

1. 氏名	岡林 潤
2. 所属機関	東京大学大学院理学系研究科
3. 研究題目	液晶化学に倣う異方的な電荷分布を有する新規な磁気異方性材料の創成
4. 研究の目的:	<p>磁性体薄膜における磁気異方性の制御は、低消費電力による磁気記録を目指したスピントロニクス研究において重要な役割を果たす。磁気異方性は軌道磁気モーメントと関連していることから、X線磁気分光を用いた元素選択的なスピン・軌道状態の精密な計測が重要となる。特に、異方的な電荷分布の外的制御において、液晶化学との類似の対称性を議論することにより、新分野の創出に繋がる。そこで本研究では、薄膜界面に生じる格子ひずみを電圧ピエゾ効果と力学的応力により能動的に操作し、垂直磁気異方性を制御できる物質系を設計し、機能発現の解明を行ってきた。そのために、軌道磁気モーメントを計測できる磁気円二色性(XMCD)および異方的な電荷分布を測定する磁気線二色性(XMLD)の測定法を応用して、外場印加時の非平衡状態を観測できる新しいオペランド磁気分光法を開発した。そして、この新手法を用いて「外的な格子ひずみの変調を用いた磁気異方性の操作を実現させ、微視的な電子論からの解明」を目指した。そして、様々な磁性薄膜界面でのひずみと軌道磁気モーメントの相関を明確にし、スピンのみでなく軌道成分も操作する「スピンオービトロニクス」に資する材料設計・超高記録密度デバイス応用への技術革新に結び付けることを最終目標として研究を進めている。</p>

5. 研究の内容(手法、経過、評価など。書ききれない場合には、同一様式のページを追加してください。):	<p>ホイスラー合金は、X_2YZの組成式において、X, Yが遷移金属、Zが非金属元素で構成され、体心立方格子を組んだ規則合金である。ホイスラー合金は多種多様な機能性を有し、磁性においては、完全スピン偏極のハーフメタルなバンド構造、熱電効果などの特徴を有する。薄膜においては、基板からの格子整合を保つためにひずみが印加され、磁気異方性が生じることもある。今回、Co-Co層、Fe-Si層からなる規則合金Co_2FeSi(CFS)に着目した。この物質は、磁化が大きく、磁化Mの電場Eによる微分が示す電気磁気効果$\alpha = \partial M / \partial E$の係数を大きくできる特徴がある。次に、基板として用いた誘電体$Pb(Mg,Nb)O_3-PbTiO_3$(PMN-PT)は、ペロブスカイト構造で、電圧により格子ひずみを導入できる圧電体であり、その上に堆積したCFSに対して$\pm 0.1\%$程度の格子変調ができる。本研究では、絶縁性PMN-PT上に堆積したCFSについて、試料の表面と基板の裏面に電極を取り付け、ピエゾ電圧の印加による可逆なひずみ導入を用いてCFSの磁気異方性を制御することを行った。特に、その操作性の起源について、オペランドXMCD、広域X線吸収微細構造解析(EXAFS)を用いて調べた。これは、電圧による磁化制御を行うことにも対応し、界面マルチフェロイク系(交差相関係)といえるものである。プラス電圧のときにCFSの$[01\bar{1}]$方向、マイナス電圧の時に$[1\bar{1}\bar{1}]$方向が磁化容易軸となることが判った。</p> <p>次に、可逆なひずみ印加時のオペランドXMCDを行った。測定は、高エネルギー加速器研究機構(KEK)放射光施設(Photon Factory)のBL-7A(東京大学理学部所有)を用いて、± 1.2 Tまで印加できるXMCD装置を用い、試料周辺の電圧印加機構および電磁石の整備について本助成を用いて行った。測定は室温にて、蛍光収量法を用いて行った。</p>
---	---

6. 研究の成果と結論、今後の課題:

