

強磁性・強誘電／強磁性金属積層膜での電界印加磁気転写に向けた高飽和磁化・垂直磁化 BiFeO₃ 系強磁性・強誘電薄膜材料の探索

吉村 哲, 山本 大地, 武田 航太郎, 尾関 拓海, 江川 元太
(秋田大)

Development of BiFeO₃ based thin film materials with perpendicular anisotropy and large saturation magnetization for application to magnetization reversal of multiferroic / metallic magnetic laminated film by applying electric field

S. Yoshimura, D. Yamamoto, K. Takeda, T Ozeki, G. Egawa
(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、電圧駆動型の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。磁気デバイスに本材料を使用する場合、磁気特性において、垂直磁気異方性 (K_u) (大きな垂直保磁力 ($H_{c\perp}$)), 高いスピン分極率 (P), 大きな磁気 Kerr 回転角 (θ_k) などが求められる。著者らは近年、酸化物薄膜の、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_{0.4}La_{0.6})(Fe_{0.72}Co_{0.28})O₃ 薄膜を作製した結果、70 emu/cm³ を超える M_s , 4 kOe を超える $H_{c\perp}$, 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、本薄膜において、走査型プローブ顕微鏡を用いたサブミクロンスケールでの電界印加磁化反転にも成功したり。しかしながら、本材料において高い K_u や P や θ_k が得られている訳ではないことから、本材料単体でデバイス化することは容易でない。本問題に対して、昨年、金属強磁性薄膜を強磁性・強誘電薄膜に積層し、積層膜への電界印加により反転した強磁性・強誘電薄膜の磁化でもって金属強磁性薄膜の磁化を反転させる「磁気転写」を提案し、強磁性・強誘電(Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe_{0.72}Co_{0.28})O₃ 薄膜 / 金属強磁性[Co/Pd]_n - 積層膜において、そのデモンストレーションに成功した²⁾。本研究では、強磁性・強誘電薄膜のデバイス応用の可能性を大いに広げる「磁気転写」をより容易に実現することが可能な、飽和磁化が大きく垂直磁気異方性を有する材料薄膜の探索を行った。

方法 (Bi_{0.4-0.5A0.6-0.5})(Fe_{1-x}M_x)O₃ ($A = \text{Ca, Sr, Ba, La, Nd, Gd, } M = \text{無し, Co}$) (BAFMO) 薄膜 (膜厚 200 nm) を、反応性パルス DC スパッタリング法 (周波数: 100 kHz, 電力: 150 W, デューティー比: 2:1) 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, BAFMO を 695°C, の基板温度で成膜した。Bi に対する置換元素 A の置換量は約 50 at% とし, Fe に対する置換元素 M (Co) の置換量は 4, 12, 28 at% と変化させた。構造解析は X 線回折装置 (XRD) により, 磁気測定は振動試料型磁力計 (VSM) により, 誘電測定は強誘電体特性評価システムにより, それぞれ評価を行った。

結果 Fig.1 に、作製した BAFMO 薄膜の M_s および $H_{c\perp}$ の置換元素材料および置換量に対する変化を示す。置換元素 A にアルカリ土類金属を用いた場合、原子番号が大きくなると M_s が増大した。ただし、Ca や Sr を用いた薄膜の結晶性が良くなく、多くの酸素欠損の存在により本来の M_s が得られないかった可能性もある。酸素欠損を抑制可能な作製方法での再検討が必要である。 H_c に関しては、置換元素に関わらず、膜面垂直方向よりも面内方向の方が大きく、 K_u は負であると考えられる。置換元素 A にランタノイドを用いた場合、 A の置換のみでは大きな M_s と $H_{c\perp}$ は得られないが、 M の Co 置換量の増大に従い、 M_s も $H_{c\perp}$ も増大し、(Bi_{0.5}Nd_{0.5})(Fe_{0.72}Co_{0.28})O₃ 薄膜においては、高飽和磁化 (M_s : 120 emu/cm³), 明瞭な垂直磁気異方性 ($H_{c\perp}$: 3 kOe, $H_{c\perp}/H_{c\parallel}$: 3), が得られた。本結果と、 M のみを Co で置換した Bi(Fe,Co)O₃ 薄膜においては垂直磁気異方性が見られなかった他研究の報告結果から、BiFeO₃ 系薄膜において大きな飽和磁化および垂直磁気異方性を得る指針として、まだ定かではないが、 A を 50 at% 程度のランタノイドで置換して M を 25 at% 以上の Co で置換することが効果的と思われる。

