

学位論文の要約

題目 強磁性金属 Co における磁性の電界効果の微視的起源と応用

氏名 安藤 冬希

序論

物性科学の分野の中でも磁性の研究は長らく大きな位置を占めてきた。特に、3d 遷移金属である Fe, Co, Ni を対象とした研究は膨大な数に及び、最もよく性質が理解されている磁性体と言える。金属や半導体の磁性はしばしばバンド構造とフェルミ準位を用いて理解されるため、合金の組成比や歪み、外部電界によって物質中の電子密度やバンド構造を制御して有用な磁氣的機能を引き出そうという試みは古くから行われてきた。

その中でも、磁性の電界効果は 2000 年に磁性半導体(In, Mn)As において初めて報告された。それ以降、磁性の電界効果に関する研究は、電子密度の変化以外にも、圧電素子を用いた磁歪による制御やマルチフェロ物質を使用した制御等へと広く展開された。2007 年には半導体よりも遥かに電子密度の大きい強磁性金属においても、数原子層の超薄膜にすることによって、室温における磁性の電界制御が可能であることが実証された。現在では、代表的な磁気特性である磁気異方性やキュリー温度を電界制御できることが広く知られている。一方で、強磁性遷移金属のフェルミ準位付近のバンド構造は複数の軌道が混成した状態となっており、磁性の電界効果の微視的な機構を理解する上での障壁となっていた。最近では、第一原理計算の発展や X 線円二色性による軌道選択的な実験によって、強磁性遷移金属において外部電界が及ぼすバンド構造の変化についての理解が徐々に進みつつある。これら一連の研究は、今後の電界制御型磁気デバイスの材料を検討する上での基盤となりうる。

そこで、本研究では典型的な強磁性遷移金属である Co において、電子密度の変化が磁性に及ぼす影響についての実験的な機構解明、及びその応用可能性の開拓に焦点を当てる。具体的には、まず、2011 年に報告された Co 薄膜のキュリー温度の電界変調について、その微視的な起源として交換相互作用の変調に着目してそれらの相関を調べる。この研究によって、古くから研究されている強磁性遷移金属における磁気秩序の原理と、外部電界による電子密度の変化を如何にして結び付けて理解できるかを明らかにする。次に、電極形状によって任意の領域の磁性のみを選択的に変調し、室温で磁区のパターンニングが可能であることを実証する。この研究は、近年シミュレーションにより提唱されている電界制御型

スピン波デバイスが原理的に可能であることを示唆している。以下では、順を追ってその詳細を記す。

1. 強磁性遷移金属 Co におけるキュリー温度の電界変調の微視的起源

強磁性/誘電体のヘテロ構造における磁気異方性やキュリー温度などの磁気特性の電界制御は、ジュール損失が発生しないためにスピントロニクス素子の低電力化に直結する。これまでの磁性の電界効果の研究は、その応用的側面から磁気異方性の変化に着目したものがほとんどであったが、近年、強磁性金属 Co のキュリー温度も外部電界によって変調することが明らかとなり大きな注目を浴びた。ところが、外部電界によって 3d 軌道の電子数が変化したときに、スレーター・ポーリング曲線から期待されるキュリー温度の変化と実際に得られた実験結果は逆の傾向を示していた。また、マーミン・ワグナーの理論によると、2 次元系では一軸磁気異方性が強磁性秩序において本質的な役割を果たすことが知られている。従って、磁気異方性の変化の影響を受けてキュリー温度が変化しているとも考えられたが、その両者の電界変調の傾向も逆方向であった。そのため、キュリー温度が電界変調する物理的な起源は依然として不明瞭なままであった。近年、Pt/Co 系での第一原理計算によって、交換相互作用の電界変調に起因してキュリー温度が変化するのではないか、という提案がなされた。

そこで、本研究では Co のキュリー温度と交換相互作用定数の電界変調を、それぞれ独立に評価して比較を行った。まず、Pt/Co/MgO 薄膜の低温における磁化の温度依存性を測定しブロッホ則でフィッティングすることにより、交換相互作用定数の電界変調を初めて実験的に観測した。また、高温での磁化の温度依存性をベキ乗則でフィッティングすることによって、キュリー温度の電界変調を評価した。そして、交換相互作用とキュリー温度の電界変調率がよく一致することを実験的に明らかにし、電界印加下においても古典的なワイスの分子場理論にしたがってキュリー温度が変化するという機構を見出した。先行研究である第一原理計算によると、本研究で観測された交換相互作用定数の変化は、電界による Co の電子数及び p-d 軌道混成の変化から説明される。したがって、これらの実験及び理論的研究から、電界による交換相互作用及びキュリー温度の変化が Co の 3d バンドへの電子ドーピングによる摂動として考えられる、という結論が導かれる。本結果は、強磁性金属に対する電界効果の微視的な起源について、さらなる深い理解をもたらすものである。

2. 電極形状を利用した磁区の電界書き込み

磁性体中の任意の位置で磁性及び磁化方向を制御する手段はこれまでも数多く提案されてきた。例として、局所的なパルス磁場の印加や、円偏光レーザーの照射、電気化学反応

による磁性変調などが挙げられる。ところが、AI 技術の発展に伴ってより高性能な演算回路の需要が高まりつつある中、現在の半導体素子の性能を上回る磁気デバイス（磁壁レーストラックメモリやマグノニック結晶等）を実現しようと考えた場合、より高速かつ低消費電力で磁性を制御する技術は必要不可欠となる。そこで、電界による電荷蓄積を媒介とする磁性制御が、その有力な候補となるわけである。これまでの磁性に対する電界効果の研究は、主に磁気異方性の制御に焦点を当てた実験結果が多く報告されてきたが、近年になって磁性体の磁区構造を変調・制御できるのではないかという可能性が提案された。ある報告では、電極形状を網目型にして電極直下の強磁性領域のみを常磁性状態に転移させることにより、それぞれ独立した強磁性ナノドットに分割し制御できるのではないかと提案されていた。ただし、当報告では磁性半導体を用いて低温下かつ電氣的検出によって実験が行われたため、より現実的な条件下でかつ直接的に実証することが今後の課題とされていた。

本研究では、Pt/Co/MgO 薄膜をキャパシタ構造に加工する際に、上部電極 Cr/Au を 10 μm 四方の周期的な窓を持つ網目型構造にした。そして、MOKE 顕微鏡を用いて電界印加下での Pt/Co/MgO 薄膜の磁化反転過程を光学的に検出することにより、電界による局所的な磁性制御が可能であることを直接的に実証した。また、電界による保磁力の変化が、先行研究で報告されている磁気異方性の電界変調から定性的に説明できることを示した。本手法は電界による Co の電子密度の変化を介して磁性を制御しているため、高速かつ省エネルギーで磁区を制御する可能性を提示している。さらに、上部電極を電子線リソグラフィー等の手法でパターンニングすることによって、容易に網目構造をナノサイズに縮小できる。そこで、スピン波の波長程度の周期を持つ網目構造に加工すれば、スピン波の伝搬を電界によって許容・禁止することができると考えられる。これは、電界によってオンオフできるマグノニック結晶が実現可能であることを意味している。従って、本研究の電極形状による磁区の電界書き込みは、将来的な低消費電力磁気記録素子およびスピン波論理回路の設計の一助となると考えられる。