# Mn<sub>2</sub>VAl/Fe 積層膜における交換バイアス効果

土屋朋生<sup>1</sup>,小林亮太<sup>1</sup>,窪田崇秀<sup>1,2</sup>,高梨弘毅<sup>1,2</sup> (1 東北大学金属材料研究所,<sup>2</sup> 東北大 スピントロニクス学術連携研究教育センター)

# Exchange bias field of epitaxially grown Mn<sub>2</sub>VAl/Fe bilayers

Tomoki Tsuchiya, Ryota Kobayashi, Takahide Kubota, and Koki Takanashi (<sup>1</sup>Institute for Materials Research, Tohoku Univ.) <sup>2</sup> CSRN, Tohoku Univ.)

## <u>緒言</u>

ハードディスクドライブ(HDD)の磁気センサや磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)などのスピントロ ニクスデバイスにはスピンバルブ構造が用いられている。スピンバルブ中の反強磁性体は一方向磁気異方性 により隣接する強磁性層の磁化を固定する役割を担っている。Mn<sub>3</sub>Ir は高交換結合磁界と高ブロッキング温度 を両立する魅力的な材料であるため、スピンバルブ構造に広く用いられているが、Ir は希少金属であり、元 素戦略的な観点から使用量の削減が望まれる。本研究では、Mn<sub>3</sub>Ir を代替しうる材料として反強磁性体のホイ スラー合金に着目した。反強磁性ホイスラー合金は、Co-Fe 合金やハーフメタルホイスラー合金などのスピ ン偏極率が高い強磁性体材料と格子整合性が良く特性の向上が期待できる。他方、反強磁性ホイスラー合金 を用いた交換バイアス効果の研究は少なく、系統的な実験による知見の蓄積が必要である。本研究では Mn<sub>3</sub>Ir の代替材料として、ホイスラー合金 Mn<sub>2</sub>VAI に注目した。Mn<sub>2</sub>VAI はバルクにおいて *A*2 構造の時に反強磁性 となり、そのネール温度は 600 K 以上と室温よりも十分に高い値であることが報告されている[1]。そこで、 *A*2 構造の Mn<sub>2</sub>VAI と強磁性体 Fe との積層膜を作製し、その結晶構造、磁気特性を系統的に調査することを 目的とした。

### <u>実験方法</u>

薄膜試料はMgO(100)単結晶基板上にDCマグネトロンスパッタ法を用いて作製した。Mn<sub>2</sub>VAlの膜厚は100 nmとし、成膜温度を室温から700℃の範囲で変化させた。Mn<sub>2</sub>VAl薄膜上に強磁性層のFeとキャップ層のCrをそれぞれ3nm、室温で成膜した。試料は全層成膜後に1Tの磁場を印加しながら200~500℃でポストアニールを行った。Mn<sub>2</sub>VAl薄膜の組成は同時スパッタ法により化学量論組成に近付くように調整した。作製した試料の結晶構造はX線構造回折法(XRD)、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)と超伝導量子干渉磁束計(SQUID)により測定した。

### 結果

XRD 測定の結果、全ての試料において、Mn<sub>2</sub>VAl が MgO (100)単結晶基板上に(001)配向でエピタキシャル 成長していることが確認された。また、成膜温度が室温、300°C、700°C の試料は A2 相、500°C の試料は L2<sub>1</sub> 相となることが確認された。一方、印加磁場 1 T において磁場中冷却を行った後に積層膜の磁化曲線を測定 した結果、200~400°C でポストアニールを行った試料については、測定温度 10 K において磁化曲線の交換 バイアスシフトが観察され、その最大値は 45 Oe であった。500°C でポストアニールを行った試料は、Fe 層 の Mn<sub>2</sub>VAl 層への拡散に起因すると考えられる磁化の消失が確認された。今後、室温での交換バイアスシフ トの発現、シフト磁場の増大に向けて組成等の最適化を進める予定である。

### 謝辞

本研究の一部はJST 国際科学技術共同研究推進事業(SICORP-EU, HARFIR)および新素材共同研 究開発センター共同利用研究(課題番号:16G0407)の支援を受けて行われた。

