



Title	エピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイクヘテロ構造の作製と磁気ダンピング定数の電界変調
Author(s)	山田, 晋也
Citation	大阪大学低温センターだより. 2026, 175, p. 5-11
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/104135
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

エピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイクヘテロ構造 の作製と磁気ダンピング定数の電界変調

基礎工学研究科 附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 山田 晋也

E-mail: yamada.shinya.es@osaka-u.ac.jp

1. はじめに

近年, IoT 技術や AI 技術の急速な発展に伴い, 半導体デバイスの発熱量の増加やそれに起因する様々な電力消費量の急増が深刻な社会問題となっている. このような背景のもと, ジュール発熱のない情報担体を用いた新しいデバイスの開発が求められている. 中でも近年注目されているのが, スピン波 (マグノン) を情報担体として用いたデバイスである [1-6]. スピン波は, 磁性体中で磁化の歳差運動が波として伝播する現象であり, その伝搬にジュール熱を伴わないことから, 低消費電力な情報担体として期待されるばかりでなく, 次世代の情報処理技術への応用も期待されている. このスピン波を情報担体として用いた次世代デバイス開発を目指す研究分野は「マグノニクス」と呼ばれ, 現在急速に発展している.

マグノニクスデバイスの実現には, スピン波の制御技術の確立が不可欠である. 従来は, 外部から交流磁場を印加することでスピン波の励起および制御をする手法が一般的であるが, この方法は電流印加でスピン波を制御するため, エネルギー効率が低く, 高集積化にも不向きであることから, 実用性の観点から課題が残っている. したがって, 真の超低消費電力マグノニクスデバイスの実現には, スピン波の励起 (生成) および制御 (ON/OFF) を全て電圧印加で実現することが極めて重要であり, その基盤技術を構築する必要がある.

そこで我々は, スピン波の励起および制御を全て電圧印加で実現するために, 表面弾性波材料で有名な圧電体ニオブ酸リチウム (LiNbO_3) とハーフメタル材料で有名な Co 基ホイスラー合金の一種である Co_2FeSi からなる界面マルチフェロイク構造 [7, 8] を着想した. LiNbO_3 は通信端末に搭載される表面弾性波デバイスの基板として採用されているが, 近年, 表面弾性波を利用したスピン波生成技術 [9] が報告されたことで, スピントロニクス分野でも広く用いられている材料である. Co_2FeSi は, ハーフメタル特性ばかりでなく, スピン波の長距離伝搬が示唆される低磁気摩擦特性 (低い磁気ダンピング定数) や高いキュリー温度など, スピントロニクス分野で有望な物性を示す高性能磁石材料である [10-13]. 最近では, $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{圧電体}$ 界面マルチフェロイク構造において, 巨大磁気電気結合効果 (高効率な磁化方向変化) [8, 14-18] や異方性磁気抵抗効果 (磁性体の電気抵抗が電流の向きと磁化のなす角度に依存して変化する現象) の電界変調 [19] などの興味深い現象が見られている. しかし, 図1(a), (b) に示すように, Co_2FeSi (立方晶構造) と LiNbO_3 (三方晶構造) は結晶構造が大きく異なり, 表面の原子配列も整合していないため, LiNbO_3 上に Co_2FeSi をエピタキシャル成長することは極めて困難であった.

今回我々は、 Co_2FeSi と LiNbO_3 の間にクロム (Cr) などの非磁性金属を挿入することで、エピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイク構造の作製に成功し、その Co_2FeSi がスピン波の長距離伝搬が示唆される低ダンピング定数 (~ 0.006) を示すことを明らかにした [20, 21]. さらに、この界面マルチフェロイク構造に電界を印加することで、磁気ダンピング定数が大きく減少 (電界印加前: $\sim 0.006 \rightarrow$ 電界印加後: ~ 0.004) することを明らかにした [21]. これは、スピン波の長距離伝搬が示唆される低ダンピング定数の領域で、磁化ダイナミクスを電圧で制御できることを実証した成果である.

