは電界と直接的に相互作用することが出来ないため, 電界による磁化・スピン反転には, 両者を媒介する機構が必要となる.  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 等の材料では, 結晶構造の空間反転対称性ととも, 磁気秩序によって時間反転対称性が同時に崩れる. (図1) こうした材料では, 交差相関と呼ばれる電界とスピンの相互作用が可能になる. (電気磁気効果) しかしながら, 交差相関や電気磁気効果を示す材料の多くは反強磁性体であり, 単独では自発磁化を示さないことから, 磁気記録として利用するには界面効果を利用して強磁性磁化 (スピン) に, 電界制御された反強磁性スピン情報を伝搬する必要がある. 本研究では, 交換バイアスと呼ばれる反強磁性体/強磁性体界面での界面交換結合に基づいて, 反強磁性スピンの電界制御⇒強磁性スピン反転への伝搬の原理実証を最大の目的とした.

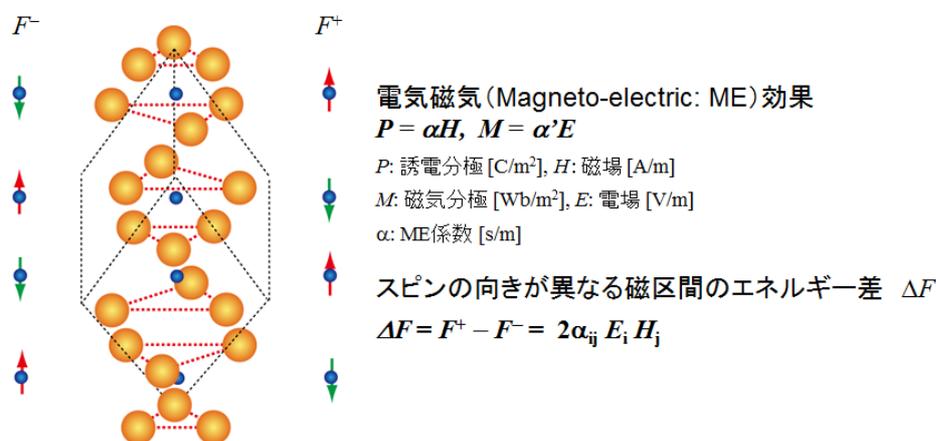


図1  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ の結晶構造, スピン配列と電気磁気効果

具体的な検討項目として, 下記の2点について重点的に検討した.

### (1) $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 薄膜を用いた垂直交換バイアス膜の界面磁化 (スピン) の電界誘起等温可逆反転

本技術の特徴の一つは, 界面スピン方向と印可電界の向きが1対1に対応する双方向選択性にある. この原理実証には, 界面スピン方向を, 電界によって等温かつ可逆的に反転出来ることを実証する必要がある.

### (2) パルス電界を用いた高速界面磁化 (スピン) 反転

HDD や MRAM 等の磁気記録デバイスは, 高速動作を求められるデバイスであり, デジタル情報入力に要する時間は, 数十ナノ秒以下である. このため, 本研究で開発する技術においてもナノ秒パルス電圧での駆動が必須である.

## 2. 研究方法・経過

DC マグネトロンスパッタリング装置（到達真空度  $< 5 \times 10^{-7}$  Pa）を用いて、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$  単結晶基板上に製膜した Pt/Co/Au/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 積層膜を用いて、電界誘起界面スピン反転実験を進めた。絶縁層への電界印加のためには、作製した薄膜をマイクロメーター以下の素子に微細加工する必要があるため、本研究では、フォトリソグラフィ法と Ar イオンミリング法を用いて、幅 2~10  $\mu\text{m}$ 、長さ 40  $\mu\text{m}$  のホール素子に微細加工した。（測定系のセットアップ：図 2（試料は別の試料を記載））なお、試料作製にあたって、薄膜作製時に反射高速電子線回折、薄膜作製後に X 線反射率測定、X 線回折測定によって、各層の結晶配向性、界面ラフネスを評価している。また、本研究の主眼となる上記ホール素子を用いた異常ホール効果測定その他、磁気光学 Kerr 効果測定による交換バイアス磁場の温度依存性、磁化曲線測定に基づく飽和磁化と垂直磁気異方性エネルギーを評価した。

