

Electric Field Control of Fe Nano Magnets

T.K. Yamada, L. Gerhard*, R.J.H. Wesselink*, A. Ernst**, and W. Wulfhekel*

Graduate School of Advanced Integration Science, Chiba Univ., 1-33, Yayoi-Chou, Inage-ku, Chiba 263-8522, Japan

*Physikalisches Institut, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Wolfgang-Gaede-Strasse 1, Karlsruhe 76131, Germany

**Max-Planck-Institut fuer Mikrostrukturphysik, Weinberg 2, Halle 06120, Germany

Controlling metal magnet with electric field opens up a new pathway to fabricate metallic nonvolatile magnetic data-storage devices. Such magnetoelectric coupling has been studied mainly for insulators, e.g. complex multiferroic oxides. Although electric field applying to the bulk metals cannot go inside due to the screening by the conducting electrons, we found that magnetic phase of nano-scale iron metal magnets is able to be controlled by electric field pulses. All experiments were performed by scanning tunneling microscopy (STM) setup in ultra-high vacuum at 4K. Statistic switching of the magnetic phase between ferromagnetic bcc phase and layer-wise antiferromagnetic fcc phase as well as time response of the phase switching by a fast pulse were studied.

Key words: magnetic recording, thin film, magnetoelectric coupling, iron, nano-cluster, scanning tunneling microscopy (STM), nano-magnetism, surface, spintronics

電界による鉄ナノ磁石の磁気相制御

山田豊和・L. Gerhard*, R.J.H. Wesselink*, A. Ernst**, and W. Wulfhekel*

千葉大学 大学院融合科学研究科 ナノサイエンス専攻, 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33 (〒263-8522)

* Physikalisches Institut, Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Wolfgang-Gaede-Strasse 1, Karlsruhe 76131, Germany

** Max-Planck-Institut fuer Mikrostrukturphysik, Weinberg 2, Halle 06120, Germany

1. はじめに

磁石の磁気特性を磁場を使って制御できることは古くより知られ、我々の生活に広く利用されている現象の一つである。最先端技術であるハードディスクの磁気情報の書き込み技術に関しても、この原理を使用してナノ磁石に磁場をかけNS極を制御している。磁場を発生させるためコイルに電流を流すのが常道である。この手法は磁場を発生させると同時に熱を発生してしまい電力消費が生じる。また、磁気ヘッドからの磁場を収束し1nmの精度で特定領域だけに磁場を印加することは困難である。

そこで考えられるのが、磁場でなく電界を用いて磁石の磁気特性を制御する手法である(磁気電気結合)。2003年頃より、このような特性を持つマルチフェロイック酸化物の研究は世界中で活発に行われてきている¹⁻⁴⁾。我々は、もし、これと似たような特性を既に広くエレクトロニクスデバイスに使用されている金属磁石で見つければ、よりデバイス化実現へ近づくと考えた。バルク金属に電界を印加しても、通常電界は伝導電子による遮蔽効果のために金属内部へ侵入できない。しかしナノスケール領域であれば金属であっても電界をかけることができる。近年、金属系薄膜ジャンクションにおいても、電界による磁気特性制御の成功例が報告されてきている^{5,7)}。

図1に本研究の原理図を示す。2つの電極があり、その間に絶縁薄膜と磁性薄膜がある。2つの電極間に電圧を印加すると、電極1と絶縁層の界面に電荷分極が生じる。この電荷が磁性薄膜の正電荷である原子核や負電荷の電子に作用し磁性薄膜の原子位置が僅かに変化する。この結晶相転移と同時に磁気相も変化するれば電界により磁気相が制御できることになる。電界により磁気応答するような磁性薄膜が見つければ、例えば電極1を磁気ヘッドとすれ

ば磁気情報の書き込み・記憶に利用できるであろうし、また2つの電極間の伝導測定の際の電界による依存性を測定すれば、不揮発メモリーにもなる。

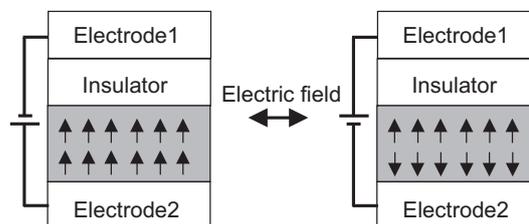


Fig. 1 Control of magnetic phase with electric field pulses. Magnetic ultra-thin films with a thickness of ~nm can be possible to be applied electric field inside. Arrows indicate magnetic moments.

