

## 「軌道弾性効果」の実証

### ～磁化配向の低電力電界制御に指針～

#### 1. 発表のポイント：

- ◆ 磁性体の薄膜を歪めると薄膜の面内と面直方向で磁化の向きやすさ（磁気異方性）が変化することは磁気弾性効果として知られています。そのミクロな電子論的な原因として、電子のスピン角運動量よりも軌道角運動量が重要であることを見出しました。
- ◆ チタン酸バリウム結晶は電圧印加によってひずませることができる強誘電の性質があり、これを利用して、その上に堆積したニッケルに可逆的にひずみを印加し、軌道角運動量が可逆に変化することを電圧印加時（オペランド）における X 線磁気円二色性スペクトルの計測と理論計算から明らかにしました。
- ◆ 磁気弾性効果について電子論的な微視的理解を深めることができ、ひずみと磁性と軌道状態の相関について明確にすることができ、本研究成果はひずみに応答して軌道角運動量を操作するスピンオービトロニクス of 新しい磁性材料の開発に繋がることが期待されます。

#### 2. 発表概要：

東京大学大学院理学系研究科の岡林潤准教授、物質・材料研究機構の三浦良雄グループリーダー、名古屋大学の谷山智康教授による研究チームは、誘電体であるチタン酸バリウム ( $\text{BaTiO}_3$ ) 結晶の上に原子レベルで制御したニッケル Ni と銅 Cu を交互に積層した磁性多層膜において、電圧により磁化の向きやすさ（磁気異方性）を操作できるメカニズムを動作中（オペランド）X 線磁気円二色性 (XMCD) 分光<sup>(注1)</sup> と第一原理計算<sup>(注2)</sup> を用いて解明しました。特に、電圧を印加して Ni にかかるひずみ量を可逆的に変えた状態でのオペランド XMCD

の測定システムを立ち上げて、軌道角運動量の変化を捉えることに成功しました。得られた結果は、ひずみと化学結合の変化による軌道角運動量の関係を明確にするものであり、スピンと軌道とひずみの三者の関係を微視的な電子論から明らかにしています(図 1)。これらの成果は、磁性と誘電性の融合したマルチフェロイクス<sup>(注 3)</sup>に関する基礎物理学の理解を進展させるのみでなく、電圧による磁気異方性の操作に関するスピントロニクス素子の設計においても重要な役割を果たすことが期待されます。

物質をひずませるとスピンの大きさが変わることは磁歪(じわい)効果、磁気弾性効果<sup>(注 4)</sup>として知られています。今回、磁気弾性効果を電子論的な微視的計測と理論計算により、ひずみによる軌道状態の変化を捉えることができたため、今まで現象論的に知られる磁気弾性効果は、実はスピンよりも軌道成分の変化が重要であることが判りました。我々はこれを「軌道弾性効果」と名付けました。この研究成果は、固体物理学の教科書の説明を深化させる内容であり、薄膜界面のひずみの操作による軌道物性を制御するスピンオービトロニクスの学術の創成に繋がります。

本成果は、2019年5月3日(英国時間午前10時)に、英国科学雑誌 *Nature Partner Journal* 「*npj Quantum Materials*」のオンライン版に掲載されました。なお、本研究は主に日本学術振興会科学研究費助成事業基盤研究(S)「界面スピン軌道結合の微視的解明と巨大垂直磁気異方性デバイスの創製」、科研費基盤研究(B)「外場摂動印加時の磁気分光を用いた軌道磁気モーメントの操作に関する研究」、旭硝子財団ステップアップ助成「マルチフェロイク・マグノニクス技術の開発」を受けて実施されました。

### 3. 発表内容：

強磁性体と非磁性体を交互に堆積した構造(磁気接合)は、磁気メモリーなどの記録素子やハードディスク内の磁気センサーとして広く用いられています。特に、薄膜の面に垂直方向に磁化の向きを揃えて磁気記録を行う技術は、高記録密度を達成するために重要です。これらの素子の薄膜垂直方向、面内方向の磁化の揃いやすさ(磁気異方性)を操作することは、スピントロニクスの研究分野におけるデバイス開発では最も重要なことの一つです。特に、ひずみによる変化を可逆的に操作できることは、磁性体と誘電体を組み合わせたマルチフェロイクス物質として有用です。そのため、可逆的にひずみを操作できることは重要ですが、ひずみ印加に対する電子論的なスピンと軌道の理解については今まで明確ではありませんでした。

今回、研究チームは、電子軌道が作る磁気モーメントを調べられる XMCD に着目し、ひずみの有無の各状態にて XMCD のオペランド計測を行うことに成功しました。方位に依存した Ni の軌道角運動量(もしくは軌道磁気モーメント)の分布を電圧印加時の XMCD にて調べ、ひずみによる軌道磁気モーメントの変化を捉えました。誘電体 BaTiO<sub>3</sub> には電圧により 2% もの大きな格子ひずみを印加でき、このひずみの伝播により Ni の化学結合状態が変わり、磁気モーメントの変化として現れていることが、オペランド XMCD のみでなく第一原理計算によっても明らかになりました。ひずみと磁化の間は磁気弾性効果として現象論的なマクロ

な性質として定式化されていますが、電子論的なミクロな議論により、軌道磁気モーメントのひずみ依存性を明確にし、軌道磁気モーメントの変化が磁気異方性の変調を説明できることが判りました。我々はこれを「軌道弾性効果」と名付けました。これは、オペランド XMCD 分光によって初めて判ることであり、固体物理学や磁性の教科書に付け加えられうる基礎事項となります。また、薄膜に垂直方向に磁化が向いた方が安定となる垂直磁気異方性の操作に関する起源に迫るものであり、今後のスピンオービトロニクスデバイス設計に向けた界面の電子状態の理解に指針を与えるものとなります。

