

Fe(110) ウィスカ単結晶上 Ni 超薄膜の bcc-fcc 構造

川崎 巧、山田 豊和
(千葉大院融合)

Bcc-fcc structures in ultrathin Ni films on Fe(110)

Takumi Kawasaki, Toyo Kazu Yamada
(Chiba Univ.)

磁性金属の bcc-fcc 相転移では、結晶構造の変化が磁気構造に直接影響する。特に電界によりこのような相転移（磁気電気結合）が制御できれば、新たな電界制御型磁気デバイスの創成につながる。

本研究で我々は bcc-Fe(110)/fcc-Ni(111) 界面での結晶・電子構造、および電界による相転移制御を探った。自作した極低温・超高真空・走査トンネル顕微鏡 (STM) 装置を使用した。試料および探針の作成および清浄化・平坦化は準備槽で行い、超高真空を破ることなく解析槽に移動し STM 測定を行った。低速電子線回折 (LEED) は準備槽にある。また、STM 本体はクライオスタットに接続されている。STM 測定は 7K および 300K で行った。

平坦かつ不純物の少ない bcc-Fe(110) 基板を得るためにウィスカ単結晶を化学気相成長させた。長軸方向が $\langle 111 \rangle$ であり側面に 6 つの (110) 面を持つ。超高真空内に導入しアルゴンスパッタを 870K に加熱しながら行うことで平坦・清浄な Fe(110) 表面を得た。準備槽で Fe(110) 上に Ni を 0.5~3.0 MLs 室温で蒸着した。LEED および STM 観察結果から、Ni 薄膜は Stranski-Krastanov 成長することが分かった。1 層目の膜成長過程ではランダムな形状の島が観察されたが、2 層目以降は鉄基板の $\langle 111 \rangle$ 方向に沿って島が成長した。1 層目の表面で、長さ・間隔が不規則な縞模様が観察された。縞模様は特定の 2 方向に沿っていた ($\langle 111 \rangle$ より 10 度ずれ)。1 層目の原子像から縞模様上の Ni 原子の 2 次元構造は fcc (111) 面と同じ六回対称性であった。同じ層内で六回対称性でない領域では格子に歪みが存在した。このように 1 層目は縞模様の領域と格子歪み領域に分けられ、それらの高低差は 15pm 程であった。縞模様領域 (fcc) と歪領域 (bcc-like) で STM 分光測定を行い、電子状態密度に明らかな違いが見られた。同じ Ni 原子層内であっても原子構造の違いが局所電子状態に大きく影響していた。

さらに、この Ni 単原子膜に探針から強い電界を印加した。高電界を印加しながらスキャンした領域では縞模様が消え、構造的な相転移が観察された。スキャン前後で歪領域の高さが変わり、縞模様領域の高さと一致した。つまり、歪領域の原子配列が fcc (111) 構造へと相転移して、スキャンが行われた全ての領域が一様な高さとなり縞模様が消えた。この結果から、鉄基板上の Ni 薄膜の 1 層目に強い電界を印加することで、構造的な bcc-fcc 相転移が起きることが判明した。

室温・単一有機分子磁気接合の創成

山田 豊和¹, 山岸 祐平¹, 北岡幸恵², 中村浩次²
(千葉大院融合¹, 三重大工²)

Engineering of 300 K single organic molecular magnetic junction
Toyo Kazu Yamada¹, Yuhei Yamagishi¹, Yukie Kitaoka², Kohji Nakamura²
(Chiba Univ.¹, Mie Univ.²)

単一分子の π 電子と磁性金属の3d電子スピン状態の混成の理解と制御は新たなナノ分子磁気デバイスの発展に必要不可欠である^{1), 2), 3), 4)}。単一分子に関する研究は主として極低温環境下で行われてきた。温度を上げると単一分子が熱拡散するためである。しかし、これでは実用的なデバイスとならない。

我々は、室温でも壊れることない単一分子磁気接合を実現するため、理論計算による推測と走査トンネル顕微鏡 (STM) 実験による実証を組み合わせ研究を行ってきた。種々の素材の中で本研究では Fe(001) 基板に注目した。計算より、室温で有機分子の熱拡散が確認されている Ag(001) 基板に比べ、分子の吸着エネルギー及び拡散障壁が4倍以上の高いと分かったからである。

単一有機分子が室温でも熱拡散せずに安定な接合を作成するかを実証するために、本研究では走査トンネル顕微鏡 (STM) を使用した。試料作製および全ての測定は超高真空中、300Kで行った。単一有機分子として π 電子系・メタルフリーのフタロシアニン分子 (H2Pc) を使用した。昇華精製した分子を坩堝にいれ超高真空中で基板に吸着した。原子レベルで平坦かつ不純物が1%以下の Fe(001) 基板を作成するためにウィスカ単結晶を化学気相成長させた。超高真空中、870Kでアルゴンスパッタを行うことで清浄かつ平坦な基板表面を得た。原子像から結晶方向を確認した。0.2分子膜分を Fe(001) に室温で吸着し STM 観察した。室温であっても単一分子として確認できた。STM 連続観察を行い分子は熱拡散しないことを確認した。さらに STM 探針によるマニピュレーションを試みたが成功しなかった。非常に強く基板に結合していることを確認した。⁵⁾

