## 高飽和磁化・垂直磁化 BiFeO3 系強磁性・強誘電薄膜材料の探索 - 磁気特性に及ぼす Fe サイトの Co. Ni 置換効果 -

鈴木悠太, 尾関拓海, 江川元太, 吉村哲

(秋田大)

Development of BiFeO<sub>3</sub> based multiferroic thin film materials with large saturation magnetization and perpendicular magnetic anisotropy – Effect of Co and/or Ni substitution against Fe on magnetic properties –

Y. Suzuki, T. Ozeki, G. Egawa, S. Yoshimura

(Akita Univ.)

<u>**はじめに</u>** 室温で反強磁性・強誘電性を有する BiFeO<sub>3</sub>の Bi<sup>3+</sup>や Fe<sup>3+</sup>を,適切な価数を有する元素で置換する ことで,強磁性が発現することが既に報告されている.我々は,反応性パルス DC スパッタリング法を用いて 作製した(Bi,La)(Fe<sub>1-y</sub>Co<sub>y</sub>)O<sub>3</sub> 薄膜において y=0.28 で最大 78 emu/cm<sup>3</sup>の比較的高い飽和磁化,垂直磁気異方性の 大きさを示す指標の 1 つである,薄膜面垂直方向の保磁力( $H_c(\perp)$ )の値を薄膜面内方向の保磁力( $H_c(//)$ )の値で 割った( $H_c(\perp)/H_c(//)$ )値が 1.6 を報告した<sup>1)</sup>. 更なる磁気特性の改善を求めて本研究では, (Bi,La)(Fe,M)O<sub>3</sub>(M=Co and/or Ni)薄膜における, Fe に対する置換元素および置換量が磁気・誘電特性に及ぼす影響を検討した.</u>

**方法** (Bi,La)(Fe,M)O<sub>3</sub> (*M*=Co, Ni, (Co, Ni)) (BLFCO) (BLFNO) (BLFCNO) 薄膜(膜厚 200 nm)を反応性パルス DC スパッタリング法によって成膜した. 熱酸化膜付き Si 基板上に Ta(5 nm)/Pt(100 nm)を下地層として成膜し た. このとき Ta 層は DC 電源を用いて室温で, Pt 層は RF 電源を用いて 400℃で, BLFCO, BLFNO もしくは BLFCNO 層はパルス DC 電源を用いて 695℃で, それぞれ成膜を行った. Pt および BLFCO, BLFNO もしくは BLFCNO 薄膜を成膜する際, 結晶性の向上を図るため, VHF プラズマを照射した. スパッタリングターゲット には, La-Fe-(Co and/or Ni)-O 粉末, Fe 粉末, (Co and/or Ni)粉末を焼結させて作製した導電性ターゲットに Bi シ ートと(Co and/or Ni)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 100 kHz, 電力 150 W, ON : OFF 比を 3 : 2 の一定値とした. 組成評価はエネルギー分散型 X 線分光器(EDS)により, 磁気測定は振動試料型磁力計(VSM)により, 結晶構造については X 線回折装置(XRD) により, 誘電特性は強誘電テスターにより, それぞれ評価を行った.

**結果** Fig.1 に, BLFCO, BLFNO 薄膜の(*H*<sub>c</sub>(⊥)/*H*<sub>c</sub>(//))における Fe に対 する Coもしくは Ni 置換量依存性を示す. ここでは, いずれの薄膜にお いても Bi に対する La 置換量を 40~60 at%程度のものを掲載した. BLFCO 薄膜では、前述の通り( $H_c(\perp)/H_c(//)$ )はCo置換量の増加に伴い増 大し, Co 置換量 28 at%において最大値 1.6 が得られている. BLFNO 薄膜 では、(Hc(⊥)/Hc(//))もNi置換量の増加に伴い増大するが、その変化は大 きく Ni 置換量 30 at%において最大値 4.1 が得られた. いずれの薄膜に おいても、Co, Ni 置換量を増大させることで垂直磁気異方性が発現する ことが示唆され、特に BLFNO 薄膜についてはその傾向が顕著であった. また、XRD の結果から BLFCO(111)、BLFNO(111)のピークしか観測され ないため, 配向や結晶構造が変化した事による磁気特性の変化ではな く、それぞれの元素(La, Co, Ni)を置換した事により磁気特性に変化が 起きていると言える. Fig.2 に BLFC28O, BLFN30O 薄膜の磁化温度曲線 (M-T曲線)を示す. 10 kOeの磁界を薄膜面垂直方向に印加し, 温度は室 温(20℃)から 500℃まで変化させた. BLFNO, BLFCO それぞれの薄膜の M-T 曲線から dM/dT の温度依存性のグラフを作成し、そのマイナスの 値が最も大きい時の温度をキュリー温度(T<sub>c</sub>)とした. T<sub>c</sub>は, BLFCO 薄膜 は420℃であるのに対し、BLFNO 薄膜は470℃以上であった. これより、 Ni 置換の方が Tcの増大に効果が大きいことが判った. 当日の学術講演 会では、BLFCO、BLFNO 薄膜の他の磁気・誘電特性、CoとNiを共置換し た BLFCNO 薄膜の磁気特性についても述べる予定である.



