

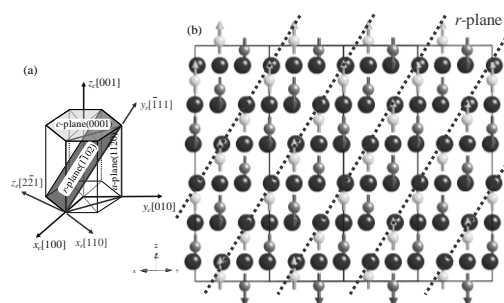
強磁性金属/*r* 面配向 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜の結晶構造解析及び磁気特性Crystal Structure and Magnetic Properties of Ferromagnetic Metal / *r*-oriented Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Multilayer○隅田貴士<sup>1</sup>, 橋本浩佑<sup>1</sup>, 中村拓未<sup>2</sup>, 林佑太郎<sup>2</sup>, 永田知子<sup>3</sup>, 山本寛<sup>3</sup>, 岩田展幸<sup>3</sup>Takashi Sumida<sup>1</sup>, Kosuke Hashimoto<sup>1</sup>, Takumi Nakamura<sup>2</sup>, Yutaro Hayashi<sup>2</sup>,Tomoko Nagata<sup>3</sup>, Hiroshi Yamamoto<sup>3</sup>, Nobuyuki Iwata<sup>3</sup>

Abstract: We report the crystal structures and magnetic properties of *r*-plane oriented [Pt/Co]<sub>3</sub>/Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> multilayers fabricated by DC-RF magnetron sputtering method. The grown grains showed elongated shapes along [-111] direction. The orientation and lattice parameter of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> film was checked from x-ray diffraction experiment. (*n* -*n* 0 2*n*) type diffraction signals were observed in 2θ-θ pattern where *n*=integer, indicating the *r*-plane oriented deposition. The lattice parameter was 0.363 nm, which was in agreement with that of the bulk. The magnetic property of the multilayer was investigated from magnetic field (*H*) and temperature (*T*) dependences of the in-plane magnetizations (*M*). The double hysteresis character was observed in in-plane *M*-*H* curve at 5 K~180 K. Hysteresis loop disappeared, and superparamagnetic behavior above 200K.

## 1. 背景

Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>はコランダム構造を有する反強磁性体

(Antiferromagnetic : AFM)である。同時に電界印加により磁化が誘起される電気磁気(Magnetolectric : ME)効果を示す物質として知られている<sup>[1]</sup>。一般的にその効果は非常に小さいためデバイス応用は不可能である<sup>[2-4]</sup>。1957年に Meiklejohn, Bean らによって新しい磁気異方性が報告されている<sup>[5]</sup>。強磁性体(Ferromagnetic : FM)/AFM 積層膜界面における磁氣的交換相互作用によって、FM の磁化曲線がシフトすることが知られている。このシフトする磁場を交換バイアス磁場( $H_{EB}$ )と呼ぶ。 $H_{EB}$ は積層膜界面における AFM(本研究の場合 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜)のスピンの大きさに比例する<sup>[6]</sup>。したがって、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の ME 効果を利用して、電界印加による  $H_{EB}$  の制御が可能と考えている。疑似ペロブスカイト系のほとんどの AFM 酸化物材料では一つのテラス上で AFM 的配列をしている。これに対し Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は高さの異なるテラス上でもスピンの 2 次的に強磁性的な配列を示す。図 1(a)の *a* 面を垂直方向から見た図が(b)の結晶構造の図となっている。(b)点斜線が *r* 面となる。O に沿った Cr のスピンを見ると *r* 面では強磁性的配列をしていることがわかる。これまでの報告では、*c* 面配向 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に関するものがほとんどであった。しかしながら 2 次的に強磁性的に配列すると考えられる *r* 面配向膜での報告はない。そのため、調査する必要がある。しかしながら、下部電極を持たないため、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜には直接電界を印加できない。本報告では、Co/Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜に電界を印加する場合は、基板を通して行った。

図 1 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の結晶構造

(a)結晶面 (b)結晶構造

(a)の *a* 面を垂直方向から見た図が(b)の結晶構造の図となっている。(b)点斜線が *r* 面となる。O に沿った Cr のスピンを見ると *r* 面では強磁性的配列をしていることがわかる。

## 2. 目的

本研究の目的は、FM 材料である *r* 面配向 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜上に FM 金属である Co および磁氣的交換相互作用を緩和する Pt を積層し、界面での磁氣的交換相互作用による交換バイアス磁場を利用して一方向への磁化曲線のシフト( $H_{EB}$ )を観測し、*r* 面が *c* 面より  $H_{EB}$  を大きく変化させる有効な面であるか調査することである。本報告では、[Pt/Co]<sub>3</sub>/Pt / *r* 面配向 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜の磁気特性について、主に報告する。

## 3. 実験条件

*r* 面サファイア基板(*r*-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)をアセトン、エタノールで洗浄し、1050°C で 12 時間大気中でアニール処理を行った。DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて積層膜を成膜した。Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の成膜条件は基板温度を 580°C、導入ガス O<sub>2</sub>/Ar 比を 0.25 (2/8ccm)とした。成膜時間は 2 時間とし、成膜後酸素 0.1MPa 中で降温した。Pt, Co 薄

