

スピン・軌道選択磁化曲線で見える CoFeB/MgO 多層膜の垂直磁気異方性

山添誠敏、加藤忠、田久保翔太、鈴木宏輔、星和志、*伊藤真義、*櫻井吉晴、櫻井浩
(群馬大学、*JASRI)

Perpendicular magnetic anisotropy behavior of CoFeB/MgO multilayers by spin/orbital specific magnetization measurement

M.Yamazoe, T.Kato, S.Takubo, K.Suzuki, K. Hoshi, *M.Itou, *Y.Sakurai and H.Sakurai
(Gunma Univ., *JASRI)

研究背景

Fe/MgO などの磁気トンネル接合は垂直磁気異方性を示すと報告されている[1]。Kato らは、磁気量子数別スピン選択磁化曲線・軌道選択磁化曲線測定法を開発し、Fe/MgO 多層膜の垂直磁気異方性と軌道選択磁化曲線・磁気量子数別スピン選択磁化曲線の関係を報告している[2]。本研究では、CoFeB/MgO 多層膜の垂直磁気特性とスピン選択磁化曲線・軌道選択磁化曲線について報告する。

実験方法

RF スパッタ装置を用いて Si 基板および Al フォイル (12 μ m) 基板上に (CoFeB (4nm) /MgO(1nm))₁₅₀ 多層膜を作製した。CoFeB を結晶化するために 360 $^{\circ}$ C で 2 時間熱処理を行った。X 線回折測定により Fe(001)/MgO(001) 配向を確認した。SQUID 磁力計を用いて全磁化曲線を測定した。SPring-8-BL08W にて、磁気コンプトン散乱を測定しスピン選択磁化曲線を求めた。軌道選択磁化曲線は全磁化曲線とスピン選択磁化曲線の差から求めた。いずれの測定も印加磁場は膜面に垂直で、室温で行った。

実験結果

Figure 1 は CoFeB/MgO 多層膜における全磁化曲線 (黒太線)、スピン選択磁化曲線 (黒線)、軌道選択磁化曲線 (点線) である。磁場を H とすると、 $|H| < 10000\text{Oe}$ では軌道磁気モーメントの寄与が増大していることが分かる。これは、 $|H| < 10000\text{Oe}$ では、磁化容易軸である(001)方向の寄与が大きくなるためと考えられる。Figure.2 に、スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの比の磁場依存性を示す。 $\mu_S = 2.18\mu_B$ と考え Fig.2 より $\Delta\mu_L$ を求め、Bruno の式 [3]
$$K = -\frac{\xi}{4H} \frac{G}{\mu_B} \frac{\Delta\mu_L}{\mu_B}$$
 を用いて、 $\xi = 50\text{meV}$ [4]、 $G/H = 0.2$ [5]の条件で計算すると、垂直磁気異方性エネルギー $K = 2.7\text{meV}$ が得られる。これは Fe/MgO/Fe の計算結果 1.6meV [1]と同程度である。この結果から本系は、垂直磁気異方性を持つと考えられる。

参考文献

[1] R. Shimabukuro, et al., Physica E42, 1014 (2010).

[2] Kato et al., Appl. Mech. and Mater., 423-426, 271 (2013).

[3] P. Bruno: Phys. Rev. B 39, 865(1989)

