

$L1_0$ (FeMn)Pt 薄膜の強磁性 - 反強磁性相変化と磁気相図

長谷川崇, 伊藤光祐 (院生) 中根大斗 (院生), 石尾俊二
(秋田大理工)

Magnetic phase diagram of $L1_0$ (FeMn)Pt films

T. Hasegawa, K. Ito, H. Nakane, S. Ishio
(Akita Univ.)

はじめに

$L1_0$ 型 FePt 規則合金は高い結晶磁気異方性を有する強磁性 (FM) 材料である。FePt の各サイトを適切な第三元素 (Mn, Rh 等) で置換すると反強磁性 (AF) が発現することが知られている^[1]。本研究では、実験的に (FeMn)Pt 薄膜の磁気相図を作成して、先行研究の理論計算と比較することで磁気構造の考察を行った。

実験方法

マグネトロンスパッタリング法により MgO (001) 単結晶基板上に膜厚 6.12nm の $Fe_{1-x}Mn_xPt$ を室温成膜し、次いで急速加熱処理 (300 /s, 700 , 20 分) を行った。組成比 (x) は Fe と Mn の膜厚比を変えることで制御した。結晶構造解析には X 線回析装置, 磁気特性評価には振動試料型磁力計および超電導量子干渉素子磁束計を用いた。

実験結果

Fig.1 は, $L1_0$ $Fe_{1-x}Mn_xPt$ 薄膜の格子定数比 c/a の x 依存性である。印は本研究の実験値, ×印は先行研究のバルクの実験値^[1], それ以外は理論計算値^[2]である。実験値の c/a は, x が増加するにつれて直線的に減少し $x = 0.46$ 付近で直線の傾きが変化している。実験と理論計算の結果を比較すると, $0 \leq x \leq 0.46$ の実験値は, 理論計算の FM に近い値をとっている。また $0.48 < x$ では, 実験値は理論計算の AF1 または AF2 に近い値をとっている。ここには示していないが、磁化温度履歴曲線を測定すると, $0 \leq x \leq 0.46$ の試料では温度低下に伴い磁化は増加したが、一方で $0.48 < x$ の試料では温度低下に伴う磁化の減少が観測された。以上より, 本試料の磁気構造は, $0 \leq x \leq 0.46$ では Fig.2a に示す FM 型, $0.48 < x$ では Fig.2b, c に示す AF1 型あるいは AF2 型である可能性が考えられる。

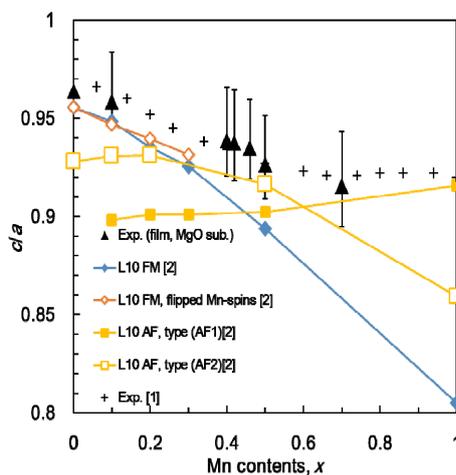


Fig.1 Dependence of c/a ratio on Mn composition (x).

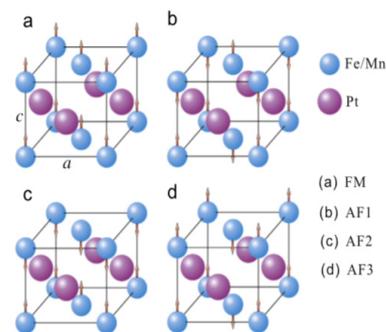


Fig.2 Ferromagnetic and antiferromagnetic spin configurations.^[3]

参考文献

[1] A. Z. Menshikov et al., J. Magn. Magn. Mater. 65, 159 (1987). [2] M. E. Gruner et al., Beilstein J. Nanotechnol. 2, 162-172 (2011). [3] H. B. Luo et al., J. Magn. Magn. Mater. 378, 138-142(2015).

