

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「実験と理論・計算・データ科学を融合し
た材料開発の革新」
研究課題「界面マルチフェロイク材料の創製」

研究終了報告書

研究期間 2018年10月～2024年03月

研究代表者: 谷山 智康
(名古屋大学 大学院理学研究科 教授)

§1 研究実施の概要

(1)実施概要

実験的・計算的研究手法を有機的に融合することで、界面マルチフェロイク材料における磁気-電気結合の巨大化と、磁化配向の電界制御、熱整流ゲート制御、マイクロ波技術等への応用展開研究を多角的に推進した。具体的には、強磁性体/強誘電体界面を制御した多種の界面マルチフェロイク材料に対して、磁気-電気結合係数を実験的、理論的に評価し、磁化の電界スイッチング機能を実証、スピン波伝播の電界スイッチングを実証、熱流・スピン流の電界制御を実証、界面マルチフェロイクトンネル磁気抵抗素子を実証した。以上の研究を通して原著論文 62 報(内 1 報は投稿中)、学会発表 225 件として成果発表を行なった。以下に各グループの研究成果がどのようにチーム全体の成果に繋がったかについて記す。

① 界面マルチフェロイク材料における磁気-電気結合係数の巨大化に向けた取り組み

- $\text{Fe}_{70}\text{Co}_{30}/[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]_{0.7}-[\text{PbTiO}_3]_{0.3}(\text{PMN-PT})(011)$ (谷山グループ)、Co 系 Heusler 合金/PMN-PT(011) (浜屋グループ)、準安定 bcc- $\text{Co}_3\text{Mn}/\text{PMN-PT}(011)$ (浜屋グループ)において、当初数値目標として掲げた $1.0 \times 10^{-5} \text{ s/m}$ を上回る磁気-電気結合係数を実証した。本成果により、プレス発表、特許出願を行った。また、X 線磁気円二色性ペラド計測 (浜屋グループ)、第一原理計算 (合田グループ)により Co 系 Heusler 合金、 Co_3Mn における磁気-電気結合の物理起源が面方位に依存した軌道磁気モーメントの界面歪み効果によることを突き止めた。さらに Co 系 Heusler 合金/ $\text{BaTiO}_3(100)$ の磁気-電気結合効果が強誘電ドメインに大きく依存しすることを見出した (木村グループ)。
- Heusler 合金/ BaTiO_3 において界面原子層挿入により磁気-電気結合効果が巨大化することを第一原理計算により実証した(合田グループ)。これに基づき、Co 系 Heusler 合金/PMN-PT において界面に V 層を挿入することで、残留磁化配向の二値電界制御を実証した(浜屋グループ)。本成果により、特許出願を行った。
- 垂直磁化[Co/Pd]多層膜/PMN-PT(011)において、垂直磁化多層膜として世界最高値の磁気-電気結合係数 $1.1 \times 10^{-6} \text{ s/m}$ を実証した (浜屋グループ)。また、垂直磁化[Cu/Ni]多層膜/Fe/PMN-PT(001)において磁化状態の電界による多値制御を実証した(谷山グループ)。さらに、[Co/Ru/Co]人工反強磁性多層膜/PMN-PT(011)において層間磁気結合の電界制御を実証した (谷山グループ)。また、第一原理計算により[Co/Ru/Co]における層間結合が界面歪みにより制御可能であることを裏付けた (合田グループ)。
- $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3/\text{BaTiO}_3(001)$ における反強磁性-強磁性相境界近傍の組成領域で、飽和磁気モーメントの電界変調を実証した (谷山グループ)。また、アモルファス $\text{FeSiB}/\text{PMN-PT}(100)$ における磁化配向の電界制御を実証した (木村グループ)。

② デバイス化に向けた取り組み

- 界面マルチフェロイク材料の強誘電体層を薄膜化 (谷山グループ)・平坦薄膜化 (浜屋グループ)することで、磁気トンネル接合デバイスとの融合技術を構築した。
- Co 系 Heusler 合金/PMN-PT 界面マルチフェロイク構造をトンネル磁気抵抗素子と複合化することで、界面マルチフェロイクメモリ作製のための技術基盤を構築した (浜屋グループ)。
- $\text{Fe}/\text{BaTiO}_3(100)$ において、 $\text{BaTiO}_3(100)$ の強誘電ドメインに依存した Fe 薄膜の磁気異方性を操作することで、スピン波伝播の電界制御を実証した (谷山グループ)。また、 $\text{Fe}_{100-x}\text{Rh}_x$ 合金において磁気ダンピングが極めて小さくなる組成領域を見出し、 $\text{Fe}_{100-x}\text{Rh}_x$ 合金/PMN-PT(001)における強磁性共鳴の不揮発電界制御を実証した (谷山グループ)。さらに、 $\text{Fe}_{50}\text{Rh}_{50}/\text{Fe}$ 界面において強磁性共鳴を利用することで $\text{Fe}_{50}\text{Rh}_{50}$ の磁気相転移に誘発される Fe 層の垂直磁気異方性を見出した (谷山グループ)。本成果によりプレス発表を行った。
- $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{PMN-PT}(011)$ (谷山グループ)、 $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{BaTiO}_3(001)$ (木村グループ)における電界の極性に依存した磁気ダンピング定数の電界制御を実証した。Ni-Fe 合金/PMN-PT における磁気熱電効果を利用することで熱流の伝播解析手法を構築し、熱流の電界制御を実証した (木村グループ)。また、CoFeB 合金/Pt/PMN-PT(011)における CoFeB の強磁性共鳴により生成されたスピン流の電界制御を実証した (木村グループ)。

