

第三元素を添加した Fe/Ni 薄膜の規則化現象

田代 敬之¹、水口 将輝¹、小金澤 智之²、鈴木 英伸¹、三浦 良雄³、辻川 雅人¹、
白井 正文¹、高梨 弘毅¹

(¹東北大、²高輝度光科学研究セ、³京都工芸繊維大)

Chemical ordering of Fe/Ni films with third-elements

T. Y. Tashiro, M. Mizuguchi, T. Koganezawa, H. Suzuki, Y. Miura, M. Tsujikawa,
M. Shirai, and K. Takanashi

(¹Tohoku Univ., ²JASRI/SPring-8, ³Kyoto Inst. of Tech.)

はじめに

高い磁気異方性(K_u)を有する材料は、永久磁石や記録媒体などへの応用が期待されるため、以前から盛んに研究されている。しかしながら、資源に乏しい我が国の現状を鑑みると安価かつ豊富な元素によって構成される材料であることが望ましく、元素戦略的な取り組みが行われている。我々は、安価な Fe と Ni により構成される $L1_0$ -FeNi 規則合金に着目している。この材料は、バルクで比較的高い K_u ($\sim 1.3 \times 10^7$ erg/cc) を発現することが知られている [1]。しかしながら、規則-不規則変態温度が 320°C と非常に低いため [2]、通常の熱処理による作製は困難であり、中性子照射や MBE 法などの限られた方法でのみ作製されている [3]。この低い規則-不規則変態温度は、 $L1_0$ -A1 相間の形成エネルギーの差が小さいことに起因しているとされる。我々は第三元素の添加により形成エネルギーを変調させる手法に着目した。遷移金属元素の添加について第一原理計算を行なったところ、Ti, V, Al によって Fe を置換することにより形成エネルギーの差が増大することが分かった。そこで、本研究では Fe と Ni を交互に積層させる際に Fe と同時に添加元素 Ti あるいは V を添加し、その際の規則-不規則変態温度の変化と磁気特性について調査した。

実験方法

試料は、超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて Fe-Ti(V) と Ni を MgO(001) 基板上に交互にスパッタし、真空中で熱処理を行った。Ti(V) の添加量を 0, 1.5, 3, 5 at% とし、熱処理温度および時間を 200 - 500°C 、 1 - 20 時間に変化させた。作製した Fe-Ti(V)/Ni 多層膜について、電子線マイクロアナライザー (EPMA)、振動試料型磁力計 (VSM)、X 線回折 (XRD)、原子間力顕微鏡 (AFM) により組成、磁気特性、結晶構造、表面形態をそれぞれ評価した。通常の XRD では、 $L1_0$ 相に由来して現れる微弱な超格子ピークを観測することが困難なため、SPring-8 の高輝度放射光を利用し、入射エネルギーを Fe-K 吸収端に合わせて異常分散効果を利用した XRD 測定を行った。

実験結果

MgO(001) 単結晶基板上に $\text{Fe}_{50-x}\text{Ti}_x$ ($x=0, 3, 5$ at%) と Ni を約 0.3 nm ずつ交互に積層した膜厚 15 nm の試料について熱処理 (200 - 500°C) を行った。In-plane XRD 測定を行ったところ、 450°C で熱処理された $[\text{Fe}_{47}\text{Ti}_3/\text{Ni}_{50}]$ 試料においても、 $L1_0$ 規則相に基づく超格子回折線が観測された。この時の規則度 S を算出したところ 0.1 程度得られていることが分かった。これは、Ti の添加によって規則-不規則変態温度が上昇したことを示唆する結果である。一方、V を添加した試料においては、超格子ピークが観測されず、規則-不規則変態温度の上昇は確認されなかった。

本研究の一部は、文部科学省推進プロジェクト元素戦略磁性材料研究拠点の支援により行われた。

参考文献

- [1] J. Pauleve *et al.*, J. Appl. Phys., **39** (1968) 989.
- [2] K. B. Reuter *et al.*, Metall. Trans. A, **20A** (1989) 719.
- [3] T. Kojima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **52** (2012) 010204.