謝辞: 本研究は科研費 (15H05518) の助成を受けて行われた。また測定の一部は東北大学金属材料研究所との共同研究 (16K0099) により行われた。

$L1_0$ FePt 薄膜の磁気特性に与える格子歪みの影響

中根大斗, 長谷川崇, 石尾俊二
秋田大理工

Influence of lattice distortion on the magnetic properties of $L1_0$ FePt thin films.

H. Nakane, T. Hasegawa, S. Ishio
(Akita Univ.)

はじめに

$L1_0$ 型 FePt 規則合金は 7×10^7 erg/cm³ の高い結晶磁気異方性 (K_u) を有するため、次世代の超高密度磁気記録媒体材料として期待されている。また、 $L1_0$ FePt に関する第一原理計算からは、軸比 (c/a) と K_u や T_c 等の磁気特性に相関があることが示されている¹⁾。しかしそれを実験的に評価した報告は少ない²⁾。そこで本研究では、MgO、STO、MgAl₂O₄ の異なる基板上に FePt を成膜することで格子歪みを導入し、磁気特性に与える影響を調査した。

実験方法

成膜には酸化物マルチチャンバスパッタ装置 (到達真空度 $< 5 \times 10^{-7}$ Pa) を用いた。各基板上に Fe₅₀Pt₅₀ を (001) 配向させるため、STO(100)、MgAl₂O₄(100) 単結晶基板では基板温度 640 °C で成膜を行った。MgO(100) 単結晶基板では室温で成膜を行い、成膜後に 300 °C/s、800 °C、20 分の急速加熱処理を行った。結晶構造解析には X 線回折装置 (XRD)、磁気特性の評価には振動試料型磁力計を用いた。

実験結果

Fig.1 に、MgO、STO、MgAl₂O₄ の異なる基板上に成膜した FePt 薄膜の XRD パターンを示す。MgO 基板と STO 基板を用いた試料では、FePt (001)、(002) ピークのみが観測されることから、良好に $L1_0$ 規則化・配向した試料が得られていることがわかる。MgAl₂O₄ 基板を用いた試料では、FePt(001)、(002) ピークの他に FePt(111) ピークも観測されており、部分的にはあるが配向していない領域が存在することがわかる。Fig.2 は、Fig.1 における FePt(001) ピークと、ここには示していないが In-plane XRD から得られた FePt(200) ピークを用いて格子定数 c と a をそれぞれ算出し、その軸比 (c/a) に対して K_u をプロットしたものである。Fig.2 より、MgO 基板を用いた試料において格子歪みが最大となり、その歪み量は 0.78 % 程度 (理論値は 9.4 %) であると見積もられた。また軸比 (c/a) と K_u との間には相関関係がみられる。

参考文献

- 1) X. B. Liu et al., J. Appl. Phys. 109, 07B762 (2011).
- 2) T. Hasegawa et al., 日本金属学会誌 第 79 巻 第 9 号 423-428 (2015).

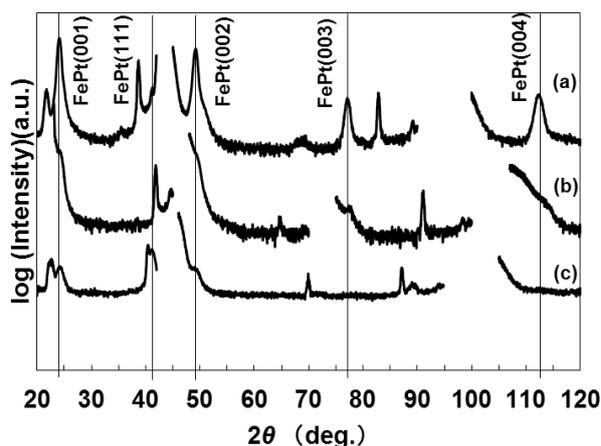


Fig.1 XRD spectra of (a) MgOsub./FePt (6nm), (b) STOSub./FePt (6nm), (c) MgAl₂O₄sub./FePt (6nm).

