

## 希土類鉄ガーネットの傾斜歪み構造において誘電分極と磁化の共存を実現 ～宝石を磁気と電気メモリ材料へ変身させる～

### 1. 発表者：

- 山原 弘靖（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 助教）  
フウ ビン（Bin Feng）（東京大学 大学院工学系研究科附属総合研究機構 特任准教授）  
関 宗俊（東京大学 大学院工学系研究科附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 准教授）  
足立 真輝（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 修士課程2年：研究当時）  
Md Shamim Sarker（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 博士課程2年）  
武田 崇仁（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 博士課程2年）  
小林 正起（東京大学 大学院工学系研究科附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 准教授）  
石川 亮（東京大学 大学院工学系研究科附属総合研究機構 特任准教授）  
幾原 雄一（東京大学 大学院工学系研究科附属総合研究機構 教授）  
長 康雄（東北大学 電気通信研究所 教授）  
田畑 仁（東京大学 大学院工学系研究科バイオエンジニアリング専攻/電気系工学専攻 教授）

### 2. 発表のポイント：

- ◆宝石として知られているガーネット材料に、薄膜作製技術を駆使してナノスケールの傾斜格子歪みを導入し、電気分極と磁気分極を共存させることに成功しました。
- ◆結晶構造対称性の制約により、電気分極は残留しないとされていた希土類鉄ガーネットに傾斜格子歪みというナノスケールで不均一な格子歪み分布を発生させることで、フレクソエレクトリック効果による分極が生じることを明らかにしました。
- ◆磁気と電気分極が共存し、従来のメモリ容量（ $2^n$ ）から $4^n$ の記憶増大が可能になります。さらに記憶保持電源が不要でエレクトロニクス機器の消費電力の大幅低減が実現します。

### 3. 発表概要：

東京大学大学院工学系研究科の山原弘靖助教、関宗俊准教授、小林正起准教授、田畑仁教授のグループは、東京大学総合研究機構のFeng Bin 特任准教授、石川亮特任准教授、幾原雄一教授のグループ、東北大学電気通信研究所の長康雄教授と共同で、ナノスケールの傾斜歪みを有する希土類鉄ガーネット薄膜の作製に成功し、誘電分極と磁化の共存を観測しました。希土類鉄ガーネットの一般的な性質はフェリ磁性絶縁体（常誘電体）であり、優れた磁気特性を示す一方、自然界では結晶構造が中心対称性をもつ立方晶であるため、通常は残留分極を生じ得ません。本研究ではパルスレーザー堆積法による単結晶薄膜成長において、基板と薄膜の格子不整合を利用することで、転位が発生する臨界膜厚付近に15 nmにわたって傾斜歪み構造を形成することに成功しました。この傾斜歪み構造において、フレクソエレクトリック効果による誘電分極が発生し、さらに保磁場が増大することを見出しました。本研究により、不均一な歪み分布を形成することで新たな物質特性を発現させることが可能となり、将来の不揮発性メモリやスピントロニクスデバイス等への応用が期待されます。

#### 4. 発表内容：

希土類鉄ガーネットと呼ばれる物質群は宝石の柘榴石と同じ結晶構造を有し、化学式は  $R_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  ( $R$ は希土類元素) で表されます。その一般的な性質はフェリ磁性絶縁体(注1)です。磁気特性は巨大な磁気光学効果(注2)を示すことから、光通信に不可欠な部品である光アイソレータに使用されており実用化されています。さらに近年、スピン波と呼ばれる電荷の移動を伴わない磁気モーメントの伝搬について非常に小さい減衰係数を有することから、超低消費エネルギー情報伝達媒体への応用に向けた精力的な研究が為されています。一方、電気特性については絶縁体(常誘電体)であり、結晶構造が中心対称性をもつ立方晶(注3)です。32種類存在する結晶点群のうち、10種類のみが残留分極を発生させることができますが、希土類鉄ガーネットは結晶構造の対称性の制約のため残留分極を生じ得ません。もし磁化と残留分極が共存する物質を作ることができれば、多機能な情報記憶材料として応用が期待されます。そこで本研究グループはフレクソエレクトリック効果に注目しました。フレクソエレクトリック効果は誘電体において不均一な歪み分布である傾斜歪みによって誘電分極が発生する現象です。巨視的には誘電体試料を曲げることや、非対称な応力を加えることにより、分極が発生することが知られています。傾斜歪みの大きさは長さの逆数に比例するため、ナノスケールの微細な格子歪みによって効果が顕著に表れることが期待されます。

本研究ではパルスレーザー堆積法(注4)による単結晶薄膜成長において、基板と薄膜の格子不整合を利用することで、ナノスケールの傾斜歪み構造の作製に成功しました。基板と薄膜にはそれぞれガーネット構造のガドリウムガリウムガーネット( $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ , GGG)とサマリウム鉄ガーネット( $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , SmIG)を選択しました。この組み合わせでは1.2%の格子不整合が存在し、転位が発生する臨界膜厚は60 nmと見積もられます。結晶構造解析の結果、臨界膜厚以下の膜厚では均一に格子歪みを受けた正方晶となり、膜厚が十分に厚い層では格子緩和した立方晶が存在することがわかりました。さらに原子分解能を有する走査型透過電子顕微鏡によって、臨界膜厚付近の正方晶と立方晶の境では15 nmの厚みにわたって、面直の格子定数は一定である一方、面内の格子定数が膜厚とともに増加する傾斜歪みが存在することが明らかになりました(図1)。非線形誘電率顕微鏡(注5)によってこの傾斜歪み構造を調べた結果、平均径約30 nmの負に分極したナノドメインの存在が観察されました。このナノドメインは均一に歪んだ正方晶や格子緩和した立方晶の層では見られず、フレクソエレクトリック効果による分極発現だと考えられます。さらにX線磁気円二色性分光(注6)によって、正方晶、傾斜歪み、立方晶の各層の磁気特性を調べました。各層はそれぞれ磁気ヒステリシスを示しましたが、正方晶、立方晶の層では保磁場が0.02 Tであったのに対して、傾斜歪み層では0.11 Tという非常に大きい保磁場を示すことが明らかとなりました。これは格子欠陥の存在が磁気ドメインのピニングサイトとして働くことによると考えられます。傾斜歪み層から見積もられる磁気モーメントは $0.98 \mu_B/\text{Fe}$ となり、サマリウム鉄ガーネットの理論値( $5 \mu_B/\text{f.u.}$ )に近い値を示しています。

