

研究課題名

極性酸化物上に製膜した磁性遷移金属超薄膜の特性と電界効果に関する研究

研究代表者名

東京大学・工学系研究科・千葉大地

1. はじめに

本研究では、極性酸化物上に製膜した数原子層の強磁性薄膜に注目する。下地酸化物の分極方向に依存した磁性の違いを観測し、その起源を多角的な実験により理解することを目的とする。代表者は、強磁性薄膜のキュリー温度や磁気異方性がゲート電界により制御できることを示してきた[*Nature* **408**, 944 (2000), *Science* **301**, 943 (2003), *Nature* **455**, 515 (2008), *Nature Mater.* **10**, 853 (2011).]。極性酸化物上の金属超薄膜では、ビルトインされたバックゲートが加わっている状況を作り出すことが可能である(図 1)。金属側界面での電子濃度変化の方向は、下地酸化物表面の極性によって決まる。これにより、同じ物質上に製膜しているにも関わらず、下地の極性により磁性(キュリー温度や磁気異方性)が全く異なる可能性がある。例えば磁気異方性(磁化容易軸方向)は、磁気記録応用にとって最も重要な物性の一つであるが、本研究によって、新たな発想に基づいた物質デザインの指針を世の中に広めることができるかもしれない。また、このもとと内部電界を有する強磁性金属薄膜は、近年注目を集めている強磁性体中でのラシュバ効果を知る上でも、優れた舞台となるはずである。

本研究では、ZnO 極性基板上に製膜した 3d 遷移金属強磁性体を用い、目的達成のための実験を行った。これまで、半導体と金属や、金属と絶縁体など、異種物質間のハイブリッド構造とその界面構造を活かした研究は数多く行われてきた。しかし、素性が良く知れた高品質な極性酸化物上の原子レベルで平坦な表面上に数原子層の金属を積層し、下地極性に応じた物性の変化を見るという研究は、これが初めての試みであろう。ZnO の紫外発光[*Nature Mater.* **4**, 42 (2005)]や量子ホール効果[*Science* **315**, 1388 (2007)]などで世界をリードする成果をあげてきた金属材料研究所の塚崎敦教授の受け入れのもと、本研究課題を遂行した。

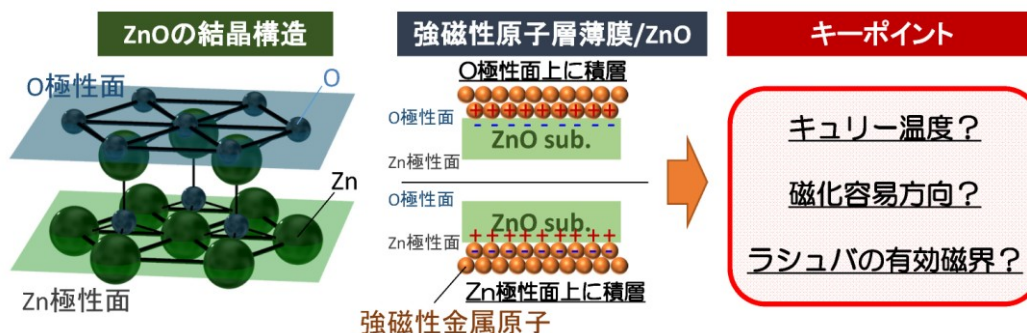


図 1: 研究内容の概要。ZnO の O 極性面と Zn 極性面上に製膜した強磁性原子層金属薄膜では、下地の極性に依って磁気特性が変化するだろうか？そしてそれは予想通りのメカニズム(ビルトインされたバックゲート)によるものであろうか？

2. 研究経過

どの研究でもそうであると思うが、研究開始当初に期待した結果は、いずれも直ちに 100%達成できるものとは期待していなかった。異なる極性面上に超薄膜を製膜すると、磁性に僅かな差が検出されるかもしれないが、場合によってはそれが有意かどうかを判断することからスタートしなければならないかもしれないと慎重な立場であった。ところが、一番最初に行った実験(Co 超薄膜を ZnO の Zn 面と O 面上に製膜して磁化測定をするというもの)から、いきなり磁気特性に明瞭な違いが観測された(3. 参照)。これは何かの間違ひではないかと思ひ、Co の膜厚を変えたものでいくつか実験を繰り返したが、何度やっても再現性が得られ、これは間違ひないという結論に至った。塚崎研には計画通り 7 回訪問し、X 線回折による薄膜の膜質や結晶構造の同定、原子間力顕微鏡による表面平坦さの測定などを行った。また、高品質な ZnO 基板や下地層の提供をしていただいた。議論も何度も行ひ、最短で研究が進むように配慮してきた。

得られた結果の起源としては、当初の予測である、ビルトインされたバックゲートの効果によるものか、もしくは界面での構造の違いによるものか、ここをしっかりと見極めなくてはならない。後者については、透過型電子顕微鏡の専門家に評価を依頼して現在研究を継続しているところである。H27 年度も大変ありがたいことに本共同研究に採択していただいたが、継続して原理の解明を進め、大きく掲げた 3 つの謎解き(図 1 の「キーポイント」参照)を完成させたいと考えている。

