

高密度 FePt ナノドットの形成と電子輸送特性の外部磁場依存性

満行優介、牧原克典、加藤剛志、大田晃生、岩田聡、宮崎誠一
(名大院工)

High-Density Formation of FePt Alloy Nanodots on SiO₂ and Their Electron Transport Properties
Yusuke Mitsuyuk, Katsunori Makihara, Takeshi Kato, Akio Ohta, Satoshi Iwata, and Seiichi Miyazaki
(Nagoya Univ.)

序論

熱酸化 SiO₂ 薄膜上に形成した耐酸化性の高い極薄金属積層膜をリモート H₂ プラズマ処理 (H₂-RP) することにより、合金ナノドットを高密度(面密度: $\sim 10^{11} \text{cm}^{-2}$)一括形成できることを報告している¹⁾。本研究では、ナノドット化しても室温で強磁性を示す L1₀ 規則合金 FePt に着目し、Pt/Fe 極薄積層膜に外部非加熱で H₂-RP 処理を施し、金属原子の表面マイグレーションと凝集を促進することで、FePt 合金ナノドットの高密度・一括形成を試みるとともに、形成したナノドットの外部磁場印加時における電子輸送特性を定量評価した。

実験方法

p-Si(100)基板を 1000°C ドライ酸化により形成した SiO₂ 膜(膜厚 $\sim 3 \text{nm}$)上に、電子線蒸着に Fe (1.4 nm) / Pt (1.7 nm) 二層膜を形成した。その後、外部非加熱で、H₂-RP 処理を行った。磁界中の電子輸送特性は、磁性 CoPtCr コート Si カンチレバー ($H_c \sim 220 \text{Oe}$) を用いて評価した。外部磁場は、試料直下に永久磁石を配置することで、0.5 \sim 4.5 kOe の範囲で変化した。

結果および考察

SiO₂ 膜上の Pt/Fe 積層膜に H₂-RP 処理を施した後の AFM 表面形状像において、ナノドットの形成が認められ、表面形状像から算出した平均ドット高さおよびドット面密度は、それぞれ $\sim 5.0 \text{nm}$ および $\sim 5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ であった (Inset in Fig. 1)。また、形成したナノドットの XRD パターンでは、FePt(001) および (002) ピークが明瞭に認められ、L1₀ 相の形成を確認した。Pt 箔で覆った熱電対を用いて、H₂-RP 処理時の温度変化を測定した結果、Pt 表面が $\sim 600^\circ \text{C}$ まで加熱されることから、H₂-RP 処理における加熱によって規則合金化したと解釈できる。形成した FePt 合金ナノドットの面内および面法線方向に外部磁場を印加し、磁化曲線を評価した結果 (Fig. 1)、L1₀-FePt 相の磁気異方性に起因すると考えられる保磁力が観測され、その値は面内および面法線方向で各々 ~ 0.31 , $\sim 0.52 \text{kOe}$ であった。任意ドットの I-V 特性 (Fig. 2) では、無磁場において、Tip バイアス -3V 近傍で電流レベルの増大が僅かながら認められた。磁性コート AFM 探針の磁化方向と同一方向の外部磁場 0.5 kOe を印加した場合、無磁場の場合と比べ、顕著な変化は認められないものの、0.6 kOe 印加では、 -1.5V で大幅に電流レベルが増大し、0.6 kOe 以上の磁場印加では、顕著な変化は認められなかった。一方、同様の手法で形成した CoPt 合金ナノドットでは、印加磁場の増大に伴い、しきい値電圧が徐々に低減することもわかっている。さらに、FePt 合金ナノドットでは、外部磁場 4.5 kOe 印加後、外部ゼロ磁場下 50 分後においても、4.5 kOe の場合と同じ I-V 特性を示した。さらに、探針磁化方向と逆方向に 0.5 kOe 印加した場合でも、4.5 kOe 印加と同様の I-V 特性を示したが、印加磁場 0.6 kOe では、初期の I-V 特性と同程度の電流レベル・しきい値となった。これらの結果から、探針とドットの磁化方向が平行、反平行の場合で I-V 特性のしきい値電圧が大きく変調されると解釈できる。

結論

Fe (1.4 nm) / Pt (1.7 nm) 積層膜への H₂-RP 照射によって、L1₀-FePt 合金ドットを面密度 $\sim 4.8 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ で高密度形成でき、面法線方向の保磁力は $\sim 0.52 \text{kOe}$ であった。また、外部磁場印加時における FePt 合金ドットの局所電気伝導特性を磁性 AFM 探針を用いて評価した結果、探針と L1₀-FePt ナノドットの磁化方向に依存した電子輸送変化を室温で観測できた。

参考文献

1) K. Makihara et al., Abst. of IC-PLANTS 2012, P-65.