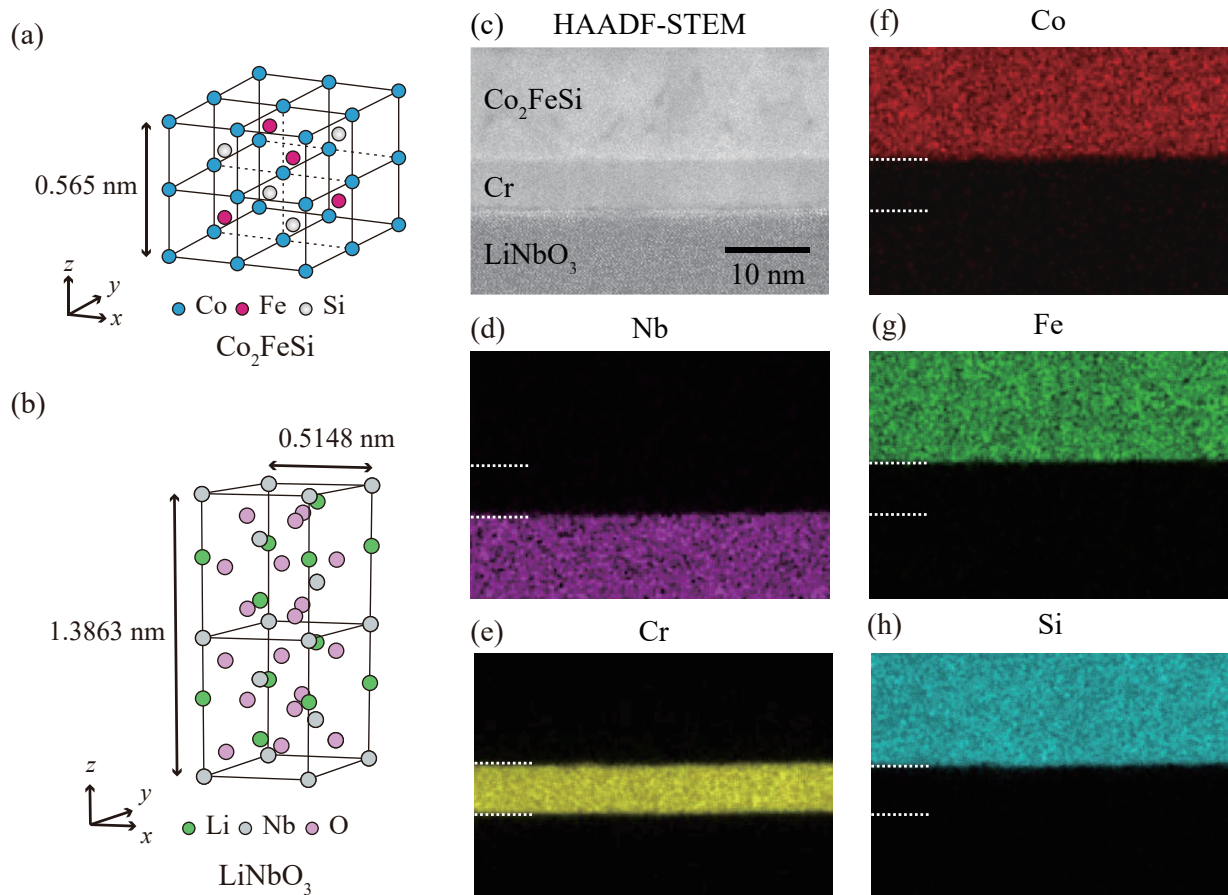


図1. [(a),(b)] 強磁性ホイスラー合金 Co_2FeSi (立方晶構造) と圧電体 LiNbO_3 (三方晶構造) の結晶構造. [(c)-(h)] 本研究で実証したエピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイク構造.