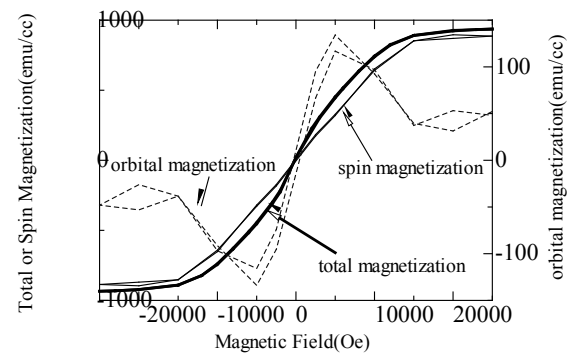


Fig.1 CoFeB/MgO 多層膜の全磁化曲線、スピン選択磁化曲線および軌道選択磁化曲線

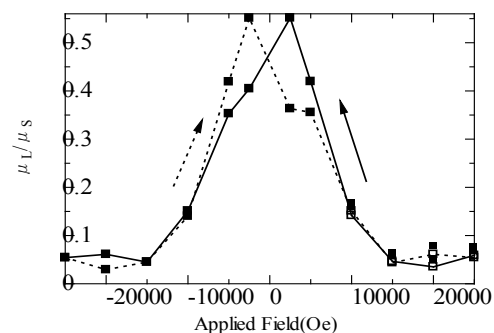


Fig.2 スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの比の磁場依存性

[4] D. Weller et al., Phys. Rev. Lett. 75, 3752(1995)

[5] A.R. Mackintosh, O.K. Anderson: In: Electrons at the Fermi Surface, ed. by M. Springford (Cambridge Uni. Press, Cambridge, England 1980)

スピン・軌道選択磁化測定による Au/Fe/MgO 多層膜の 磁気量子数別磁化反転挙動

鈴木 宏輔, 田久保 翔太, 加藤 忠, 山添 誠敏, 星 和志, 本間 佳哉*,
伊藤 真義**, 櫻井 吉晴**, 櫻井 浩
(群馬大院理工, *東北大金研, **JASRI/SPring-8)

Magnetic switching behavior by different magnetic quantum number in Au/Fe/MgO multilayer using spin/orbital specific magnetization measurement.

K. Suzuki, S. Takubo, T. Kato, M. Yamazoe, K. Hoshi, Y. Honma*, M. Itou**, Y. Sakurai** and H. Sakurai
(Gunma Univ., *Tohoku Univ., **JASRI/SPring-8)

はじめに

磁気コンプトン散乱法は、磁性体のスピン磁気モーメントを定量できる実験手法である¹⁾。近年、この特徴を利用し、磁気コンプトン散乱の磁場依存性からスピン選択磁化曲線(SSMH)を得る手法が確立した²⁻⁴⁾。SQUID 磁力計などで測定される全磁化曲線と組み合わせることで軌道選択磁化曲線(OSMH)を得ることも可能となる。今回、我々は Au/Fe/MgO 多層膜の SSMH と OSMH 測定を行った。さらに磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性を解析することで磁気量子数別 SSMH 曲線を得ることに成功した。

実験方法

Fe(8nm)/Au(2nm)/Fe(2nm)/MgO(4nm)の試料は、RF スパッタリング法により作製した。膜厚は、1 μ m である。XRD から、作製した試料は(002)配向を有するが、Fe(110)、Au(111)に由来するピークも観測され、わずかに不均一な構造であることがわかった。SQUID による磁化測定から、面内磁気異方性であり、飽和磁化は 1175 emu/cc、飽和磁場は 2.1 T であった。

磁気コンプトン散乱実験は、SPring-8-BL08W にて行った。円偏向した 182.6 keV の入射 X 線を試料に照射し、178 度方向にコンプトン散乱された X 線強度を 10 素子の Ge 半導体検出器で計測した。試料には膜面垂直方向に、-2.5 T から 2.5 T までの磁場を引加した。測定は、室温真空中で行われ、運動量分解能は、0.43 a. u. であった。

実験結果

図 1 に Fe/Au/Fe/MgO 多層膜の SSMH および OSMH 曲線を示す。どちらの曲線も ± 0.5 T 以下の印加磁場で履歴を示し、残留磁化を有する。この履歴の詳細を明らかにするため、磁気量子数 $|m|=0, 1, 2$ ごとに分離した SSMH 曲線(黒実線)を図 2 に示す。図 1 で求めた SSMH 曲線を図 2(a)、(b) (灰色線)、OSMH 曲線を図 2(c) (灰色線)に示す。 $|m|=1$ では、ほぼヒステリシスが観測されなかったのに対し、 $|m|=0, 2$ では $|H| < 1.5$ T でヒステリシスが観測された。SSMH は、 $|m|=0, 1$ の寄与からなり、OSMH は、 $|m|=2$ の寄与からなる。全磁化曲線は面内容易磁化を示すにもかかわらず、 $|m|=0, 2$ の SSMH 曲線および OSMH 曲線は垂直磁化成分を有することがわかる。