Co/Ni エピタキシャル人工格子における磁気異方性とダンピング

関剛斎¹、島田淳平¹、飯浜賢志¹、辻川雅人¹、小金澤智之²、塩田明弘¹、田代敬之¹、周偉男¹、
菊池直登¹、水上成美¹、白井正文¹、高梨弘毅¹

(¹東北大、²高輝度光科学研究セ)

Magnetic Anisotropy and Damping for Co / Ni Epitaxial Superlattices

T. Seki¹, J. Shimada¹, S. Iihama¹, M. Tsujikawa¹, T. Koganezawa², A. Shioda¹, T. Y. Tashiro¹,
W. Zhou¹, N. Kikuchi¹, S. Mizukami¹, M. Shirai¹, and K. Takanashi¹

(¹Tohoku Univ., ²JASRI)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) は、記憶セルの超高集積化、高速かつ低消費電力動作、さらに高信頼性を実現できるアプリケーションとして期待されている。MRAM の構成要素となる磁気記憶素子には、磁化の熱安定性を担保するための高い一軸磁気異方性エネルギー(K_u)と、低電流密度で磁化反転させるための低いダンピング定数(α)という両方の特性が要求される。一般的に、高 K_u 材料には Pt などの貴金属や希土類元素が用いられており、大きなスピン軌道相互作用に起因して α が増大してしまうことが懸念される。加えて、資源枯渇の問題を考慮すると、貴金属や希土類元素といった希少元素を用いずに高 K_u かつ低 α を実現することが課題となる。そこで、本研究では $3d$ 遷移金属のみから成る Co-Ni 合金に着目し、原子層レベルで積層制御した Co / Ni 人工格子を作製することで高 K_u と低 α の実現を目指した。Ni 層厚を変化させた試料を用い、Ni 層厚が構造および磁気特性に与える影響を系統的に調べた。得られた実験結果を第一原理計算と比較することで、(111)配向した Co / Ni 人工格子における垂直磁気異方性の発現機構を議論し、高 K_u と低 α に向けた材料設計の指針を検討した。

実験結果

分子線エピタキシー法を用いて、サファイア a 面単結晶基板および熱酸化シリコン基板上に V / Au 下地層を成長させた後に、Ni 層および Co 層を交互に積層させて人工格子を作製した。ここで、Co 層厚を 1 原子層に固定し、Ni 層の原子層数(x)を変化させた。本研究では、0.20 nm が 1 原子層に相当する。X 線回折(XRD)および放射光(SR)-XRD により構造解析を行い、表面形態評価に反射高速電子線回折(RHEED)および原子間力顕微鏡(AFM)を用いた。磁気特性の評価には、振動試料型磁束計(VSM)、超伝導量子干渉素子(SQUID)、および磁気光学カー効果(MOKE)を用い、ダンピング定数は時間分解(TR)-MOKE を用いて評価した。

サファイア基板上において V / Au 下地層を用いることで、垂直磁化を有するエピタキシャル成長した Co / Ni 人工格子が作製された。一方、熱酸化シリコン基板上では面内無配向のテクスチャー薄膜となった¹⁾。エピタキシャル薄膜とテクスチャー薄膜の K_u および α を比較したところ、すべての Ni 層厚においてエピタキシャル薄膜はテクスチャー薄膜よりも高い K_u かつ低い α を示した。実験および第一原理計算で得られた K_u の Ni 層厚依存性では、いずれも $x=2$ において K_u が最大値を示し、実験と計算が定性的に一致した。さらに、 K_u と α の関係性について調べたところ、本研究においては明瞭な相関が見られなかった。このことは、Co / Ni エピタキシャル人工格子が、高 K_u と低 α を同時に実現できるスピントロニクス材料になりうることを示唆している。

参考文献

- 1) A. Shioda, T. Seki, J. Shimada, and K. Takanashi, *J. Appl. Phys.* **117**, 17C726-1-4 (2015).

Pt/[Tb/Co]_n 多層細線の電流誘起磁壁移動における Pt 層の効果

黒川雄一郎、栗野博之
(豊田工業大学)

Role of Pt layer for current induced domain wall motion in Pt/[Tb/Co]_n multilayered wire

Yuichiro Kurokawa and Hiroyuki Awano
(Toyota Technological Institute)

序論

電流による磁壁の駆動は、レーストラックメモリをはじめとした新規な磁気メモリや論理素子への応用が期待されるスピントロニクス新しい研究分野である。これまでの研究で、我々のグループでは Tb/Co 多層細線では希土類層に起因した大きなスピナービットトルクが存在する可能性をしめした。¹⁾ この研究では Tb/Co 磁性細線を用いて主に磁壁の電流駆動におけるジャロシンスキー守谷相互作用(DMI)の起源に注目して実験を行った。