2 実験方法

分子線エピタキシー (MBE) 法を用いて、 LiNbO_3 128° Y-cut (LN-128Y) 基板上に、Cr バッファ層を 10 nm 形成した後、 Co_2FeSi 層を 30 nm 形成した [20-24]. なお、各層形成時の基板温度は 200°C とした. 図3(a) (後述) に示すように、コプレーナ導波路 (CPW) 上に試料を配置し、VNA-FMR 測定 (ベクトルネットワークアナライザ (VNA) と強磁性共鳴 (FMR) を組み合わせた測定法) [25] により Co_2FeSi 薄膜の磁気ダンピング定数を評価した.

3 結果と考察

各層形成後の反射高速電子線回折 (RHEED) 図形、X 線回折 (XRD) 測定の結果から、エピタキシ

ヤル $L2_1$ - $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LN-128Y}$ ヘテロ構造の形成を確認した。なお、両者のエピタキシャル関係やCr バッファ層の挿入効果の詳細については、参考文献[21] を参考いただきたい。図1(c)-(h) には、作製したエピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LN-128Y}$ ヘテロ構造の断面高角度散乱暗視野走査透過電子顕微鏡 (HAADF-STEM) 像とエネルギー分散型X 線分光(EDX)分析結果を示す。LN-128Y 基板上に平坦な表面を有するCr 層が形成されていることがわかる。今回、 200°C という低い基板温度で薄膜成長を行ったことで、Cr 層とLN-128Y 基板間の原子の相互拡散が抑制されていることが確認できる。平坦なCr 層上に Co_2FeSi 層が原子の相互拡散を抑制して形成されていることもわかる。これらの結果は、我々の低温MBE 技術[19, 22-24] により、 LiNbO_3 の圧電特性を損なうことなく、エピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LN-128Y}$ ヘテロ構造が実現できていることを示している。

次に、この試料に電界を印加した状態でXRD 測定を行った結果を図2(a) に示す。電界を -10 kV/cm から $+10 \text{ kV/cm}$ と変化させるにつれて、回折ピークの角度がシフトしていることがわかる。これは、電界印加で Co_2FeSi 層の c' 軸の格子定数 (z 軸に近い格子定数) [図2(b) の模式図参照] が変調されており、正 (負) の電界印加時には試料面直方向に圧縮 (伸張) 歪みが印加されていることを示している。以上の結果から、MBE 技術によってエピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LN-128Y}$ 界面マルチフェロイクヘテロ構造が実証できたと考えられる。

最後に、この試料の磁化ダイナミクスの測定を行った結果を図3 に示す。図3(a) に測定のセットアップの模式図を示す。試料の垂直方向に電界を印加した状態で、VNA-FMR 測定が可能なアンテナを作製した。測定の詳細については、参考文献[21] をご覧いただきたい。測定の結果、電界印加前 ($E = 0$) の Co_2FeSi 薄膜の磁気ダンピング定数の値は ~ 0.006 と算出され、我々のこれまでの報告値 ($0.0026\sim 0.0063$)[13] と同じオーダーの低い値を示した。図3(b) に磁気ダンピング定数の印加電界依存性を示す。今回測定した電界の範囲では、電界印加で Co_2FeSi 層の磁気ダンピング定数は ~ 0.006 から ~ 0.004 に大幅に低減した。これは、磁気弾性効果を介した Co_2FeSi 薄膜の磁気ダンピング定数の変調を捉えた結果であると考えられる。理論計算も含めた考察から、この磁気ダンピング定数の電界変調の起源は、歪み誘起によるフェルミ準位近傍の状態密度の変化によって定性的に説明できることがわかった。