参考文献

- 1) M. Cooper et al.(Eds.), *X-ray Compton Scattering* (Oxford Univ. Press, Oxford, 2004), pp289
- 2) A. Agui et al., *J. Synchrotron Radiat.*, 17 (2010) 321.
- 3) M. Itou et al., *Appl. Phys. Lett.*, 102 (2013) 082403.
- 4) T. Kato et al., *Appl. Mech. Mater.*, 423-426 (2013) 271.

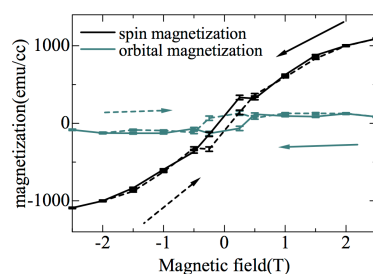


図 1. Fe/Au/Fe/MgO 多層膜におけるスピン・軌道選択磁化曲線

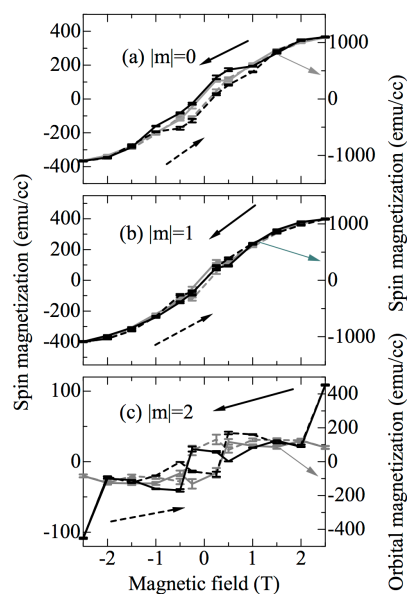


図 2. 磁気量子数別スピン選択磁化曲線

角型比の高い $Tb_{28}Co_{72}$ 垂直磁化膜の

スピン・軌道・元素選択ヒステリシス測定

田久保翔太、安居院あかね¹、劉小晰²、鈴木宏輔、櫻井浩
(群馬大院理工、原子力機構¹、信州大院工²)

Spin/Orbital/Element specific hysteresis curve of TbCo perpendicular magnetic anisotropy film
with a high squareness ratio

S.Takubo, *A.Agui, ⁺X.Liu, K.Suzuki and H. Sakurai
(Gunma Univ, *JAEA, ⁺Shinshu Univ.)

はじめに

磁気コンプトンプロ散乱と SQUID 磁力計を組み合わせたスピン選択磁気ヒステリシス(SSMH)・軌道選択磁気ヒステリシス(OSMH)と元素選択磁気ヒステリシス(ESMH)を測定する手法を新たに提案されている^{1,2)}。これまでに我々は TbCo、TbFeBo などの測定から、スピン・軌道および元素別の磁気モーメントの挙動は大変複雑であり、磁化反転の核発生に先立ちマイクロな前駆現象が発生している可能性を見出した。本研究では、磁化反転において明確な前駆現象と核発生が観測されると期待される角型比の高い垂直磁化膜 ($Tb_{28}Co_{72}$ アモルファス薄膜) について、SSMH、OSMH、ESMH の測定を行ったので報告する。

実験方法

磁気コンプトン散乱測定は大型放射光施設 SPring-8・BL08W で行った。試料は Tb,Co をターゲットとし RF スパッタリング法で Al フォイル箔(12 μ m)上に成膜した。薄膜はアモルファス合金であり、膜厚は 1 μ m であった。磁気コンプトン散乱および SQUID 磁力計の測定では、磁場を膜面に垂直に印加した。

