

引張変形した Pt₃Fe 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 Pt₃Fe antiferromagnet

Ryo Morita and Satoru Kobayashi (Iwate Univ)

【はじめに】

L1₂型規則合金 Pt₃Fe 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。Pt₃Fe 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 L1₂ 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、Pt₃Fe 規則合金における磁化過程の方向依存性と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 Pt₃Fe 単結晶試料を用いた。単結晶は (100)、(053)、(035)面を持つ直方体(2×2×4mm³)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} 以上ではほぼゼロとなった。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.

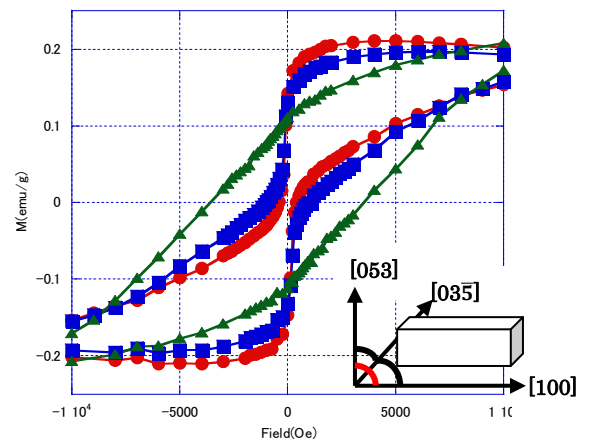


図 1. (035)面内(θ_1)で磁化方向を変化させた場合の磁化曲線。◆: 0° 、■: 45° 、▲: 90°

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, ²TDK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

¹Department of Electronic Engineering, Tohoku Univ.

²TDK 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).

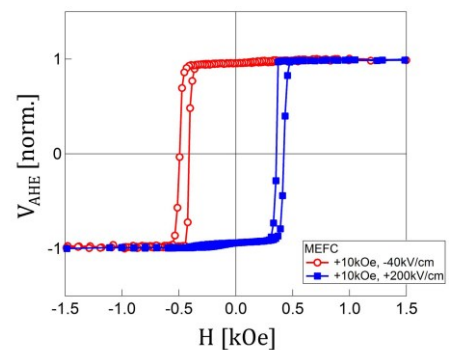


Fig.1 Perpendicular exchange biased hysteresis loop of Al₂O₃ substrate/Pt 25/Cr₂O₃ 250/spacer/Co 1/Pt 5 nm at 250 K after magnetoelectric field cooling process in H_{MEFC} = 10 kOe and E_{MEFC} = -40 and 200 kV/cm, respectively.

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ことが報告されている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).

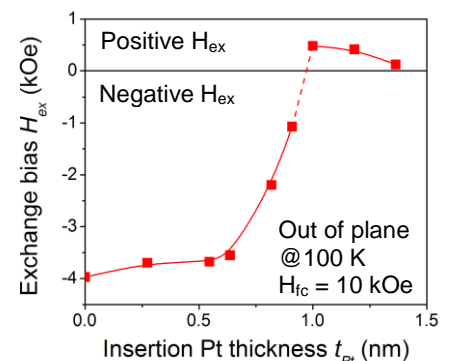


Fig. 1 The inserted Pt thickness dependence on H_{ex} at 100 K after field cooling with H_{fc} = 10 kOe. Lines are guides to the eye.

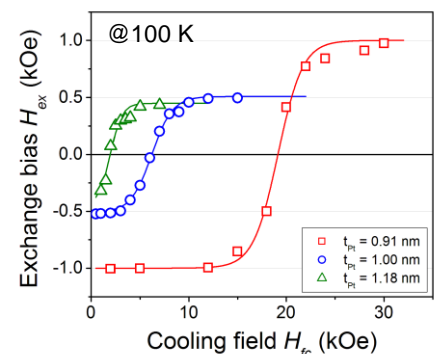


Fig. 2 Cooling field strength H_{fc} dependence on H_{ex} of the sample with Pt insertion layer thickness t_{Pt} = 0.91, 1.00, and 1.18 nm at 100 K.

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)

Magnetolectric 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.

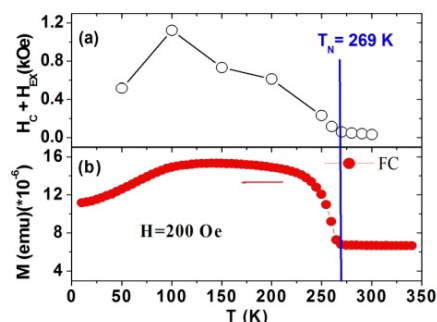


Fig 1. Temperature dependent H_C+H_{EX} (a) and FC magnetization(b) of Al₂O₃/Fe₂O₃(20)/Cr₂O₃(20)/metal spacer/Co(1)/Pt(5)

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

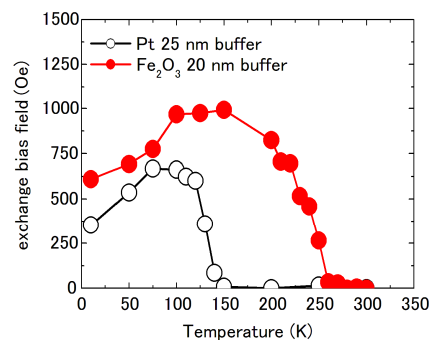
Cr₂O₃ は電気磁気効果を示す反強磁性体であることが知られており、Cr₂O₃/強磁性層界面における垂直交換バイアス磁界(H_{ex})を外部電界により反転可能であることが実験的に示されている。この Cr₂O₃ の交換バイアスの発現温度(ブロッキング温度・T_B)は Meiklejohn-Bean の交換磁気異方性モデルによく従い、界面交換結合エネルギーJ と反強磁性磁気異方性エネルギー(K_{AF}TAF)の競合によって決まる。つまり、Cr₂O₃ の膜厚が薄くなると T_B は減少してしまい、実際の応用において現実的な膜厚、例えば 50nm 以下では T_B は Cr₂O₃ のネール点(307K)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°C 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)