Fe(001)-H2Pc 間の強結合は、基板の3d軌道と分子の π 軌道の重なりに起因する。STM 分光法による dI/dV 曲線測定およびトンネル確率関数規格化法を用いて、Fe(001) 基板上の単一有機分子の電子状態密度の再現に成功した。メタルフリーにもかかわらず分子の中心近傍が強く基板と相互作用する。フェルミ準位近傍に4つの電子状態ピークを確認した。理論計算はこの4つのピークを再現し、磁性金属分子界面での電子結合のメカニズムを解明した。少数スピン状態側では鉄3d軌道とLUMOが相互作用しフリー状態よりエネルギー位置はシフトするが、多数スピン状態側では相互作用しないためピーク位置はフリー状態と同じになる。高スピン偏極した3dとLUMO(またはHOMO)がうまく重なるような分子と基板を選択すれば、人工的にスピン分極させハーフメタルのような界面形成も可能となる。

参考文献

- 1) Y. Yamagishi, S. Nakashima, K. Oiso and T. K. Yamada, Nanotechnology, 24 巻, pp.395704, 2013 年.
- 2) A. Bagrets, S. Schmaus, T.K. Yamada, W. Wulfhekel, et al., Nano Letters, 12 巻, pp.5131, 2012 年.
- 3) T. Miyamachi, T.K. Yamada, W. Wulfhekel, et al. Nature Communications, 3 巻, pp.938, 2012 年.
- 4) S. Schmaus, T.K. Yamada, W. Wulfhekel, et al., Nature Nanotechnology, 6 巻, pp.185, 2011 年..
- 5) T.K. Yamada, Y. Yamagishi, Y. Kitaoka, and K. Nakamura, submitted.

原子層スケールでみたグラフェン/ニッケル界面の電子スピン状態

境 誠司*, 松本吉弘***, 圓谷志郎*, 檜本 洋*, 小出明広***, 藤川高志***, 山内 泰****, 雨宮健太*****
 (*原子力機構先端セ, **総合科学機構, ***千葉大院融合科学, ****物材機構, *****高エネ研物構研)

Electronic spin states of graphene/nickel interface investigated at atomic-layer scale

S. Sakai, Y. Matsumoto, S. Entani, H. Naramoto, A. Koide, T. Fujikawa, Y. Yamauchi, K. Amemiya
 (JAEA, CROSS, Chiba Univ., NIMS, KEK)

はじめに

グラフェンは、スピンデバイスの高度化を拓く長距離スピン輸送材料や分子性材料をスピントロニクスに用いるためのベース材料として注目されている。グラフェン基デバイスの研究では、グラフェンへのスピン流の導入やグラフェン内のスピン流の操作を効率的に行うスピン流制御技術の実現が課題である。グラフェンのスピン輸送材料としての利点であるスピン軌道相互作用の小ささや強い磁性を示さないことは、同時にスピン流の制御には工夫が必要であることを意味する。グラフェンでは全原子が表面(界面)に曝されることから、効率的スピン流制御の実現にはグラフェンと磁性材料等との界面スピン物性の活用が鍵になるであろう。

本研究では、界面スピン物性の活用に向けた基盤的知見を得るため、グラフェン基デバイスの基本構造であるグラフェン/磁性金属界面の電子スピン状態を、原子層スケールの深さ分解能を有する深さ分解 X 線磁気円二色性(XMCD)分光[1]と三重項励起状態のスピン偏極 He 原子が物質最表面と相互作用して生じるスピン選択的脱励起過程を利用した表面スピン検出法(スピン偏極準安定脱励起分光法, SPMDS)[2]を用いて調べた。

実験方法

超高真空中で 600°C に保持した単結晶状の Ni(111) 薄膜(厚さ: 30 nm)にベンゼンガス(前駆体)を曝露して、厚さが一原子層のグラフェン(単層グラフェン, SLG)が Ni(111) 表面を完全に被覆するようにエピタキシャル成長した SLG/Ni(111) 薄膜の試料を作製した。深さ分解 XMCD 分光及び SPMDS の測定は、作製した試料を超高真空中に保持したまま行った。

実験結果

深さ分解 XMCD 分光[3]の結果、SLG/Ni(111) 界面から数原子層の領域で、Ni 薄膜の容易磁化方向が面内から面直方向に変化することが明らかになった(Fig.1)。また、界面の Ni 原子の磁気モーメントは結晶内部より 20% ほど減少した。一方、SLG は、界面の Ni 原子層との相互作用により伝導に関与する π バンドの電子状態が変化し交換結合が生じること、スピン軌道相互作用の増大が生じることが分かった。さらに SPMDS の結果[4]、SLG はフェルミレベルにおいて Ni と逆符号のスピン偏極を持つことも明らかになった。本研究で明らかになった磁性金属との界面に特有な電子スピン状態は、磁性電極からのスピン注入効率やナノ構造磁性体の磁気異方性に影響を及ぼすことが考えられ、グラフェン基デバイスの特性制御や機能設計への活用が期待される。

参考文献

- 1) K. Amemiya, Phys. Chem. Chem. Phys. **14**, 10477 (2012).
- 2) Y. Yamauchi *et al.*, Appl. Surf. Sci. **169-170**, 236 (2001).
- 3) Y. Matsumoto *et al.*, J. Mater. Chem. C **1**, 5533 (2013).
- 4) S. Entani *et al.*, Carbon **61**, 134 (2013).