実験方法

試料の成膜はスパッタリング装置を用いて行った。[Tb/Co]_n 多層膜を積層し、2 nm-Pt 層を多層膜上部または下部に堆積した。試料の細線への加工は電子ビームリソグラフィとリフトオフ法を用いて行った。加工した細線の幅は 3 μm である。この細線に 100 ns のパルス幅を持つパルス電流を印加することで電流誘起磁壁移動を観察した。電流誘起磁壁移動はカー効果顕微鏡を用いて観察した。また、細線長手方向へ磁場を印加した場合の電流駆動の磁壁速度の変化から DMI 有効磁場を見積もった。

実験結果

上部に Pt 層を積層した [Tb/Co]_n 多層膜($n = 4 - 6$)の電流誘起磁壁移動を観察したところ、全ての試料で磁壁が電流方向へ移動することが分かった。これは、スピナービットトルクによって磁壁が駆動されていることを示している。また、これらの試料に面内方向への磁場を印加し、DMI 有効磁場を見

積もったところ、磁性層の膜厚が大きくなるにしたがって、DMI 有効磁場が減少することが分かった。図 1 に Pt 層を [Tb/Co]₅ のそれぞれ上部、下部に挿入した試料の面内磁場に対する磁壁速度の変化の図を示す。図によると、磁壁速度の変化は up-down 磁壁と down-up 磁壁で異なる磁場依存性を持ち、かつ、それは Pt 層を下部層として用いた場合と上部層として用いた場合で反対の磁場依存性を示すことが分かった。これらの結果は、[Tb/Co]_n の電流誘起磁壁移動では Pt 層由来の DMI が強く働いていることを示唆する。また、これらの結果から DMI 定数を求めたところ従来の膜に対して十分の一度程度の値になり、Tb/Co 多層細線では DMI 定数が小さくても磁壁移動に対して十分に寄与していることが分かった。

謝辞

本研究は私立大学戦略的研究基盤形成支援事業：マイクロ・メソ構造制御による革新的グリーン電子素子・材料技術の基盤形成(2014-2019) および科研費 No.26630137 (2014-2016)の支援を受けて行ったものです。

参考文献

- 1) Do Bang, J. Yu, X. Qiu, Y. Wang, H. Awano, A. Manchon and H. Yang, Phys. Rev. B 93, 174424 (2016).

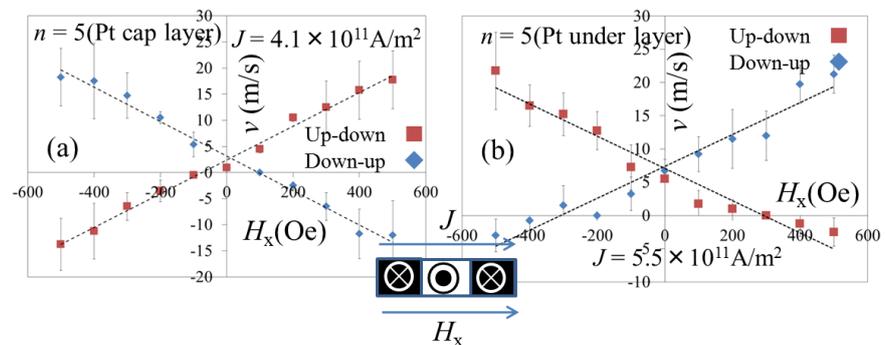


Fig. 1 Velocity (v) of domain wall in [Tb/Co]₅ wires with Pt (a) cap layer and (b) under layer as a function of longitudinal in-plane magnetic field (H_x).

Fe₃O₄(110)/非磁性金属/Fe 系多層膜における 飽和磁場の非磁性金属層膜厚に対する依存性

大森圭太¹、川井智博¹、柳瀬隆²、島田敏宏²、長浜太郎²
(北大院総合化学院¹、北大院工学研究院²)

Dependence of saturation field on non-magnetic (NM) metal layer thickness in Fe₃O₄(110)/NM metal/Fe systems

K. Omori¹, T. Kawai¹, T. Yanase², T. Shimada², T. Nagahama²

(Hokkaido Univ. of Graduate school of Chemical Sciences and Engineering¹,

Hokkaido Univ. of Graduate Faculty of Engineering²)