(2)顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 界面マルチフェロイク材料における界面修飾効果

概要:強磁性 Heusler 合金 Fe_3Si と強誘電体 BaTiO_3 の界面に遷移金属層を挿入することで、磁気-電気結合の変調効果を密度汎関数法により実証した。特に、V 原子層を挿入したマルチフェロイク界面において、分極反転に伴う強磁性-反強磁性磁気転移が誘導され、大きな磁気-電気結合を見出すことに成功した。本成果は、界面マルチフェロイクスにおける磁気-電気結合の発現メカニズムの解明に資する大きなインパクトを有している。

2. 強誘電体ドメイン制御による磁気-電気結合係数とスピン波の制御

概要:強磁性体 Fe 薄膜/強誘電体 BaTiO_3 界面マルチフェロイクスにおいて、 BaTiO_3 の強誘電ドメイン構造を電界制御することで、強磁性スピン波の伝播特性を制御することに成功した。また、 BaTiO_3 の強誘電ドメイン制御が磁気-電気結合係数の増大に寄与することを実証した。電界によるスピン波の強度と位相の制御は磁気情報伝送、マイクロ波デバイスを創出する上での必須の要素技術であり、界面マルチフェロイク材料の新たな応用展開の途を拓く大きなインパクトを有している。

3. 界面マルチフェロイク材料における軌道角運動量の電界変調

概要: $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(011)$ 界面マルチフェロイクスに対して、電界印加下における軌道磁気モーメントの変調効果をX線磁気円二色性オペランド計測および第一原理計算に基づいて評価し、本研究で見出された巨大な磁気-電気結合係数の起源が面内歪みに由来する Fe の軌道磁気モーメントの電界変調効果に起因することを実証した。また、軌道磁気モーメントの面内歪み効果が結晶面に依存することを見出した。巨大な磁気-電気結合を有する界面マルチフェロイク材料を設計するための指針を提示したインパクトある重要な成果である。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. 巨大磁気-電気結合係数を持つ界面マルチフェロイク材料の創製

概要:Co 系 Heusler 合金、Fe-Co 合金と強誘電 $\text{PMN-PT}(011)$ からなる界面マルチフェロイクスにおいて、 $1.0 \times 10^{-5} \text{ s/m}$ を上回る世界最高値の磁気-電気結合係数を見出し、磁化方向の電界変調効果の実証に成功した。本成果は、電界駆動可能なトンネル磁気抵抗素子の実現に資する基盤技術として新産業創出のイノベーションにつながる重要な成果であり、大きなインパクトを有している。

2. 微視的にドメイン制御による磁気-電気結合の巨大化の指針

概要:強磁性 Heusler 合金 Co_2FeSi と強誘電体 $\text{BaTiO}_3(100)$ とからなる界面マルチフェロイク材料において、 BaTiO_3 の a-c 強誘電ドメイン構造を制御し、微視的に磁気-電気結合係数を評価することで、 $5.8 \times 10^{-6} \text{ s/m}$ の磁気-電気結合係数を実証することに成功した。本成果は、界面マルチフェロイク材料を開発する上での強誘電ドメイン構造の重要性を指摘するとともに、低消費電力電界駆動磁化反転技術への波及効果が期待される重要な知見である。

3. 界面マルチフェロイク材料を用いた熱流の電界制御

概要:強磁性体 Ni-Fe 合金と強誘電体 PMN-PT とからなる界面マルチフェロイク材料において、Ni-Fe 合金の熱磁気効果を利用することで熱流の評価手法を構築し、 PMN-PT の強誘電ドメイン構造を制御することで熱流制御を実証することに成功した。本成果は、電子デバイスにおける熱流を計測、電界制御するための新たな手法として重要な知見である。