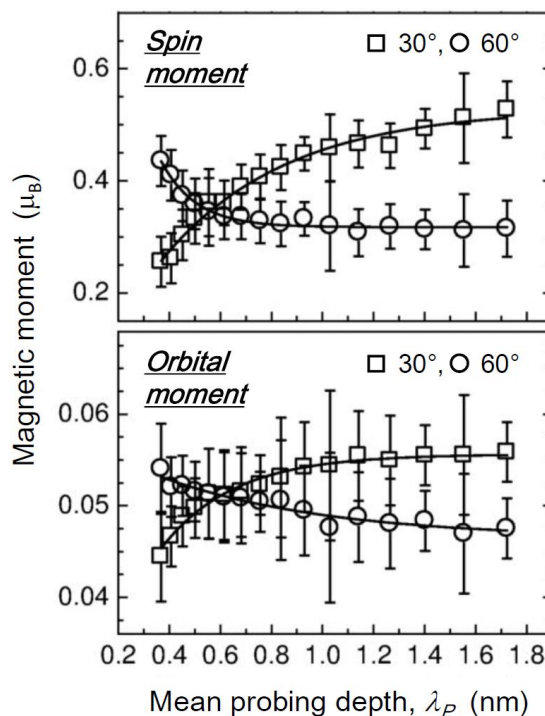


Fig.1 Mean probing depth, λ_p , dependences of the effective spin and orbital magnetic moments in the directions of 30° and 60° to the sample surface Preferable orientations of the moments change from in-plane to out-of-plane as can be deduced from the relative magnitude change in the region of a few Ni atomic layers from the interface ($\lambda_p < 1$ nm).

FeAl 合金における磁気特性の照射レーザー波長依存性

吉田裕***、渡辺精一**、海住英生***、西井準治***、吉見享祐****

(*北大創成、**北大工エネマテ、***北大電子研、****東北大工)

Irradiated laser wavelength dependence on magnetic properties of an FeAl alloy

Y. Yoshida***, S. Watanabe**, H. Kaiju***, J. Nishii*** and K. Yoshimi****

(*Hokkaido Univ. CRIS, **Hokkaido Univ. CAREM, ***Hokkaido Univ. RIES, ****Tohoku Univ.)

はじめに

最近、我々は $\text{Fe}_{52}\text{Al}_{48}$ 合金表面にナノ秒パルスレーザーを照射すると、その表面形態がストライプ構造に変化すると同時に、磁気相が常磁性から強磁性に転移することを明らかにした[1]。さらに、このストライプ構造 FeAl 合金の磁気特性をより詳細に調べた結果、磁化反転機構が磁壁移動モデルで説明できることを明らかにした[2]。本研究では、ナノ秒パルスレーザー照射したストライプ構造 FeAl 合金において、その磁気特性の照射レーザー波長依存性を調べることを目的とした。

実験方法

$\text{Fe}_{52}\text{Al}_{48}$ 合金表面へのナノ秒パルスレーザー照射には Nd:YAG パルスレーザーを用いた。パルス幅は 6 ns、繰り返しパルス周波数は 2 Hz、パルス数は 200-300 パルス、平均レーザーエネルギー密度は 1.24 kJ/m^2 、波長は 355, 532 nm とした。表面ナノ構造解析には走査型電子顕微鏡(SEM)、電子後方散乱回折(EBSD)、原子間力顕微鏡(AFM)を用いた。磁気特性評価には集光型面内磁気光学カー効果(MOKE)法を用いた。最大印加磁場は 2 kOe、面内印加磁場回転角は $0-90^\circ$ 、観測スポットサイズ径は $3 \mu\text{m}$ 、測定温度は室温とした。

実験結果

図 1 にストライプ構造 FeAl 合金の表面磁化曲線を示す。図 1(a) 及び(b)はそれぞれレーザー波長 532, 355 nm で照射したときの結果である。ここで、磁場回転角 θ はストライプの長手方向と磁場のなす角度と定義した。図 1(a)より $\theta=2.3^\circ$ では保磁力が 57 Oe であることにに対し、 $\theta=73^\circ$ では保磁力が 190 Oe となりやや増大する。図 1(b)より $\theta=8.4^\circ$ では保磁力 93 Oe であることにに対し、 $\theta=67^\circ$ では保磁力が 572 Oe となり大きく増大する。図 2 に保磁力の面内磁場回転角依存性を示す。実線と点線は磁壁移動モデルによる計算結果である。図 2 より、保磁力の磁場回転角依存性は磁壁移動モデルによる計算結果と良い一致を示すことがわかる。講演では、構造解析結果に加え、より詳細な磁気特性結果を報告する。

参考文献

- [1] Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishibashi, and K. Yoshimi: Appl. Phys. Lett. **102** 183109 (2013).
- [2] H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: J. Appl. Phys. **115** 17B901 (2014).

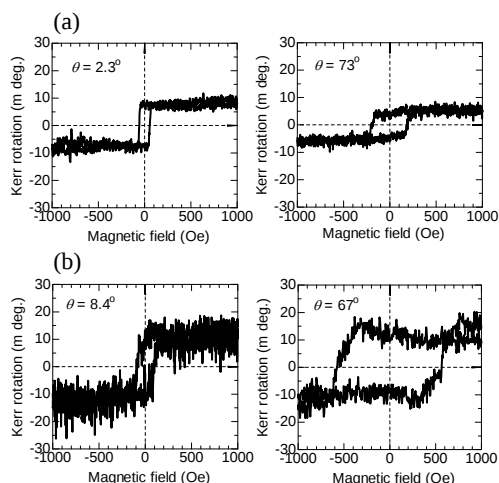


図 1: ストライプ構造 FeAl 合金の表面磁化曲線(照射レーザー波長 λ : (a) 532 nm、(b) 355 nm。

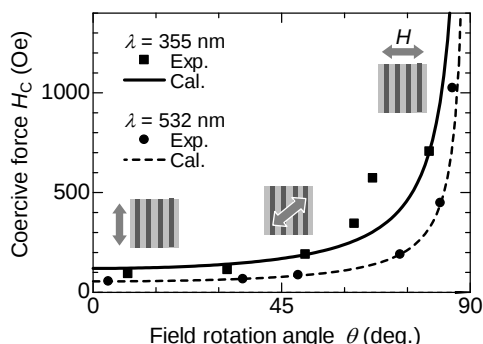


図 2: 保磁力の磁場回転角依存性。

電気磁気効果と界面磁化を示す α -Cr₂O₃(0001)薄膜による 垂直交換バイアスの特性

豊木研太郎¹, 白土 優¹, 中村哲也², 播本祥太郎¹, 尾上 聡¹, 野村 光¹, 三俣千春³, 中谷亮一¹

1 大阪大学大学院工学研究科

2 高輝度光科学研究センター (JASRI) / SPring-8

3 物質・材料研究機構 (NIMS)