はじめに

非磁性層を介して強磁性層間に働く層間交換結合(Interlayer Exchange Coupling : IEC)は、多層膜をデバイスへ応用する際に重要な要素となる。Fe/Crのような金属系多層膜においては、IECが非磁性層膜厚に応じて振動的に変化することが知られており[1]、この現象については理論的な解釈がなされている。しかし、強磁性層に金属酸化物を用いた多層膜における IECの有無や非磁性層膜厚との関係には未だ不明な点が残っている。

本研究室川井らの研究により、Fe₃O₄(110)/Cr/Fe 系多層膜においてはCr層が厚くなるにしたがってFeの飽和磁場(H_s)が増大することが明らかとなった。この現象の解明には未だ至っていない。そこで本研究では、Fe₃O₄(110)/Cr/Fe 系多層膜の間にMgOを挿入したFe₃O₄(110)/MgO/Cr/Fe 系多層膜、およびCrをPtに変えたFe₃O₄(110)/Pt/Fe 系多層膜における H_s の膜厚依存性を調べ、Fe₃O₄(110)/Cr/Fe 系多層膜の場合と比較することを目的として行った。

実験方法

試料は分子線エピタキシー(MBE)法により作成した。膜構成はMgO(110)/NiO(5 nm)/Fe₃O₄(60 nm)/MgO(2 nm)/Cr(0~10 nm)/Fe(5 nm)/Al₂O₃(2 nm)およびMgO(110)/NiO(5 nm)/Fe₃O₄(60 nm)/Pt(0~10 nm)/Fe(5 nm)/Al₂O₃(2 nm)である。CrおよびPt層はリニアシャッターを動かしながら蒸着することで0~10 nmの傾斜をつけた。反射高速電子線回折(RHEED)を用いて各製膜層の表面を観察し、XRDによって構造解析を行った。磁化過程は磁気光学カー効果(MOKE)によって測定し、 H_s が非磁性層膜厚に対してどのように変化するか調べた。

実験結果

MOKE測定によって得られたヒステリシス曲線から H_s を読み取り、非磁性層膜厚(t)に対してプロットした(Fig. 1)。Fe₃O₄/MgO/Cr/Fe 系多層膜においてはFe₃O₄/Cr/Fe 系多層膜の場合と同様に、広い範囲で H_s の上昇が見られた。Fe₃O₄/MgO/Cr/Fe 系多層膜では間のMgO層によって強磁性層間の電子的な相関は断ち切られている。したがって、Fe₃O₄/Cr/Fe 系多層膜における H_s の上昇は電子的な相互作用以外の要因によるものだと考えられる。

Fe₃O₄/Pt/Fe 系多層膜においてはFe₃O₄/Cr/Fe 系多層膜の場合とは異なり、Pt層が厚くなるにつれて H_s はほぼ一定の値に近づいた。さらに、垂直磁気異方性をもつCo/Pt系多層膜の場合と同じような H_s の振動的な変化[2]が見られた。

参考文献

- [1] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).
[2] J. W. Knepper and F. Y. Yang, *Phys. Rev. B* **71**, 224403(2005).

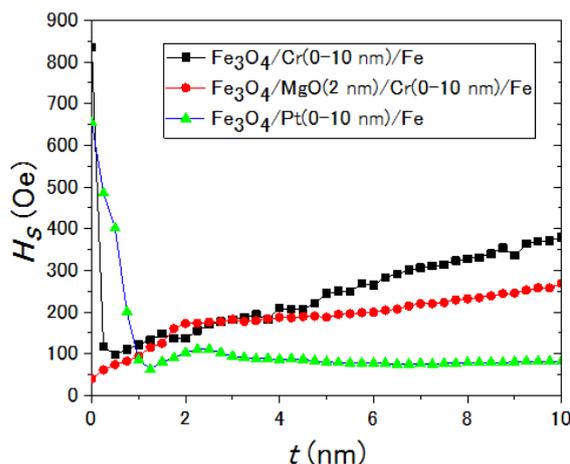


Fig. 1 Saturation field (H_s) of Fe₃O₄/Cr/Fe, Fe₃O₄/MgO/Cr/Fe and Fe₃O₄/Pt/Fe for non-magnetic layer thickness (t).