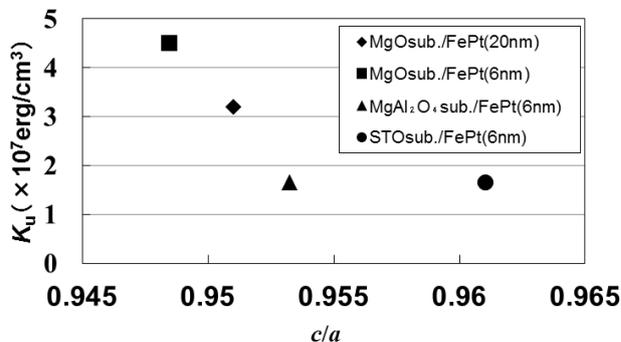


Fig.2 Lattice distortion dependence of K_u .

下地層材料および結晶性が FePt 合金薄膜の構造に及ぼす影響

清水智貴¹・中村将大¹・落合亮真¹・大竹充^{1,2}・二本正昭¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴

(¹中央大, ²工学院大, ³東京藝大, ⁴山形大)

Influence of Underlayer Material and Crystallographic Quality on the Structure of FePt Alloy Thin Film

Tomoki Shimizu¹, Masahiro Nakamura¹, Ryoma Ochiai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2},

Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに $L1_0$ -FePt規則合金は 6.6×10^7 erg/cm³の高い K_u を持つ。合金薄膜が高密度磁気記録媒体やMRAMへの応用が検討されているが、磁化容易軸である c 軸を基板面に対し垂直方向とすることが必要であり、(001)配向した下地層や結晶基板への製膜が行われている^{1,2)}。本研究では、MgO(001), SrTiO₃(001)基板および自然酸化膜付のSi基板上に、NaCl構造を持つ下地層を形成し、下地層材料がFePt膜の構造に及ぼす影響を系統的に調べた。

実験方法 膜形成には超高真空RFマグネトロンスパッタリング装置を用いた。基板上に2 nm厚の下地層、次いで10 nm厚のFePt膜を形成した。試料作製法として、600 °Cの高基板温度で製膜する方法(1段階法)と200 °CでFePt膜を形成した後、600 °Cで熱処理を行う方法(2段階法)の2種類を用いた。構造評価にはRHEED, XRD, AFM, 磁気特性測定にはVSMを用いた。

実験結果 Fig. 1にRHEEDパターンを示す。MgOとSrTiO₃基板上に形成したMgO下地層は(001)配向しており、その上に形成したFePt膜も配向成長していることが回折パターンから分かる。一方、Si基板上ではMgOおよびFePt膜の回折はリング状で、いずれも多結晶膜であることが分かる。Fig. 2に面外XRDパターンを示す。MgOおよびSrTiO₃基板上ではFePt(001)超格子反射が認められるが、Si基板上では観察されていない。Fig. 3のAFM像から1段階法で形成したFePt膜は{111}ファセットなどに囲まれた起伏の多い島状結晶から成っているのに対し、2段階法で形成した膜では良好な表面平坦性が得られることが分かる。NaCl構造を持つ他の下地層(V_C, V_N)がFePt膜の形態や結晶配向に及ぼす影響については当日発表予定である。

参考文献

- 1) Y. K. Takahashi, K. Shima, and K. Takanashi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **267**, 248 (2003).
- 2) T. Suzuki, K. Handa, and K. Ouchi: *J. Magn. Magn. Mater.*, **193**, 85 (1999).