### 参考文献

[1] 貝沼亮介、日本金属学会 2015 年秋期講演大会、S4・12、(2015)

## IrMn/CoCr 交換結合膜における交換結合磁界 H<sub>ex</sub>の時間変化

山内飛輝、遠藤拓\*、鈴木良夫\* (日本大学大学院、\*日本大学)

## Time dependence of exchange coupling field $H_{ex}$ in IrMn/CoCr exchange coupled film

T. Yamauchi, H. Endo, Y. Suzuki

(Nihon Univ. Graduate school, \*Nihon Univ.)

### <u>はじめに</u>

HDDのGMR ヘッド・TMR ヘッドには強磁性層と反強磁性層で構成される交換結合膜が利用されており、 強磁性層と反強磁性層の界面における磁気的な作用の強さは交換結合磁界 *H<sub>ex</sub>*で表される。

本研究の主な目的は H<sub>ex</sub>を増大させる成膜条件の検討であるが、研究中に作製した試料を室温・大気中で 保存した際に H<sub>ex</sub>が時間の経過と共に増加する現象が見られた。保護膜の機能不全による試料の酸化を疑い、 保護膜材料の違いによる影響を調べた。また、基板加熱を行いながら試料を作製し、基板加熱が H<sub>ex</sub>の増加 現象に与える影響を調べた。これらの結果から H<sub>ex</sub>増加現象を説明できる Mn 拡散モデルを考案した。

### <u>実験方法</u>

交換結合膜は Ta/CoCr/IrMn/NiCr/Si(111)の構成とし、約 120 [Oe]の磁界を印加しながら DC マグネトロンス パッタ装置で成膜した。また、Pt を保護膜とした試料と保護膜なしの試料も作製した。基板加熱試料として 加熱温度 50 [℃]、100 [℃]の二種類を作製した。全ての試料において IrMn ターゲットの組成は Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub> [at%] のものを使用した。

#### <u>実験結果</u>

試料の酸化によって $H_{ex}$ が時間と共に増加したという可能性につい て調べるため、保護膜の厚さや材料を変えた試料を作製し、比較した。 Fig. 1 に Ta 保護膜の有無および厚さを変えて成膜した試料を室温で放 置した際の $H_{ex}$ の経時変化を示す。保護膜の厚さ、有無に関わらず、両 者の $H_{ex}$ は同様の傾向で増加した。ここで、室温放置のみで大きな $H_{ex}$ の変化が発生したことに注目した。Pt 保護膜を使用して作製した試料 でも同様の結果が得られ、 $H_{ex}$ 増加現象の原因は保護膜の厚さや有無、 膜の酸化によるものではないと推測される。

基板加熱が  $H_{ex}$ 増加現象へ与える影響を調べるため、基板加熱を行い ながら試料を作製した。Fig. 2 に基板温度を変えて作製した試料の  $H_{ex}$ の変化を示す。基板加熱をした試料の  $H_{ex}$ は、全ての温度で基板加熱な しの試料の  $H_{ex}$ よりも減少した。この原因として、IrMn の組成変化が 考えられる。反強磁性を得るには  $Ir_{20}Mn_{80}$  [at%]が最適組成であると報 告されている<sup>1)</sup>。基板加熱により高温になるほど Mn が交換結合界面か ら拡散し、その結果、交換結合が弱まり  $H_{ex}$ が低下したことが考えられ る。また、 $H_{ex}$ が時間と共に増加する現象に関しては、基板加熱なしの 試料と基板加熱 50℃の試料では見られたが、基板加熱 100℃の試料で はほとんど見られなかった。基板加熱 50℃の試料では Fig. 3 に示すよ うに、基板加熱によって界面から離れていた Mn(白丸)の一部が室温の 熱によって徐々に界面付近に戻り、 $H_{ex}$ が増加したと解釈できる。基板 加熱 100℃の試料では、Mn が界面からより離れた位置まで移動してし まい、時間経過後の  $H_{ex}$ の変化がなかったと考えられる。

#### 参考文献

1) K. Hoshino et al., Jpn. J. Appl. Phys., 35, pp. 607-612(1996).