このようなナノスケールでの現象を高精度で直接観察するために、走査トンネル顕微鏡を使用した。図2にその原理図を示す。2つの電極間に絶縁薄膜と磁性薄膜を含んだジャンクションは、実はSTM測定配置と等価であることが分かる。電極1がSTM探針

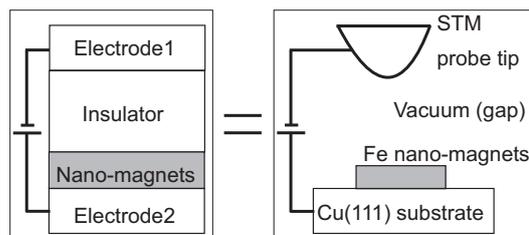


Fig. 2 Equivalency between planer thin film junction and STM junction. Physical phenomenon in STM junction is also found in planer junction, i.e., STM junction is comparable to TMR (tunnel magneto resistance) junction.

となり、電極 2 が非磁性金属基板となる。絶縁薄膜は真空ギャップ(0.5-1.0nm)となり、磁性薄膜は基板上に真空蒸着した磁性薄膜または磁性ナノ粒子となる。

本研究では、電極 1 として非磁性W探針および磁性 Fe/W 探針を使用した。銅単結晶基板上に鉄ナノ磁石(厚さ 2 原子層、大きさ約 10nm)を成長させ、探針から電界を印加した。その結果、bcc 強磁性相と fcc 反強磁性相間への相転移を電界パルスを用いて制御できることを確認した。電界による磁気相の制御は原子構造の変位も伴う相転移である。磁気相のエネルギー分布を統計的測定より確認し計算予測と一致した。相転移の強い極性依存性を確認した。電界の極性による選択的磁気相転移制御が可能であることが分かった。高速電界パルスによる磁気相制御を試みた。STM 機構の制約の中で 60 μ 秒幅の電界パルスで磁気相をスイッチできた。

電界を用いた磁気相制御による新たな高速・不揮発・金属磁気情報記憶デバイス創成への可能性を探った。

2. 実験手法

原子スケールで鉄ナノ磁石を観察しながら相転移を高精度で確認でき、また電界を 1nm の精度で局所的に印加できる手法として走査トンネル顕微鏡 (STM) を使用した。W探針は大気中でW線を電界エッチし作成した後、超高真空チェンバー内で Ar+スパッタと加熱 (約 2000K) を行い清浄にした。基板は、市販の銅単結晶(111)を超高真空中で Ar+スパッタと加熱 (約 800K) を繰り返し清浄化した。鉄ナノ磁石は、超高真空中で鉄を 0.2 原子層分、室温で Cu(111)基板上に蒸着し作成した。これらを、真空を破ることなく準備チェンバーから STM チェンバーへ輸送し、STM にセットし測定を行った。

ナノスケールの微小な物性を探る際に、最も気をつけなくてはならないのが不純物の影響である。試料と探針の作成および測定は、すべて超高真空中(10¹⁰ mbar から 10¹¹ mbar)で終始行われた。また STM 測定は 4K で行った。測定試料表面上の酸素・炭素・水素等の不純物濃度は 0.1%以下であった。1000 個の銅原子に対して不純物原子は約 1 個であった。鉄ナノ磁石上の原子像から鉄ナノ磁石上では不純物は一切観察されなかった。