以上の結果、希土類鉄ガーネットの傾斜歪み構造において磁化と残留分極が共存することを見出しました。磁化と残留分極の共存は、これまでにマルチフェロイクス材料(注7)でも報告されてきましたが、その多くは100 K以下の極低温での現象でした。本研究では室温でも動作可能な新機能材料として応用が期待されます。また、不均一な結晶歪みによって新たな物質機能を創り出す試みは今回ターゲットとした希土類鉄ガーネットに限定されることなく、新機能材料の創成に新たな道を開くことができると期待されます。

## 5. 発表雑誌：

雑誌名：「Communications Materials」(Nature Portfolio Paper)

論文タイトル：Flexoelectric Nanodomains in Rare-Earth Iron Garnet Thin Films under Strain Gradient

著者：Hiroyasu Yamahara\*, Bin Feng, Munetoshi Seki, Masaki Adachi, Md Shamim Sarker, Takahito Takeda, Masaki Kobayashi, Ryo Ishikawa, Yuichi Ikuhara, Yasuo Cho, Hitoshi Tabata

DOI 番号：10.1038/s43246-021-00199-y

アブストラクト URL：<https://doi.org/10.1038/s43246-021-00199-y>

本論文は、イギリス時間9月16日（木）にオンライン掲載されました。

## 6. 問い合わせ先：

東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻  
助教 山原 弘靖（やまはら ひろやす）

## 7. 用語解説：

（注1）フェリ磁性：結晶中に逆方向のスピンを持つ2種類の磁性イオンが存在し、互いの磁化の大きさが異なるために全体として磁化をもつ磁性のこと。

（注2）磁気光学効果：磁場をかけた物質の透過光や反射光の偏光状態が変化する現象

（注3）立方晶：結晶の単位格子が立方体となる結晶系。立方晶を1つの格子ベクトルに向けて伸ばすと正方晶になる。

（注4）パルスレーザー堆積法：物理気相蒸着法の一つであり、真空チャンバ内に設置した原料ターゲットにレーザー光を照射することで、ターゲットから原子の引きはがし（アブレーション）を行い、対向する基板に薄膜を成膜する方法。

（注5）非線形誘電率顕微鏡：走査型プローブ顕微鏡の一つであり、非線形誘電率の空間分布を測定する。

（注6）X線磁気円二色性分光：円偏光させたX線の吸収スペクトルが試料の磁化方向に依存して異なる現象。

（注7）マルチフェロイクス材料：強誘電性、強磁性、強弾性といった性質を複数有する物質。

### 【参考】 読者コメント から抜粋

“The authors (中略) suggest the use of strain-gradients to induce so-called flexoelectric (dielectric) polarizations in magnetic materials as a pathway to creating future room temperature multiferroics.”

8. 添付資料：

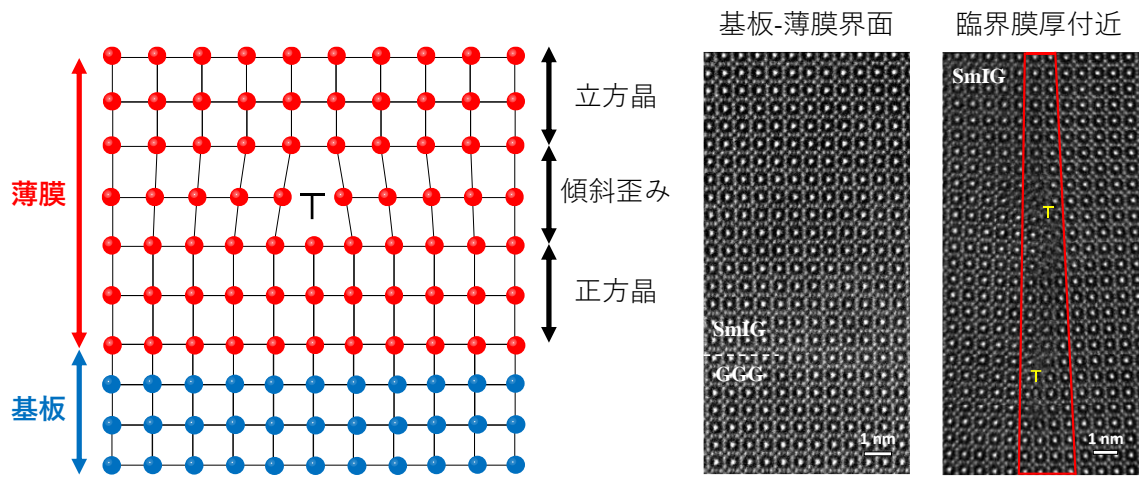


図1. 立方晶、傾斜歪み、正方晶の概略図と走査型透過電子顕微鏡による観察画像。基板-薄膜の界面付近では均一に格子が歪んだ正方晶が見られ、臨界膜厚の転位付近では傾斜歪みが見られる。