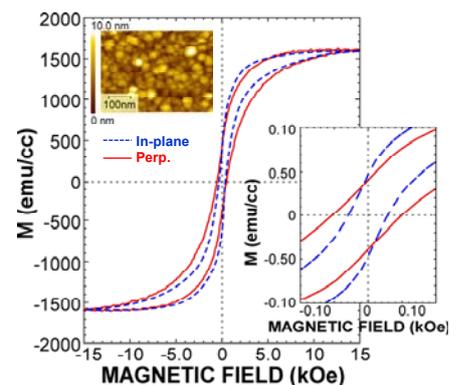


Fig. 1 Hysteresis Loops of FePt-NDs at room temperature. An AFM image of FePt-NDs is also shown in the inset.

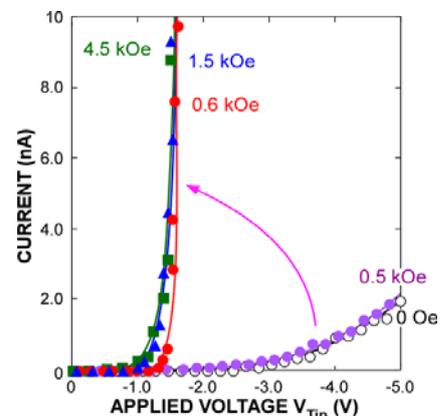


Fig. 2 I-V characteristics of the FePt alloy-NDs with and without magnetic field (0.5 \sim 4.5 kOe) at room temperature.

高密度 FePt ナノドットスタック構造の電子輸送特性

満行優介、牧原克典、加藤剛志、大田晃生、岩田聡、宮崎誠一
(名大院工)

Electron Transport Properties of High Density FePt-NDs Stacked Structures

Yusuke Mitsuyuk, Katsunori Makihara, Takeshi Kato, Akio Ohta, Satoshi Iwata, and Seiichi Miyazaki
(Nagoya Univ.)

序論

熱酸化 SiO₂ 薄膜上に形成した極薄 Pt/Fe 積層膜をリモート H₂ プラズマ(H₂-RP)処理(外部非加熱)することで、L1₀規則合金 FePt ナノドットを高密度(面密度: ~10¹¹cm⁻²)一括形成でき、外部磁場印加時における FePt 合金ドットの局所電気伝導特性を磁性 AFM 探針を用いて評価した結果、FePt ナノドットの磁化方向を反映した電子輸送変化が室温で観測できることを明らかにしている。本研究では、初期膜厚を精密制御することで異なるサイズの FePt ナノドットを形成し、その磁化特性を評価するとともに、サイズの異なる FePt ナノドットを極薄 Si 酸化膜を介して二層スタックした構造において、非磁性 AFM 探針を用いて局所電気伝導特性を評価した。

実験方法

p-Si(100)基板を 1000°C、2%O₂dry 酸化により形成した Si 熱酸化膜(膜厚: ~2.0 nm)上に、EB 蒸着により Fe (0.9~3.6 nm) / Pt (1.1~4.4 nm)を膜厚比一定にして積層した。その後、60 MHz 高周波電力の誘導結合により励起・生成した高密度水素プラズマを用いて、Pt/Fe 積層膜表面に外部非加熱で H₂-RP 処理を施し FePt 合金ナノドットを形成した。サイズの異なる FePt ナノドットの二層スタック構造は、平均高さ 5.1nm の FePt ナノドット形成後、EB 蒸着により SiO_x 薄膜(~2.0nm)堆積を行い、引き続き、Fe (2.3 nm) / Pt (2.8 nm)積層膜成膜後、H₂-RP 処理により平均高さ 7.9 nm の FePt ナノドットを形成した。Si 基板裏面には、Al コンタクト層を蒸着形成した。局所電気伝導特性は、非磁性 Rh コート Si カンチレバーを用いて評価した。外部磁場印加では、試料直下に永久磁石を配置し、0.5~4.5 kOe の範囲で磁界を変化させた。

