

Co₂FeSi/BaTiO₃ 界面マルチフェロイクヘテロ構造の磁気特性

寺本侑樹¹, 山田晋也^{2,1}, 村田太一¹, 松實大志¹, 工藤康平¹, 谷山智康³, 浜屋宏平^{2,1}

(¹阪大基礎工, ²阪大基礎工 CSRN, ³名大理)

Magnetic properties of a Co₂FeSi/BaTiO₃ interfacial multiferroic heterostructure

Yuki Teramoto¹, Shinya Yamada^{2,1}, Taichi Murata¹, Daishi Matsumi¹, Kohei Kudo¹,

Tomoyasu Taniyama³, Kohei Hamaya^{2,1}

(¹Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ., ²CSRN, Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ., ³Dep. Phys., Nagoya Univ.)

強磁性体と強誘電体の界面に形成されるマルチフェロイク状態を利用することで、強磁性体の磁化を電界で制御することができる[1]。これまで、ハーフメタルホイスラー合金/BaTiO₃ヘテロ構造において大きな電気磁気結合の発現が理論的に予測されているが[2]、実験的な報告例はない。本講演では、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて作製した Co₂FeSi/BaTiO₃ 界面マルチフェロイク構造の磁気特性について述べる。

MBE 法[3]を用いて、Co₂FeSi 薄膜(膜厚: ~30 nm)を BaTiO₃(001)基板上に基板温度 200°C で成長したところ、RHEED 像(Fig. 1 挿入図)はストリークパターンを示したため、二次元エピタキシャル成長に成功したと判断した。XRD の面内 ϕ スキャン測定結果(Fig. 1)から、4 回対称の(111)ピークが観測され、Co₂FeSi 薄膜中に L₂₁ 規則構造が形成されていることが判った。300 K で測定した磁化曲線より、この試料の飽和磁化は約 5 μ_B /f.u.となり、これまで我々が報告してきた高スピン偏極率 Co₂FeSi 薄膜[3,4]と同等の値を示した。また、膜面内に強い一軸磁気異方性が確認された(Fig. 2 挿入図)。これは、正方晶相の BaTiO₃における長方形格子面(a ドメイン)に Co₂FeSi 薄膜が成長したことを示唆している。

Fig. 2 には Co₂FeSi/BaTiO₃ ヘテロ構造の磁化容易軸(BaTiO₃[010])および磁化困難軸(BaTiO₃[100])方向の残留磁化の温度依存性を示す。Fe/BaTiO₃ ヘテロ構造[5]と同様に、BaTiO₃ の構造相転移点(図中矢印)で残留磁化の変化が観測され、特に斜方晶相から菱面体晶相への相転移点(~183K)においては大きな変化が観測された。これは、Co₂FeSi 薄膜の磁化容易軸方向が変化していることを意味しており、Co₂FeSi/BaTiO₃ 界面のスピ軌道相互作用の変化を介した磁気弾性結合を捉えていると考えられる。

本研究の一部は、JST-CREST(JPMJCR18J1)と JSPS 科研費(No. 16H02333,18KK0111)の支援を受けた。

[1] T. Taniyama, *J. Phys.: Condens. Matter.* **27**, 504001 (2015).

[2] K. Yamauchi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 062506 (2007).

[3] S. Yamada *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 082511 (2010).

[4] K. Hamaya *et al.*, *Phys. Rev. B* **85**, 100404(R) (2012).

[5] T. Taniyama *et al.*, *J. Appl. Phys.* **105**, 07D901 (2009).

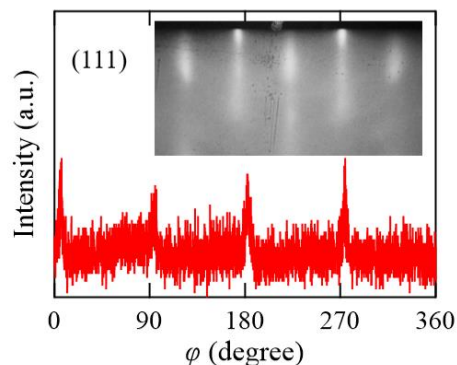


Fig. 1: ϕ -scan measurements of (111) plane for a Co₂FeSi film. The inset shows RHEED pattern after the growth of the Co₂FeSi film.