本研究で実証したエピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイクヘテロ構造は、電界駆動

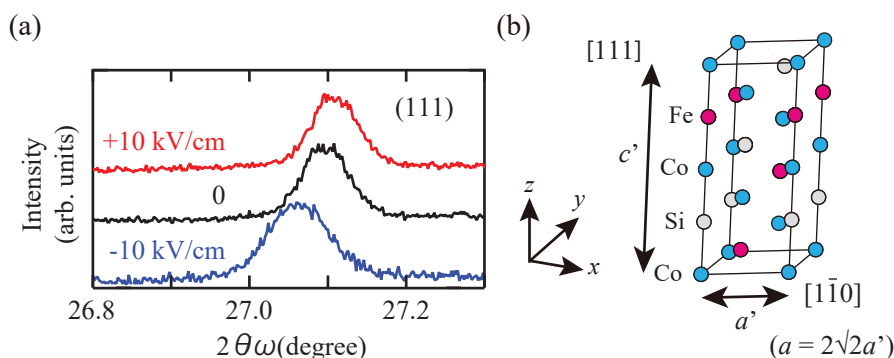


図2. エピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ ヘテロ構造に電界を印加した状態でXRD 測定を行った結果。電界の制御(ON/OFF)で LiNbO_3 の結晶歪みが Co_2FeSi 層中に伝搬する (電界で Co_2FeSi 層の c' 軸の格子定数が変調されている) 様子を捉えた。

可能なマグノニクスデバイスの実現に向けた一歩となる。

4 結論

bcc-Cr 挿入層の導入により、エピタキシャルハーフメタル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイクヘテロ構造を実証した。このエピタキシャル $L2_1\text{-Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ ヘテロ構造は、これまで報告されている理論値とほぼ同等の高い飽和磁化と、 ~ 0.006 という低い α を示した。電界印加によって α の値は ~ 0.006 から ~ 0.004 まで減少し、これは歪み誘起によるフェルミ準位近傍の状態密度の変化に起因する現象であると定性的に説明できる。本研究の結果は、電界駆動可能なマグノニクスデバイスの実現に向けた一歩となる。