結果および考察

いずれの Fe/Pt 二層膜厚においても、FePt ナノドットの形成が認められ、室温で保磁力が認められた。また、室温での保磁力を表面形状像から算出した平均ドット高さでまとめた結果(Fig. 1)から、サイズの増加に伴う保磁力の増大が確認できる。この結果をもとに、保磁力の異なる FePt ナノドットを極薄 SiO_x層を介した積層構造(上部ドット: H_{c⊥} ~ 2.5 kOe、下部ドット: H_{c⊥} ~ 0.5 kOe)を形成し、非磁性探針を用いて外部印加磁場中での局所電流-電圧(I-V)特性を評価した(Fig. 2)。初期状態では、Tip バイアス -7.0V 近傍で電流レベルの増大が認められる。これに対し、外部磁場 0.5 および 1.5 kOe 印加した場合は、無磁場に比べ僅かに電流値が減少し(I in Fig. 2)、2.5kOe 以上の磁場を印加した際、大幅な電流レベルの増大・しきい値電圧の低下が認められた(II)。尚、FePt ナノドット単層では、非磁性 AFM 探針を用いた場合、外部磁場有無による I-V 特性の変化は認められない。これらの結果は、I-V 特性が上下のドットの磁化の平行、反平行により大きく変化し、保磁力の小さなドットの磁化状態を制御することで電子輸送の制御が可能であることを示している。

結論

異なるサイズの規則化合金 FePt ナノドットの積層構造の局所電気伝導特性を非磁性 AFM 探針を用いて評価した結果、ナノドットの保磁力差を反映した電子輸送変化を室温で観測できた。

参考文献

1) R. Fukuoka et al., Abst. of MORIS2013, Omiya, We-P-07.

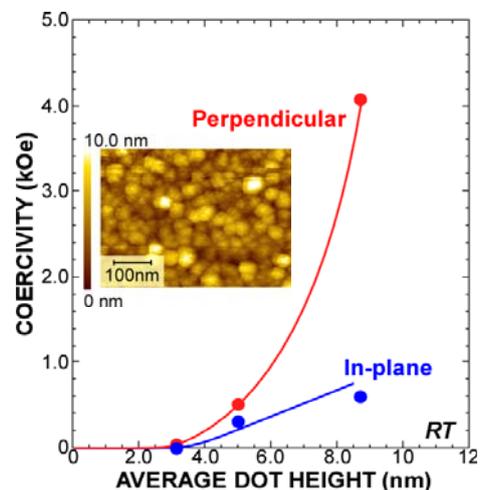


Fig. 1 In-plane and out-of-plane coercivities of FePt-NDs as functions of average dot height. A typical AFM image of FePt-NDs is shown in the inset.

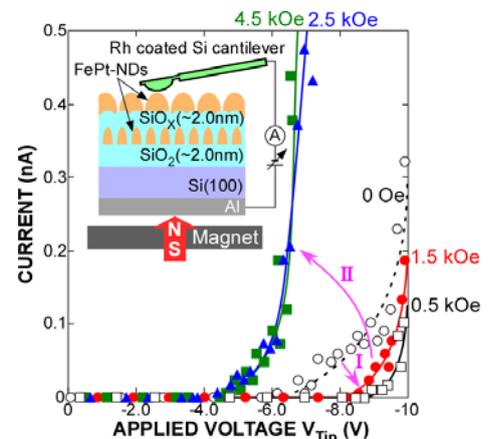


Fig. 2 I-V characteristics of a double stack FePt-NDs sample taken with and without magnetic field (0.5~4.5kOe) at room temperature. Schematic view of an experimental set up for the local I-V measurements is shown in the inset.

擬単結晶 γ' -Fe₄N 薄膜の異常ホール効果

鹿原 和樹¹, 角田 匡清¹, 古門 聡士²
(¹東北大, ²静岡大)

Anomalous Hall effect in pseudo-single-crystal γ' -Fe₄N films

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

はじめに

γ' -Fe₄N は、面心立方構造の Fe の体心位置に N 原子が侵入した構造であり、Fe と N の電子軌道混成による伝導電子の負のスピンの分極が報告されている[1]。また、この特徴を反映したインバーストンネル磁気抵抗効果[2]、インバース電流誘起磁化反転[3]、及び負の異方性磁気抵抗効果(AMR) [4]が報告されている。特に AMR 効果では 50K 以下の低温で AMR 比が急激に増大し、30K 以下では AMR 曲線に $\cos 4\theta$ 成分が発現する特異な現象を示している[5]。我々は、AMR 効果と N サイト規則度の関係について調査し、AMR 効果の低温における特異な現象は結晶場効果によるものであると明らかにしてきた[6, 7]。AMR 効果は強磁性体のスピンの軌道相互作用に起因するものであり、異常ホール効果など他の電流磁気効果でも γ' -Fe₄N の特異な磁気伝導特性を観察できることが予測される。それより本研究では、規則度を変化させた γ' -Fe₄N 薄膜の異常ホール効果について検討を行った。