Fig.1 Dependence of  $H_c(\perp)/H_c(l)$  on Co or Ni concentration of BLFCO or BLFNO films and XRD patterns of BLFCO and BLFNO thin films.



saturation magnetization of BLFCO and BLFNO thin films.

参考文献 1) T. Ozeki, D. Yamamoto, G. Egawa, and S. Yoshimura, Journal of the Magnetics Society of Japan, 46, 64-69 (2022)

# BiFeO3系強磁性・強誘電薄膜の磁気デバイス応用に向けた 低ダメージなリアクティブイオンエッチング条件の検討

Soumyaranjan Ratha, 江川元太, <sup>〇</sup>吉村 哲

(秋田大)

### Optimizing the Reactive Ion Etching Conditions with Minimal Damage for High Functional Magnetic Nano Device Application in BiFeO<sub>3</sub>-based Multiferroic Thin Films

Soumyaranjan Ratha, Genta Egawa, <sup>O</sup>Satoru Yoshimura

(Akita Univ.)

**| 広じめに** 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、電界駆動型の低消費電力な次世代電子デバイス用材料の1つとして期待されている. 強磁性・強誘電薄膜を高性能磁気デバイスに応用するためには、大きな飽和磁化(M<sub>s</sub>)、大きな垂直磁気異方性(K<sub>u</sub>)(もしくは1より十分に大きな、垂直保磁力( $H_{c\perp}$ )/面内保磁力( $H_{c\parallel}$ ))、大きな磁気 Kerr 回転角( $\theta_k$ )、小さな反転磁界もしくは保磁力、などの高い機能性が求められる. 著者らは近年、(Bi,Nd)(Fe,Co)O<sub>3</sub> 薄膜や(Bi,Eu)(Fe,Co)O<sub>3</sub> 薄膜において 140 emu/cm<sup>3</sup>の高い M<sub>s</sub>、(Bi,La)(Fe,Ni)O<sub>3</sub> 薄膜において 4.1 の高い  $H_{c\perp}$  /  $H_{c''}$ 、(Bi,La)(Fe,Co)O<sub>3</sub> 薄膜において 0.67°の高い $\theta_k$ 、(Bi,Eu)(Fe,Co)O<sub>3</sub> 薄膜において 0.8 kOeの低い $H_{c\perp}$  および $H_{c''}$ 、(Bi,La)(Fe,Co)O<sub>3</sub> 薄膜を制いて、局所電界印加によりその部分の磁化反転にも成功し、デバイス駆動の検証も行っている<sup>2)</sup>. しかしながら、これらの薄膜のデバイス実装を実現するためには、薄膜を微細素子加工する必要があるものの、BiFeO<sub>3</sub>系薄膜のエッチングによるダメージの有無およびそれによる特性変化の有無、などの検討が全く行われていない. BiFeO<sub>3</sub>系材料は、結晶構造や組成や薄膜内酸素含有量の変化により特性が簡単に劣化するため、エッチングにより薄膜にダメージが入らないようにする検討が必要不可欠である.本研究では、Arイオンミリングなどの物理的な手法よりもイオン衝撃が一般に小さいリアクティブイオンエッチング (RIE) に着目し、それに用いるガス種、ガス圧、電力などを変化させ、それらがエッチングレートや薄膜の特性の変化に及ぼす影響について検討した.