Perpendicular exchange bias using magneto-electric α -Cr₂O₃(0001) thin film with boundary magnetization
Kentaro Toyoki¹, Yu Shiratsuchi¹, Tetsuya Nakamura², Shotaro Harimoto¹, Satoshi Onoue¹, Hikaru Nomura¹,
Chiharu Mitsumata³ and Ryoichi Nakatani¹

1 Graduate School of Engineering, Osaka University

2 Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI)/SPring-8

3 National Institute of Materials Research (NIMS)

背景

α -Cr₂O₃ は電気磁気効果を示す材料として知られており、また、Cr スピンが c 面内で強磁性的に配列することから、 α -Cr₂O₃(0001)は界面磁化 (boundary magnetization) を示す。こうした特徴を有する反強磁性体を用いた交換バイアスは、(1)電気磁気効果による交換バイアスのスイッチングが可能であること、(2)界面磁化が界面ラフネスによって大きく変化しないこと、(3)トレーニング効果を示さないことが予測されている¹⁾が、これらの3つの特性を同時に検討した例はない。特に、(1)については、我々は全薄膜系においてパルス強磁場を用いた交換バイアスの等温反転が可能であることを示しているが²⁾、電気磁気効果による界面反強磁性スピンのスイッチングについては、他グループも含めて成果が出つつある段階にある^{3,4)}。本研究では、電気磁気効果による交換バイアススイッチングを含めて、上記3つの特性について検討した結果について述べる。

実験方法

試料作製には、DC マグネトロンスパッタリング法を用いた。作製した薄膜の構成は、Pt (1.5 or 5.0 nm)/Co(0.5 or 0.8 nm)/Pt (0 or 0.5 nm)/ α -Cr₂O₃(120 or 150 nm)/Pt (20 nm)/ α -Al₂O₃-subs.ある。構造評価には、反射高速電子線回折、X 線反射率測定を用い、磁気特性評価には磁気光学 Kerr 効果測定、振動試料型磁力計、軟 X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定、異常ホール効果測定を用いた。XMCD 測定は、SPring-8 BL25SU において行われた。

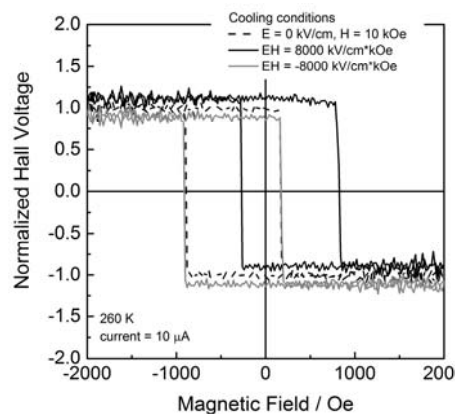
実験結果

Pt 界面層を 0.5 nm 挿入した試料において、電界 E と磁場 H の同時印加による電気磁気冷却 (ME-field cooling) を行うことで、 $EH = 8000$ kV/cm·kOe において交換バイアスが正方向に発現し、 $EH = -8000$ kV/cm·kOe では交換バイアスが負方向に発現する。

(右図) すなわち、冷却時の電気磁気効果によって交換バイアスの電界反転が可能であることが分かった。また、Pt 界面層を挿入しない試料では、界面ラフネスと交換結合強度によって XMCD 強度が変化せず、界面非補償反強磁性スピンの界面交換結合強度と界面ラフネスによって変化しない。さらに、同一試料を用いて、交換バイアスのトレーニング効果測定と行った結果、トレーニング効果が表れないことも分かった。当日は、Pt 界面層の挿入による Cr の電子状態の変化、ME-field cooling 条件の最適化についても述べる予定である。

参考文献

1) K.D. Belashchenko, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 147204., 2) Y. Shiratsuchi et al., Appl. Phys. Lett. **100** (2012) 262413., 3) X. He et al., Nature Mater. **9** (2010) 579., 4) T. Ashida et al, Appl. Phys. Lett. **104** (2014) 152409.



冷却条件を変化させた際の AHE 曲線。EH によって交換バイアスが反転している。(電界印加を行った 2 つの曲線は、上下にオフセットさせている。)

引張変形した Pt_3Fe 反強磁性体における強磁性ドメインと交換結合

森田遼、小林悟 (岩手大)

Ferromagnetic domains and exchange bias in tensile-deformed Pt_3Fe antiferromagnet

Ryo Morita and Satoru Kobayashi (Iwate Univ)

【はじめに】

L_{12} 型規則合金 Pt_3Fe は $T_{N1} \sim 170\text{K}$ 、 $T_{N2} \sim 100\text{K}$ においてそれぞれ $(1/2, 1/2, 0)$ 型、 $(1/2, 0, 0)$ 型の反強磁性秩序相に磁気相転移する。 Pt_3Fe 規則合金に塑性変形を加えると室温で強磁性を示し[1]、これは L_{12} 構造(111)面でのすべり変形に伴う最近接 Fe-Fe 原子対の生成によると解釈されている[2]。更に、最近の引張方向の磁化過程より、 T_{N1} 以下で磁場中冷却後の磁化曲線が磁場方向にシフトする交換結合効果が見出され、強磁性ドメインと反強磁性マトリクス間の相互作用の存在が示唆されている[3]。従って、強磁性ドメインは主に(111)すべり面近傍に分布すると推測されるが、強磁性ドメインのサイズおよび形状は明らかになっていない。本研究では、 Pt_3Fe 規則合金における磁化過程の方向依存性とその温度依存性を調べることで、強磁性ドメインの磁気特性、形態、及び、反強磁性マトリクスとの相互作用に対し更なる知見を与えることを目的とした。