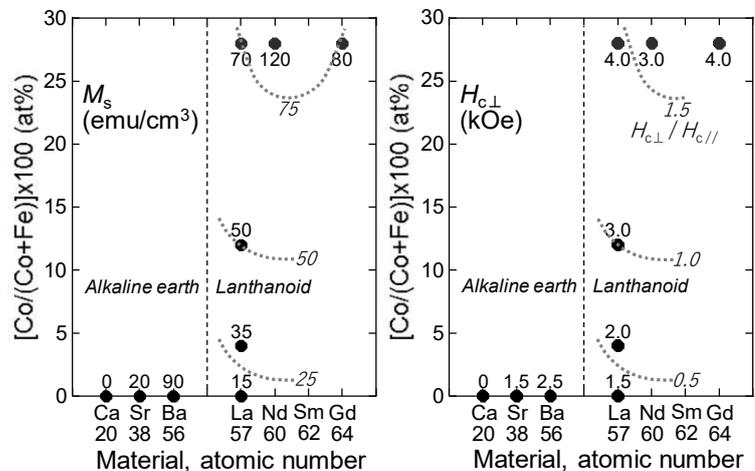


Fig. 1 M_s and $H_{c\perp}$ of (Bi, A)(Fe, M)O₃ films with various film composition.

参考文献 1) 吉村 第42回日本磁気学会学術講演会, 13aA-5., 2) 吉村 第43回日本磁気学会学術講演会, 25aB-3.

Co₂FeSi/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ 界面マルチフェロイク構造 における異方性磁気抵抗効果の電界変調

宇佐見喬政¹, 藤井竣平¹, 山田晋也^{2,1}, 白土優^{3,2}, 中谷亮一^{3,2}, 浜屋宏平^{2,1}
(¹阪大基礎工, ²阪大基礎工 CSRN, ³阪大工)

Electric-field modulation of anisotropic magnetoresistance effect
in Co₂FeSi/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})-PbTiO₃ heterostructures

T. Usami¹, S. Fujii¹, S. Yamada^{2,1}, Y. Shiratsuchi^{3,2}, R. Nakatani^{3,2} and K. Hamaya^{2,1}

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

強磁性体/強誘電体ヘテロ構造からなる界面マルチフェロイクの応用が期待されている [1]. 界面マルチフェロイクでは、強誘電体への電界印加で生じた結晶歪みが、強磁性体/強誘電体ヘテロ界面における磁気弾性結合を介して強磁性体の磁化や磁気異方性を変調する [1,2]. 強誘電体 Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ (PMN-PT)は、大きな圧電定数を有することから、界面マルチフェロイクにおいて大きな磁性の変調効果が期待されている [3]. 今回、PMN-PT 上への強磁性ホイスラー合金 Co₂FeSi 薄膜の作製と異方性磁気抵抗効果(AMR)の電界変調について報告する.

分子線エピタキシーを用いて Co₂FeSi 薄膜 (膜厚~30 nm) を PMN-PT(001)基板上に基板温度 350°C で成長したところ、成長中の RHEED 像は 2 次元エピタキシャル成長を示唆するストリークパターンであった. Fig. 1 の面内 XRD 測定において、Co₂FeSi 薄膜の{111}面回折が観測されていることから、Co₂FeSi 薄膜が L₂₁ 規則構造を有していることが判る. この薄膜の磁化測定の結果、飽和磁化は約 5 μ_B/f.u.となり、これまで我々が報告した高スピンの偏極率 Co₂FeSi 薄膜と同等の値を示した [4]. 以上より、高品質な Co₂FeSi 薄膜を PMN-PT(001)基板上に成長することに成功したと判断した.