実験結果

Figure 1 に $Tb_{28}Co_{72}$ の SQUID 磁力計から求めた全磁化曲線 (Total) MCP から求めた SSMH(Spin)、全磁化曲線と SSMH の差から求めた OSMH(Orbital)を示す。全磁化曲線は角型比がほぼ 1 の垂直磁気異方性を示し、 $|H| < 1T$ (H は印可磁場) で磁気ヒステリシスを示す。一方、SSMH と OSMH は複雑な磁化過程を示す。Figure 2 に Spin と Orbital の比を示す。磁場に依存して増減する挙動を示すが、 $|H| < 1T$ で磁気ヒステリシスが観測されない。Figure 3 に SSMH の Co3d 電子と Tb4f 電子の比を示す。Fig. 2 と同様の挙動を示す。以上より角型比がほぼ 1 である $Tb_{28}Co_{72}$ アモルファス垂直磁化膜は、スピン・軌道・元素別の磁場依存性を反映した前駆現象を経て、磁化反転することがわかった。

参考文献

- 1) A.Agui et al., Appl.Phys.Express,4(2011)083002.
- 2) A.Agui et al., J.Appl.Phys.,114(2013)183904.

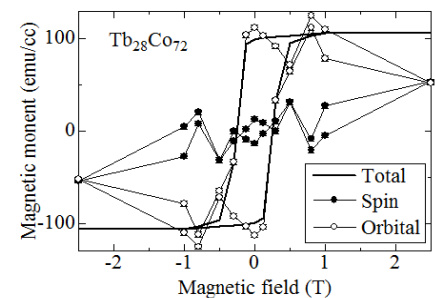


Fig.1 Total magnetization (solid line), spin specific magnetic hysteresis curve (close circles), orbital specific magnetic hysteresis curve (open circles) of $Tb_{28}Co_{72}$ amorphous film

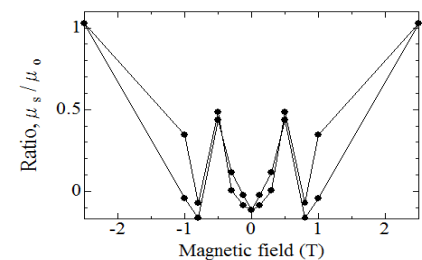


Fig. 2 Ratio of spin magnetization to orbital magnetization

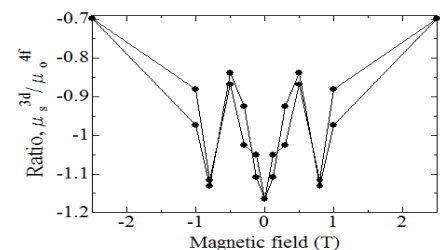


Fig. 3 Ratio of Co3d spin magnetization to Tb 4f spin magnetization

$L1_0$ -FeNi 規則合金への軽元素添加効果の第一原理計算

辻川 雅人^{1,2}, 三浦良雄³, 白井 正文^{1,2}
(東北大通研¹, 東北大 CSIS², 京都工繊大³)

First principles study of light-element doping effects on $L1_0$ -orderd FeNi

Masahito Tsujikawa^{1,2}, Yoshio Miura³, Masafumi Shirai^{1,2}

(¹RIEC, Tohoku Univ., ²CSIS, Tohoku Univ., ³Kyoto Inst. of Technol.)

はじめに

$L1_0$ 型 FeNi 規則合金は高い保磁力を有することから貴金属フリーな磁石材料として注目されている。永久磁石の材料には大きな飽和磁化と保磁力が必要とされる。 $L1_0$ -FeNi は十分な飽和磁化を持つ反面、保磁力の向上が重要な課題であり、規則度の向上や c 軸歪み、第三元素の添加等により十分な保磁力を得るための研究が進められている[1,2]。本研究では軽元素添加が $L1_0$ -FeNi の磁性へ与える影響に着目し、第一原理計算により第三元素添加の効果調べた。

方法

電子状態計算には、平面波基底と Projector Augmented Wave 法を用いた第一原理計算コード vasp を用いた[3]。結晶磁気異方性の起源であるスピン軌道相互作用は摂動形式で取り入れられており、結晶磁気異方性エネルギー(MAE)の見積りは force-theorem を用いて行った。MAE は値が正のときに垂直磁気異方性を意味するように定義した。