STM 探針から電界を試料へ印加する。STM 探針と試料との距離は通常 0.5nm から 1.0nm 程度である。1.0nm の場合で、探針 (電極 1) と試料基板(電極 2)間に 1.0V 印加すれば、試料のナノ磁石には 10⁹ V/m の強い電界を印加できる。また STM では探針位置をピエゾ素子を用いてピコメーター(10⁻¹²m)の精度で制御できる。このため、電界を 10nm のナノ磁石上の任意の場所の任意の領域に印加することができる。

3. 結果と考察

銅単結晶(111)基板上に作成した鉄ナノ磁石 (厚さ 2 原子層、大きさ約 10nm) は、銅の fcc(111)の対称性に従い三角形となる。このナノ磁石中は bcc 強磁性相と fcc 反強磁性相の 2 つの相が 1 つのナノ磁石中の同時に共存できる特徴があり、STM 像では 2 つの相を高さの差(約 30pm)として確認できる⁸⁾。一例を図 3 に示す。三



Fig. 3 STM topographic image of Fe nano magnets with a size of about 10-20 nm and a thickness of two atomic layers, which were grown on Cu(111) substrate in UHV.

角形の島に見えているのが鉄ナノ磁石である。島中で低く暗く見えている領域が fcc 反強磁性相、高く明るく見えている領域が bcc 強磁性相である。

図 4 に 1 つの島中の場所によるエネルギー分布図を示す。1 つの島に 2 つの磁気相が共存するという事は、2 つのエネルギー極小があるということである。つまり、bcc 強磁性相と fcc 反強磁性相である。第一原理計算より fcc と bcc 領域での相間バリアの高さは約 160 meV である。しかし、fcc-bcc 境界では、図 4 に示すようにバリアが低くなっていることが予測できる。実際、境界では相転移が低い電界でも起こりやすいことを経験的に感じている。しかし、境界部分の磁性の振舞いの理解は複雑であることが予想されるため、本研究では境界部分は使用しない。

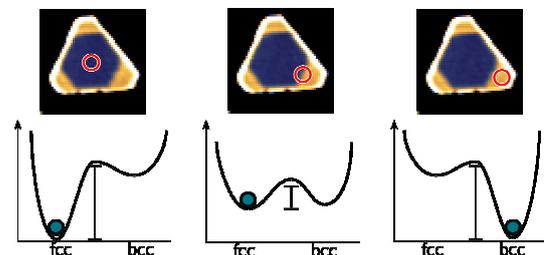


Fig. 4 Energy diagrams at fcc (left), boundary (center), bcc (right) areas in Fe nano island.

この 2 つの磁気相は、電界を用いて相転移できる。電界パルス (10⁹ V/m) を鉄ナノ島に印加した一例を図 5 に示す。この島の中央×印の位置に STM 探針を移動し、負の電界パルスを印加した。印加後、同じ島を確認すると図 5 のように島中央部が明るく見えていることが分かる。つまり、fcc 反強磁性相が bcc 強磁性相に相転移したのである。図 1 でしめした現象が実現できた。探針と鉄ナノ磁石間の距離を調整することで電界をかける範囲を選択できる。島全体に強い電界をかければ島全体を相転移できた。また、電界を絞り最小 1nm² の領域だけを選択的に相転移することもできた。

電界による磁気特性制御は、磁界を用いて磁化を制御する現象と異なる点がある。磁界を鉄などの軟磁性体に印加した場合、原子位置 (結晶構造) は変わらず磁化の向きだけが変化する。しか