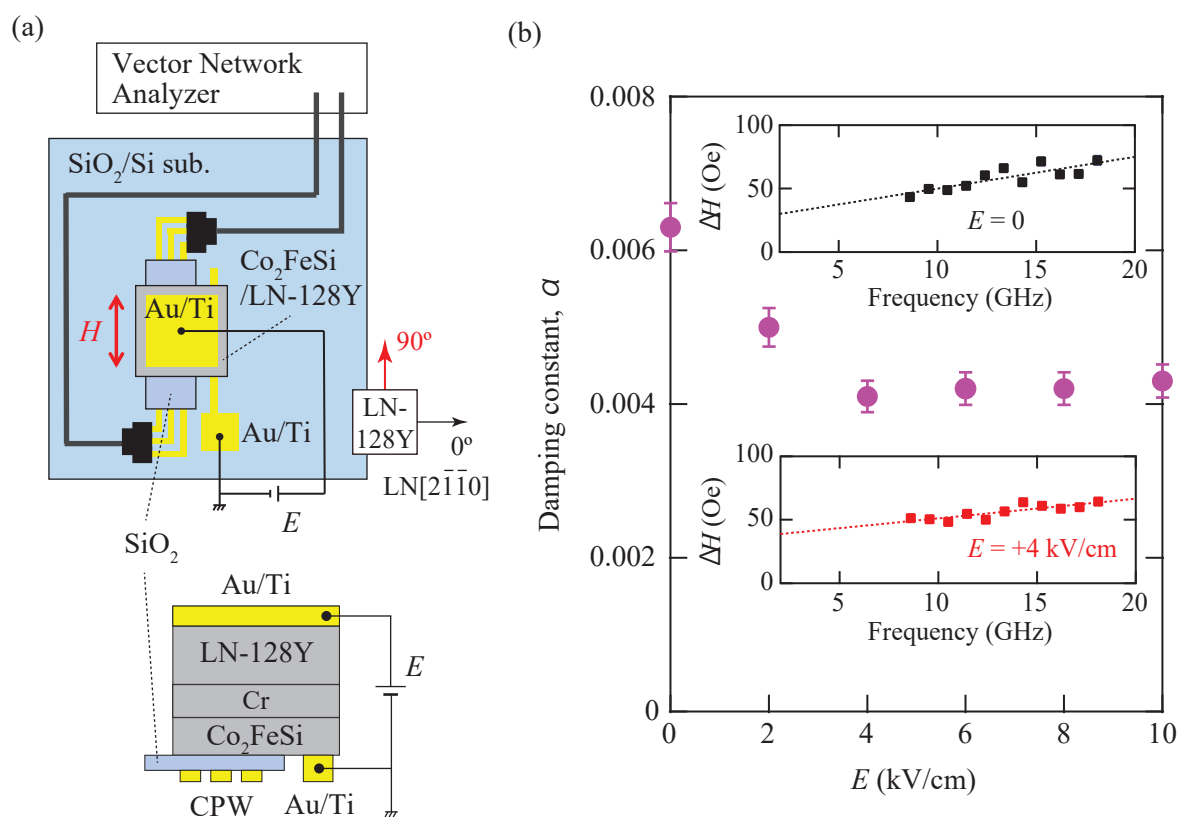


図3. 電界印加機構を搭載した独自のアンテナを作製し、エピタキシャル $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ 界面マルチフェロイク構造に電界を印加した状態でVNA-FMR測定を行った結果。スピン波の長距離伝搬が示唆される低ダンピング定数の領域 (10^{-3} オーダー) で、 Co_2FeSi 層の磁化ダイナミクスを電圧で制御できることを実証した。

5 謝辞

本研究を遂行するにあたり、多大なるご指導・ご支援を賜りました大阪大学大学院基礎工学研究科の浜屋宏平教授・宇佐見喬政助教（研究当時）（現：先導的学際研究機構講師）・長田聖海氏（研究当時大学院博士前期課程）、貞莉涼介氏（研究当時学士課程）、京都工芸繊維大学電気電子工学系の三浦良雄教授、慶應義塾大学理工学部の能崎幸雄教授・山野井一人助教（研究当時）（現：同専任講師）、名古屋大学大学院理学研究科の谷山智康教授・小森祥央助教に感謝申し上げます。また、大阪大学大学院基礎工学研究科の鈴木義茂教授（現：同招聘教授）、中村芳明教授、阿保智助教、大阪