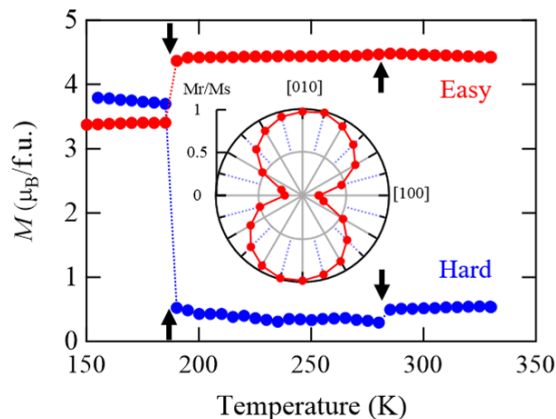


Fig. 2: Temperature dependence of remanent magnetization of the Co₂FeSi/BaTiO₃ heterostructure. The inset shows polar plots of the normalized remanent magnetization (M_r/M_s) at 300 K.

強誘電体上に創製した人工強磁性体中の磁気状態に関する電流応答

赤松直哉^{1,2}, 中村遼^{1,2}, 三枝峻也^{1,2}, 中尾愛子¹, 内海裕一¹, 山田啓介³, 大浦正樹²,
大河内拓雄^{4,2}, Taekhyeon Lee⁵, Kab-Jin Kim⁵, 小笠原剛⁶, 山口明啓^{1,2}
(¹ 兵庫県立大学, ² 理化学研究所, ³ 岐阜大学, ⁴ 高輝度光科学研究センター,
⁵ 韓国 KAIST, ⁶ 産業技術総合研究所)

Electric current response of magnetic characteristics induced in artificial ferromagnets fabricated on a ferroelectric substrate

Naoya Akamatsu^{1,2}, Ryo Nakamura^{1,2}, Shunya Saegusa^{1,2}, Aiko Nakao¹, Yuichi Utsumi¹, Keisuke Yamada³,
Masaki Oura², Takuo Ohkochi^{4,2}, Taekhyeon Lee⁵, Kab-Jin Kim⁵, Takeshi Ogasawara⁶,
Akinobu Yamaguchi^{1,2}

(¹ University of Hyogo, ² RIKEN, ³ Gifu University, ⁴ JASRI, ⁵ KAIST, ⁶ AIST)

はじめに

ナノ・マイクロシステムは、ナノ・マイクロスケールでの機械工学と電気工学の融合分野である MEMS (Mechanical Electric Machine System) や流路デバイスの組み合わせで化学実験系をチップ上に創製する Lab-on-a-chip に代表されるシステムである。このシステムは、デバイス応用だけではなく、基礎研究を進める上でも非常に重要な理想的な実験系を提供する[1]。本研究では、ナノ・マイクロシステムを用いて、物性研究に展開し、強磁性体/強誘電体ヘテロ界面を介して誘発する強磁性体中の磁気状態に関する基礎的な物性研究を進めた結果について報告を行う。

実験方法

電子線リソグラフィとマグネトロンスパッタを用いたリフトオフ法により、強誘電体単結晶ニオブ酸リチウム基板上に厚さ 30 nm の Ni 細線を作製した。Ni 細線は、ニオブ酸リチウム基板の結晶方位 X 軸方向 (Orientation Flat: OF) に対して、平行および垂直で配置した。これまでの研究[2]において、SPring-8 BL25SU ならびに BL17SU の X 線磁気円二色性光電子顕微鏡 (X-ray Magnetic Circular Dichroism Photoemission electron Microscopy: XMCD-PEEM) を用いて、無磁場下でのそれぞれの磁区構造が単磁区構造および縞状磁区構造になることを報告した[2]。今回は、これらの磁区構造の強磁性共鳴ならびに磁気抵抗効果及び直流電流応答特性を測定した。Ni 細線に Ground-Signal-Ground (GSG) 型のコプレーナウエブガイド構造の電極を Fig. 1 のように形成し、その電気応答特性を測定した。ここで、外部磁場は、Ni 細線に対して面内で角度 θ の方向に印加した。