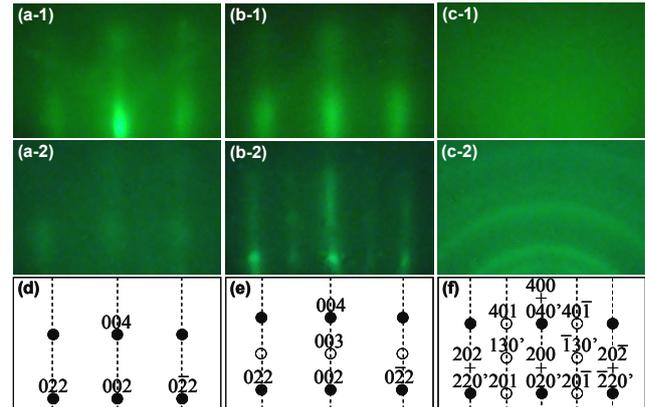


Fig. 1 (a)–(c) RHEED patterns observed for (a-1)–(c-1) MgO single-layer and (a-2)–(c-2) FePt/MgO bi-layer films deposited on (a) MgO(001), (b) SrTiO₃(001), and (c) SiO₂/Si substrates at 600 °C. (d)–(f) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (d) B1(001), (e) L1₀(001), and (f) L1₀(100)+(010) crystals.

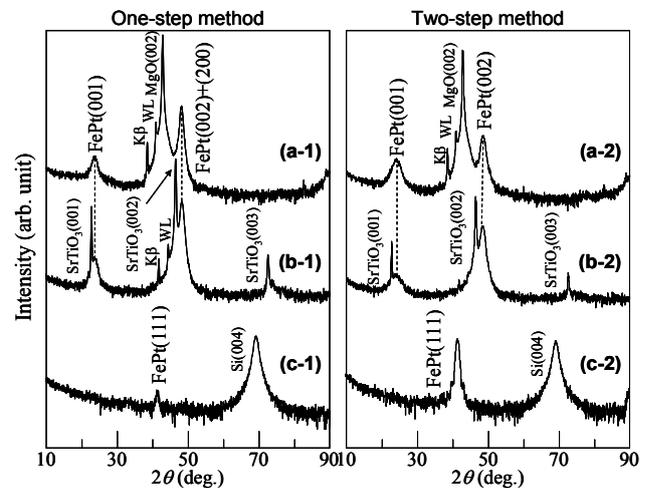


Fig. 2 Out-of-plane XRD patterns measured for FePt/MgO bi-layer films formed on MgO(001), (b) SrTiO₃(001), and (c) SiO₂/Si substrates (a-1)–(c-1) by deposition at 600 °C (one-step method) and (a-2)–(c-2) by deposition at 200 °C followed by annealing at 600 °C (two-step method).

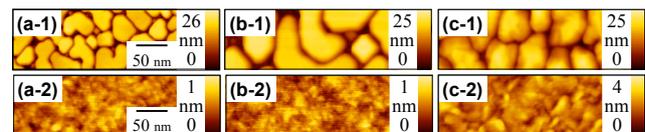


Fig. 3 AFM images observed for FePt/MgO bi-layer films formed on MgO(001), (b) SrTiO₃(001), and (c) SiO₂/Si substrates (a-1)–(c-1) by deposition at 600 °C (one-step method) and (a-2)–(c-2) by deposition at 200 °C followed by annealing at 600 °C (two-step method).

$L1_0$ - Mn_xGa エピタキシャル薄膜の作製と磁気特性

高橋勇圭、手代木元太、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大学大学院工学研究科)

Fabrication and their magnetic properties of $L1_0$ - Mn_xGa epitaxial thin films

Y. Takahashi, G. Teshirogi, T. Shima, M. Doi

(Graduate School of Engineering, Tohoku Gakuin University)

はじめに

近年では Mn-Ga 合金薄膜は高結晶磁気異方性($\sim 10^7$ erg/cc)¹⁾を示すことから新規永久磁石材料やスピントロニクスデバイスの次世代材料として注目されており、Mn-Ga 合金薄膜の研究が多く行われている。 $L1_0$ 型 Mn-Ga 薄膜は強磁性で比較的高い飽和磁化を示し、高結晶磁気異方性を有するとされているが、バルクにおける $L1_0$ 型 Mn-Ga (1 対 1) 合金は平衡状態図では存在しない。また、蒸着法を用いて作製された Mn-Ga 合金薄膜の報告も少なく、基板に対して容易軸が垂直に向いた高い垂直磁気異方性を有する薄膜も報告されていない。本研究では超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて作製した $L1_0$ 型 Mn_xGa エピタキシャル薄膜の規則度および表面粗さに対する磁気特性の関係を明らかにすることを目的とした。