大学大学院理学研究科の新見康洋教授には装置利用のご協力を賜りました。ここに感謝申し上げます。

参考文献

- [1] S. Neusser, D. Grundler, "Magnonics: Spin Waves on the Nanoscale," *Adv. Mater.* **2009**, *21*, 2927–2932.
- [2] A. Khitun, M. Bao, K. L. Wang, "Magnonic logic circuits," *J. Phys. D: Appl. Phys.* **2010**, *43*, 264005.
- [3] V. V. Kruglyak, S. O. Demokritov, D. Grundler, "Magnonics," *J. Phys. D: Appl. Phys.* **2010**, *43*, 264001.
- [4] A. V. Chumak, A. A. Serga, B. Hillebrands, "Magnon transistor for all-magnon data processing," *Nat. Commun.* **2014**, *5*, 4700.
- [5] A. V. Chumak, V. I. Vasyuchka, A. A. Serga, B. Hillebrands, "Magnon spintronics," *Nat. Phys.* **2015**, *11*, 453.
- [6] A. V. Chumak, A. A. Serga, B. Hillebrands, "Magnonic crystals for data processing," *J. Phys. D: Appl. Phys.* **2017**, *50*, 244001.
- [7] T. Taniyama, "Electric-field control of magnetism via strain transfer across ferromagnetic/ferroelectric interfaces," *J. Phys.: Condens. Matter.* **2015**, *27*, 504001.
- [8] T. Taniyama, Y. Gohda, K. Hamaya, T. Kimura, "Artificial multiferroic heterostructures—electric field effects and their perspectives," *Sci. Technol. Adv. Mater.* **2024**, *25*, 2412970.
- [9] M. Weiler, L. Dreher, C. Heeg, H. Huebl, R. Gross, M. S. Brandt, S. T. B. Goennenwein, "Elastically Driven Ferromagnetic Resonance in Nickel Thin Films," *Phys. Rev. Lett.* **2011**, *106*, 117601.
- [10] S. Wurmehl, G. H. Fecher, H. C. Kandpal, V. Ksenofontov, C. Felser, H.-Ji Lin, J. Morais, "Geometric, electronic, and magnetic structure of Co_2FeSi : Curie temperature and magnetic moment measurements and calculations," *Phys. Rev. B* **2005**, *72*, 184434.
- [11] T. Kimura, N. Hashimoto, S. Yamada, M. Miyao, K. Hamaya, "Room-temperature generation of giant pure spin currents using epitaxial Co_2FeSi spin injectors," *NPG Asia Mater.* **2012**, *4*, e9.
- [12] K. Hamaya, N. Hashimoto, S. Oki, S. Yamada, M. Miyao, T. Kimura, "Estimation of the spin polarization for Heusler-compound thin films by means of nonlocal spin-valve measurements: Comparison of Co_2FeSi and Fe_3Si ," *Phys. Rev. B* **2012**, *85*, 100404(R).
- [13] Y. Kasatani, S. Yamada, H. Itoh, M. Miyao, K. Hamaya, Y. Nozaki, "Large anisotropy of Gilbert damping constant in $L2_1$ -ordered Co_2FeSi film," *Appl. Phys. Express* **2014**, *7*, 123001.
- [14] S. Fujii, T. Usami, Y. Shiratsuchi, A. M. Kerrigan, A. M. Yatmeidhy, S. Yamada, T. Kanashima, R. Nakatani, V. K. Lazarov, T. Oguchi, Y. Gohda, K. Hamaya, "Giant converse magnetoelectric effect in a multiferroic heterostructure with polycrystalline Co_2FeSi ," *NPG Asia Mater.* **2022**, *14*, 43.
- [15] T. Usami, S. Fujii, S. Yamada, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani, K. Hamaya, "Giant magnetoelectric effect in an $L2_1$ -ordered $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ multiferroic heterostructure," *Appl. Phys. Lett.* **2022**, *118*, 142402.
- [16] S. Hu, S. Yamada, P.-C. Chang, W.-C. Lin, K. Hamaya, T. Kimura, "Efficient Electrical Manipulation of the Magnetization Process in an Epitaxially Controlled $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{BaTiO}_3$ Multiferroic Interface," *Phys. Rev.*

Applied **2023**, *20*, 034029.

- [17] T. Usami, Y. Sanada, S. Fujii, S. Yamada, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani, K. Hamaya, "Artificial control of giant converse magnetoelectric effect in spintronic multiferroic heterostructure," *Adv. Sci.* **2024**, *12* 2413566.
- [18] J. Okabayashi, T. Usami, A. M. Yatmeidhy, Y. Murakami, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani, Y. Gohda, K. Hamaya, "Strain-induced specific orbital control in a Heusler-alloy-based interfacial multiferroics," *NPG Asia Mater.* **2024** *16*, 3.
- [19] S. Yamada, Y. Teramoto, D. Matsumi, D. Kepaptsoglou, I. Azaceta, T. Murata, K. Kudo, V. K. Lazarov, T. Taniyama, K. Hamaya, "Electric field tunable anisotropic magnetoresistance effect in an epitaxial $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{BaTiO}_3$ interfacial multiferroic system," *Phys. Rev. Mater.* **2021**, *5*, 014412.
- [20] S. Yamada, T. Usami, S. Komori, S. Nagata, Y. Nozaki, T. Taniyama, K. Hamaya, "Epitaxial $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ multiferroic heterostructures with a low damping constant," *2023 IEEE International Magnetic Conference - Short Papers (INTERMAG Short Papers)* **2023** 1–2.
- [21] S. Yamada, T. Usami, S. Komori, Y. Miura, K. Yamanoi, Y. Nozaki, T. Taniyama, K. Hamaya, "Electric-Field Control of Low Damping Constant in Epitaxial $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{LiNbO}_3$ Multiferroic Heterostructures", *Adv. Sci.* **2025**, *12*(41), e11250.
- [22] S. Yamada, K. Hamaya, K. Yamamoto, T. Murakami, K. Mibu, M. Miyao, "Significant growth-temperature dependence of ferromagnetic properties for $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{Si}(111)$ prepared by low-temperature molecular beam epitaxy," *Appl. Phys. Lett.* **2010**, *96*, 082511.
- [23] S. Yamada, K. Tanikawa, S. Oki, M. Kawano, M. Miyao, K. Hamaya, "Improvement of magnetic and structural stabilities in high-quality $\text{Co}_2\text{FeSi}_{1-x}\text{Al}_x/\text{Si}$ heterointerfaces," *Appl. Phys. Lett.* **2014**, *105*, 071601.
- [24] Y. Fujita, M. Yamada, M. Tsukahara, T. Oka, S. Yamada, T. Kanashima, K. Sawano, K. Hamaya, "Spin Transport and Relaxation up to 250 K in Heavily Doped n-Ge Detected Using $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$ Electrodes," *Phys. Rev. Applied* **2017**, *8*, 014007.
- [25] T. Usami, M. Itoh, T. Taniyama, "Temperature dependence of the effective Gilbert damping constant of FeRh thin films," *AIP Advances* **2021**, *11*, 045302.

