

逆ペロブスカイト Co_3FeN 薄膜の異方性磁気抵抗効果

安藤 弘紀、榊原 英樹、河合 俊介、植田 研二、浅野 秀文
(名大院工)

Anisotropic magnetoresistance effect of anti-perovskite Co_3FeN thin films

H. Ando, H. Sakakibara, S. Kawai, K. Ueda, H. Asano
(Nagoya Univ.)

はじめに

逆ペロブスカイト窒化物磁性体 Co_3FeN は、高い負のスピンの分極率¹⁾を持つ強磁性材料であり、同じ逆ペロブスカイト窒化物磁性体同士だけでなく酸化物ペロブスカイトとの格子整合性がよいため、積層構造で多様な応用が期待できる。現在、分子線エピタキシー(MBE)法により SrTiO_3 基板(格子ミスマッチ: -4.1%)上に 450°C で作製された報告²⁾があるが、本研究では、反応性スパッタ法を用いて、積層構造作製に有利な低温成長 Co_3FeN 薄膜を作製し、ハーフメタル性を評価するために異方性磁気抵抗効果³⁾について調査した。

実験方法

反応性マグネトロンスパッタ法により Co_3Fe ターゲットを用いて Co_3FeN 薄膜($\text{La}_{0.18}\text{Sr}_{0.82}$)($\text{Al}_{0.59}\text{Ta}_{0.41}$) $\text{O}_3(001)$ 基板(LSAT 基板)(格子ミスマッチ: -2.8%)上に、ガス圧は 2.5 Pa、膜厚 50-100nm で、スパッタガス $\text{Ar} + 8-10\%\text{N}_2$ 、基板温度は $250-350^\circ\text{C}$ の範囲で作製した。

実験結果

Fig. 1 に膜厚 50 nm、窒素濃度 10% で作製した Co_3FeN 薄膜の面直格子定数と半値幅の基板温度依存性を示す。基板温度 275°C 以上で $\text{Co}_3\text{FeN}(00l)$ ピークが観測された。 300°C 以下の低温でも、理論値に近い格子定数でロッキングカーブの半値幅も比較的狭い Co_3FeN が得られていることが分かった。基板温度 300°C で作製した試料で、 $\text{Co}_3\text{FeN}(200)$ ピークの面内 ϕ スキャンにおいて 4 回対称ピークが観測でき、LSAT 基板上に cube-on-cube にエピタキシャル成長していることが分かった。また、この薄膜は $M_s = 1350 \text{ emu/cc}$ の磁化と小さな保磁力 $H_c = 25 \text{ Oe}$ の強磁性であり、 $R_a = 0.56 \text{ nm}$ と素子の下部電極に適した小さな値が得られた。Fig. 2 は Co_3FeN 薄膜の異方性磁気抵抗効果を測定したもので、負の AMR 比が得られた。負の AMR 効果はハーフメタルの必要条件³⁾であるが、DOS の計算値¹⁾を考慮すると、この薄膜はマイノリティスピン電子が伝導を主に担っていると考えられ、 Co_3FeN のハーフメタル性を示唆している。講演では Co_3FeN の特性評価としてアンドレーエフ反射を用いてスピンの分極率を求め、AMR 効果との関連についても議論する。

参考文献

- 1) Y. Takahashi *et al.*, J. Magn. Magn. Mater, **323**, 2941, (2011).
- 2) T. Sanai *et al.*, J. Crystal Growth, **357**, 53, (2012).
- 3) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn, **81**, 024705, (2012).

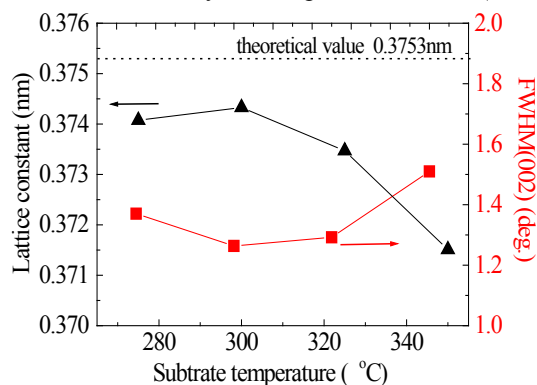


Fig. 1. Lattice constant (triangles line) and FWHM (squares line) plotted against substrate temperature of Co_3FeN thin films.