し、電界を用いた磁気電気結合に伴う磁気特性の変化は、原子位置の変化を伴う。格子定数の約数%・10%にも及ぶ。また、電界により磁気特性が変化するかどうかは、bcc 強磁性相と fcc 反強磁性相間の相転移バリアを超える確率による。計算より、電界が無い場合、鉄ナノ磁石内の bcc 強磁性相と fcc 反強磁性相間の相転移バリアの大きさは約 160 meV である。このバリアが電界を印加した際に大きく減衰することが第一原理計算より示された (図 6)。正電界の場合、bcc→fcc へのバリア高さは 30 meV、fcc→bcc は 60 meV。負電界の場合、bcc→fcc へのバリア高さは 100 meV 以上 (変化小さい)、bcc→fcc は 0 meV。つまり、計算は、正・負電界それぞれでバリアの高さが bcc→fcc、fcc→bcc で異なることを示唆した。この予測が正しければ極性を利用して選択的に相転移をコントロールできるはずである。計算予測を実証するために統計的に計測を行った。

図 6 に計算による各相のエネルギー曲線と統計実験の結果を示す。図 6(a-c) は正電界をかけた場合の結果である。Bcc 強磁性相の領域に電界パルスを印加し、fcc 反強磁性相

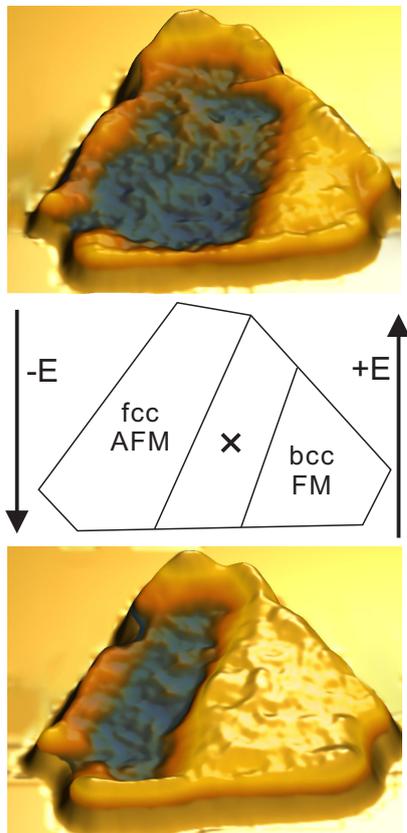


Fig. 5 Phase switches by applying electric field pulses to the Fe nano island. Electric field pulses of 1 GV/m were applied at the center of the island (x).

へ相転移するかを試みた(図 6(b)). すると 40 回中 38 回相転移に成功した。逆に、fcc 反強磁性相から bcc 強磁性相への相転移は 24 回試みて 2 回しか成功しなかった(図 6(c)). この結果は、計算による相転移バリアの高さが bcc→fcc の場合の方が 30 meV だけ低いという予測と一致する。相転移の成功

は、確率 ($\propto \exp(-\Delta E/kT)$) に依る (ΔE : 相転移バリア高さ、 k : ボルツマン定数、 T : 温度)。温度が高く、 ΔE が低ければ相転移確率は増す⁹⁾。

さらに負電界をかけた場合の実験結果を図 6(d-f) に示す。計算予測では fcc→bcc の相転移しか起きないと予測される。実験の結果、bcc→fcc への相転移は 25 回試みて一度も成功しなかった(図 6(e)). 反対に、fcc→bcc への相転移は 24 回中 22 回とほぼ確実に成功した(図 6(f)).