【実験方法】

引張試験により塑性歪 11.6%を加えた Pt_3Fe 単結晶試料を用いた。単結晶は (100)、(053)、(035)面を持つ直方体($2 \times 2 \times 4\text{mm}^3$)であり、長軸方向の[100]が引張方向に対応する。最低温 5K、最大磁場 5T の条件で SQUID 磁化測定装置による磁化測定を行った。磁化方向は[100],[035]を含む面内((053)面内)、[100],[053]を含む面内((035)面内)、[035],[053]を含む面内 ((100)面内)で行い、それぞれについて[035]、[053]、[035]からの角度を θ_1 、 θ_2 、 ϕ と定義した。

【実験結果および考察】

図 1 に(035)面内で磁化方向(θ_1)を変化させた場合の ZFC 後の $T=10\text{K}$ における磁化曲線を示す。 θ_1 の増加と共にループ幅 (保磁力) は顕著に増大し、[100]方向に磁化した場合に最大値を示した。同様の結果は θ_2 を増大した場合にも観測された。更に、 $H=1\text{T}$ で FC 後に得た磁化測定結果から、交換磁場 H_{eb} (交換結合効果によって発生したヒステリシスループのずれ)は、 θ_1 、 θ_2 の増加とともに減少するが、 θ_1 、 $\theta_2 > 45^\circ$ で増加に転じ、その後 θ_1 、 $\theta_2 > 70^\circ$ で再び急激に減少する奇妙な振る舞いを示した。これは(111)すべり面近傍の強磁性ドメインの形状を反映したものと考えられる。

一方、角度 ϕ の変化に対しては、保磁力及び交換磁場に顕著な方向依存性は見出されなかった。この結果は、4つの等価なすべり面 (111), $(\bar{1}11)$, $(1\bar{1}1)$, $(\bar{1}\bar{1}1)$ 近傍に、ほぼ同じ体積分率で強磁性ドメインが分布していることを示唆している。

3つの主要な結晶軸方向 [100], [035], [053]に磁化した場合について H_{eb} の温度依存性を調べたところ、 H_{eb} は温度の上昇とともに単調に減少し T_{N1} 以上でほぼゼロとなった。この結果は、反強磁性マトリクスが T_{N1} 以上で常磁性状態になることによって交換結合が消失するためと解釈できる。

【参考文献】

- [1] J. Crangle, J. Phys. Radium 20 (1959) 435.
- [2] S. Takahashi, Y. Umakoshi, J. Phys. F: Met. Phys. 18 (1988) L257
- [3] S. Kobayashi, S. Takahashi, Y. Kamada, H. Kikuchi, IEEE Trans. Mag., 44 (2008) p.4225.

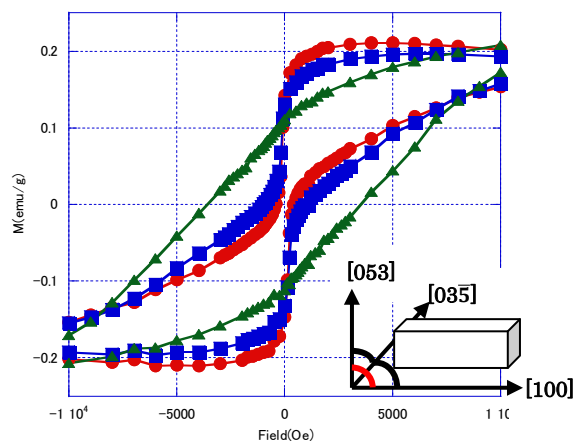


図 1. (035)面内(θ_1)で磁化方向を変化させた場合の磁化曲線。◆ : 0° , ■ : 45° , ▲ : 90°

Cr₂O₃ 薄膜の交換結合磁界の電界制御

芦田拓也¹, 笈田陸弘¹, 下村直樹¹, 野崎友大¹, 柴田竜雄², 佐橋政司¹

¹ 東北大学 大学院 工学研究科, ² TDK株式会社 先端技術開発センター

Voltage control of exchange bias of Cr₂O₃ thin film

T. Ashida¹, M. Oida¹, N. Shimomura¹, T. Nozaki¹, T. Shibata² and M. Sahashi¹

¹ Department of Electronic Engineering, Tohoku Univ.

² TDK corporation, Advanced Technology Development Center

はじめに

Cr₂O₃ において、電気磁気効果を用いた電界による磁化反転は 2005 年に電界磁界中冷却を施したバルクにおいて報告が行われた¹⁾。その後、等温状態を保ったまま印可する電界と磁界の方向を変化させることにより交換結合磁界(H_{ex})の方向を制御する報告もなされている²⁾。どちらの報告もバルクを用いての報告となっており消費電力を低減する観点からも Cr₂O₃ 薄膜において電気磁気効果の発現を確認することが喫緊の課題となっていた。筆者らは、Cr₂O₃ 250 nm 薄膜において電界・磁界中冷却後に電気磁気効果による H_{ex} の符号変化を確認し報告を行った³⁾。この報告では、H_{ex} よりも保磁力(H_c)の方が大きくゼロ磁場で磁化の反転を確認することはできなかった。今回は、挿入層の検討を行い H_c の低減を図ることで電界による H_{ex} の制御と磁化反転を確認したので報告を行う。