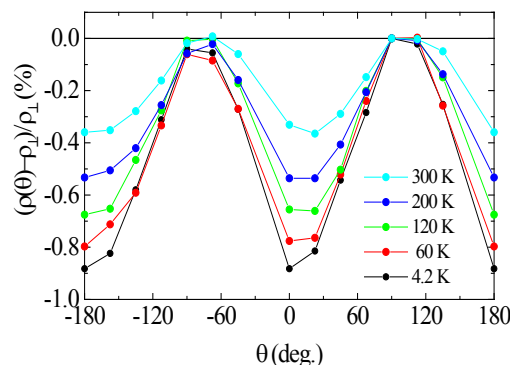


Fig. 2. Resistance changes of Co_3FeN films as a function of the magnetic-field direction θ measured with respect to the sensing-current direction. The current I flowed along $\text{Co}_3\text{FeN}[100]$. The applied magnetic field was 4 kOe.

γ' -Fe₄N 擬単結晶薄膜の異方性磁気抵抗効果 ～規則度依存性～

鹿原 和樹¹, 角田 匡清¹, 古門 聡士²
(¹東北大, ²静岡大)

Anisotropic magnetoresistance effect in pseudo single crystal γ' -Fe₄N films ~degree of order dependence~

K. Kabara¹, M. Tsunoda¹, and S. Kokado²
(¹Tohoku Univ., ²Shizuoka Univ.)

1. はじめに

我々はこれまでに、 γ' -Fe₄N 薄膜で負の異方性磁気抵抗 (AMR) 効果が観測されることを見出し[1]、理論予測[2]された Fe₄N の少数スピン電子伝導の証拠であることを示した[3]。また Fe₄N 擬単結晶薄膜で電流を Fe₄N[100]方向に流した場合、50 K 以下の温度で AMR 比の大きさが急激に増大し、AMR 曲線に $\cos 40$ 成分が重畳する特徴的な変化を示す[4]が、その起源については明らかとなっていない。Fe₄N の特異なスピン依存伝導は、ペロブスカイト構造の体心位置に存在する N 原子と面心位置に存在する Fe 原子との電子軌道混成が原因である[2]ことから、本研究では N 原子位置の規則度を変化させた擬単結晶 γ' -Fe₄N 薄膜を作製し、AMR 効果と規則度との関係について調べた。

2. 実験方法

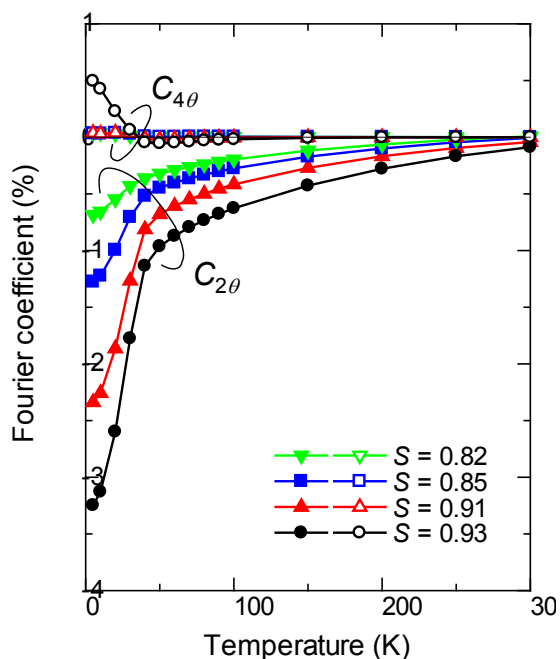
反応性スパッタ法を用い MgO(100)単結晶基板上に 50 nm 厚の Fe₄N 擬単結晶薄膜をエピタキシャル成長させた。成膜直後の Fe₄N 薄膜を、成膜装置内で 50~300°C の範囲で温度を変えて 15 分間熱処理した。冷却後、酸化防止層として 2 nm 厚の Ta 薄膜を Fe₄N 薄膜に堆積させた。試料の構造解析は XRD により行い、Fe₄N(100) と Fe₄N(200)の回折線強度比から N 原子位置の規則度 (S) を求めた。各熱処理温度に対応して $S = 0.82 \sim 0.93$ の試料が得られた。各試料を 0.2 mm 幅×7 mm 長のストライプ状に加工し、直流 4 端子法で Fe₄N[100]方向の電気抵抗 (R) を 5~300 K の温度範囲で測定した。30 kOe の直流磁界を膜面内に印加し、印加磁界方向と電流方向の間の角度 (θ) の関数として R (AMR 曲線) を測定した。 $\theta = 0$ (90°) における抵抗値 $R_{//}$ (R_{\perp}) を用いて、AMR 比を $(R_{//} - R_{\perp}) / R_{\perp}$ と定義した。