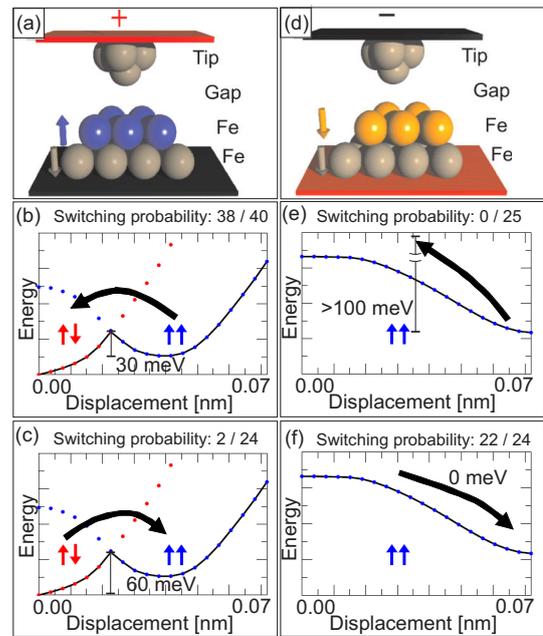


Fig. 6 Energy diagrams and statistic measurements of electric field driven phase switches between bcc ferromagnetic phase and fcc antiferromagnetic phase. Positive and negative electric field cases are shown in (a-c) and (d-f). Arrows indicate spin coupling between Fe layers. (b,c,e,f) show cross sections of the energy diagram as a function of in-plane atomic displacement between Fe layers.

図 6 の結果より、鉄ナノ磁石中の磁気相転移は、極めて強い極性依存性を有することが統計実験で確認できた。正電界下では fcc 反強磁性相が安定で、負電界下では bcc 強磁性相が安定であることが分かった。このことは、選択的に磁気相の制御が可能であることを意味する。

鉄ナノ磁石の 2 つの磁気相が高速電界パルスを印加した際に正しくスイッチするかどうかは、デバイスの高速化への応用と基礎的な物性の観点から非常に興味深い。図 5 および図 6 の実験では、数秒程度の長い電界パルスを用いて実験を行った。長いパルスを印加すればそれだけ相転移する確率は高くなる。時間幅の短いパルスを、STM 機構を用いて作成し相転移を制御できるか試みた。

時間応答の実験を行うのに STM は最適な手法ではない。例えば図 3 の像を一枚撮るのに数分を要し、電界パルスの印加時間は数秒といった比較的遅い時間スケールで STM 測定は通常行われる。STM では探針と試料間に流れるトンネル電流量(pA から nA)を検

出して測定を行う。トンネル電流が一定となるようにフィードバックループを通してピエゾ素子に電圧をかけ探針位置を制御する。フィードバックループ周波数は約1kHz前後であり、検出したpAからnAの電流を増幅するI-Vコンバーターのバンド幅は7kHzである。高速の電界パルスを印加した際の相転移の時間軸に対する振る舞いをスナップショットのように撮影することはできない。現状では、STM探針1つを用いて電界パルス印加と表面形状測定の双方を行う。上記の制約から我々のSTM機構を用いて作ることでできた短電界パルス幅は60 μ s秒であった。

図7(a)は作成した60 μ s秒幅の電界パルスである。これをbcc強磁性相の領域に印加し、fcc強磁性相に相転移するか確認した。電界を印加する際はフィードバックループをOFF(=探針試料間距離を固定)にした。電界印加後、I-Vコンバーターが安定する時間(7ms)にフィードバックループがONとなり、相転移が生じていれば探針位置が下がるはずである。図7(b)の結果から明らかにフィードバックループがONになってすぐに下がり始めていることが分かる。このことから、相転移は60 μ s秒の電界パルスで時間応答することが確認できた。より短い電界パルスでも相転移は可能であると考えられるが、そのためにはSTM機構とは別のセットアップが必要であり、今後のさらなる高速応答実験を試みたい。

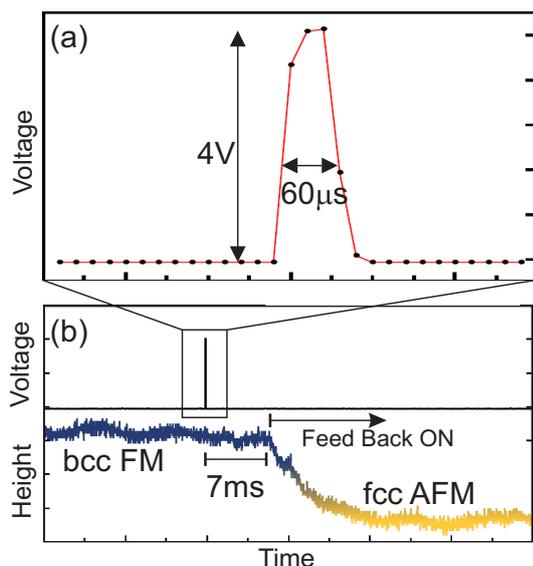


Fig. 7 (a) Electric field pulse with a width of 60 μ s seconds generated by STM setup. (b) Phase switching by applying the short electric field in (a).