用語説明

スピントロニクス

電子の電荷とスピン（角運動量）の両方の自由度を積極的に利用することにより、新機能デバイスの開発を目指している研究分野のこと。

強磁性

物質中の原子の磁気モーメントが同一の方向に揃って整列した状態を強磁性状態と呼び、そのような特性を持つ物質を強磁性体（磁石）と呼ぶ。

ホイスラー合金

構成原子が規則正しく配列した規則合金の一形態であり、その構成元素や規則性に依存して様々

な特性を示す。特に、強磁性ホイスラー合金では完全にスピン偏極した状態が理論的に予想されており、高性能なスピントロニクス材料として注目を集めている。

表面弾性波材料

表面弾性波は、固体表面を伝わる弾性波の一種で、エネルギーが表面に集中して伝わる性質を持つ。この表面弾性波を高効率に伝播させられる材料を表面弾性波材料と呼ぶ。これを応用した電子部品は表面弾性波デバイスと呼ばれ、通信端末などに利用されている。

圧電体

圧力を加えた時に物質を構成する原子やイオンの相対位置が変化し、表面にプラスとマイナスの電荷（分極）が生じる現象を圧電効果と呼ぶ。一方、電界印加により物質の形状を変化させることを逆圧電効果と呼ぶ。これらの現象が顕著に現れる物質を圧電体と呼ぶ。圧電体は、機械的変化と電気的変化を互に変換できるため、振動センサー、圧力センサー、アクチュエータなどに用いられている。

エピタキシャル

単結晶基板上に結晶方位が揃った高品質な薄膜を結晶成長させること。一般に、基板結晶と格子定数が近く原子配列が同じである場合、非常に良質な薄膜が得られる。

界面マルチフェロイク構造

強磁性体と圧電体または強誘電体（圧電体の中でも、自発的に分極が生じ、その自発分極が電界により反転可能な物質）の2層で構成された積層構造で、磁性状態を電界で制御することができる。

スピン波

スピン（磁石）の歳差運動が空間的にずれて波のように伝わっていく現象。この現象を量子力学的に取り扱ったものをマグノンと呼ぶ。

歳差運動

回っているコマが重力の影響で軸を傾けながら、回転軸の先端が円を描くようにゆっくり動く（コマが首を振る）現象のこと。ここでは、磁場中にある磁化ベクトルが外部磁場のまわりを回転する現象のことを指す。

マグノニクスデバイス

マグノン（スピン波）と呼ばれる準粒子を使って情報を処理・伝達する次世代のデバイスのこと。将来の超低消費電力・高速情報処理を実現する可能性を持つ新しいテクノロジーとして期待され、現在急速に発展が進んでいる。