エピタキシャル成長した磁性フィボナッチ多層膜の強磁性共鳴

諏訪 智巳, 児玉 俊之, 吉田 明弘, 富田 知志, 細糸 信好, 柳 久雄

(奈良先端大物質)

Ferromagnetic resonance of epitaxially-grown magnetic Fibonacci multilayers

Tomomi Suwa, Toshiyuki Kodama, Akihiro Yoshida, Satoshi Tomita, Nobuyoshi Hosoi, Hisao Yanagi

(Graduate School of Materials Science, Nara Institute of Science and Technology)

はじめに

近年、相互作用を人工構造によって制御し、天然物では得られない物性を実現するメタ物質に注目が集まっている。なかでも一次元メタ物質（多層膜）は、相互作用がシンプルでかつ作製が容易であるため研究しやすい。特に並進対称性と時間反転対称性が同時に破れた、非周期/準周期系磁性多層膜は特異な磁気特性を示す理論計算の結果が報告されており興味深い¹⁾。しかしながらこのような多層膜の実験に関する報告はほとんどない。よって今回我々は、自然界の様々な場面で登場するフィボナッチ数列を利用して非周期系磁性多層膜（磁性フィボナッチ多層膜）を実現し、強磁性共鳴を調べたので報告する。

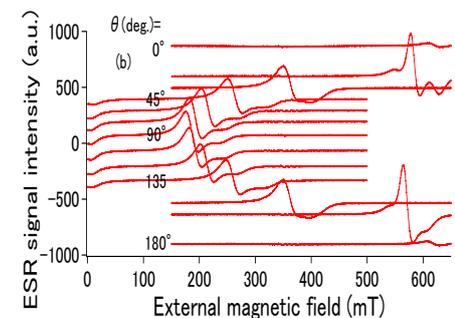
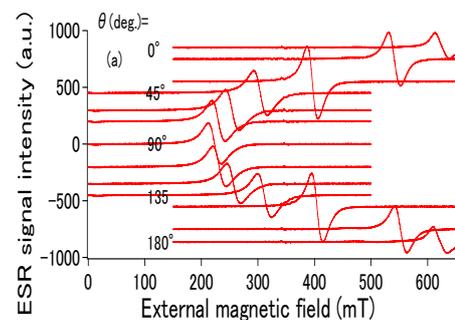
実験結果と考察

高真空多元電子線蒸着装置を用いて、単結晶 MgO(100)基板上に多層膜をエピタキシャル成長させた。本稿では元素記号の次の数字は膜厚(Å)を意味する。まずシード層 Fe₅、次にバッファー層 Au₂₀₀ を積層した。各層成膜後に反射高速電子線回折(RHEED)を用いて Fe₅/Au₂₀₀ の(100)面のエピタキシャル成長を確認した。その上に周期多層膜では[Fe₅/Au₃₀]₁₃を成膜した。これに対しフィボナッチ多層膜では、30 Åをフィボナッチ数列の値で割った Au 層と Fe を積層した [Fe₅/Au₃₀/Fe₅/Au₃₀/Fe₅/Au₁₅/Fe₅/Au₆/Fe₅/Au₄/Fe₅/Au₂]₂Fe₅/Au₃₀ を成膜した。多層膜成膜後にも RHEED でエピタキシャル成長を確認した。

電子スピン共鳴 (ESR) 装置 (JEOL JES-FA100) を用いて多層膜の ESR スペクトルを測定した。図(a)に周期多層膜の、図(b)にフィボナッチ多層膜の ESR スペクトルの印加磁場方向依存性を示す。膜の面直方向を $\theta = 0^\circ, 180^\circ$ とし、面内方向を $\theta = 90^\circ$ とした。周期多層膜では各角度で単一の共鳴信号が確認された。印加磁場を面内方向 ($\theta = 90^\circ$) に向けると共鳴信号は低磁場側にシフトした。この共鳴信号は、Fe 層でのスピンの一斉歳差運動によるキッテルモードの強磁性共鳴に起因すると考えられる。これに対して、フィボナッチ多層膜では複数の共鳴信号が見られる。更に印加磁場角度を変化させた場合のシフト量も大きい。講演ではこれらの共鳴信号の起源について議論する。

参考文献

- 1) L. D. Machado et al., *Phys. Rev. B* 85, 224416 (2012).



(a) 周期多層膜 (b) フィボナッチ多層膜の ESR スペクトル

Fe/Pd 薄膜の磁気特性に Pd 層の量子井戸状態が与える影響

櫻木俊輔, 中原翔太, 餅原耕佑, 沢田正博*, 佐藤徹哉
(慶大, * 広大)

Effect of quantum-well states in Pd layer on magnetic properties of Fe/Pd films

S. Sakuragi, S. Nakahara, K. Mochihara, M. Sawada*, and T. Sato

(Keio Univ., *Hiroshima Univ.)