Fig. 1 Time dependence of  $H_{ex}$  for films with Ta capping layer of different thickness



Fig. 2 Time dependence of  $H_{ex}$  for films deposited at different substrate temperatures



(●→ Ir O→ Mn)
Fig. 3 Model of Mn dispersion in exchange coupled films (substrate heating 50[°C])

# 低キュリー温度 CoPd/Pd 多層膜を用いた交換結合膜の磁化反転

## 董夏茵,大島大輝,加藤剛志,園部義明\*,岩田聡 (名大,\*サムスン日本研究所)

Magnetization switching of exchange coupled bilayers with low Curie temperature CoPd/Pd multilayers

### X. Dong, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe\*, S. Iwata

(Nagoya Univ., \*Samsung R&D Institute Japan)

## 1. はじめに

スピン注入磁化反転は、大容量 MRAM を実現する技術として開発が進められているが、Gbit を超える容量の実現には、高い熱安定性と低い臨界電流を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められる.我々は高効率な磁化反転を実現するメモリ層として、低いキュリー温度(低 Tc)と高い垂直磁気異方性(高 Ku)を有する層と高 Tc,低 Kuの層を交換結合させた積層型メモリ層に注目し、低 Tc層として CoPd/Pd 多層膜。高 Tc層として Co/Pd 多層膜を用いた積層膜の磁化反転特性を調べたので報告する.

### 2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により, Si sub. / Ta (10) / Pd (5) / [Pd (1.2) / Co (0.3)]<sub>6</sub> / Pd (t<sub>Pd</sub>) / [Pd (1.2) / Co<sub>45</sub>Pd<sub>55</sub> (0.3)]<sub>6</sub> / Pd (1.2) / Ta (2) (膜厚の単位は nm) を作製した. Co / Pd 多層膜と CoPd / Pd 多層膜 の間の Pd 層厚 t<sub>Pd</sub>は 0~10 nm で変化させた. 磁化の温度依存性,加熱による磁化反転は,サンプルをヒーターの上に固定し,Kerr 効果を観測することにより調べた.

### 3. 実験結果

Co/Pd 多層膜および CoPd/Pd 多層膜の Kerr 回転角の温度依存性から、Co/Pd 多層膜の T<sub>c</sub> は 300 °C 以上であるのに対し、Co 層を Co<sub>45</sub>Pd<sub>55</sub> 合金層とした多層膜では、T<sub>c</sub> を 75 °C まで低くできることを確認した. 図1は Co/Pd 多層膜と CoPd/Pd 多層膜を積層した交換結合膜について、昇温、冷却過程における Kerr 回転角を観測した結果である. なお、ここでは t<sub>Pd</sub> = 0 nm の結果を示している. まず、(I) +7 kOe の磁界を印加したて、二

つの層の磁化を上向きに飽和させた後、(II)無 磁場状態で試料を 180 ℃ まで昇温しながら Kerr 回転角の変化を調べた(●で示す).約90 ℃でKerr回転角の低下が緩やかになっている が,これは CoPd/Pd の磁化が消失することに対 応している.次に180℃で、(III)-2 kOeの磁界 を印加したところ、回転角は大きく減少した。 これは高Tc層のCo/Pd が磁化反転したことを 示している. さらに(IV) Co/Pd の保磁力以下で ある+0.05 kOe の磁界を印加しながら室温まで 冷却した際の Kerr 回転角の変化を調べた(■ で示す). 上向きの磁界を印加しながら冷却し たにもかかわらず,低Tc層のCoPd/Pdの磁化 は高 Tc の Co/Pd 層との交換結合により Co/Pd の磁化方向と平行(下向き)になっていること が分かる.この結果から、低Tc/高Tc二層積層 膜では高温で高 Tc 層のみを磁化反転させるこ とで、低 Tc 層の磁化も反転させられることが 分かった.