**方法** (Bi<sub>0.5</sub>Eu<sub>0.5</sub>)(Fe<sub>0.75</sub>Co<sub>0.25</sub>)O<sub>3</sub> (BEFCO) 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:3:2)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 Table.1 に示す条件で RIE を施した.磁気測定はマイクロ磁気 Kerr 効果測定装置 により,表面微細構造評価は原子間力顕微鏡(AFM)および磁気力顕微鏡(MFM)を用いた.

結果 Table 1 に, RIE の各条件およびその時の エッチングレートを示す.SF6ガスを使用した場 合のエッチングレートは極めて低く, CHF3ガス を使用した場合はガス圧を低く電力を高くした 場合に比較的高いエッチングレートが得られた. そこで, 1.0 nm/min 以上の値が得られた条件 2 と5において、薄膜の磁気特性に及ぼす影響を 調べた. Figure 1 に、磁気 Kerr 効果測定装置に より測定した,エッチングされていないドット の中心からエッチングされた領域に偏光レーザ ー位置を移動した時の局所保磁力の変化を示す. 酸素を混合しない条件5でエッチングされた領 域の保磁力が大きくなっており、別途評価した 表面凹凸・磁区サイズは平坦化・粗大化してい ることも確認された. 薄膜から酸素が抜けたこ とによるピン止めサイトの形成や結晶構造の変 化が起こったと思われる.

<u>参考文献</u> 1) S. Ratha et al., J. Soc. Mat. Eng. Res., 57, 0902B7 (2018) 2) M. Kuppan et al., Scientific Reports, 11, 11118 (2021)

Table 1 Etching conditions and etching rates in (Bi,Eu)(Fe,Co)O<sub>3</sub> thin films with various etching gases and process parameters.

			-	-	
Cond.	Etching	Flow rate	Pressure	Power	Etching rate
No.	gas	(SCCM)	(Pa)	(W)	(nm/min)
1	$SF_6/O_2$	50 / 5	4	100	~ 0.0003
2	CHF <sub>3</sub> /O <sub>2</sub>	50 / 5	4	100	~ 1.0
3	CHF <sub>3</sub> /O <sub>2</sub>	50 / 5	10	100	~ 0.30
4	CHF <sub>3</sub>	20	1	50	~ 0.62
5	CHF <sub>3</sub>	20	1	100	~ 1.5





### 反応性 MBE と固相エピタキシーによる Pr<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>薄膜の作製および物性評価

大石舜士<sup>1</sup>、横倉聖也<sup>1</sup>、島田敏宏<sup>1</sup>、長浜太郎<sup>2</sup> (<sup>1</sup>北海道大学、<sup>2</sup>山口大学)

Fabrication and characterization of Pr<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub> thin film by reactive MBE and solid phase epitaxy

S.Oishi<sup>1</sup>, S.Yokokura<sup>1</sup>, T.Shimada<sup>1</sup>, T.Nagahama<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Hokkaido Univ., <sup>2</sup>Yamaguchi Univ.)

### <u>緒言</u>

パイロクロア構造をとるイリジウム酸化物 R<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(R は希土類イオンまたはY イオン)は、スピン軌道相 互作用とクーロン相互作用が同程度の大きさであることから、ワイル半金属状態や強相関トポロジカル絶縁 体状態などの出現が予測されている。R = Pr では、比較的低温まで金属的な挙動を示し、ワイル半金属状態 の出現が報告<sup>1,2</sup>され、デバイス応用が期待される。これまで、Pr<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(PIO)の高品質な薄膜の作製は難しく bulk 試料の報告例が多かった。薄膜の作製には高温でのアニールが必要であるが、Ir は高温で揮発しやすい ため in-situ での成長が難しい。そこで、Ir の揮発を防ぐためにアモルファスの PIO 薄膜を作製し、その後大 気圧アニールをすることで、エピタキシャル成長した PIO 薄膜を得る先行研究<sup>1,2</sup> がいくつか報告されてい る。本研究では、反応性分子線エピタキシー(MBE)を用いることで高品質な PIO 薄膜を作製し、その物性を 評価することを目的としている。

#### <u>実験方法</u>

本実験では反応性 MBE により PIO 薄膜の作製を行った。 まず、PIO をアモルファスで蒸着し、いくつかの方法で大気 圧アニールを行った。膜構成は YSZ (111) /PIO である。構造 解析には X 線回折法 (XRD)、原子間力顕微鏡 (AFM)、X 線 光電子分光法 (XPS)、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた。 物性評価には磁気伝導特性の測定を行った。