実験方法

薄膜試料は超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて作製し、蒸着ソースは到達真空度 5×10^{-3} Pa 以下の状態でアーク溶解法により作製した $Mn_{1.0}Ga$ 合金を用いた。到達真空度 8.9×10^{-7} Pa 以下、基板温度 $T_s = 300$ °C、熱処理温度 $T_a = 300 \sim 600$ °C、熱処理時間 3h、成膜速度 Cr は 0.1 (Å/s)、Mn-Ga は 0.3 (Å/s)とした。また膜構成は MgO(100) 基板上にバッファ層として Cr を 5 nm、磁性層として MnGa を 5~100 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。作製した試料は組成をエネルギー分散型 X 線(EDX)分析装置、結晶構造を X 線回折装置(XRD)、結晶化評価を反射高速(RHEED)、磁気特性を(SQUID)により評価した。

実験結果

Fig.1 に薄膜作製時の MgO 基板と Cr バッファ層、磁性層の $L1_0$ -MnGa[100]azimuth をその場観察した RHEED パターンを示す。RHEED パターンではそれぞれのストリーク間隔が下の層に合うように成長しており、 $L1_0$ -MnGa 層では表面再配列構造も観察された。これは原子レベルで平坦な表面が成膜されたエピタキシャルな薄膜であるといえる。Fig.2 に $Mn_{1.3}Ga$ 薄膜における X 線回折パターンを示す。X 線回折パターンでは熱処理前、熱処理後のいずれも $L1_0$ -MnGa の(001)超格子ピークと(002)基本ピークが観察され、高い垂直磁気異方性を有する薄膜が得られた。講演では Mn 組成と膜厚を変化させた薄膜の基板温度や熱処理温度における規則度および表面粗さと磁気特性の関係について報告する。

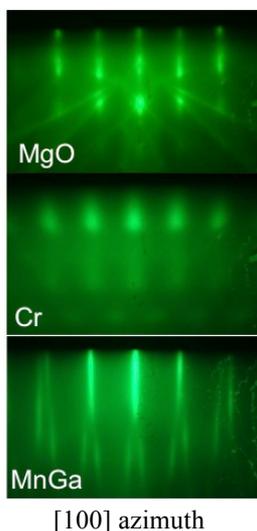


Fig.1 RHEED patterns of $L1_0$ -Mn-Ga epitaxial

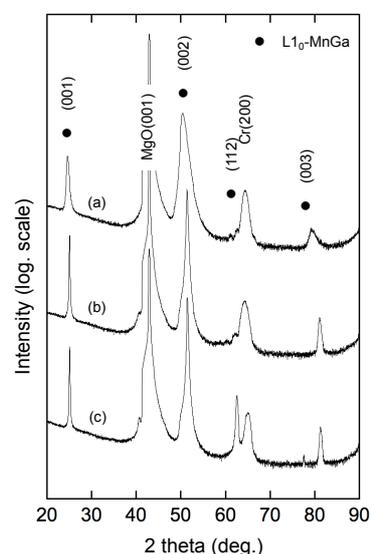


Fig.2 XRD patterns of Mn-Ga thin films $T_s = 300$ °C, $T_a =$ (a) Without annealing, (b) 500 °C, (c) 600 °C.

参考文献

- 1) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, and Y. Ando, *Phys. Rev. B* **85**, 014416 (2012).