CFS/PMN-PT における Fe, Co L 吸収端のオペランド XMCD 測定と総和則を用いた解析により、スピン、軌道磁気モーメント(m_{orb})を算出した。プラスとマイナスの電圧印加によるスペクトル変化は Fe サイトの L_3 吸収端の XMCD において観測され、Co サイトでは変化がない。これは、スペクトルを積分した際に変化をもたらし、Fe の軌道磁気モーメントの変化が CFS の磁気異方性の変調を司っていることを明確に示している。繰り返し測定を行っても再現性のある結果となっている。また、Co の X 線吸収スペクトル(XAS)に肩構造が観測でき、分子軌道論により非結合状態に対応し、ホイスラー合金が形成されていることの証となる。

次に、XMCD の L_3 吸収端の磁場依存性を調べることで、元素選択的な磁化曲線を測定した。Fe と Co の間には交換相互作用がはたらくために、磁化容易軸、困難軸の変化は同じものとなる。一方で、XMCD の電圧依存を反映し、Fe では図 1 に示すように、困難軸の際に飽和する強度が異なっていることが判った。一方で、Co ではその変化は観測されていない。

CFS/PMN-PT 系では、Fe の軌道磁気モーメントの電圧での変化(Δm_{orb})が磁気異方性を担っていることが判り、定量的にも 10^4 J/m^3 の磁気異方性エネルギーとなることを見積もれた。このように、元素選択的なひずみと m_{orb} の変化を磁気異方性と関連付ける初めての研究を行えた。次に、Co の役割について考察する。Co 気ホイスラー合金では、Fermi 準位近傍は Co の状態密度が支配的であることは、第一原理計算から示唆されている。ハーフメタル伝導を担い、伝導性が良いために m_{orb} の変化がないものと考えられる。この様子を図 2 に模式的に示す。ホイスラー合金では、各元素の役割が異なっていることが今回初めて判った。また、非磁性元素 Si は、ホイスラー規則化合物を形成する役割を担っている。

磁歪効果はマクロな現象として理解されているが、本研究により、電子論的な理解ができるようになった。ひずみによる m_{orb} の変化を捉えることができ、これが磁歪効果の背景にあるものと考えられる。つまり、ひずみによる変化は m_{spin} よりも m_{orb} の変化が重要となる。これを「軌道弾性効果」と名付けた。軌道弾性効果を定式化すると、ひずみ ε の関数として、 $m_{orb}(\varepsilon) = m_{orb}^0(1 + \lambda\varepsilon)$ と 1 次の変化として記述できる。ここで λ は軌道弾性定数として定義される。これにより見積った $m_{orb}(\varepsilon)$ は、CFS の磁歪定数 12.22×10^{-6} と矛盾しないものとなった。

今後の課題として、提唱している軌道弾性効果を普遍的なものにするためには、様々な物質系に適用する必要がある。軌道磁気モーメント以外にも、構造の非対称性によって、電気四極子がひずみにて変調する系もあるため、いくつかの物質依存性を調べていく。そして、普遍的な物理法則となるようにまとめていくようにする。

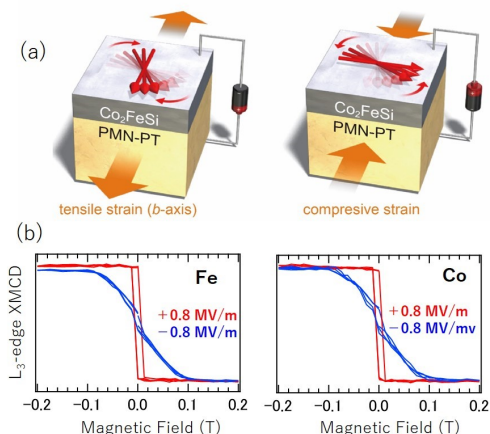


図 1. 試料構造と電圧印加による磁気異方性の変化の様子. (b) XMCD による磁場依存性の電圧による変化.