#### 結果・考察

構造解析結果からPIOがエピタキシャル成長していること を確認した。作製した薄膜は、抵抗の温度依存性が金属的な ふるまいから半導体的なものに変化した。これはPIOでよくみ られるものである。

Fig.1 には PIO の異常ホール効果 (AHE) の測定結果を示す。 Fig.1 からわかるように非線形のホール効果を示した。PIO は 低温まで磁化曲線にヒステリシスループの兆候が見られない ことが知られている<sup>1</sup>。本実験で作製した薄膜はゼロ磁場で有 限の値を持ち、自発的ホール効果と呼ばれる特性を示した可能 性がある。これは PIO がワイル半金属であることを示唆して いる。

Fig.2 には磁場と電流が平行の時の磁気抵抗効果 (MR)の 測定結果を示す。作製した薄膜は低温でヒステリシスのない負の MR を観測した。この負の MR はワイル半金属由来のカイ



Fig.1 Temperature dependent AHE measured from PIO thin film



ラル異常によるものだと考えられ、磁気伝導特性の測定結果 Fig. 2 Temperature dependence of the MR at *B* // *I* から MBE での PIO 薄膜の作製に成功したといえる。

### 参考文献

<sup>1</sup>T. Ohtsuki, et al., Appl. Phys. 127, (2020). , <sup>2</sup> Y. Li, et al., Adv. Mater. 33, (2021).

$$-53-$$

### 反強磁性 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の有限サイズ効果と次元クロスオーバー

鮫島 寛生 ', 氏本 翔 ', 堤 朗 ', 豊木 研太郎 '.2.3, 中谷 亮一 '.2.3, 白土 優 '.2.3 (1 大阪大学大学院工学研究科, 2 大阪大学先導的学際研究機構, 3 大阪大学 CSRN)

Finite size effect and dimensional crossover in antiferromagnetic epitaxial Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films Hiroki Sameshima<sup>1</sup>, Kakeru Ujimoto<sup>1</sup>, Rou Tsutsumi<sup>1</sup>, Kentaro Toyoki<sup>1,2,3</sup>, Ryoichi Nakatani<sup>1,2,3</sup>, and Yu Shiratsuchi<sup>1,2,3</sup>

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

はじめに 磁性薄膜においては,有限サイズ効果による磁気相転移温度の変化[1]や次元クロスオーバー[2] が報告されている.従来、これらの現象は強磁性超薄膜で多く報告されており、反強磁性薄膜においてはほ とんど報告されていない.これは、反強磁性薄膜が正味の磁化を持たないため、磁気相転移温度の検出が困 難であることが一因である.我々は,異常ホール効果を用いて反強磁性材料 Cr2O3のネール温度を検出でき ることを示し、膜厚10nmでのネール温度と臨界指数などを報告してきた[3].本研究では、Cr2O3超薄膜に おけるネール温度と臨界指数の Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜厚依存性について報告する.

実験方法 DC マグネトロンスパッタリング法を用いて、Pt(2 nm)/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>//α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)薄膜,及び、Pt(2 nm)/ Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt(20 nm)//α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)薄膜を製膜した. Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜厚は, 4.0~190 nm とした. 構造評価には, 反射高速 電子回折法とX線回折法を用いた.作製した薄膜をフォトリソグラフィ法及びArイオンミリング法を用い て,幅5μm長さ25μmのホール素子に微細加工した.ネール温度と臨界指数を決定するために,残留ホー ル伝導度の温度依存性を測定した.測定方法の詳細は我々の既報[3]を参照されたい.

実験結果 図 1(a)に臨界指数の Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜厚依存性を示す. 40 nm以上で臨界指数は約0.325 となり、これは3次元 Ising モデルに対する値とほぼ一致する.一方,15 nm 以下では, 臨界指数は 0.25~0.125 に減少しており、これは 2 次元 Ising モデル,あるいは2次元 XY モデルに相当する値で ある. すなわち, 約15 nm で次元クロスオーバーが生じる. この膜厚は、強磁性薄膜[2]と比較すると約10倍厚い.図 1(b)に、ネール温度の Cr2O3 膜厚依存性を示す. 膜厚の低 下に伴い, ネール温度が低下しており, 有限サイズ効果が 生じていることが分かる. 図中の実線は, 以下に示す有限 サイズ効果のスケーリング式である.