結果と考察

強磁性共鳴周波数の外部磁場依存性を調べると、基本的にはマクロスピンモデルによる強磁性共鳴分散関係が成立していることが分かった。ただし、縞状磁区構造が形成されている場合には、大きな応答特性が得られることが分かった。これは縞状磁区構造による大きな磁気抵抗が発現しているためと考えられる。また、電流応答特性についても興味深い変化が発現することが分かった。ナノ・マイクロシステムを基盤技術として導入することで、ヘテロ構造導入による人工マルチフェロイック材料の創製および物性研究を行うことができ、定量的かつ系統的な測定することが可能であることを示した。

参考文献

- 1) A. Yamaguchi, R. Takahashi, T. Fukuoka, R. Hara, Y. Utsumi, *Sensors & Actuators B: Chemical* **230** (2016) 94.
- 2) A. Yamaguchi, T. Ohkochi, A. Yasui, T. Kinoshita, K. Yamada, *J. Magn. Magn. Mater.* **453** (2018) 107.

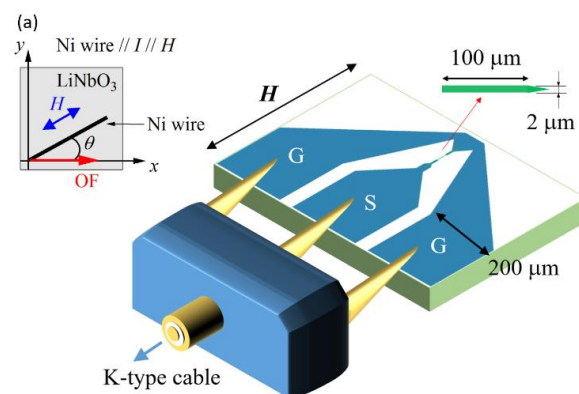


Fig. 1 サンプルおよび測定系の模式図.

強磁性・強誘電／強磁性金属積層膜への電界印加による強磁性金属薄膜の磁化反転

吉村 哲, 大下 直哉, M. Kuppan

(秋田大)

Magnetization reversal of metallic magnetic film fabricated onto (Bi,La)(Fe,Co)O₃ multiferroic film by applying electric field to multiferroic / metallic magnetic multilayers

S. Yoshimura, N. Oshita, M. Kupan

(Akita Univ.)

はじめに 強磁性・強誘電材料は、電場(E)もしくは磁場(H)による磁化(M)および電気分極(P)の方向制御が可能とされていることから、革新的な次世代電子デバイス用材料として研究が活発化してきている。電圧駆動型の磁気記録デバイスに本材料を使用する場合、磁気特性において、高信号出力化などの観点から高い飽和磁化 (M_s)、記録情報保持の観点から高い保磁力 (H_c)、高集積化などの観点から垂直磁気異方性、などの磁気特性が求められる。著者らは、昨年、酸化物や窒化物の薄膜の、高速成膜・高電圧成膜・アーク放電の抑制、に効果的な反応性パルス DC スパッタリング法を用い、(Bi_{1-x}La_x)(Fe_{0.75}Co_{0.25})O₃ 薄膜を作製した結果、La 置換量が 60 %程度において、70 emu/cm³ を超える M_s 、4 kOe を超える H_c 、明瞭な垂直磁気異方性、明瞭な強誘電特性、など、BiFeO₃ 系薄膜としてはこれまで報告されたことがない良好な磁気特性が得られたことを報告した¹⁾。また、本薄膜において、走査型プローブ顕微鏡を用いたミクロンスケールでの電界印加磁化反転にも成功した。しかしながら、本材料において磁気デバイス応用に有用な高い M_s やスピン分極率が得られている訳ではなく、磁気 Kerr 効果においても大きなレーザ波長依存性がある²⁾ ことから、本材料単体でデバイス化することは容易でなない。ここで、機能性の高い金属強磁性薄膜を本薄膜に積層し、積層膜への電界印加により反転した強磁性・強誘電薄膜の磁化方向を金属強磁性薄膜に磁気転写することでその磁化方向も反転させることができれば、本材料のデバイス応用の可能性が大いに広がる。本研究では、そのデモンストレーションとして、強磁性・強誘電(Bi_{1-x}La_x)(Fe_{0.75}Co_{0.25})O₃ 薄膜に金属強磁性[Co/Pd]_n 多層膜を積層した系において、積層膜に電界印加を施すことで、(Bi_{1-x}La_x)(Fe_{0.75}Co_{0.25})O₃ 薄膜の磁化方向を変化させ、磁気転写を介して、[Co/Pd]_n 多層膜の磁化方向も反転させることを試みた。