実験方法

試料作製は、到達真空度が 10⁻⁶ Pa 以下の RF マグネトロンスパッタ装置を用いて行った。膜構成は、Al₂O₃ (0001) / Pt (25) / Cr₂O₃ (250) / spacer (x) / Co (1) / Pt (5) (nm) である。磁気特性として、帯磁率の温度依存性の測定および異常ホール効果による R-H 曲線の測定を行った。異常ホール効果の測定を行う際は、試料を 320K まで加熱し、電界と磁界をそれぞれ E_{MEFC} = -40 or 200 [kV/cm], H_{MEFC} = +10 [kOe] 印可して電界・磁界中冷却を行った後に、250K で測定を行った。

実験結果

Fig.1 に電界・磁界中冷却後の膜面垂直方向の R-H 曲線を示す。電界磁界中冷却時の電界の印可方向を 180°変化させることにより H_{ex} の大きさが、H_{ex} = -450 [Oe] から H_{ex} = 450 [Oe] と変化した。これは、電気磁気効果により Cr₂O₃ の反強磁性モーメントの方向が変化し H_{ex} の方向が、正・負方向に変化したことを示すものである。今回、挿入層を変えることにより H_c を制御 (H_c = 50 [Oe]) し、電気磁気効果による磁化反転を確認することに成功した。ただし、反転に必要な電界と磁界の積(EH 積)は、バルクにおいて報告された EH 積の約 50 倍の大きさとなっている。また、帯磁率の温度依存性の測定結果から帯磁率 χ の大きさもバルクの測定値の半分程度の大きさとなっている。消費電力を低減させる観点からも EH 積を低減させる必要があり、反強磁性特性をよりバルクに近づけていく必要があると考えている。

参考文献

- 1) P. Borisov, et al., Phys. Rev. Lett. **9**, 117203 (2005).
- 2) X. He, et al., Nat. Mater. **9**, 579 (2010).
- 3) T. Ashida et al., Appl. Phys. Lett., **104**, 152409 (2014).

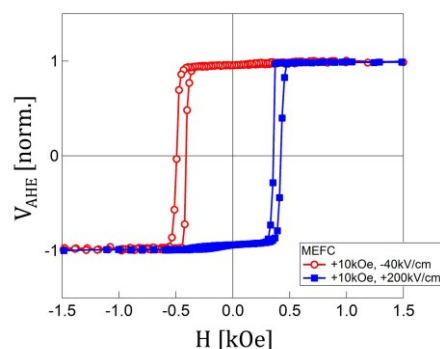


Fig.1 Perpendicular exchange biased hysteresis loop of Al₂O₃ substrate/Pt 25/Cr₂O₃ 250/spacer/Co 1/Pt 5 nm at 250 K after magnetoelectric field cooling process in H_{MEFC} = 10 kOe and E_{MEFC} = -40 and 200 kV/cm, respectively.

Cr₂O₃/Pt/Co 薄膜における Positive exchange bias の発現

笈田陸弘¹, 芦田拓也¹, 下村直樹¹, 野崎友大¹, 柴田竜雄², 佐橋政司¹
(東北大学¹, TDK 株式会社²)

Positive exchange bias in Cr₂O₃/Pt/Co thin film

M. Oida¹, T. Ashida¹, N. Shimomura¹, T. Nozaki¹, T. Shibata² and M. Sahashi¹
(Tohoku University¹, TDK Corporation²)

はじめに

電気磁気効果を有する材料は、低消費電力な電界操作型の磁気デバイスへの応用が期待でき、近年注目を集めている。中でも我々は Cr₂O₃ について研究を行っている。Cr₂O₃ は高いネール点 T_N (〜307 K) を有する反強磁性体であり、Cr₂O₃ と強磁性層を交換結合させることで、大きな交換バイアスを得ることができると報告されている¹⁾。しかし、Cr₂O₃ の磁気異方性が小さいため、交換バイアスが観測できなくなる温度であるブロッキング温度 T_B は T_N よりかなり小さくなる場合が多い。よって、室温付近で電気磁気効果の観測を行うには、T_B を T_N 近くまで向上させることが不可欠となる。過去の報告から、Cr₂O₃ と強磁性層の間に Pt 層を挿入すると交換結合エネルギー J_K が減少し、T_B が向上することがわかっている²⁾。同様の方法を用いて、我々の系で T_B 改善を試みたところ、交換バイアスが通常とは反対に表れる Positive exchange bias³⁾ という現象が観測された。そこで、今回我々は Pt 挿入層の効果をより詳しく調べ、この Positive exchange bias の起源について考察を加えた。

実験方法

RF マグネトロンスパッタ装置を用いて、Al₂O₃(0001)基板上に Pt (25 nm) / Cr₂O₃ (250) / Pt (t_{Pt}) / Co (1) / Pt (5) を成膜した。Pt 挿入層の膜厚 t_{Pt} は 0〜1.36 nm である。下部電極用の Pt は 873 K, Cr₂O₃ は 773 K, その上の Pt/Co/Pt は 423 K にて、成膜を行った。磁気特性の評価は SQUID を用いた。Cr₂O₃ の T_N〜307 K より高い 340 K から 50 K まで磁場中冷却を施した後、±10 kOe の範囲で M-H 曲線の測定を行った。磁場中冷却に用いた磁場 H_{fc} は、0.1〜30 kOe である。