 $[T_{\rm N}(\infty) - T_{\rm N}(t_{\rm Cr2O3})]/T_{\rm N}(t_{\rm Cr2O3}) = (t_{\rm Cr2O3}/t_0)^{-\lambda}$ 



図 1 (a) 臨界指数の膜厚依存性, (b) ネール温度

の膜厚依存性 λ及び to はシフト指数及びスピン相関長を表す.上式で実 験値をフィッテイングすることで、 $\lambda$  = 1.5 及び  $t_0$  = 3.0 nm と見積もられた. これらの値を強磁性薄膜 [1]と 比較すると、 λの値はほぼ同等であるが、 toの値は数倍大きいことが分かった. これは、 Cr<sup>3+</sup>スピン同士の長 距離相互作用に起因すると考えられる.当日はネール温度と臨界指数の詳細な決定方法や歪みとネール温度

#### 参考文献

の関係についても議論する.

[1]. F. Huang et al., "Finite-size scaling behavior of ferromagnetic thin films", J. Appl. Phys. 73, 6760 (1993). [2]. Y. Li and K. Baberschke, "Dimensional crossover in ultrathin Ni(111) films on W(110)", Phys. Rev. Lett. 68, 1208 (1992). [3]. X. Wang, Y. Shiratsuchi et al., "Increase of Néel temperature of magnetoelectric Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film by epitaxial lattice matching", Appl. Phys. Lett. 121, 182404 (2022).

# Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ir 3 層膜における反強磁性スピン反転の電界変調

氏本 翔<sup>1</sup>, 鮫島寛生<sup>1</sup>, 豊木研太郎<sup>1,2,3</sup>, 中谷亮一<sup>1,2,3</sup>, 白土 優<sup>1,2,3</sup> (1 大阪大学大学院工学研究科, 2 大阪大学先導的学際研究機構, 3 大阪大学 CSRN)

Electric-field modulation of antiferromagnetic spin reversal field in Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ir trilayer Kakeru Ujimoto<sup>1</sup>, H. Sameshima<sup>1</sup>, K. Toyoki<sup>1,2,3</sup>, R. Nakatani<sup>1,2,3</sup>, and Y. Shiratsuchi<sup>1,2,3</sup> (1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 OTRI, Osaka Univ., 3 CSRN, Osaka Univ.)

**はじめに**反強磁性材料は、超高密度磁気記録やテラヘルツ素子等の新規スピントロニク スデバイスの基盤材料として期待されている.一方、反強磁性体は自発磁化を示さないこ とから、磁気モーメントの検出・制御方法が課題である.我々は、反強磁性材料として、 電気磁気効果を示す Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を用いて、界面反強磁性スピンの検出・制御を進めており、こ れまでに、Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 積層膜においてゲート電圧を印加することで界面スピンの反転磁場 の変調することを示してきた [1]. この効果は、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>層と非磁性重金属層の界面格子整 合・界面電場の影響を強く受けるため、層構造の対称性、非磁性材料の選択が重要となる ことが予測される.本研究では、バッファー層として Ir を用いた Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ir 積層膜に対し て、ゲート電圧による界面スピン反転磁場の変調について検討し、Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 積層膜と比 較することで、非磁性重金属材料の影響について検討した.

**実験方法** 試料として, Pt(2 nm))/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(10, 15 nm)/Ir(20 nm)/α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)subs.を用いた. 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. X 線回折法, 反射高速電子線回 折法を用いて, 作製した薄膜の結晶構造・界面平坦性を評価した. ゲート電圧を印加可能な ホール素子を作製し, 異常ホール効果測定を行った. ホール効果測定時の印加磁場は, 面直 方向, 最高印加磁場を±9 T とした.

<u>実験結果</u> Fig. 1 に, Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(10 nm)/Ir 薄膜のホー ル効果曲線を示す. 磁場に対して明確なヒステリシ スを示す. また, 残留磁化比が 1 であることから, 試料が垂直磁気異方性を持つことが分かる. この結 果は, Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Pt 積層膜と同様に, Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ir 積層 膜においても,等温での界面スピン反転が可能であ ることを示す. また, 挿入図に示すように, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層に対する *I-V* 曲線は非線形となり, 電気伝導率が  $\sigma < 10^{-5} (\Omega \cdot m)^{-1} となることから, Ir 上の Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>$ 薄膜も 10 nm まで薄くしても高い絶縁性を保つことが分かった.