$L1_0$ -MnGa 円形ドットにおける磁気特性のサイズ依存性

幕田 裕和、高橋 勇圭、嶋 敏之、土井 正晶
(東北学院大学)

Magnetic properties dependence on size of $L1_0$ - MnGa circular dots

H. Makuta, Y. Takahashi, T. Shima, M. Doi
(Tohoku Gakuin Univ.)

背景

$L1_0$ -MnGa 合金は高い一軸磁気異方性($\sim 10^7$ erg/cm³)¹⁾を示すことから、希土類元素、貴金属元素を含まない高性能磁性材料として注目を集め、スピニエレクトロニクスデバイス分野などへの応用に向けた数多くの研究が行われてきた²⁾。しかしながら、微小サイズにおける $L1_0$ -MnGa 合金の磁気特性に関する研究報告は少なく、高密度メモリや微小デバイスへの応用のためにはこの解明が望まれる。本研究では、電子線リソグラフィを用いた微細加工によって $L1_0$ -MnGa 円形ドット配列試料を作製し、ドットサイズと磁気特性の関係を調査した。

実験方法

薄膜試料は高周波マグネトロンスパッタリング装置を用いて MgO(100)基板上に Cr バッファ層、MnGa 層、Cr キャップ層の順に積層し作製した。MnGa 層の成膜には Mn 及び MnGa (40:60 at. %)合金ターゲットを用い、Mn と MnGa を交互に積層し、これに熱処理を施すことにより $L1_0$ 構造への規則化を促進させた。薄膜の微細加工には電子線リソグラフィ及び Ar イオンミリング装置を用い、様々な直径の円形ドットを作製した。特性評価は、組成分析にエネルギー分散型 X 線分析(EDX)、結晶構造解析に X 線回折(XRD)、磁気特性評価に超伝導量子干渉素子(SQUID)及びマイクロ磁気光学 Kerr 効果測定(μ -MOKE)、薄膜表面形態、ドット形状観察に原子間力顕微鏡(AFM)、磁区構造観察に磁気力顕微鏡(MFM)をそれぞれ用いた。

実験結果

MnGa 層成膜時の基板温度 T_s の最適条件を検討するため、後熱処理温度を 300 °C に固定し、 T_s を変化させて結晶構造と磁気特性の評価を行った。MnGa 層の総膜厚は 20 nm とした。これら薄膜の XRD パターンから $T_s = 100$ °C から 300 °C の範囲において $L1_0$ -MnGa の (001)、(002)ピークが明瞭に観察されたことから、 $L1_0$ 構造に規則化した MnGa 相が得られていることが確認された。磁化曲線を Fig.1 に示す。磁化測定の結果、 $T_s = 100$ °C において最も高い 288 emu/cm³ の飽和磁化が確認され、さらに T_s を増加させると飽和磁化が低下した。講演では、これら薄膜試料を微細加工して作製された円形ドットの、磁気特性のサイズ依存性について詳細に報告する。

参考文献

- 1) S. Mizukami *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 014416 (2012)
- 2) Q. L. Ma *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 157202 (2014)

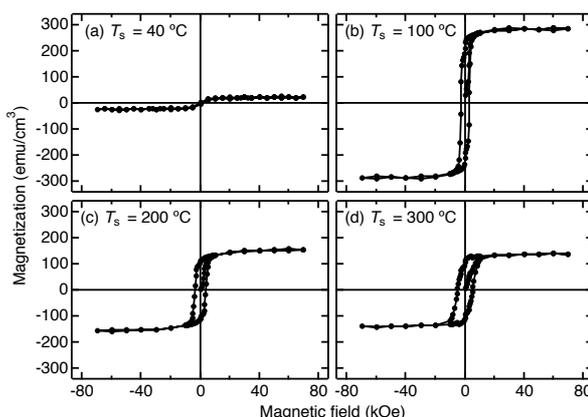


Fig. 1 Magnetization curves for the MnGa thin films with (a) $T_s = 40$ °C, (b) 100 °C, (c) 200 °C, and (d) 300 °C. The field was applied to out-of-plane direction.