オペランド XMCD 測定は、東京大学大学院理学系研究科スペクトル化学研究センターが高エネルギー加速器研究機構放射光施設 (KEK-PF) 内のビームライン (BL-7A) にて立ち上げたシステムを用いて行われました。試料に電極を設置し、電圧印加時に放射光をあてて XMCD 分光を実施しました (図 2)。電圧のオン・オフにおけるスペクトルの変化を捉え、スピンと軌道磁気モーメントの変化を調べました (図 2)。この結果は第一原理計算とも合致し、軌道モーメントの変化をひずみの関数として定式化しました。

本研究は、磁気記録やスピントロニクスの研究にて広く用いられている磁性多層膜の界面局所ひずみを用いた材料設計、素子設計を行う上で、極めて重要な指針を与えるものです。また、近年注目を集めている界面でのトポロジカルな性質の観測と、操作にも有用な研究基盤になりうるものです。垂直磁化を用いた高記録密度を可能にする素子設計、近接効果がもたらす界面に誘起される新規な磁性に関する研究の進展が期待されます。今後、界面のスピンと軌道状態を人工的に設計することができ、今までにない新しい磁石の性質の操作に関する研究が拓けるものと期待されます。

#### 4. 発表雑誌：

雑誌名：*Nature Partner Journal* [npj Quantum Materials]

論文タイトル：Strain-Induced Reversible Manipulation of Orbital Magnetic Moments in Ni/Cu Multilayers on Ferroelectric BaTiO<sub>3</sub>

著者：岡林 潤、三浦 良雄、谷山 智康

DOI：10.1038/s41535-019-0159-y

#### 5. 用語解説：

注1：X線磁気円二色性 (XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism)

放射光から出る左右円偏光により元素の内殻から遷移する吸収スペクトルを測定する。左右円偏光による各元素の吸収強度の違いが XMCD である。これにより、元素別の磁気状態について知ることができる。

注2：第一原理計算

物質を構成する基本粒子である原子核と電子の運動、及びその間に働く相互作用のみを入力パラメータとして物質の性質を探る物理計算手法。実験とは独立して近似の範囲内では非常に高精度に、物質の物性を計算することができる。

注3：マルチフェロイクス

誘電体と磁性体の性質を併せ持つ物質群の総称であり、電気的な磁化制御をその逆過程を行える特徴を持つ。物質固有の性質である場合もあるが、誘電体と磁性体の接合における界面での積極的な利用が進められている。

注4：磁気弾性効果

磁石がひずむと磁気モーメントが変化すること。逆過程もあり、物質が磁化するとひずむことも含まれる。

## 6. 添付資料：

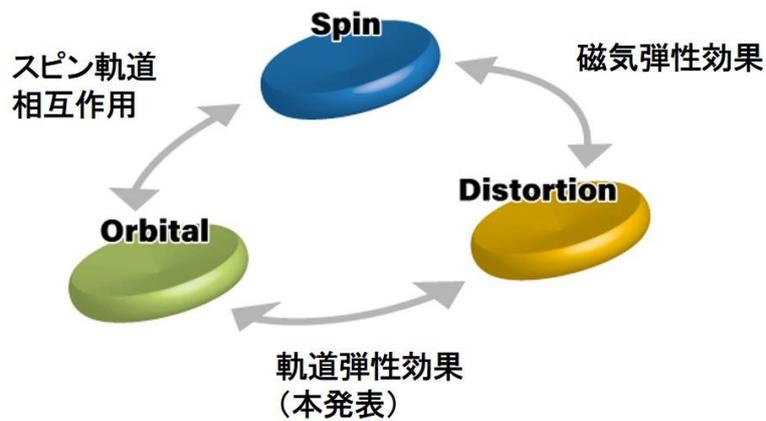


図1 スピン-軌道-ひずみの間の相関

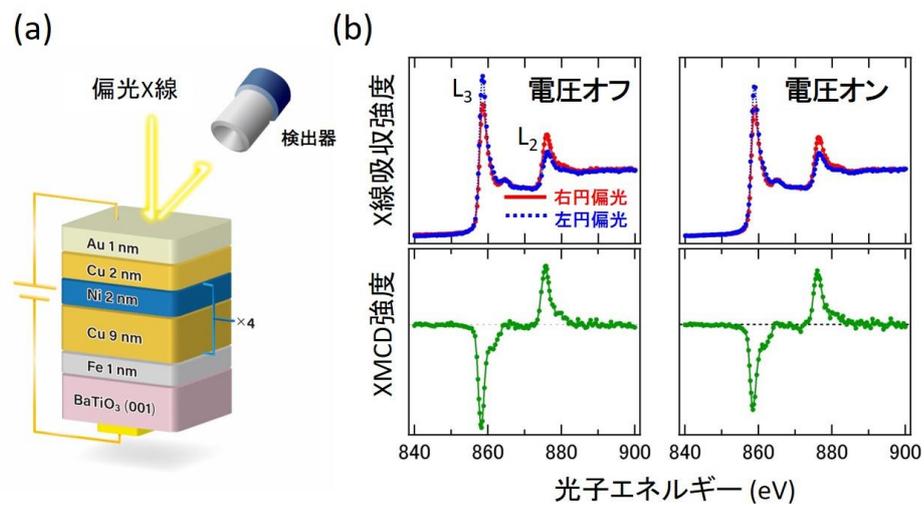


図2 (a) 設計した構造の模式図。BaTiO<sub>3</sub>上にNi/Cu多層膜を堆積し、薄膜の上下に電極を取り付けている。  
 (b) 電圧印加オン・オフ時のX線吸収スペクトル、X線磁気円二色性スペクトル。