3. 実験結果

図には各試料の AMR 曲線から求めた $\cos 2\theta$ ($\cos 4\theta$) 成分のフーリエ係数 $C_{2\theta}$ ($C_{4\theta}$) の測定温度依存性を示す。ここで $2C_{2\theta}$ が AMR 比に相当する。50 K 以下での AMR 比の大きさの急激な増大と $\cos 4\theta$ 成分の重畳現象が、 S の低下に伴って徐々に消失してゆくことが判った。著者らによる最近の AMR の理論[5]によれば、結晶場が AMR に及ぼす効果として、スピン軌道相互作用によるスピン混成から生じる従来の $\cos 2\theta$ 形状の AMR 効果[3,6]に加えて、 d_x 軌道と d_y 軌道のエネルギー差 (Δ) とフェルミ準位における両軌道の状態密度差に応じた $\cos 2\theta$ 成分、ならびに正方晶歪に伴う d_x 内の軌道分裂に応じた $\cos 4\theta$ 成分が、AMR 曲線に重畳することが示されている。N 位置の不規則化ならびに測定温度の上昇は Fe₄N の電子構造の結晶場分裂を低減させる結果、低温における AMR 効果の特徴的な変化が S の低下に伴って低減したものと考えられる。

参考文献

- 1) M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Express **2** (2009) 083001.
- 2) S. Kokado et al., Phys. Rev. B **73** (2006) 172410.
- 3) S. Kokado et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 024705.
- 4) M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Express **3** (2010) 113003.
- 5) S. Kokado et al., Phys. Status Solidi C **11** (2014) 1026.
- 6) S. Kokado et al., Adv. Mater. Res. **750-752** (2013) 978.



ハーフメタルホイスラー合金薄膜における異方性磁気抵抗効果の定量解析

桜庭裕弥¹、古門聡士²、平山悠介¹、古林孝夫¹、介川裕章¹、李松田¹、高橋有紀子¹、宝野和博¹
(¹ 物材機構、² 静岡大院工)

Quantitative analysis of anisotropic magnetoresistance effect in half-metallic Heusler compounds films

Y. Sakuraba¹, S. Kokado², Y. Hirayama¹, T. Furubayashi¹, H. Sukegawa¹, S. Li¹, Y. K. Takahashi¹,
and K. Hono¹
(¹NIMS, ²Shizuoka Univ.)