Fig. 1 Kerr signal monitored during heating and cooling of the [Pd / Co] / [Pd / CoPd] hybrid stack. No field was applied during the heating, and at 180°C, negative field of –2kOe was applied. Then small positive field +0.05 kOe was applied during the cooling.

# 対向ターゲット式スパッタ法を用いた FeCoB/SmCo5 薄膜の作製

田中純太、高村陽太、中川茂樹 (東京工業大学) Fabricating FeCoB/SmCo<sub>5</sub> film prepared by Facing Target Sputtering J.Tanaka, Y.Takamura, S.Nakagawa (Tokyo Institute of Technology)

## <u>はじめに</u>

最大エネルギー積が高くかつ耐熱性の高い永久磁石薄膜は、様々な環境下で使用が想定されるマイクロア クチュエーターやマイクロセンサー等の用途に需要がある。現在最も高い最大エネルギー積を持つ Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B は、キュリー点が 315℃<sup>1)</sup>と低く耐熱性に難があるため、本研究では SmCo<sub>5</sub>を用いて永久磁石薄膜の作製を 行った。この際に高飽和磁化を達成するために下地には、SmCo<sub>5</sub>の配向制御も期待し、高飽和磁化の FeCoB を採用した。FeCoB 層の厚さと成膜温度を変化させて薄膜を作製し、結晶構造、磁気特性の評価を行った結 果を報告する。

### <u>実験方法</u>

試料は対向ターゲット式スパッタ法により成膜した。 Si/SiO<sub>2</sub>/FeCoB/SmCo<sub>5</sub>/Ta 積層膜を基板温度 375-500℃で成膜し、結 晶構造をX線回折法(XRD)、磁気特性を振動試料型磁力計(VSM)、 深さ方向組成分布をX線光電子分光(XPS)、オージェ電子分光 法(AES)により評価した。

### <u>実験結果</u>

Fig.1 に Si/SiO<sub>2</sub>/FeCoB/SmCo<sub>5</sub>/Ta 多層膜において FeCoB シード 層の膜厚を変化させた場合の XRD ダイアグラムの変化を示す。 FeCoB 層は 5 nm 以下で(110)配向が得られ、それに伴い Sm-Co 合 金相の(110)優先配向が得られていることがわかる。また、FeCoB の膜厚を薄くするに従い Sm-Co(110)ピークが広角にシフトする ことが確認された。この原因を調べるため XPS により深さ方向の 組成分布を測定したところ、FeCoB の厚さ 2 nm の試料は 20 nm の試料と比べ Sm-Co 層中の酸素濃度が高いことが確認された。ま た Sm のケミカルシフトの結果では、FeCoB が 2 nm の試料にお いて Sm が選択的に酸化されていることが分かった。その結果 Sm-Co が Co リッチになり、1-5 系から 2-17 系へと組成が変化し 回折ピーク位置がシフトしたと考えられる。

次に Si/SiO<sub>2</sub>/Ta(5)/FeCoB(5 nm)/SmCo<sub>5</sub>(20 nm)/Ta(20 nm)多層膜 を、成膜温度を 375-500℃で成膜した。VSM で磁気特性を測定し たところ、成膜温度 375℃では軟磁気特性を示し、400℃以上で硬 磁気特性を示した (Fig.2)。また XRD の測定結果と合わせ、400℃ 以上での Sm-Co の結晶化を確認した。

### 参考文献

1) J. M. D. Coey, IEEE Trans. Magn. 47, 12 (2011)