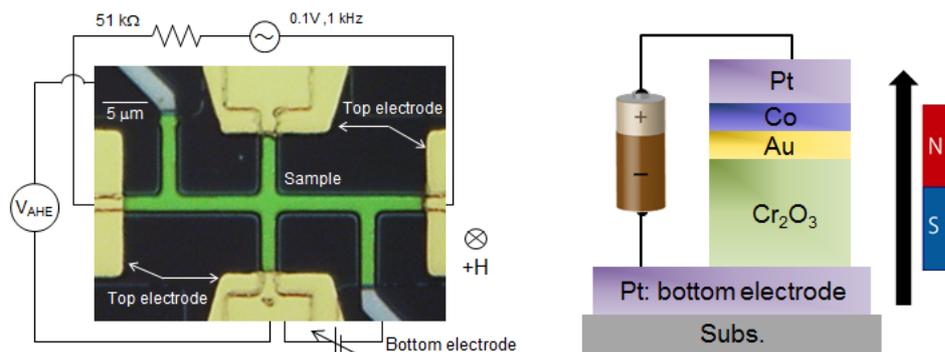


図 2 電界印可能なホール素子と測定系のセットアップ。右図は試料断面の模式図。  
[K. Toyoki, Y. Shiratsuchi et al., Appl. Phys. Lett. 106, 162494 (2015).]

## 3. 実験結果

以下に、本研究で達成された主な成果である、(1) Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜を用いた垂直交換バイアス膜の界面磁化（スピン）の電界誘起等温可逆反転 および (2) パルス電界を用いた高速界面磁化（スピン）反転に関する結果を記す。

### (1) Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜を用いた垂直交換バイアス膜の界面磁化（スピン）の電界誘起等温可逆反転

図 3 に、作製したホール素子に対する異常ホール効果曲線を示す。異常ホール効果は、磁化の膜面垂直方向の成分を反映するため、印加磁場方向は膜面垂直方向とした。図 3 に示した曲線は、角型比が 1、保磁力が 50 Oe 以下、急峻な磁化反転を示すと共に、約 200 Oe の交換バイアスを示すことが分かる。また、交換バイアス磁場が保磁力よりも高いことから、ゼロ磁場における磁化の向きは、交換バイアスの向きと常に反平行となる。図 3 に示した状態を初期状態として、膜面垂直方向の磁場 ( $H = 20 - 60$  kOe) と電場 ( $-2000$  kV/cm  $< E < 2000$  kV/cm) を同時に印加することで、等温かつ可逆的に交換バイアス磁場の符号を反転できることを示した。観測した交換バイアス反転は、磁場の符号は常に固定されており、交換バイアス反転が電場の強度変化のみによって生じる。また、交換バイアスの極性反転は、電場強度に対してヒステリシスを示すが、反転閾電界以上の電界を印加すると、交換バイアスの極性と電界の符号が完全に 1 対 1 に対応する。すなわち、ゼロ磁場における強磁性磁化の向きを電界の極性と完全に対応させて制御可能であることを示した。

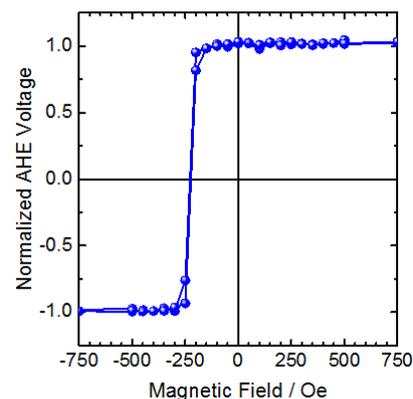


図 3 作製した素子の異常ホール効果曲線

一方、交換バイアスの極性反転に必要な電場強度は現時点では数 100 kV/cm 以上が必要であり（磁場の逆数に比例して上昇）、必要電界の低減が今後の課題となる。次のステップとして、現在、交換バイアスの極性反転の定量的評価に取り組んでいる。