この Co₂FeSi/PMN-PT 構造をホールバー素子に加工し、試料の[001]方向に電界 E を印加しながら AMR を測定した. Fig. 2 に Co₂FeSi/PMN-PT 構造における AMR 比, $\{[R_{\parallel}-R_{\perp}]/R_{\perp}\} \times 100$ (%), の電界依存性(-8 kV/cm → +8 kV/cm → -8 kV/cm)を示す. 電界印加に伴う AMR 比の変化に加え、電界ゼロ付近にヒステリシス的な挙動が観測されている. PMN-PT(001)における分極反転電界 (抗電界) は約 1.2 kV/cm と報告されており [5], 今回得られた AMR 比のヒステリシス挙動も抗電界付近で急峻な変化を示していることから、Fig. 2 に示した AMR 比の電界依存性は PMN-PT の分極反転過程を反映していると考えている. 講演会では、多結晶 Co₂FeSi/PMN-PT 構造との比較をふまえて上記の現象を議論する.

本研究は、JST-CREST(JPMJCR18J1)の支援を受けた.

- [1] T. Taniyama, J. Phys. Condens. Matter **27**, 504001 (2015).
- [2] S. Zhang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 137203 (2012).
- [3] G. Dunzhu *et al.*, Mater. Res. Express **6**, 066114 (2019).
- [4] S. Yamada *et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 082511 (2010).
- [5] L. Yang *et al.*, Sci. Rep. **4**, 4591 (2015).

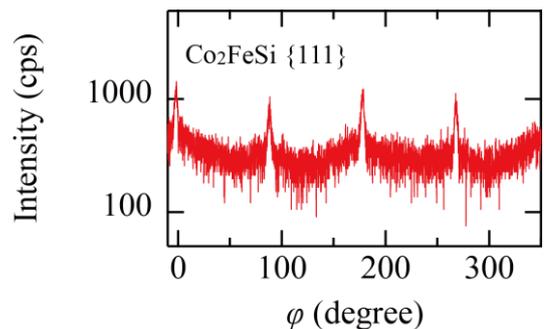


Fig. 1. XRD phi scan profile for the {111} planes of the Co₂FeSi film on PMN-PT(001).

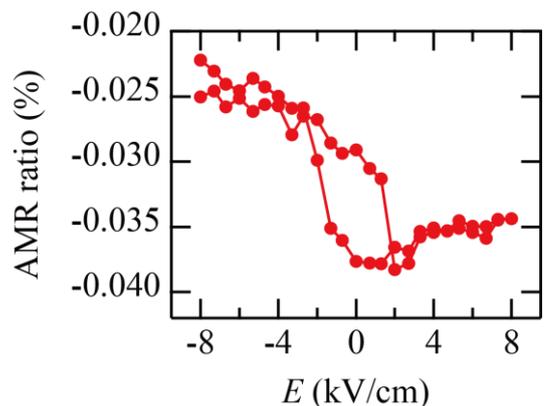


Fig. 2. Electric field dependence of the AMR ratio for an epitaxial Co₂FeSi/PMN-PT(001).

Voltage-controlled, strain-mediated magnetic domains in a multiferroic heterostructure having interfacial perpendicular magnetic anisotropy

S. P. Pati¹, I. Suzuki², S. Sugimoto² and T. Taniyama¹

¹Department of Physics, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8602, Japan

²National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Significant research activities on voltage control of magnetism are progressing because of its profound physics and enormous potential for application. Recently demonstrated memory and logic devices use an interfacial multiferroic (iMF) heterostructure in order to achieve ultra-low power dissipation in the device [1,2]. To achieve high magnetoelectric coefficient (α) for higher efficiency of the device, artificial iMF heterostructures are favorable rather than single phase multiferroics. There are several ways to demonstrate iMF materials i.e. mediated by strain, exchange bias, charge, and redox etc. Strain mediated iMF comprising a ferromagnet (FM) and a ferroelectric (FE) material are proved to be promising candidates. In this work, we demonstrate the effect of voltage induced polarization switching of a FE PMN-PT substrate on the magnetic domain switching of coupled perpendicularly magnetized Ni/Cu multilayers.