Fig.1 XRD diagram of FeCoB/SmCo<sub>5</sub>(100 nm) multilayer



Fig.2 J-H loop of FeCoB/SmCo5 multilayer prepared at Ts = 375,  $400^{\circ}$ C

# エピタキシャル FePt/Co および FePd/Co 二層膜の構造解析

 落合亮真<sup>1</sup>・中村将大<sup>1</sup>・大竹充<sup>1,2</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup> (<sup>1</sup>中央大,<sup>2</sup>工学院大,<sup>3</sup>東京藝大,<sup>4</sup>山形大)
 Structural Characterization of Epitaxial FePt/Co and FePd/Co Bilayer Films Ryoma Ochiai<sup>1</sup>, Masahiro Nakamura<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1,2</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, and Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** 硬磁性と軟磁性材料から構成され る積層膜は異方性ナノコンポジット磁石の構 造検討で活用されている. 硬磁性材料として, SmCo<sub>5</sub>や Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B などの希土類系合金材料が 検討されているが,薄膜磁石応用では,高  $K_u$ を持つ $L1_0$ -FePt, FePd 合金なども候補となる. しかしながら,形成報告例は殆ど無い<sup>1-3)</sup>.本 研究では,MgO 単結晶基板上に FePt もしくは FePd, Co からなる二層エピタキシャル膜を形 成し,構造解析を行った.

**実験方法** 製膜には超高真空 RF マグネトロン スパッタ装置を使用し,基板には MgO(001), (110), (111)単結晶を用いた.基板上に 200 ℃ の 基板温度で,FePt,もしくはFePd 層,Co 層の順 で形成した二層膜と,積層順を逆にした二層膜 を形成した. 膜形成後,L10 相への規則化を促 進させるために 600 ℃ で熱処理を施した.構造 解析には RHEED,XRD,AFM,磁気特性評価 には VSM を用いた.

**実験結果** Fig. 1(a)に FePd/Co/MgO(001)試料 で測定した面外および面内 XRD パターンを示 す. 面外パターンでは Fe-Pd(001)超格子反射,



**Fig. 1** (a-1)–(d-1) Out-of-plane and (a-2)–(d-2) in-plane XRD patterns of (a) FePd/Co and (b) FePt/Co and (c) Co/FePd, and (d) Co/FePt films formed on MgO(001) substrates.

Fe-Pd(002)基本反射が観察されている.一方,面内 XRD パターンでは Fe-Pd(200)基本反射は観察されているが, L1o-Fe-Pd 結晶からの超格子反射は認められない.従って,FePd 層は *c* 軸が面直に向いた L1o(001)結晶から構成さ れていることが分かる.Fig. 1(b)に FePt/Co/MgO(001)試料に対して測定した XRD パターンを示す.この場合は面 外および面内パターンから Fe-Pt(001)超格子反射が観察されているため,*c* 軸が面直に向いた L1o(001)結晶に加え て面内に向いた L1o(100)および L1o(010)結晶が混在していることが分かる.Fig. 1(c)および(d)に Co/FePd/MgO(001) および Co/FePt/MgO(001)試料で測定した XRD パターンを示す.どちらの試料においても面外パターンでのみ超 格子反射が観察されているため,FePd,FePt 層は *c* 軸が面直に向いた L1o(001)結晶から構成されていることが分 かる.

参考文献
 1) T. Teranishi, A. Wachi, M. Kanehara, T. Shoji, N. Sakuma, and M. Nakaya: *J. Am. Chem. Soc.*, 130, 4210 (2008).
 2) J. P. Liu, C. P. Luo, Y. Liu, and D. J. Sellmyer: *Appl. Phys. Lett.*, 72, 483 (1998).
 3) Y. K. Takahashi, T. O. Seki, K. Hono, T. Shima, and K. Takanashi: *J. Appl. Phys.*, 96, 475 (2004).

# キャップ層材料および層厚が FePt 合金薄膜の構造に及ぼす効果

大竹充<sup>1,2</sup>・中村将大<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup> (<sup>1</sup>中央大,<sup>2</sup>工学院大,<sup>3</sup>東京藝大,<sup>4</sup>山形大)