垂直磁化強磁性トンネル接合のための $L1_0$ 型 MnAl 薄膜の作製と磁気特性

渡部健太, 大兼幹彦, 窪田美穂, 安藤康夫
(東北大学大学院工学研究科)

Magnetic Properties of $L1_0$ -MnAl Thin Films for Perpendicular Magnetic Tunnel Junctions

K. Watanabe, M. Oogane, M. Kubota, Y. Ando

(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

【背景】

G-bit クラスの磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) を実現するために、新しい磁性材料の開発が求められている。STT-MRAM の超高集積化に伴い、熱揺らぎによる磁性層の超常磁性化が問題となる。数十 nm の素子サイズにおいて強磁性状態を 10 年以上維持するためには、 10^7 erg/cc 程度の高い結晶磁気異方性が必要である。また、書き込み電力を低減するためには、低飽和磁化と低ダンピング定数を併せ持つ必要がある。我々は G-bit クラスの STT-MRAM の実現に向けて、高い結晶磁気異方性($K_u = 1.5 \times 10^7$ erg/cc)、低飽和磁化($M_s = 550$ emu/cc)、小さなダンピング定数($\alpha \sim 0.006$ ※in-plane)を有する $L1_0$ 型 MnAl に着目した。¹⁾本研究では、高い結晶磁気異方性($K_u \geq 10^7$ erg/cc)、低ラフネス($R_a \leq 0.5$ nm)を有する $L1_0$ 型 MnAl 薄膜をスパッタリング法により作製し、垂直磁化強磁性トンネル接合への応用可能性を明らかにすることを目的とした。

【実験方法】

薄膜試料は、超高真空多元マグネトロンスパッタ装置を用いて MgO(100)単結晶基板上に成膜した。膜構成はバッファ層として CrRu を 40 nm、磁性層として MnAl を t_{MnAl} nm、酸化保護層として Ta を 5 nm とした。到達真空度は 4.0×10^{-7} Pa 以下で成膜を行った。MnAl 層の膜厚は $t_{\text{MnAl}} = 3 \sim 50$ nm、基板温度は $T_s = 200 \sim 400$ °C、ポストアニール温度は $T_a = 300 \sim 400$ °C で変化させた。成膜後、結晶構造は X 線回折法(XRD)、磁気特性は超伝導量子干渉型磁束計(SQUID)、表面平坦性は原子間力顕微鏡(AFM)を用いて評価した。

【結果】

Fig. 1 に、 $t_{\text{MnAl}} = 50$ nm 試料の飽和磁化(M_s)と表面粗さ(R_a)の基板温度依存性を示す。 $T_s = 350$ °C において飽和磁化 $M_s = 561$ emu/cc と非常に大きな結晶磁気異方性 $K_u = 1.2 \times 10^7$ erg/cc を得た。一方、表面粗さは $R_a = 1.1$ nm と大きく、強磁性トンネル接合の電極に応用するには不十分であった。この表面粗さを改善する目的で、ポストアニールの検討を行った。ポストアニール温度を最適化した結果、表面粗さが改善し、垂直磁化トンネル接合に応用可能な MnAl 薄膜を得ることができた。講演では、磁気特性の膜厚依存性についても述べる。

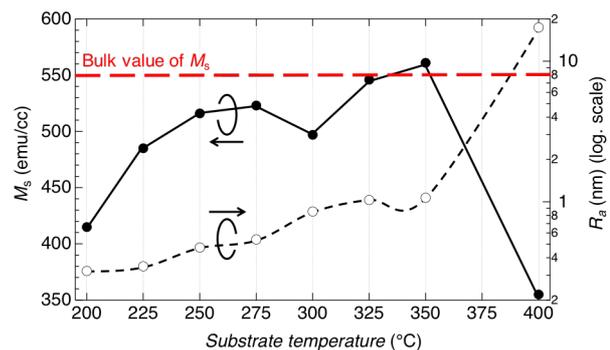


Fig. 1 Substrate temperature dependence of M_s and R_a .

謝辞: 本研究は文部科学省「未来実現のための ICT 基盤技術の研究開発」および科学研究費補助金基盤 S (No. 24226001)の支援により行われた。

参考文献

- 1) M. Hosoda, M. Oogane *et al*, J. Appl. Phys., 111, 07A324 (2012).