<代表的な論文>

1. S. Fujii *et al.*, NPG Asia Mater. **14**, 43 (2022).

概要: $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{PMN-PT}(001)$ 界面マルチフェロイク構造において、 $\sim 1.8 \times 10^{-5} \text{ (s/m)}$ というスピントロにクス材料における世界最高値の磁気-電気結合係数を見出すことに成功した。また、残留分極状態において 2 値の磁化状態を得ることが可能であり、残留磁化状態の不揮発メモリスイッチング動作の実証にも成功した。トンネル磁気抵抗デバイスなどにおける磁化スイッチングを低消費電力で実現するための基盤となる重要な成果である。

2. H. Qin *et al.*, Adv. Mater. **33**, 2100646 (2021).

概要: $\text{Fe}/\text{BaTiO}_3(100)$ 界面マルチフェロイク構造において、 BaTiO_3 の強誘電ドメイン構造を制御することでスピン波伝播特性を制御することが可能であることを実証した。特に、強誘電 a-ドメインと c-ドメインにおけるスピン波分散関係の明瞭な相違に基づいて、a-c ドメイン境界を電界駆動することで、スピン波の強度と位相の制御を実証した。界面マルチフェロイク材料を情報伝送技術に応用するための基盤となる重要な成果である。

3. R. Costa-Amaral *et al.*, Phys. Rev. Appl. **15**, 064014 (2021).

概要: $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{BaTiO}_3(001)$ 界面マルチフェロイク構造において、界面に 3d、4d 金属単原子層を挿入し、磁気-電気結合係数の増大効果について網羅的に検討した。その結果、界面原子層として V、Mn を選択することで特に顕著な磁気-電気結合係数の増大が見出された。一方で、4d 金属単原子層では、電子の遍歴性を反映しその効果が限定的であることが示された。界面設計による界面マルチフェロイク材料の高性能化の指針を提示する重要な成果である。

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 谷山グループ

研究代表者: 谷山 智康 (名古屋大学大学院理学研究科 教授)

研究項目

- ・ 界面マルチフェロイク構造の高品質作製と磁気-電気結合係数の算出
- ・ 界面マルチフェロイク構造における電界制御機能の実証
- ・ 強誘電体薄膜の高品質作製

② 合田グループ

主たる共同研究者: 合田 義弘 (東京工業大学物質理工学院 准教授)

研究項目

- ・ 界面異種原子層組成に対する Bayes 最適化の実行
- ・ 界面マルチフェロイク構造における第一原理計算による磁気-電気結合、磁気異方性、軌道磁気モーメントの評価

③ 浜屋グループ

主たる共同研究者: 浜屋 宏平 (大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)

研究項目

- ・ 強誘電体上への強磁性 Heusler 合金の高品質作製
- ・ 磁気-電気結合係数の評価と磁化の電界スイッチング機能の実証
- ・ 界面マルチフェロイクトンネル磁気抵抗デバイスの作製

④ 木村グループ

主たる共同研究者: 木村 崇 (九州大学大学院理学院 教授)

研究項目

- ・ 局所領域における磁化の電界変調効果の評価
- ・ 単一強誘電ドメイン上の強磁性薄膜のスピンダイナミクスの評価
- ・ 界面マルチフェロイク構造における熱流・スピン流の電界制御の実証

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

① 国内連携

- ・ 水上チーム：界面マルチフェロイクトンネル磁気抵抗素子の作製
- ・ 大場チーム：反強誘電体薄膜の作製
- ・ 能崎チーム：単結晶強磁性薄膜/誘電体ヘテロ構造の作製
- ・ 岡林潤 准教授(東大)：X線磁気円二色性、X線磁気線二色性による評価
- ・ 鈴木一平 博士(NIMS)：磁気光学 Kerr イメージング測定
- ・ 杉本聡 博士(NIMS)：磁気光学 Kerr イメージング測定
- ・ 安藤康夫 教授(東北大)：磁気輸送測定
- ・ 大兼幹彦 准教授(東北大)：磁気輸送測定
- ・ 三浦良雄 博士(NIMS)：磁気異方性と歪みの相関の理論的解析
- ・ 白土優 准教授(阪大)：4軸X線構造解析、磁気光学 Kerr 効果測定
- ・ 中谷亮一 教授(阪大)：4軸X線構造解析、磁気光学 Kerr 効果測定
- ・ 小口多美夫 特任教授(阪大)：磁気異方性の理論的解析
- ・ 伊藤博介 教授(関大)：異方性磁気抵抗効果の理論的解析

② 国際連携

- ・ S. van Dijken 教授(フィンランド・Aalto 大)：スピン波計測
- ・ V. Gorige 助教(インド・Hyderabad 大)：磁気-電気結合効果の評価
- ・ M. Zheng 教授(中国・中国鉱業大)：磁気-電気結合効果の評価
- ・ V. K. Lazarov 教授(英・ヨーク大)：断面 HAADF-STEM・HRTEM 観察、EDX 元素分析
- ・ W. C. Lin 教授(台湾・国立台湾師範大)：微小領域軸構造観察