We fabricated a multilayer heterostructure of PMN-PT (001) (sub.)/Fe(1)/Cu(9)/[Ni(2)/Cu(9)]_s/Au(5) by using ultra-high vacuum molecular beam epitaxy (MBE). X-ray diffraction measurement confirmed the epitaxial growth of the multilayers. Room temperature magnetic hysteresis measurements in the in-plane and out-of-plane magnetic fields by a vibrating sample magnetometer (VSM) reveals the interfacial perpendicular magnetic anisotropy (iPMA) due to tensile strain in the Ni layers sandwiched between the Cu layers. One of the main challenges in realizing multiferroic based magnetoelectric memories is to switch perpendicular magnetic anisotropy with a control voltage. Electric field dependent magnetic domain structure was captured by magneto-optical Kerr effect (MOKE), where voltage was applied across the thickness of the heterostructure. Fig. 1 (a) and (b) demonstrates the Kerr microscopy results measured at 0 V and +50V respectively with a magnetic field of -45 Oe. A clear change of contrast was demonstrated attributing the voltage induced domain switching. A gradual evolution of magnetic domains was realized by varying the applied voltage. This result was supported by voltage dependent Kerr spectroscopic signal, which exhibits mostly a hysteresis like curve due to non-volatile switching of PMN-PT polarization (109° switching). In general, when FE domains of PMN-PT undergo 109° switching, it leads to a change in the elongated diagonal direction from the [110] axis to the [-110] axis due to the rhombic distortion. Strain mediated magnetization switching occurs with the application of electric field $\approx \pm 60$ V (≈ 1.2 kV/cm). Moreover, gradual increase in the initial value of Kerr signal was also detected while measuring minor loops of different cyclic electric fields (Fig.2). Distinct voltage induced lattice strain in the PMN-PT substrate should play an important role in the switching process of the perpendicular magnetization of the Ni layers, giving rise to the ME effect in the heterostructure.

This work was supported in part by JST CREST Grant No. JPMJCR18J1, JSPS Bilateral Joint Research Projects Grant No. JPJSBP120197716, and the Asahi Glass Foundation.

Reference

- 1) N.A. Spaldin *et al.* Nat. Mater. **18**, 203 (2019)
- 2) J.-M Hu *et al.* Nat. Commun. **2**, 553 (2011)

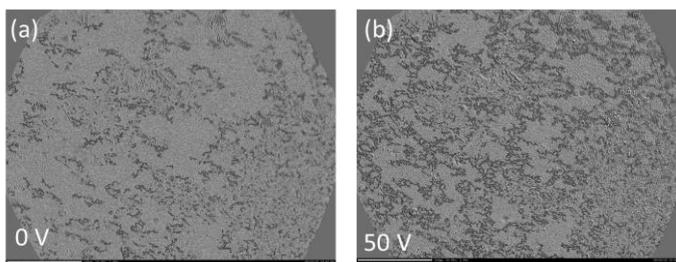


Fig. 1 Voltage dependent magnetic domain structure in FE/FM heterostructure with application of a gate voltage of (a) 0 V and (b) 50 V

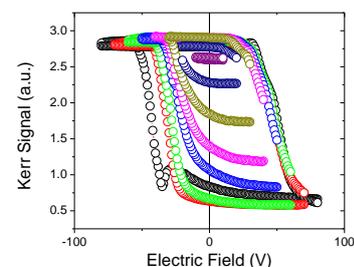


Fig. 2. Electric field dependent Kerr signal demonstrating the multilevel switching of magnetization.

Fe₃Si/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})-PbTiO₃ 構造の磁気伝導特性

藤井竣平¹, 宇佐見喬政¹, 山田晋也^{2,1}, 白土優^{3,2}, 中谷亮一^{3,2}, 浜屋宏平^{2,1}
(¹阪大基礎工, ²阪大基礎工 CSRN, ³阪大工)

Magnetotransport properties of a Fe₃Si/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})-PbTiO₃ interfacial multiferroic heterostructure

S. Fujii¹, T. Usami¹, S. Yamada^{2,1}, Y. Shiratsuchi^{3,2}, R. Nakatani^{3,2}, K. Hamaya^{2,1}

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

強磁性体/強誘電体ヘテロ界面を用いたマルチフェロイクの応用が期待されている[1]. これまで、様々な強磁性薄膜/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})-PbTiO₃ (PMN-PT)ヘテロ構造において磁化や磁気異方性等の電界制御が報告されているが[2], ホイスラー合金 Fe₃Si/PMN-PT 系の報告例はない. 本講演では、分子線エピタキシー(MBE)を用いて作製した Fe₃Si/PMN-PT 界面マルチフェロイク構造の作製とその磁気伝導特性について述べる.