結果と考察

Fig.1 に 100 K における交換バイアスの Pt 挿入層膜厚依存性を示す。H_{fc} は 10 kOe である。この図から、Pt 挿入層を厚くしていくと交換バイアスの絶対値が小さくなっていることがわかった。また、Pt 挿入層が 1 nm 付近で交換バイアスの方向が負方向から正方向へ変わる様子が観測された。この交換バイアスの方向が変わる Pt 挿入層膜厚 t_{Pt} = 1 nm 付近のサンプルについて、交換バイアスの H_{fc} 依存性を調べた結果を Fig.2 に示す。すべてのサンプルについて H_{fc} が小さい時は、通常の負方向の交換バイアスを示し、H_{fc} が大きくなると正方向へ変化すること、交換バイアスの絶対値が大きいサンプルほど、交換バイアスを正方向に変えるのに必要な H_{fc} が大きくなることがわかった。これらの結果は、磁場中冷却過程において Cr₂O₃ の界面スピンの方向が決まる際に強磁性層の磁化方向だけでなく、Cr₂O₃ 自体が外部磁界から影響を受けていることを示唆している。

参考文献

- 1) Y. Shiratsuchi et al., Appl. Phys. Exp., 3, 113001 (2010).
- 2) Y. Shiratsuchi et al., IEEE Trans. Magn., 47, 3909 (2011).
- 3) J. Nogues et al., Phys. Rev. Lett., 76, 4624 (1996).

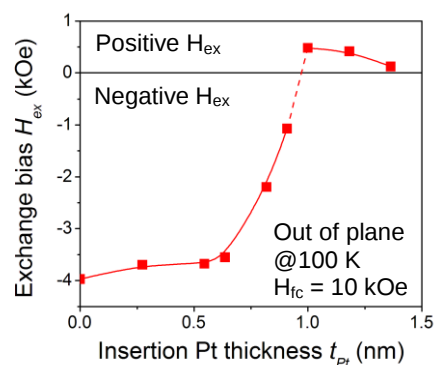


Fig. 1 The inserted Pt thickness dependence on H_{ex} at 100 K after field cooling with H_{fc} = 10 kOe. Lines are guides to the eye.

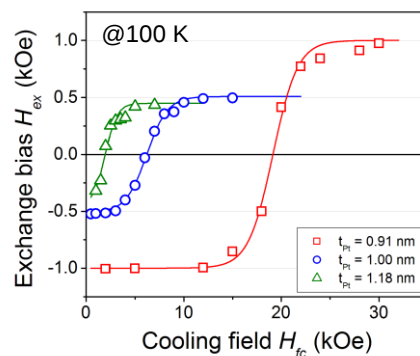


Fig. 2 Cooling field strength H_{fc} dependence on H_{ex} of the sample with Pt insertion layer thickness t_{Pt} = 0.91, 1.00, and 1.18 nm at 100 K.

Observation of Neel temperature of Cr₂O₃ in Cr₂O₃/Co exchange coupled system

S. P. Pati¹, N. Shimomura¹, T. Ashida¹, M. Oida¹, T. Nozaki¹, T. Shibata² and M. Sahashi¹
(Tohoku University¹, TDK Corporation²)

Magnetoelectric chromia (Cr₂O₃) has a potential for application in development of low power consumption high density storage devices due to its electrically switchable magnetic states¹⁾. However, the antiferromagnetic ordering temperature of bulk chromia is just above the room temperature ($T_N=307$ K), which restricts its practical application and hence it is required to enhance the T_N . Previous reports suggest that the T_N can be enhanced by inducing strain and doping in Cr₂O₃^{2,3)}. The detection of T_N and its distinction from blocking temperature T_B is sometimes difficult in an exchange coupled multilayer system. Since the exchange coupling adds unidirectional anisotropy (H_{EX}) or uniaxial anisotropy (H_C), in Cr₂O₃/Co exchange coupling system, T_N can be estimated by investigating temperature dependence of total anisotropy ($H_{EX}+H_C$). However to check H_{EX} and H_C , we have to measure a number of M-H curve, and it is time-consuming. In this work, we propose on the direct detection of T_N by M-T measurement. We also detect change in T_N due to lattice distortions from the M-T measurements.

Our specimen is a layered heterostructure of Al₂O₃<0001> substrate/Buffer layer/Cr₂O₃ (20)/Metal spacer/Co (1)/Pt (5) in nm. We have fabricated two samples having Fe₂O₃ (20), Pt (25) as buffer layer and one sample without buffer layer. Different buffer layers are used to control T_N by inducing lattice strain. Cr₂O₃ is deposited by using reactive RF magnetron sputtering from a metallic Cr target in Ar:O₂ atmosphere. Out of plane magnetization measurements are carried out by using a SQUID (MPMS XL7) magnetometer.

Figure 1 compares (a) the temperature dependent total anisotropy ($H_{EX}+H_C$) and (b) the temperature dependent FC magnetization of Fe₂O₃ buffered sample. FC magnetization measurement is carried out with an application of external magnetic field of 200 Oe. In Fig. 1 (a), the enhancement of $H_{EX}+H_C$ is observed below 270K, which is assigned to the T_N of Cr₂O₃. In Fig. 1 (b), a sudden drop in FC magnetization is observed at temperature around 269 K, which is identical to the T_N . Above T_N of Cr₂O₃, the AFM order destroys, which results in the change of perpendicular magnetization in exchange coupled system. Same behaviors are noticed in the samples with Pt buffered and without buffered samples. In the former case, the observed T_N is 294 K, while the latter has 284 K. These results indicate that we succeed to observe T_N of Cr₂O₃ from M-T measurements. In all cases obtained T_N is lower than the bulk value which is mainly due to the reduction of Cr₂O₃ thickness. The difference in T_N for each sample may reflect the lattice mismatch induced strain. With increasing in-plane lattice parameter of buffer layer, observed T_N of Cr₂O₃ become smaller. This behavior is in agreement with the theoretical calculation results²⁾.