結果

初めに添加軽元素 B, C, N, O, F の最安定位置の決定を行った。B は Ni 層の八面体の中心位置、C, N, F, O は Fe 層の八面体中心位置が最安定サイトであった。形成エネルギーおよび結合エネルギーの計算から、C, N 添加が B, O, F 添加に比べ安定であることが示された。図 1 に示すように MAE の増大は B, C, N, F 添加にて確認された。特に効果の大きな C, N 添加では、2.8%の軽元素添加により完全規則 $L1_0$ -FeNi に比べ MAE がそれぞれ 75%, 40%増大する結果が得られ、軽元素添加が垂直磁気異方性の向上へ有効であることが明らかとなった。MAE 増大の起源としては、格子変形の効果や化学結合による FeNi の電子状態変化等が考えられる。構造および電子状態の解析から、格子変形と MAE の間に相関は無く、隣接 Fe と Ni サイトの価電子数増大と MAE の間に相関がみられた。リジッドバンドモデルからも FeNi の価電子数増大に伴う MAE 増大が予想され、C, N 添加による Fe および Ni の価電子数増大が MAE 増大の一因であると考察される。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省元素戦略プロジェクト<拠点形成型>元素戦略磁性材料研究拠点(ESICMM)、ならびに科学研究費補助金基盤研究(S)(No.2522091)により助成を受けて実施した。

参考文献

- 1) T. Kojima et al., J. J. Appl. Phys. 51, 010204 (2012).
- 2) T. Kojima et al., J. Phys.: Condens. Matter 26, 064207 (2014).
- 3) G. Kresse and J. Furthmuller, Vienna Ab-initio Simulation Package University of Wien, 2001.

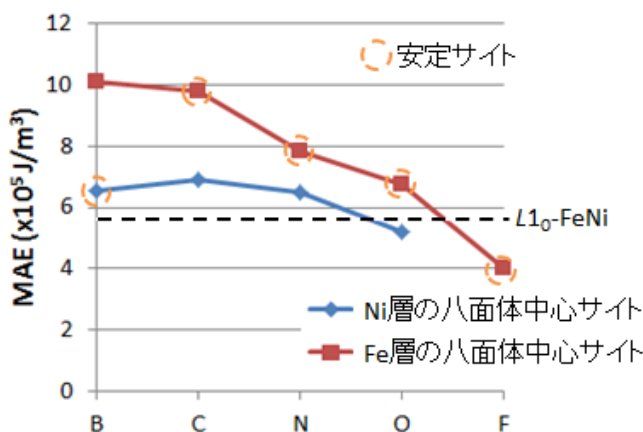


図 1 : 軽元素添加 $L1_0$ -FeNi の結晶磁気異方性エネルギー(MAE)

Fe-Si 合金単結晶膜の磁歪挙動に及ぼす結晶磁気異方性の影響

川井哲郎・相田拓也・大竹 充・二本正昭
(中央大理工)

Effect of Magnetocrystalline Anisotropy on Magneto-Strictive Behavior for Fe-Si Single-Crystal Films
Tetsuroh Kawai, Takuya Aida, Mitsuru Ohtake, and Masaaki Futamoto
(Faculty of Science and Engineering, Chuo University)

はじめに

珪素鋼板はトランスやモータのコア材料として幅広く実用化されている。しかし、その磁歪が原因で生じるコア振動による騒音の低減が課題とされている¹⁾。珪素鋼板の磁歪挙動については多くの研究があり、特異な磁歪挙動を示すことが報告されている^{2),3)}。しかし、結晶磁気異方性が磁歪挙動に及ぼす影響については必ずしも明らかにはなっていない。本研究では Fe-Si 合金単結晶膜を作製して回転磁場中で磁歪を測定し、結晶磁気異方性が磁歪挙動に及ぼす影響を解析した。

