

(Bi,A)(Fe_{1-x}Co_x)O₃ (A = Ca, Sr, Ba) 強磁性・強誘電性薄膜の磁気特性とその起源に関する検討

Magnetic properties of (Bi,A)(Fe_{1-x}Co_x)O₃ (A = Ca, Sr, Ba) multiferroic thin films and consideration on the origin of their magnetic properties

秋田大理工 (M2)尾関 拓海, (M1)鈴木 陸, 江川 元太, °吉村 哲

Akita Univ., Takumi Ozeki, Riku Suzuki, Genta Egawa, °Satoru Yoshimura

E-mail: syoshi@gipc.akita-u.ac.jp

はじめに 室温で反強磁性・強誘電性を有する BiFeO₃ (BFO) の Bi³⁺や Fe³⁺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_{1-x}Ba_x)FeO₃ 薄膜において 75 emu/cm³ の比較的高い飽和磁化が得られることを報告したりが、磁気異方性が薄膜面内方向であり、電圧駆動型磁気デバイス応用に適していなかった。これに対して、同様の成膜法で作製した (Bi_{1-x}La_x)(Fe_{0.7}Co_{0.3})O₃ 薄膜において、電圧駆動型磁気デバイス応用に有用な、70 emu/cm³ の比較的高い飽和磁化かつ垂直磁気異方性が得られた²⁾。そして、(Bi_{0.6-0.4}La_{0.4-0.6})(Fe_{1-x}Co_x)O₃ (x=0-0.3) 薄膜の結果³⁾から、本材料系における磁化および垂直磁気異方性の起源は B サイトの Co 置換であることが判った。本研究では、(Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃ 薄膜における更なる飽和磁化の増大および垂直磁気異方性の導出を目的として、(Bi,A)(Fe_{1-x}Co_x)O₃ (A= Ca, Sr, Ba) 薄膜を作製し、Co 置換が磁気特性に及ぼす影響を検討した。

方法 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、その上に、(Bi,A)FeO₃ (A=Ca, Sr, Ba) (BCFO, BSFO, BBFO) もしくは (Bi_{0.7-0.3}Ba_{0.3-0.7})(Fe_{1-x}Co_x)O₃ (x=0-0.36) (BBFCO) 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。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 °C で、BFO 系層はパルス DC 電源を用いて 695-850 °C で、それぞれ成膜を行った。反応性パルス DC スパッタリング法での成膜におけるパルス条件として、周波数 100 kHz, 電力 150 W, ON : OFF = 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), 磁気測定は振動試料型磁力計 (VSM), により評価を行った。

結果 BCFO, BSFO, BBFO それぞれの薄膜における磁気特性および誘電特性を評価した結果、BBFO 薄膜において、最も高い飽和磁化および強誘電性が得られた。これらの特性相違の要因は講演にて説明する。この結果から、Fe に対する Co 置換効果を調べる材料として BBFO 薄膜を選択した。Fig.1 に、Fe に対する Co 置換量が、0, 20, 36% の BBFCO 薄膜の飽和磁化における Bi に対する Ba 置換量依存性を示す。最も高い飽和磁化が得られる時の Ba 置換量は、Co 置換量が 0, 20, 36% と増大するに従い、50-55%, 40-45%, 35-40% と減少した。これより、A サイトの Ba 置換と B サイトの Co 置換の両方が強磁性の発現に寄与し、全置換量が 50-60% 程度になる時に明確にフェリ磁性化すると考えられる。Fig.2 に、BBFCO 薄膜の飽和磁化における Fe に対する Co 置換量依存性を示す。ここでは、それぞれの Co 置換量の BBFCO 薄膜において高い飽和磁化が得られる時の Ba 置換量のものを示した。参考までに (Bi,La)(Fe,Co)O₃ (BLFCO) 薄膜の飽和磁化も示す。20% までの Co 置換により、BLFCO 薄膜と同様に飽和磁化は増大し、最大で 90 emu/cm³ を超える値が得られた。図には示していないが、H_{c⊥}/H_{c∥} は 0.9 程度から 1.1 程度へと増大し、わずかではあるが垂直磁気異方性が誘導された。また、磁気 Kerr 回転角も 0.03° から 0.21° へと増大した。よって、BBFO 薄膜への Co 置換量の増大は、BLFCO 薄膜と同様に、磁気特性の改善に効果が有ると言える。ただし、20% 以上の Co 置換では、結晶性の劣化により、飽和磁化のみならず、垂直磁気異方性も磁気 Kerr 回転角も減少した。

参考文献 1) S. Yoshimura et al., *JJAP-STAP*, **57**, 0902B7 (2018). 2) M. Kuppan, S. Yoshimura et al., *Scientific Reports*, **11**, 11118 (2021). 3) S. Ratha, S. Yoshimura et al., 第 69 回応用物理学会春季学術講演会 発表予定

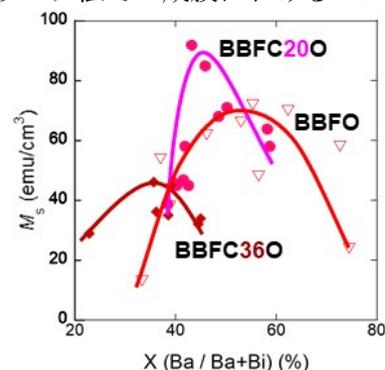


Fig.1 Dependence of M_s on Ba concentration of (Bi,Ba)(Fe,Co)O₃ films.

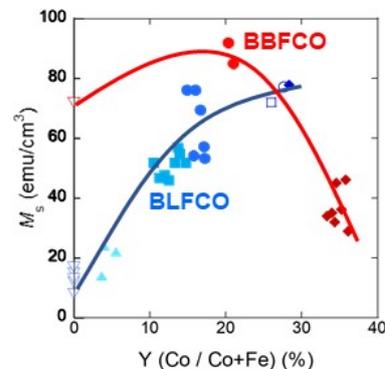


Fig.2 Dependence of M_s on Co concentration of (Bi, Ba or La)(Fe, Co)O₃ films.