はじめに

1990年代より理論的に提唱されたCo基フルホイスラー合金系材料のハーフメタル性は、高いスピン偏極率を反映した巨大な磁気抵抗効果やスピン蓄積効果などにより実験的に実証され、室温での高いスピン偏極率を利用した次世代HDD用磁気ヘッドなどへの応用が期待されている。しかしながら応用上の課題として、室温におけるスピン偏極率の更なる改善に加え、デバイス作製上の熱処理温度や膜厚の制限への対応など解決すべき問題は残されている。従って、デバイス応用実現のためには、ホイスラー合金の材料組成・熱処理温度・膜厚等を系統的に変化させた上でそれらのスピン偏極率を評価し、更なる最適化を図る必要がある。しかしながら、室温でのスピン偏極率の評価には、巨大磁気抵抗素子など面倒な微細加工を必要とするデバイス作製が伴うため、材料探索やデバイス作製条件の最適化を効率的に行うことは非常に困難である。

近年、古門らにより強磁性体における異方性磁気抵抗効果(AMR)を包括的に取り扱う新たな理論モデルが提案され、ハーフメタル材料のAMR効果の符号は必ず負になることが示された¹⁾。これに基づきYangらは $\text{Co}_2\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 薄膜試料におけるAMR効果を系統的に評価し、高いスピン偏極率が得られる $x \leq 0.6$ においては古門らの予測通りAMRが負になり、AMR効果の測定がハーフメタル材料探索の指針となることを示した²⁾。本研究ではこれらの知見を更に発展させるために、 Co_2MnZ , Co_2FeZ ($Z = \text{Al}, \text{Si}, \text{Ga}, \text{Ge}$)系の種々の薄膜試料におけるAMR効果を系統的に定量評価し、合金組成、規則度、並びにCPP-GMR素子における磁気抵抗効果の大きさと総合的に解析することにより、AMR効果の符号及び絶対値とスピン偏極率の相関に関する知見を得ることを目的とした。

実験方法

超高真空スパッタ装置によって Co_2MnZ , Co_2FeZ 薄膜(50 nm)をMgO単結晶基板上に室温成膜し、熱処理温度を300–650°Cまで変化させた。AMR効果は電流方向を固定し、外部磁場(5kOe)を薄膜面内方向で回転させることにより評価した。ホイスラーの価電子数 N_V を正確に評価するために、ICP分析によって組成分析を行い N_V とAMRの相関について評価した。

実験結果

作製した Co_2FeZ , Co_2MnZ 系薄膜試料のAMR比を価電子数 N_V に対してプロットした結果、ハーフメタルギャップを反映するAMRの正負の変化が明瞭に確認された(Fig.1)。また従来のCPP-GMRの実験結果との比較により、高い負のAMR効果が得られる組成と L_{21} 規則状態において、大きなMR比や ΔR_A が得られる定量的相関が明瞭に確認された。本研究により、簡便なAMR効果の測定により材料のスピン偏極率に関する知見が得られることが確認された。³⁾

参考文献 1) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024705 (2012). 2) F. Yang *et al.*, Phys. Rev. B, **86**, 020409R (2012) 3) Y. Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104**, 172407 (2014).

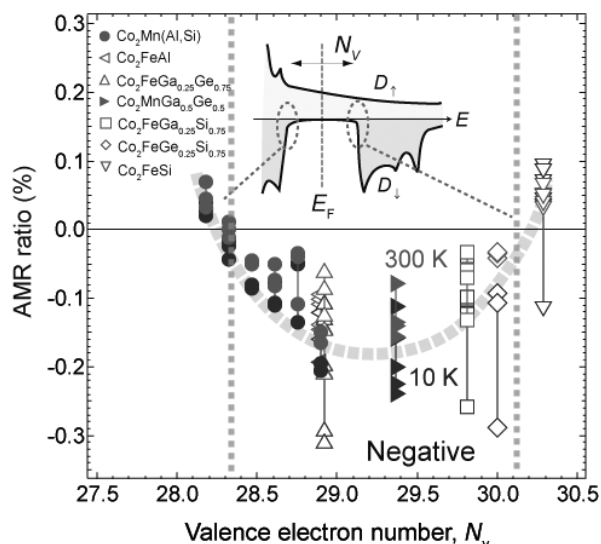


Fig. 1 Total valence electron number N_V dependence of AMR ratio in Co_2MnZ and Co_2FeZ ³⁾