## (2) パルス電界を用いた高速界面磁化（スピン）反転

(1)で達成した結果は、印可電場として直流（DC）電場を用いたものあり、静的（Static）な効果である。Static な効果に加えて、動的（Dynamic）な効果について検討することにより、交換バイアスの極性反転の微視的なメカニズムに深くアプローチすることが出来る。また、実デバイスにおいては、数十ナノ秒～数ナノ秒での高速反転が必要になることから、交換バイアス反転のダイナミクスを明らかにすることは極めて重要である。本研究では、印可電圧としてパルス幅 10 ns – 1 ms のパルス電圧を交換バイアスの極性反転のトリガーとして、交換バイアスの極性反転ダイナミクスについて検討を進めた。交換バイアスの極性反転に必要な投入エネルギー積の増加と共に、交換バイアスの反転時間は低下し、(1)で示した閾条件の 2 倍として場合、反転時間が 10 ns 以下となった。一方、投入エネルギー積が閾条件付近である場合、図 4 に示したように交換バイアスの極性反転は緩やかに起こり、極性反転に要する時間は数 100 ナノ秒となる。この結果は、交換バイアスの極性反転が反強磁性層の磁区構造の変化、つまり、磁壁移動速度と密接に関連していることを示唆する結果である。本成果についても、定量評価を含めて論文投稿準備を進めている。

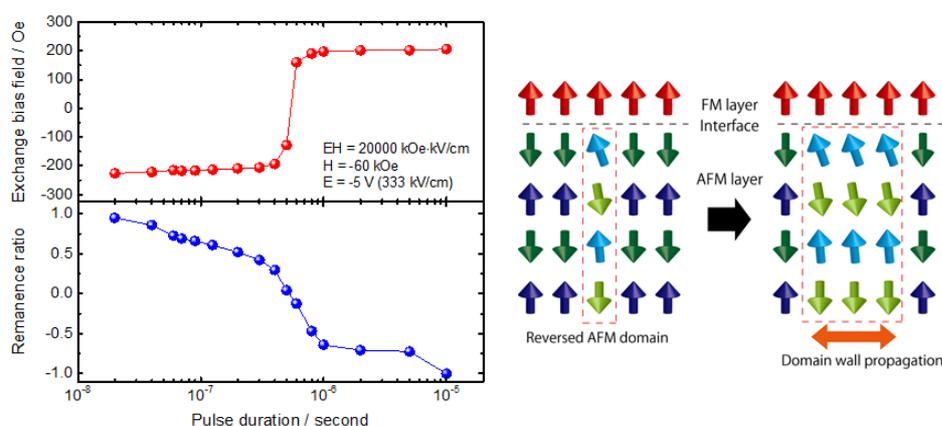


図 4 パルス電圧幅による交換バイアス磁場と残留磁化比の変化. 右図は交換バイアス反転プロセスを表わす磁壁移動の模式図.

## 4. 考察と今後の展望

上述したように、交換バイアスの反転プロセスは反強磁性層の磁壁移動に支配されるものと考えられる。磁壁移動モードにおける反転速度は、磁壁の移動速度によって決定されるため、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  薄膜における磁壁移動速度の決定が次の課題の一つとなる。しかしながら、反強磁性体における磁壁移動速度は、反強磁性体単独でのスピン情報の検出が困難であること、磁壁そのものの生成メカニズムが明らかになっていないことなどから、これまでに測定された例はなく、極めてチャレンジングな研究課題である。我々は、こうした課題に対して、交換バイアスの極性が、反強磁性層の界面スピンの向きによって決定されていることを、軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) 顕微鏡によって明らかにしており (図 5, Y. Shiratsuchi et al., AIMS Mater. Sci. 2, 484 (2015).), この知見を基に、反強磁性層の磁壁移動速度決定に向けた独自のアプローチを進めている。

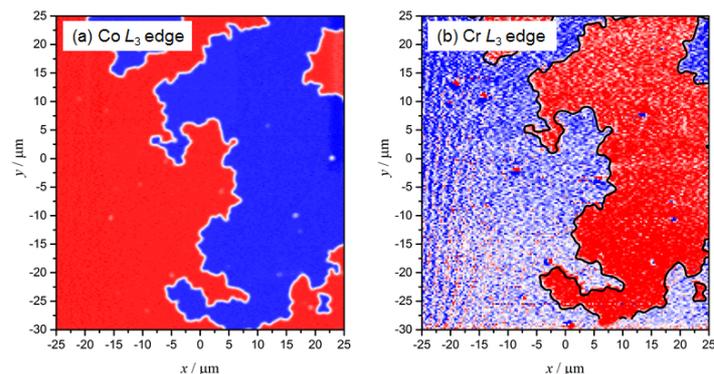


図 5 Pt/Co/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 薄膜における元素選択磁区イメージング. [Y. Shiratsuchi et al., AIMS Mater. Sci. 2, 484 (2015).] (a)は強磁性 Co, (b)は界面非補償 Cr スピンの向きに対応するドメインイメージング結果.