実験方法

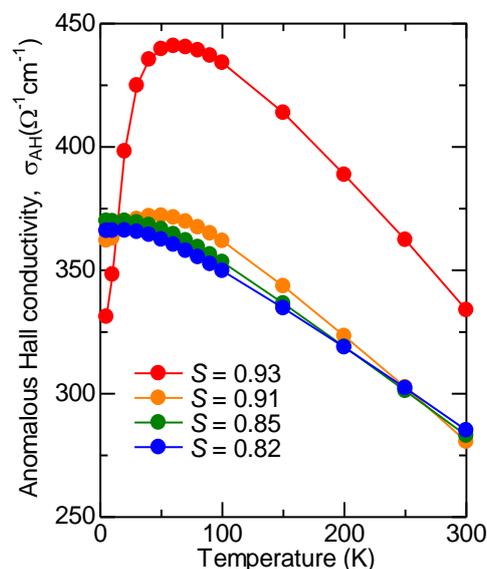
試料の作製にはマグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO 単結晶基板上に Fe₄N(50nm)/Ta(2nm)の膜構成で成膜を行った。Fe₄N 層は、Ar+25%N₂の混合ガスによる反応性スパッタ法で形成し、Fe₄N 層成膜直後に真空装置内で 50~300°C の範囲で温度を変化させた加熱処理を施した。室温まで冷却した後、酸化防止層の Ta を成膜した。結晶性評価は X 線回折法(XRD)により行い、Fe₄N(100)、Fe₄N(200)の回折強度比から N サイト規則度(S)を算出した。フォトリソグラフィプロセスとイオンミリングにより、各試料に 0.2mm 幅、7mm 長のホールバーを形成し、異常ホール効果と縦抵抗率の同時測定を直流 4 端子法により行った。

実験結果

図には、異常ホール伝導率($\sigma_{AH} = \rho_{AH} / (\rho_{AH}^2 + \rho_{xx}^2)$)の測定温度依存性を示す。ここで、 ρ_{AH} は異常ホール抵抗率、 ρ_{xx} は縦抵抗率を表している。S = 0.93 の試料では、測定温度が低下するにつれて増大していた σ_{AH} が 50K 以下では急激に減少し、5K では室温における値よりも低くなる現象が起きている。また他の Fe₄N 試料について見てみると、S = 0.91 の試料でも低温における σ_{AH} の減少がわずかに見て取れるが、S = 0.85, 0.82 の試料では低温における σ_{AH} の減少はほぼ見られなくなっていることがわかる。本実験結果は、上述した Fe₄N 薄膜の AMR 効果の低温での特異な現象が、S を低下させた場合に見られなくなっていくこと[6]とよく対応している。すなわち、50K 以下では結晶場分裂による 3d 軌道の縮退解消が顕著となり、軌道角運動量が凍結したことによって、異常ホール伝導率が減少したものと考えられる。

参考文献

- [1] S. Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 172410 (2006)
- [2] K. Sunaga, *et al.*, J. Appl. Phys. **102**, 013917 (2007)
- [3] S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Express **3**, 103002 (2010)
- [4] M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Express **2**, 083001 (2009)
- [5] M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Express **3**, 113003 (2010)
- [6] K. Kabara, *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063003 (2014)
- [7] S. Kokado *et al.*, Phys. Status Solidi C **11**, 1026 (2014)



Mn₄N 薄膜の異方性磁気抵抗効果と異常ホール効果

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 and anomalous Hall effect of Mn₄N films