方法 (Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe_{0.75}Co_{0.25})O₃(BLFCO)薄膜(膜厚 200 nm)を、反応性パルス DC スパッタリング法を用いて、熱酸化膜付き Si 基板/Ta(5 nm)/Pt(100 nm)下地層上に成膜した。積層膜は、Ta を室温、Pt を 300°C、BLFCO を 695°C、の基板温度で成膜した。スパッタリングターゲットには、La-Fe-O 粉末、Fe 粉末、Co 粉末を焼結させて作製した導電性ターゲットに Bi シートを配置したものを用いた。反応性パルス DC スパッタリング法におけるパルス条件として、周波数を 100 kHz、電力を 150 W、デューティー (ON:OFF) 比を 2:1 とした。BLFCO 薄膜成膜後、リフトオフ法を用いたリソグラフィプロセスにより、完全な垂直磁気異方性を有する [Co(0.7nm)/Pd(2.0nm)]₄ 多層膜の 3 μm 径のドットを積層および形成した。積層膜への局所電界印加および電界印加前後の磁区および分域構造評価には、走査型プローブ顕微鏡を用いた。

結果 Fig.1 に、作製した積層膜およびそれに電界印加を施した場所に関する模式図、そして、電界印加前の MFM 像、電界印加後の MFM 像、をそれぞれ示す。電界印加前の [Co/Pd]₄ 多層膜ドット (左右いずれも) の MFM 像では、黒と白のコントラストがランダムにみられることから、消磁状態であることが判る。電界印加後の MFM 像では、電界印加されていない方 (右) のドットのコントラストは変化がない一方、電界印加された方のドット (左) についてはコントラスト (黒い部分) がほとんどなくなり、消磁状態から磁化状態に変化した (磁化が上に向いた) と言える。

ラインプロファイルの詳細な解析から、下向きに磁化していた部分の 75 %程度が上向きに反転したことが判った。この結果より、(Bi,La)(Fe,Co)O₃ / [Co/Pd]₄ 積層膜において、電界印加磁化反転 (磁気転写) が観測されたとと言える。

参考文献 1) 吉村 第 42 回日本磁気学会学術講演概要集, 13aA-5. , 2) 吉村 第 42 回日本磁気学会学術講演概要集, 13aA-10.

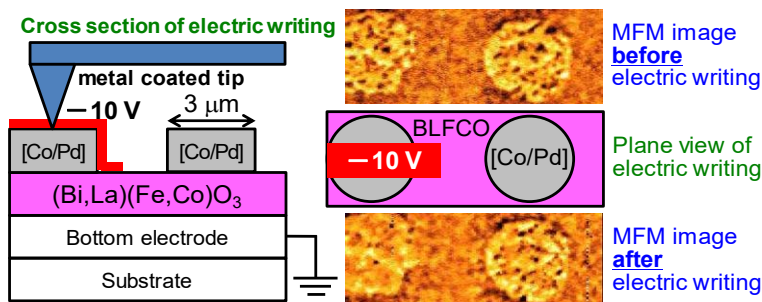


Fig. 1 Schematic images of application of local electric field to BLFCO/[Co/Pd] multilayer and MFM images of [Co/Pd] dots before and after application of local electric field.