Fig.1 Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(10 nm)/Ir 3 層膜に対する ホール効果曲線,および, *I-V*曲線

参考文献 [1] K. Ujimoto, Y. Shiratsuchi et al., INTERMAG2023, BOB-08.

# 単結晶 Co/Ru/Co 人工反強磁性体/PMN-PT の電界効果

久田優一\*, 小森祥央\*, 井村敬一郎\*\*, 谷山智康\* (\* 名大理, \*\* 名大教養) Electric field effects on single crystal Co/Ru/Co synthetic antiferromagnets/PMN-PT \*Y. Hisada, \*S. Komori, \*\*K. Imura, \*T. Taniyama (\* Dept. Phys., Nagoya Univ., \*\* ILAS, Nagoya Univ.)

### <u>はじめに</u>

CoとRuからなる人工反強磁性体 (SAF) は、Co層間に働く反強磁性的層間磁気結合に起因する興味深い 磁気特性のために広く研究されている構造系の一つである。最近、我々は、このCo/Ru/CoSAFと強誘電体 Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> (PMN-PT) とのヘテロ構造系において、電界印加によるSAFの磁気異方性の変化の 振る舞いが Co層間に働く層間磁気結合の強さに大きく依存することを見出した<sup>1)</sup>。その物理的起源の解明 には、Co/Ru多層膜の結晶性を向上させることがカギとなるが、CoとRuの格子ミスマッチ度は8%程度と 大きく、単結晶で成長させた報告例は少ない<sup>2)</sup>。今回、我々は、SAFへの電界効果のより詳細な起源を明ら かにするため、強誘電体 PMN-PT 上に成長させた単結晶 Co/Ru/CoSAF の磁性の電界効果について報告する。

### <u>実験結果</u>

強誘電体 PMN-PT と同じペロブスカイト構造を有し、同程度の格子定数を持つ SrTiO<sub>3</sub>(011) (STO) 基板上 に、Ru (3 nm)/Co (4 nm)/Ru (0.8 nm)/Co (3 nm)/Ru (5 nm) を、分子線エピタキシー法を用いて作製した。成膜 温度は、第1層 Ru では 600 ℃、残りの Ru/Co/Ru/Co 層では  $T_s$  ℃ (RT, 120 ℃, 300 ℃) とした。また、作製し た試料の磁気特性を振動試料型磁力計により評価した。図 1(a)に、作製した SAF の膜構成の模式図を、(b)-(d) に、温度  $T_s$  で成膜した第4層目の Co (4 nm)を成長した直後の RHEED 像を、(e)-(f)に対応する磁化の面内磁 場依存性 (*M-H* 曲線) をそれぞれ示す。RHEED 像から、Co と Ru の格子ミスマッチ度が 8%にも関わらず、 各  $T_s$ に対して Co/Ru がエピタキシャル成長していることが確認できる。一方、*M-H* 曲線から、 $T_s$ の上昇に伴 い、残留磁化及び保磁力が増大することがわかる。これは、 $T_s$ の上昇に伴う Co/Ru 界面での原子拡散等によ り、Co 層間に働く反強磁性的層間磁気結合が弱くなることを示唆している。以上の結果から、 $T_s = RT$ の条 件下で、STO(011) 上に良質な単結晶 Co/Ru/Co SAF の作製が可能であることが確認できた。講演では、上記 の最適化条件を基に、PMN-PT 上にエピタキシャル成長させた Co/Ru/Co SAF における電界効果についての結 果について詳細に議論する。本研究の一部は、JST CREST JPMJCR18J1, JST FOREST JPMJFR212V, JSPS 科研 費 JP21H04614 の支援を受けたものです。

#### 参考文献

1) Y. Hisada, et al., Appl. Phys. Lett. 122, 222402 (2023). 2) K. Ounadjela, et al., Phys. Rev. B 45, 7768 (1992).



Fig. 1 (a) Schematic illustration of a Ru (3 nm)/Co (4 nm)/Ru (0.8 nm)/Co (3 nm)/Ru (5 nm)/STO(011). RHEED patterns [(b)-(d)] and *M*-*H* curves [(e)-(g)] at  $T_s = RT$ , 120 °C, and 300 °C, respectively. A magnetic field is applied along the STO[100] direction.