膜の成膜条件は、基板温度を 100°C、導入ガス Ar を 10ccm、1Pa とし、膜厚は Pt に関して約 0.5nm, Co に関して約 1nm とした。成膜はすべて *in-situ* で行った。Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜成膜後に Pt を成膜し、[Pt/Co]を 3 回繰り返し堆積させ、[Pt/Co]<sub>3</sub>/Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜を作製した。評価は結晶状態の評価に X 線回折(XRD) (Bruker D8 Discover)を用いた。薄膜表面の評価に走査型プローブ顕微鏡 (SPM)(SII)を用いた。磁気特性を Magnetic Property Measurement System (MPMS3) (QUANTUM DESING)の DC スキャンモードにより測定した。等温磁場-磁化変化(*M-H* カーブ)および磁化の温度変化(*M-T* カーブ)を測定した。

#### 4. 結果及び考察

##### 4.1 表面像

図 2 に 5×10mm<sup>2</sup> Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上に成膜した[Pt/Co]<sub>3</sub>/Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜の表面像を示す。走査エリアを 5×5μm<sup>2</sup> とした。表面像より、[-111]方向に沿った縦長のグレインが成長していた。平均面粗さ(*Ra*)は 1.2nm であった。Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜が格子ミスマッチを緩和するために発生した溝が[Pt/Co]層を積層した後も観測された。

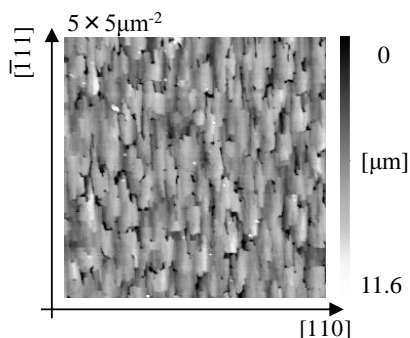


図 2 [Pt/Co]<sub>3</sub>/Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜の表面像

走査エリアを 5×5μm<sup>2</sup> とした。[-111]方向に沿った縦長のグレインが成長していた。

##### 4.2 X 線回折

基板ピークの低角側に *r* 面配向の Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜のピークを確認した。Pt 及び Co ピークは確認することができなかった。Pt, Co 共に膜圧が 1nm 以下と薄く結晶化していないためと推測している。Nelson-Riley 関数より面直方向での格子定数を見積もった結果、0.363nm となった。*r* 面 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のバルク値 0.3627nm と一致していた<sup>[8]</sup>。

##### 4.3 磁気特性

図 3 に面内での *M-H* カーブを示す。5K から 180K 以下において、ゼロ点を中心とした二つのヒステリシス (ダブルヒステリシス) ループを観測した。低磁場領域では Co 強磁性の特性によってドメインが反転し、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜界面近傍の Co は Cr スピンとの磁氣的結合

によって、より大きな反転磁場が必要となり、ダブルヒステリシスが観測されたと予想している。200K 以上ではこのヒステリシスループは消失し、超常磁性的な振る舞いを示した。低温側での振る舞いと同様に、磁気モーメントは約 1.5T で飽和した。

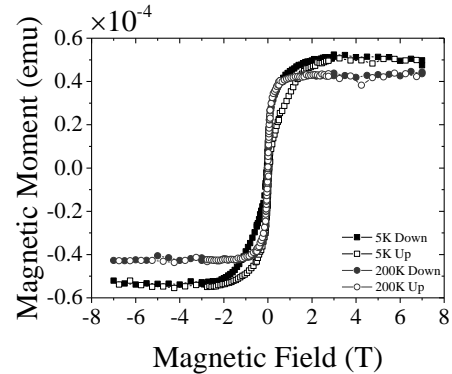


図 3 5K と 200K での面内 *M-H*

ゼロ点を中心としたダブルヒステリシスループを観測した。200K 以上では消失し、超常磁性的な振る舞いを示した。

#### 5. まとめ

*r* 面配向 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 上に Pt, Co を堆積させた[Pt/Co]<sub>3</sub>/Pt/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜を DC-RF マグネトロンスパッタ法を用いて作製し、結晶構造解析及び磁気特性の解析を行った。

表面像より、[-111]方向に沿った縦長のグレインが成長していた。*Ra* は 1.2nm であった。Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜が格子ミスマッチを緩和するために発生した溝が[Pt/Co]層を積層した後も観測された。

X 線回折より面直方向での格子定数は 0.363nm と見積もることができ、バルク値と一致していた。

面内方向での磁場-磁化曲線測定した。磁場-磁化曲線から低温側において、ゼロ点を中心としたダブルヒステリシスループを観測した。低磁場領域では Co 強磁性の特性によってドメインが反転し、Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜界面近傍の Co は Cr スピンとの磁氣的結合によって、より大きな反転磁場が必要となり、ダブルヒステリシスループが観測されたと予想している。当日、電磁場冷却却の結果を報告し、*H*<sub>EB</sub> の変化を議論する。

#### 6. 参考文献

- [1] M. Fiebig: J. Phys. D **38** (2005) R123.
- [2] D.N. Astrov, J. Exptl. Theoret. Phys. **40**(1961)1035.
- [3] E. Kita, et al., J. Appl. Phys. **50** (1979) 7748.
- [4] H. Wiegmann, et al., Ferroelectrics **162** (1994) 141.
- [5] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, Phys. Rev. **105** (1957) 904.
- [6] X. Chen, et al., Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 202508.