3. 研究成果

まず初めに、ZnO 基板の O 極性面上と Zn 極性面上(ひとつは基板の表面、もうひとつは同じ ZnO ウェハから切り出した別の基板の裏面)に、直接 Co の超薄膜(0.5 nm 程度)をスパッタ製膜し、Pt (2 nm 程度)でキャップしたものを評価した。X 線構造解析により、Pt キャップ層は fcc(111)配向していることを確認した。Co は薄すぎるために X 線では結晶構造が同定できなかったが、Pt の結晶性は比較したその他の酸化物基板や半導体基板に比べ良好であることが分かった。試料表面は、基板のステップアンドテラス構造がそのまま残っているほど極めて平坦であることが原子間力顕微鏡により確かめられた。

磁化特性を評価すると、驚くべきことに、O 極性面上の試料は垂直方向に、Zn 極性面上の試料は面内方向に磁化容易軸があることが分かった(図 2)。

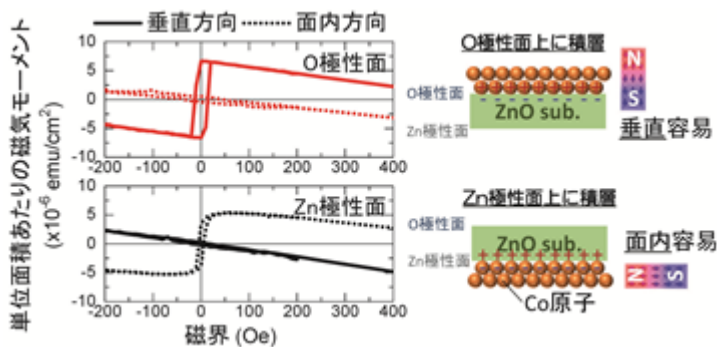


図 2: 0.5 nm 程度の Co 超薄膜を ZnO 基板の O 極性面上と Zn 極性面上に製膜し、Pt でキャップした試料の磁化特性を示している(反磁性補正はしていない)。磁化容易方向が下地の極性に応じて、垂直・面内と明確に入れ替わっていることが分かる。

さらに、キュリー温度を評価したところ、Co の膜厚(0.4-0.6 nm)に依らず、Zn 面上に製膜した試料の方が常に約 60 K ほど高いことが分かった。ビルトインバックゲート効果が存在するとすれば、Zn 面上に製膜した Co には電子が蓄積されていると予想される。電子濃度が上がるとキュリー温度も上がるという傾向は、電界効果型素子に電圧を加えた場合[Nature Mater. 10, 853 (2011)]と同様であった。

しかしながら、磁化容易方向の変化については、他の電界効果の実験と比較すると、本結果はその変化量が 1-2 桁程度大きく、界面での Co への歪み(つまり Co の原子間隔)、もしくは結晶性が Zn 面と O 面で異なる可能性も否定出来ない。すなわち、Co と ZnO の界面の構造の同定は極めて重要であり、現在透過型顕微鏡を用いた観測に取り組んでいるところである。

上記の成果は下記の国内学会で報告した。H27 年度も本共同研究を継続させていただき、実りある成果として世の中に発信していきたいと考えている。

[国内学会]

1. D. Chiba, N. Shibata, A. Tsukazaki, “Magnetic properties of Co ultra-thin film deposited directly on polar ZnO substrates”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 平塚市, 2015 年 3 月 12 日

4. まとめ

当初期待したことがそのまま結果として得られ、実験を行った自らが驚いている。メカニズムはさておき、基板の表と裏に同じ材料を同じように積んだのに、それらの磁気特性が全く異なるということは大変興味深いことである。特に磁性体の磁気異方性を制御することは磁気記録分野にとっては大変重要な課題であり、これまでにない視点からの制御手法を明らかにしたと自負している。

ZnO の絶縁基板上に Co を積み、極性を持たない絶縁体でキャップすることができれば、近年当該分野で話題となっているスピンホール効果などの影響を受けない純粋なラッシュバ効果を観測する舞台も提供することができる。この効果は磁気異方性にも影響すると理論的に予測されており、メカニズムを明らかにする上でも今後攻めていくべき内容である。一方、磁性のみならず、それ以外の様々な物性にもどのような違いが出るかという新たなテーマも考えられる。1 年間の共同研究で行った内容としてはこれ以上になく実りあるものとなったのではないかと考えている。

[謝辞]

東北大学金属材料研究所の共同利用・共同研究制度に深く感謝するとともに、受け入れ研究室の塚崎敦教授に心から御礼を申し上げたい。また本研究の一部(透過型電子顕微鏡観察)は、東京大学総合研究機構の柴田直哉准教授の協力を受けて行われた。