実験方法

Fe-6 at. % Si 合金ターゲットを使用して超高真空 RF マグネトロンスパッタ装置により GaAs(001)単結晶基板上に厚さ 500 nm の膜を作製した。RHEED と XRD により作製した膜がエピタキシャル成長した単結晶膜であることを確認した。磁化曲線は VSM で測定し、MOKE 法で磁区の観察を行った。磁歪の測定は最大 1.2 kOe の回転磁場中で行った。

実験結果と考察

磁化曲線を Fig. 1 に示す。4 回対称の異方性を持ち、異方性磁場 (H_a) は 450 Oe であることがわかる。保磁力は小さく 5 Oe 程度の磁場で磁化反転を生じている。回転磁場中での磁歪測定結果 (観察方向//[110]) を Fig. 2(a) に示す。出力波形は三角波状であり、その振幅は印加磁場が増すにつれ大きくなる。異方性磁場に相当する 0.5 kOe 以上では出力の振幅は飽和し、磁場が大きくなるにつれて出力波形は正弦波に近づく。この特異な磁歪挙動を小さな磁場で磁化反転することを考慮に入れた修正一斉回転モデルで解析した。規格化磁場 ($h=H_{ex}/H_a$) をパラメータとした計算結果 (Fig. 2(b)) は実験結果と良く一致し、Fe-Si 合金単結晶膜の複雑な磁歪挙動に及ぼす結晶磁気異方性の影響が明らかになった。

参考文献

- 1) B. Weiser, A. Hasenzagl, T. Booth, H. Pflutzner, *J. Magn. Mater.*, 160, pp. 207-209, 1996.
- 2) A. J. Moses, A. Ntatsis, T. Kochmann, J. Schneider, *J. Magn. Mater.*, 215-216, pp.669-672, 2000.
- 3) H. Yamaguchi, H. Pflutzner, A. Hasenzagl, *J. Magn. Mater.*, 320, e618-e622, 2008.

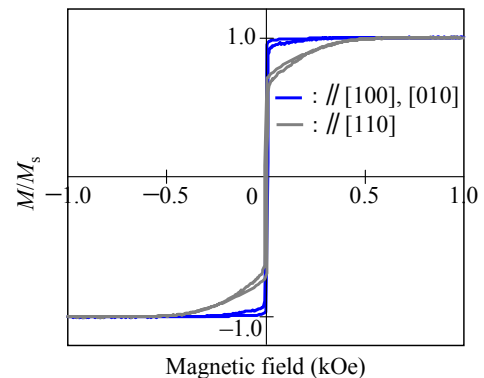


Fig. 1 Magnetization curves for an Fe-6 at. % Si(001) single-crystal film.

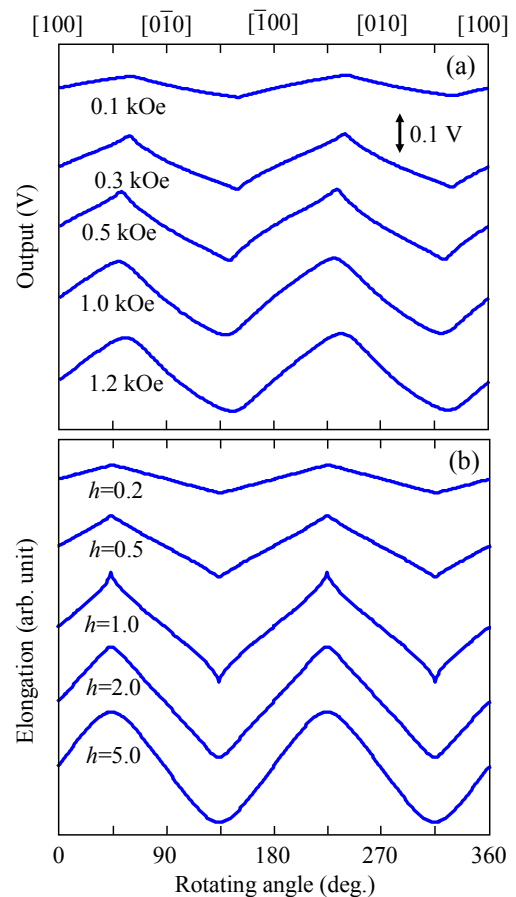


Fig. 2 (a) Magneto-strictive behavior measured for an Fe-6 at. % Si(001) single-crystal film. (b) Calculations by using a modified coherent rotation model. $h=H_{ex}/H_a$.