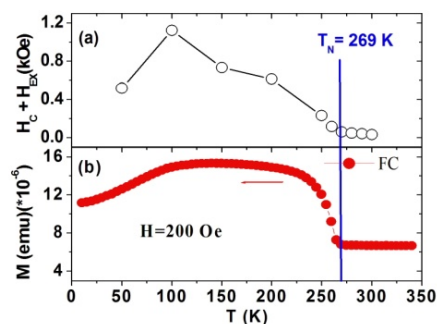


Fig 1. Temperature dependent H_C+H_{EX} (a) and FC magnetization(b) of Al₂O₃/Fe₂O₃(20)/Cr₂O₃(20)/metal spacer/Co(1)/Pt(5)

Reference

- 1) X. He *et al.* Nat. Mater., 9 (2010) 579.
- 2) Kota *et al.* Applied Physics Express 6 (2013) 113007.
- 3) Sai Mu *et al.* Phys. Rev. B, 87 (2013) 054435.

20 nm Cr₂O₃ における垂直交換バイアスの格子歪による制御

下村直樹¹, S.P.Pati¹, 野崎友大¹, 柴田竜雄², 佐橋政司¹
(東北大学¹, TDK 株式会社²)

Controlling Perpendicular Exchange Bias in 20nm-Thickness Cr₂O₃ Thin-Film by Lattice Strain Control

N. Shimomura¹, S. P. Pati¹, T. Nozaki¹, T. Shibata² and M. Sahashi¹
(Tohoku University¹, TDK Corporation²)

はじめに

Cr₂O₃ は電気磁気効果を示す反強磁性体であることが知られており、Cr₂O₃/強磁性層界面における垂直交換バイアス磁界(H_{ex})を外部電界により反転可能であることが実験的に示されている。この Cr₂O₃ の交換バイアスの発現温度(ブロッキング温度:T_B)は Meiklejohn-Bean の交換磁気異方性モデルによく従い、界面交換結合エネルギーJ と反強磁性磁気異方性エネルギー(K_{AF}T_{AF})の競合によって決まる。つまり、Cr₂O₃ の膜厚が薄くなると T_B は減少してしまい、実際の応用において現実的な膜厚、例えば 50nm 以下では T_B は Cr₂O₃ のネール点(307K)付近から著しく低下してしまう。薄い膜厚で高い T_B を達成するためには、Cr₂O₃ の結晶磁気異方性エネルギーK_{AF}を増加させる必要がある。Cr₂O₃ 薄膜の K_{AF} は格子歪によって変化するという報告¹⁾があることから、今回は、格子定数の異なる種々のバッファ上に膜厚を 20nm まで低減させた Cr₂O₃ を製膜し、格子歪の影響による対する交換バイアスの T_B の変化を調べた。

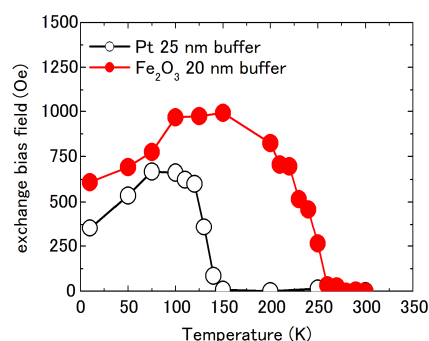
実験方法

全ての試料は c-Al₂O₃ 基板上に RF-DC マグネトロンスパッタ装置によって作製した。膜構成は c-Al₂O₃ sub./Pt 25 or Fe₂O₃/Cr₂O₃ 20/metal spacer/Co 1/Pt 5 (nm) である。Cr₂O₃、Fe₂O₃ は基板温度 500℃で製膜した。構造評価には、X 線回折(XRD)と断面 TEM 測定を行い、磁気特性評価には、超電導量子干渉計(SQUID)を用いた。SQUID 測定は全て膜面垂直方向で、バルク Cr₂O₃ のネール温度(307K)より充分高温である 340K まで昇温した後、+1T での磁場中冷却を施し、10-340K の温度範囲で測定した。

実験結果

Cr₂O₃ の膜厚が 20nm の場合、Cr₂O₃/Co 界面の交換バイアスは全測定温度(10~340K)にわたって発現せず、Co の保磁力の増加のみ確認される(T_B < 10 K)。Pt といった金属スペーサー層を Cr₂O₃ 50/Co1 (nm) 界面に挿入し、界面交換結合エネルギーの強さを調整することで T_B を向上させる方法が報告されており²⁾、本研究においても同様の方法で、より膜厚の薄い Cr₂O₃ でも T_B を観測できるようにした。

Fig.1 に c-Al₂O₃ sub./Pt 25 or Fe₂O₃/Cr₂O₃ 20/metal spacer/Co 1/Pt 5 (nm) における交換バイアス磁界の温度依存性を示す。Pt バッファと Fe₂O₃ バッファの交換バイアス磁界は同程度であるが、Pt バッファを使用した場合 T_B は高々 150K までであるのに対し、Fe₂O₃ バッファを使用した場合は Cr₂O₃ の T_B は室温付近の 260K まで交換バイアスが存在していた。この T_B の違いは、格子歪の導入による Cr₂O₃ の結晶磁気異方性の変化が原因であると考えられる。XRD および断面 TEM 像の FFT 解析像から算出した Cr₂O₃ の c/a 値は Fe₂O₃ バッファの方が小さくなっており、Cr₂O₃ の a 軸長が伸長される方向に格子歪が誘起されている。



[Fig.1] Temperature dependence of exchange bias field in c-Al₂O₃ sub./Pt 25 or Fe₂O₃ 20/Cr₂O₃ 20/metal spacer /Co 1/Pt 5 [nm] thin film system.

参考文献

- 1) J. O. Artman et al., Phys. Rev. 138, A912 (1965)
- 2) Y. Shiratsuchi et al., IEEE Trans. Mag., 47, 3909 (2011)