Effects of Cap-Layer Material and Thickness on the Structure of FePt Alloy Thin Film Mitsuru Ohtake<sup>1,2</sup>, Masahiro Nakamura<sup>2</sup>, Masaaki Futamoto<sup>2</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, and Nobuyuki Inaba<sup>4</sup> (<sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** FePt 合金薄膜は高密度磁気記録媒体や MRAM などへの応用に向けて盛んに研究されている. デバイス応用では,磁化容易軸(c軸)が膜面垂直に向くように構造制御を行う必要がある.しかしながら,(001) 基板もしくは(001)下地層上に FePt 膜をヘテロエピタキシャル成長させる場合, c軸が面直に向く L1<sub>0</sub>(001)結晶に加え, c軸が面内に存在する L1<sub>0</sub>(100),(010)結晶(面内バリアント)が混在する可能性がある<sup>1-3)</sup>.最近, 我々は, MgO(001)キャップ層/FePt 膜/MgO(001)基板の積層構造で不規則構造を持つ FePt 膜を形成し,その後,L1<sub>0</sub>相へ規則化のための熱処理を施すことにより,FePt 結晶より大きな格子を持つ MgO 結晶との格子 不整合によりもたらされる応力を FePt 膜に加え,L1<sub>0</sub>-FePt 膜の配向制御を行ってきた<sup>3)</sup>.本研究では,キャップ層材料および層厚が FePt 膜の構造に及ぼす効果について調べた.

**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. MgO(001)基板上に 10 nm 厚 の FePt 膜, 2~10 nm 厚のキャップ層を形成した. キャップ層材料として, MgO および C を用いた. また, キャップ層無しの FePt 単層膜も形成した. 膜形成時の基板温度は 200 ℃ とした. その後, 600 ℃ で熱処理 を施すことにより FePt 膜を  $L1_0$ 相へ変態させた. 構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁化曲線測定には AFM を用いた.

実験結果 MgO(001)基板上に形成した FePt 膜およびその上 に形成した MgO キャップ層は(001)単結晶としてエピタキシ ャル成長しており,一方,FePt 膜上に形成した C キャップ層 は非晶質となっていることを RHEED 観察により確認した. Fig. 1(a)にキャップ層無しの FePt 膜の面外および面内 XRD パターンを示す. 面外パターンに加え, 面内パターンにおい ても低強度ではあるが FePt(001)超格子反射が観察されてお り, 面内バリアントが混在していることが分かる. Fig. 1(b) に 2 nm 厚の C キャップ層を持つ FePt 膜の結果を示す. キャ ップ層無しの場合と同様に,面内 FePt(001)反射が現れている. キャップ層無しおよびCキャップ層有りのFePt膜の軸比 c/a および規則度 S は、それぞれ、(c/a, S) = (0.978, 0.58)、(0.978、 0.62)となり、ほぼ同様な値となった. Fig. 1(c)および(d)に 2 および 10 nm 厚の MgO キャップ層を持つ FePt 膜の XRD パ ターンを示す. 面外パターンでは FePt(001)超格子反射が観察 されており, 面内パターンでは FePt(001)反射が現れていない ため、L10(001)結晶のみに配向制御ができていることが分か る.2 および 10 nm 厚の MgO キャップ層を持つ FePt 膜の(c/a, S)は、それぞれ、(0.960, 0.82)、(0.959, 0.83)となり、規則化に 加え,正方晶歪が促進されていることが分かる. C キャップ 層の場合,非晶質であるため FePt 膜と格子が連続になってお らず,一方, MgO キャップ層の場合,連続となっているため, 格子不整合による応力が効果的に FePt 膜に加わり, 規則化お よび正方晶歪が促進されたものと推察される.

- S. Jeong, T. Ohkubo, A. G. Roy, D. E. Laughlin, and M. E. McHenry: J. Appl. Phys., 91, 6863 (2002).
- Y. K. Takahashi, K. Hono, T. Shima, and K. Takanashi: J. Magn. Magn. Mater., 267, 248 (2003).
- M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and M. Inaba: J. Magn. Soc. Jpn., 39, 167 (2015).



**Fig. 1** (a-1)–(d-1) Out-of-plane and (a-2)–(d-2) in-plane XRD patterns of FePt films (a) without and (b)–(d) with (b) 2-nm-thick C, (d) 2-nm-thick MgO, and (e) 10-nm-thick MgO cap-layers. The scattering vector of in-plane XRD is parallel to MgO[100]. The intensity is shown in logarithmic scale.