Perpendicular magnetic anisotropy of $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ Heusler alloy ultrathin-films

J. H. Kim, T. Kubota, A. Tsukamoto*, S. Takahashi**, Y. Sonobe**, and K. Takanashi
(IMR, Tohoku Univ., *CST, Nihon Univ., **Samsung Research Inst. Jpn.)

Introduction

For the development of MRAM devices with a giga-bit class memory capacity, it is required to reduce critical current density J_{c0} and to get high thermal stability factor over 60. To fulfill these requirements, magnetic thin films with high perpendicular magnetic anisotropy (PMA) are essentially required for the magnetic electrodes of the MTJs.

There are many researches about perpendicular magnetized thin films for magnetic tunnel junctions (MTJs). Among the PMA materials, Heusler alloys with an interfacial PMA are attractive because they are half-metallic and can exhibit high output power when being used in MTJs. There have been reported several previous works on PMA-Heusler alloys^{1,2)}. However, systematic investigations such as on material compositions are still needed. In this research, we investigated the Fe composition and the layer thickness dependence of the PMA in $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ (CFMS) Heusler alloy ultrathin films.

Experimental Procedures

Stacking structure of the samples were MgO (100) substrate/Cr (40 nm)/Pd (10 nm)/ $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ (t_{CFMS})/MgO (2 nm)/Ta (5 nm). The $\text{Co}_2\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Si}$ (CFMS) layer was deposited at room temperature and *in situ* annealing was performed at 400°C. Fe compositions of the CFMS layer, x were 0, 0.5, and 1. And the thicknesses of the CFMS layer, t_{CFMS} were 0.6, 0.8, 1.0, 1.2, and 1.4 nm. Fabricated films including the ultrathin CFMS layer were measured by a polar magneto optical Kerr effect (p-MOKE) and a superconducting quantum interface device (SQUID).

Results and Discussion

Perpendicularly magnetized film was achieved when the thickness was 0.6 and 0.8 nm for the Co_2MnSi and the $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Si}$ samples; and for a case of the Co_2FeSi , the film exhibited perpendicular magnetization only when the thickness was 0.6 nm. Figure 1 shows the product of uniaxial anisotropy energy (K_u) and thickness of the CFMS film (t) for the $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Si}$ samples. The results can be fit by a linear function as shown in the figure. From the interception of the linear dependence, the value of interface anisotropy (K_s) is deduced. It is about $1.3 \pm 0.8 \text{ erg/cm}^2$ which is comparable to the reported value of the Co_2FeAl films¹⁾. The value of K_s for other compositions will be shown and will be discussed at the presentation.

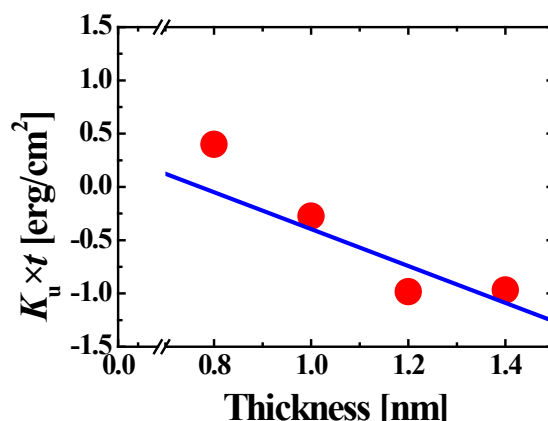


Figure 1. Thickness (t) dependence of the product of $K_u \times t$.

Reference

- 1) Z. Wen *et al.*, Appl. Phys. Lett. **98**, 242507 (2011).
- 2) Y. Cui *et al.*, Appl. Phys. Lett. **102**, 162403 (2013).