1 はじめに

3d 遷移金属/(Pd・Pt) 界面には非常に強い磁気異方性が生じるため、磁気メモリへの応用を目指した研究が古くから行われている。最近では、(Pd・Pt) 層への電場印加により 3d 遷移金属/(Pd・Pt) の磁気異方性が変調可能であることが報告されており、界面に生じる特異な磁気特性を制御するための指針が立ちつつある¹⁾。本研究では Pd 中の量子井戸状態をプローブとして用いることで²⁾、3d 遷移金属/Pd における界面磁性の外場による変調を電子論の観点から議論することを試みた。

2 実験方法

HiSOR BL-14 において、フルエピタキシャルな Fe(3 原子層)/Pd(4-15 原子層)/Cu(100) を作製し、in-situ にて X 線吸収分光 (XAS) 測定および X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行った。BL-14 準備槽において超高真空中で Cu(100) 単結晶基板をスパッタ・アニールした後、基板上にエピタキシャル Pd 勾配膜および Fe を 3 原子層蒸着することで、Fe/Pd エピタキシャル薄膜を作製した。Fig. 1 に、試料の低速電子線回折像を示す。4 回対称のスポットが観測されており、Fe がエピタキシャルに成長していることが分かった。作製した試料を BL-14 測定槽に移動し、全電子収量法により Pd M 吸収端および Fe L 吸収端における XAS/XMCD の Pd 膜厚依存性を調べた。

3 実験結果

Fig. 2 に、Fe/Pd における Pd M_3 吸収端の XAS 強度の Pd 膜厚依存性を示す。Pd 膜厚が 8-9 原子層付近にて、XAS 強度がピークを示すことが分かった。本試料における Fe 層の磁気特性を、Fe の L 吸収端における XMCD 測定により評価した。 L_3 吸収端ピークトップにおける磁場磁化曲線の測定から、Fe が面内磁気異方性を有していたことが分かった。加えて、Fe の磁気異方性の大きさの Pd 膜厚依存性を調べたところ、Pd の XAS 強度が強まるにつれて Fe の面内磁気異方性が小さくなることが分かった。

XAS のホワイトラインの強度は、非専有準位数を反映する。よって、Fig. 2 は Pd の $4d$ 状態の非専有準位数が Pd 膜厚に依存して変化したことを示唆する。これは、Pd の d 電子量子井戸状態が特定の膜厚においてフェルミエネルギー付近に量子井戸バンドを形成したことより説明される。Pd 層の非専有準位数の変化は Fe 界面の電子数に影響を与えるため、それに起因して Fe 層の磁気異方性に変化が生じることが予想される³⁾。加えて、Pd の量子井戸バンドが $d_{xz,yz}$ 軌道より形成されることから、フェルミエネルギー付近の電子軌道に偏りが生じ、Fe 層の磁気異方性が変化した可能性を考慮する必要がある^{4,5)}。講演では、Pd の量子井戸状態に起因した Fe の磁気異方性の変化について詳細を議論する。



Fig. 1 LEED image

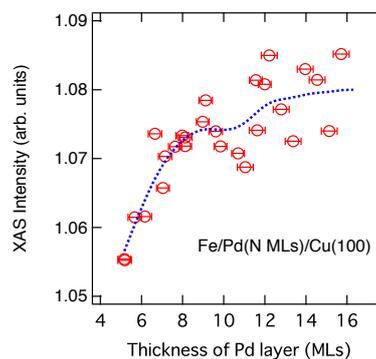


Fig. 2 Pd M_3 XAS intensity

References

- 1) Y. Hibino, T. Koyama, A. Obinata, K. Miwa, S. Ono, and D. Chiba: *APEX* **8**, 113002 (2015).
- 2) S. Sakuragi, et al.: *Phys. Rev. B* **90**, 054411 (2014).
- 3) H. Shima K. Oikawa, A. Fujita, K. Fukamichi, K. Ishida, and A. Sakuma: *Phys. Rev. B* **70**, 224408 (2004).
- 4) S. Manna, P. L. Gastelois, M. Dabrowski, P. Kuswik, M. Cina, M. Przybylski, and J. Kirschner: *Phys. Rev. B* **87**, 134401 (2013).
- 5) P. V. Ong, N. Kioussis, P. K. Amiri, J. G. Alzate, K. L. Wang, G. P. Carman, J. Hu, and R. Wu: *Phys. Rev. B* **89**, 094422 (2014)