MBE[3]を用いて Fe₃Si 薄膜(膜厚: ~30 nm)を PMN-PT(001)基板上に基板温度 350°Cで成長したところ、RHEED 像は明瞭なストリークパターンを示したことから、2次元エピタキシャル成長に成功したと考えられる. 面内 XRD 測定から Fe₃Si 薄膜は PMN-PT(001)基板に対して面内に 45° 回転して成長していることが判明した. また、4 回対称の{111}ピークの観測から、Fe₃Si 薄膜中には DO₃ 規則構造が形成されていることが確認された.

Fe₃Si 薄膜の面内結晶方位[100]または[110]方向に電流 I を印加することのできる 2 種類のホールバーを作製し (Fig.1 挿入図), 静磁場を約 2 kOe 印加した状態で面内に回転しながら抵抗値 R の変化を測定した. 抵抗値の変化から $AMR(\%) = \{ [R(\phi) - R_{\perp}] / R_{\perp} \times 100 \}$ の角度 (ϕ) 依存性を算出した結果を Fig. 1 に示す. ここで、 ϕ は電流 I と印加磁場方位のなす角である. 電流 I を [110] 方向に印加した場合は AMR 比が負で比較的大きな値を示す一方で、[100] 方向に対しては正を示し、その大きさは 4 分の 1 程度であった. このような AMR 比の正負混在の挙動は、Fe₃Si/GaAs(001) エピタキシャル薄膜の先行研究と一致しているが[4], 詳細なメカニズムは未だ不明である.

これらのホールバー試料に対して、PMN-PT の [001] 方向に電界 E を -8 kV/cm から +8 kV/cm の範囲で印加し、各電界において、 $EMR(\%) = [AMR(E) - AMR(0)] / AMR(0) \times 100$ としてプロットした結果が Fig. 2 である. EMR 比の変化は Fe₃Si[100] 方向のホールバー試料の方が顕著であることがわかる. この挙動は、電界印加時に PMN-PT 中に生じる分極方向 (Fig. 2 挿入図)[5] と関連しており、Fe₃Si/PMN-PT 界面の磁気弾性結合を捉えている結果であると考えられる.

本研究は、JST-CREST(JPMJCR18J1)の支援を受けた.

- [1] T. Taniyama, *J. Phys: Condens. Matter* **27**, 504001 (2015).
- [2] T. Wu *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 012504 (2011).
- [3] K. Hamaya *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132117 (2008).
- [4] H. Y. Hung *et al.*, *J. Cryst. Growth* **323**, 372 (2011).
- [5] S. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 137203 (2012).

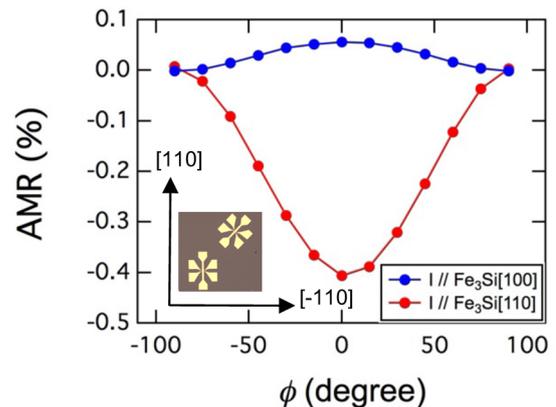


Fig. 1. AMR ratio for Fe₃Si[100] and [110] Hall-bar devices. $\phi = 0$ means that the current direction is parallel to the external magnetic field of 2 kOe.

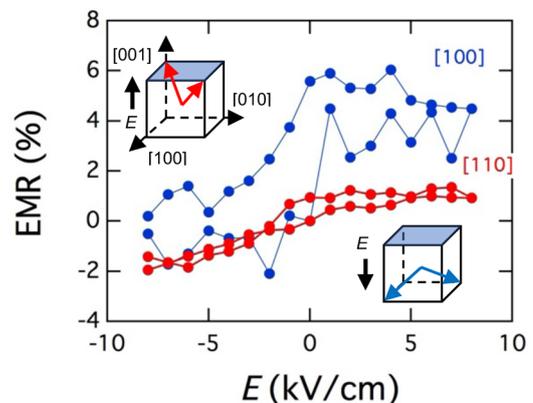


Fig. 2. EMR ratio for Fe₃Si[100] and [110] Hall-bar devices. The inset shows the polarization vector under different voltages. The red and blue arrows in the cubic crystal indicate the direction of the polarization in PMN-PT.