4. まとめ

本研究で我々は、W探針(電極1)/真空ギャップ(0.5-1nm)/鉄ナノ磁石(厚さ0.4nm、大きさ10-20nm)/Cu(111)基板(電極2)のジャンクションをSTMを用いて形成し、電界パルスによる鉄ナノ磁石の磁気相制御を行った。統計実験より鉄ナノ磁石中の磁気相は、正電界ではfcc反強磁性相、負電界ではbcc強磁性相が安定となり、非常に強い極性依存性を有することが確認できた。STM機構を用

いて作成した60 μ s秒の短電界パルスでも相転移することを確認した。本研究が電界による新たな磁気特性制御デバイス開発研究へ繋がることを強く期待する。

謝辞 本研究は Alexander von Humboldt 財団研究助成、CNCSIS-UEFISCSU、DFG(SFB762)、DFG(WU349/8-1) 科研費(22810005 及び 23681018)、畠山文化財団、池谷科学技術振興財団、小澤・吉川記念エレクトロニクス研究助成基金、中部電気利用基礎研究振興財団、中島記念国際交流財団、双葉電子記念財団の支援により行った。論文添削を補助頂いた山岸祐平氏に感謝する。

References

- 1) T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima and Y. Tokura: *Nature*, **426**, 55 (2003).
- 2) Thomas Lottermoser, Thomas Lonkai, Uwe Amann, Dietmar Hohlwein, Jörg Ihlinger and Manfred Fiebig: *Nature*, **430**, 541 (2004).
- 3) H. Zheng, J. Wang, S. E. Lofland, Z. Ma, L. Mohaddes-Ardabili, T. Zhao, L. Salamanca-Riba, S. R. Shinde, S. B. Ogale, F. Bai, D. Viehland, Y. Jia, D. G. Schlom, M. Wuttig, A. Roytburd, and R. Ramesh: *Science*, **303**, 661 (2004).
- 4) F. Zavaliche, H. Zheng, L. Mohaddes-Ardabili, S. Y. Yang, Q. Zhan, P. Shafer, E. Reilly, R. Chopdekar, Y. Jia, P. Wright, D. G. Schlom, Y. Suzuki, and R. Ramesh: *Nano Lett.*, **5**, 1793 (2005).
- 5) T. Maruyama, Y. Shiota, T. Nozaki, K. Ohta, N. Toda, M. Mizuguchi, A. A. Tulapurkar, T. Shinjo, M. Shiraishi, S. Mizukami, Y. Ando and Y. Suzuki: *Nat. Nanotech.*, **4**, 158 (2009).
- 6) D. Chiba, S. Fukami, K. Shimamura, N. Ishiwata, K. Kobayashi and T. Ono: *Nat. Mater.*, **10**, 853 (2011).
- 7) M. Weisheit, S. Faehler, A. Marty, Y. Souche, C. Poinsignon and D. Givord, *Science*, **315**, 349 (2007).
- 8) L. Gerhard, T. K. Yamada, T. Balashov, A. F. Takács, R. J. H. Wesselink, M. Däne, M. Fechner, S. Ostanin, A. Ernst, I. Mertig and W. Wulfhekel: *Nat. Nanotech.*, **5**, 792 (2010).
- 9) L. Gerhard, T. K. Yamada and W. Wulfhekel: *in preparation*.

2011年10月31日受理, 2012年1月5日採録