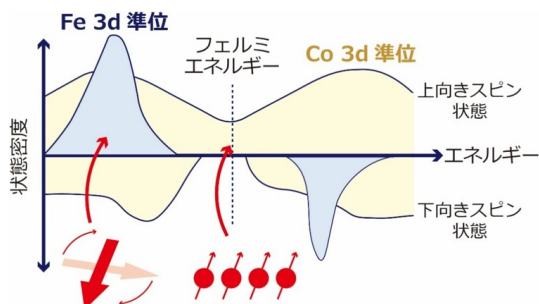


図 2. Co₂FeSi の状態密度の模式図. ひずみによる元素別な Fe と Co の役割を本研究にて明確にできた.

7. 成果の価値

7.1_学術的価値:

本研究により、ひずみと m_{orb} の関係についての普遍的法則の導出に結び付けられ、磁気弾性効果 (Magneto-elastic) の軌道版 (Orbital-elastic) として「軌道弾性効果」の全く新しい概念を創出しつつある。これは、「磁歪効果」による従来のマクロな現象論ではなく、ミクロな電子論に基づく理解を初めて与えることになる。また、材料設計において、ひずみによるスピン軌道相互作用の制御に関する研究も進展する。そのためには、異方的な電子状態を有するバンド設計が重要であり、電子占有数を調節し、さらにひずみによる軌道弾性を有する液晶と類似した系に着目する必要がある。これは、本研究により初めて理解されうることである。

7.2_社会的価値:

電圧による磁化制御を実現させる指標 (電気磁気効果係数) を向上させ、低電力にて動作する磁気記録素子への応用に繋がる。そのための材料設計への指針を本研究の成果から提言できる。また、重金属元素 (レアアース) を用いることなく同等の性能を持つ物質開発に貢献できる点を強調する。そして、低コストで、環境にやさしい新物質開発、新機能創出に結びつけられる。

7.3_研究成果:

・「研究論文(原著)」

1. [Jun Okabayashi](#), Takamasa Usami, Amran Mahfudh Yatmeidhy, Yuichi Murakami, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani, Yoshihiro Gohda and Kohei Hamaya, Strain-induced specific orbital control in a Heusler alloy-based interfacial multiferroics, [NPG Asia Materials 16, 3 \(2024\)](#). [プレスリリース](#)
2. Masaya Morishita, Tomoyuki Ichikawa, Masaaki A. Tanaka, Motoharu Furuta, Daisuke Mashimo, Syuta Honda, [Jun Okabayashi](#), and Ko Mibu, Control of conductivity in Fe-rich cobalt-ferrite thin films with perpendicular magnetic anisotropy, [Phys. Rev. Mater. 7, 054402 \(2023\)](#).
3. S. Kobayashi, H. Koizumi, H. Yanagihara, [J. Okabayashi](#), T. Kondo, T. Kubota, K. Takanashi, and Y. Sonobe, Perpendicular magnetic anisotropy of an ultrathin Fe layer grown on NiO(001), [Phys. Rev. Appl. 19, 064005 \(2023\)](#).
4. Shoto Nodo, Ichiro Yamane, Motohiro Suzuki, [Jun Okabayashi](#), Seiya Yokokura, Toshihiro Shimada, and Taro Nagahama, Intrinsic Magnetic Proximity Effect at the Atomically Sharp Interface of $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4/\text{Pt}$ Grown by Molecular Beam Epitaxy, [ACS Omega 8, 24875 \(2023\)](#).
5. Tomohiro Nozaki, [Jun Okabayashi](#), Shingo Tamaru, Makoto Konoto, Takayuki Nozaki & Shinji Yuasa, Understanding voltage-controlled magnetic anisotropy effect at Co/oxide interface, [Scientific Reports 13, 10640 \(2023\)](#).

・「国際会議発表」

1. (INVITED) [J. Okabayashi](#), Operando x-ray and γ -ray magnetic spectroscopies in the multiferroic system, CSI XLIII (Tokushima, 2023.6)
2. [J. Okabayashi](#), OPERANDO MÖSSBAUER SPECTROSCOPY IN THE MULTI-FERROIC SYSTEM, International Conference for Application of Mossbauer Effect (ICAME)(Cartagena, Colombia, 2023.9)