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

はじめに

γ -Fe₄N は fcc Fe と体心位置の N の電子軌道混成により少数スピン電子が主として伝導に寄与し[1]、その結果としてインバーストンネル磁気抵抗 (TMR) 効果[2]、負の異方性磁気抵抗 (AMR) 効果[3]等の特徴的な磁気伝導特性が観測される。 γ -Fe₄N の類型材料である Mn₄N は、fcc Mn の体心位置に N が入ることによりフェリ磁性となり低飽和磁化を示す。加えて薄膜においては垂直磁気異方性[4]が報告されていることから、垂直磁化方式強磁性トンネル接合を用いたスピントロニクスデバイスへの応用が期待できる。本研究では、Mn₄N 薄膜のスピントロニクスデバイス応用に鑑みて、その磁気伝導特性 (AMR 効果及び異常ホール効果) について調査を行った。

実験方法

Mn ターゲットを用いて Ar+8%N₂ の混合ガスによる反応性マグネトロンスパッタ法で MgO 基板上に 100 nm の薄膜を堆積させた。N サイト規則度促進を目的として、堆積直後に成膜装置内で 120~390°C の範囲で温度を変化させて加熱処理を施した。冷却後、酸化防止層として Ta を 2nm 成膜した。X 線回折法 (XRD) を用いて結晶性評価を行い、Mn₄N(110)、Mn₄N(220) の回折強度比から N サイト規則度 (S) を算出した。フォトリソグラフィプロセスとイオンリングにより、各試料に 0.2mm 幅、7mm 長のホールバーを形成し、直流 4 端子法を用いて AMR 効果及び異常ホール効果の測定を行った。

実験結果

Fig.1 の挿入図に $S=0.94$ の Mn₄N 薄膜の印加磁場角度に対する抵抗変化率を示す。300K では AMR 曲線は $\cos 2\theta$ 形状であり、その符号は正だが 100K 以下では AMR 比が負に変化するとともに、 $\cos 4\theta$ 成分が重畳している。また、Fig.1 は S を変化させた各試料の AMR 曲線から求めた $\cos 2\theta$ ($\cos 4\theta$) 成分のフーリエ係数 C_{20} (C_{40}) の測定温度依存性を示す。 $S=0.94$ の試料では 100K 程度から C_{20} が負へ急激に増大し、150K から C_{40} 成分が重畳している。しかし、 S 低下に伴い、 C_{20} の急激な増大と C_{40} の重畳現象が減衰している。Kokado らによれば C_{40} の出現は結晶場効果によるものであり[5]、 S 低下に伴う C_{40} の減衰は、Mn₄N でも Fe₄N[6] 同様に結晶場効果による AMR の変化が低温で現れたことによると考えられる。Fig.2 に各試料における異常ホール伝導率の温度依存性を示す。 $S=0.94$ では異常ホール伝導率が 150K から急激に減少しているが、 S 低下に伴い 150K 以下の急激な減少が消失している。講演では、低温における異常ホール伝導率の急激な減少と結晶場の相関についても議論する。

参考文献

- [1] S. Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 172410 (2006)
- [2] K. Sunaga, *et al.*, J. Appl. Phys. **102**, 013917 (2007)
- [3] M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Express **2**, 083001 (2009)
- [4] Y. Yasutomi *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 17A935 (2014)
- [5] S. Kokado *et al.*, Phys. Status Solidi C **11**, 1026 (2014)
- [6] K. Kabara, *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063003 (2014)

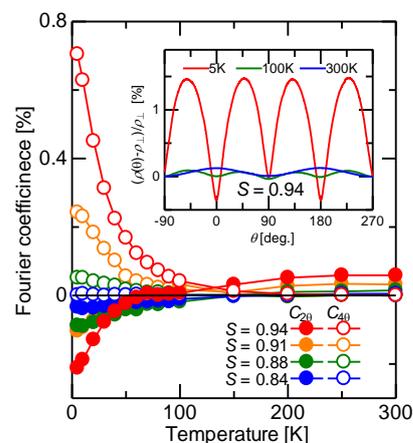


Fig.1 Fourier coefficients for C_{20} and C_{40} determined from the AMR curves (inset).

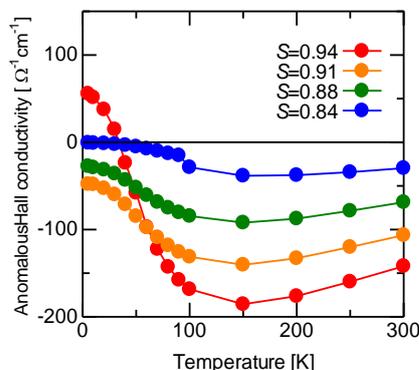


Fig.2 The measurement temperature dependence of anomalous Hall conductivity.