BiFeO₃/Co_{1-x}Cu_xFe₂O₄ 積層薄膜の磁気-電気効果

土田 将太、神島 謙二、柿崎 浩一
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Magnetoelectric effect of BiFeO₃/Co_{1-x}Cu_xFe₂O₄ multilayer thin films

S. Tsuchida, K. Kamishima, and K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

はじめに

強磁性と強誘電性を併せ持つマルチフェロイック材料は、磁気歪みと圧電効果を介して、磁場が電気分極を、電場が磁気分極を発現させる磁気-電気(ME)効果を示し、多値メモリーや磁気センサーなどへの応用が期待されている¹⁾。本研究では強磁性体として CoFe₂O₄(CFO)を、強誘電体には BiFeO₃(BFO)を採用した。MOD法で FTO 電極上に BFO/CFO/BFO 積層薄膜を成膜した。その際 CFO の Co²⁺を Cu²⁺で置換することで結晶化温度の低減を図り、CFO 層の結晶性を改善することにより、大きな ME 効果を発現させることを目的とした。

実験方法

試料は MOD 法により作製した。出発溶液には Bi、Co、Fe および Cu の有機金属塗布材料(SYMETRIX)を用い、BiFeO₃ および Co_{1-x}Cu_xFe₂O₄(CCFO)の組成となるように調製した。これを室温で 24 時間攪拌した後、スピコート法で FTO 電極付きガラス基板上に塗布した。これを大気中 350°C で 30 分間乾燥させた後、大気中 640°C で 1 時間熱処理を行った。この工程を繰り返すことで BFO/CCFO/BFO 積層薄膜を作製した。作製した試料の結晶構造は X 線回折法(XRD)により解析した。ME 効果は分極処理した試料を用い、直流磁場および交流磁場を平行に印加し、誘起される電圧をロックインアンプにより測定した。

結果および検討

Fig. 1 は BFO/CCFO/BFO 積層薄膜($x=0\sim0.39$)の X 線回折図を示す。全ての試料で目的とする BFO および CFO 相が生成するが、Cu 置換量の増加に伴い BFO 相の結晶性が低下する傾向にある。これは、CFO 相の結晶化温度が低下したことで、各層の界面で相互拡散が生じやすくなり BFO 中の Bi が CFO 層側へ拡散したことが原因と考えられる。

Fig. 2 は BFO/CCFO/BFO 積層薄膜に直流磁場として $H_{dc}=3.85$ kOe を印加したときの ME 係数の Cu 置換量依存性を示す。Cu 置換量が $x=0.07$ の試料において ME 係数は 104.9 mV/cm·Oe と最も大きな値となる。これは Cu 置換により CFO 相の結晶性が向上し、より大きな磁気歪みが発現したためと考えられる。しかし、Cu 置換量がさらに増加すると ME 係数は減少する。これは、各層の界面における相互拡散により BFO 相の結晶性が低下したことが原因であると考えられる。

参考文献

- 1) N. A. Spaldin, M. Fiebig : Science, 309 (2005) 391.

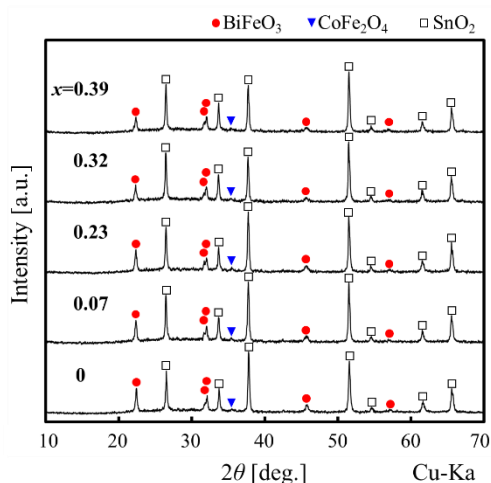


Fig. 1 XRD patterns of BFO/CCFO/BFO multilayered thin films with various Cu contents.

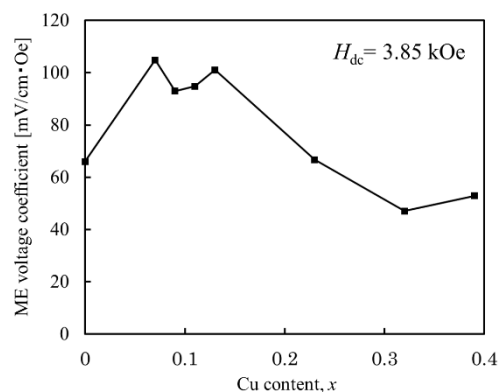


Fig. 2 ME voltage coefficient of BFO/CCFO/BFO multilayer thin films at the maximum magnetic field of 3.85 kOe as a function of Cu content, x.