## エピタキシャル Ni<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N(x = 0, 1, 3, 4)薄膜の磁気物性の評価

伊藤啓太<sup>1,2,3</sup>, 鹿原和樹<sup>2</sup>, 高田郁弥<sup>1</sup>, 東小薗創真<sup>1</sup>, 具志俊希<sup>1</sup>, 都甲薫<sup>1</sup>, 角田匡清<sup>2</sup>, 末益崇<sup>1</sup> (<sup>1</sup>筑波大数理物質, <sup>2</sup>東北大工, <sup>3</sup>日本学術振興会 PD)

Magnetic properties of epitaxially grown  $Ni_xFe_{4-x}N(x = 0, 1, 3, and 4)$  films

K. Ito<sup>1,2,3</sup>, K. Kabara<sup>2</sup>, F. Takata<sup>1</sup>, S. Higashikozono<sup>1</sup>, T. Gushi<sup>1</sup>, K. Toko<sup>1</sup>, M. Tsunoda<sup>2</sup>, and T. Suemasu<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Inst. of Appl. Phys., Univ. of Tsukuba, <sup>2</sup>Dept. of Electronic Eng., Tohoku Univ., <sup>3</sup>JSPS-PD)

## はじめに

逆ペロブスカイト型遷移金属強磁性窒化物は、高い負のスピン分極率(Fe<sub>4</sub>N)や垂直磁気異方性(Mn<sub>4</sub>N)により、スピントロニクス応用材料として注目されている<sup>1)</sup>。類型材料のNi<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>Nは、粉末試料ではNi添加量に伴って飽和磁化(*M*<sub>8</sub>)ならびにキュリー温度(*T*<sub>C</sub>)が低下し、*x* ≥ 3では*T*<sub>C</sub>が室温を下回ると報告されている<sup>2)</sup>。 一方で、反応性スパッタ法で作製されたNi<sub>3</sub>FeNでは、室温で6%の大きな正の異方性磁気抵抗(AMR)効果が報告されており<sup>3)</sup>、その物性が十分に明確化されていない。本研究では、分子線エピタキシー(MBE)法によりNi<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N薄膜をエピタキシャル成長し、磁化曲線とAMR効果を評価することで、上記磁気物性を検証した。 **実験方法** 

固体 Fe, Ni と高周波プラズマ N<sub>2</sub>の同時供給による MBE 法により、SrTiO<sub>3</sub>(001)基板上に Ni<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N(x = 0, 1, 3, 4)薄膜(50 nm)をエピタキシャル成長し、磁化曲線を測定した。得られた  $M_{\rm S}$ を第一原理計算から求めた値と比較した。NiFe<sub>3</sub>N および Ni<sub>3</sub>FeN 薄膜については、[100]が長手方向の幅 0.2 mm のホールバー形状に加工し、測定温度(T)5~300 K の範囲で、外部磁場 30 kOe、直流電流 0.2 mA のもとで AMR 効果を測定した。

## 実験結果

Fig. 1 に、第一原理計算、室温および 2 K における磁化曲線から 求めた Ni<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N(x = 0, 1, 3, 4)薄膜の  $M_S$  を示す。第一原理計算では Ni<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N は強磁性を示し、Ni 比が増えるに従い  $M_S$  は単調に減少 し、実験でも同様の傾向が得られた。しかし、室温において Ni<sub>3</sub>FeN の磁化は消失し、Ni<sub>4</sub>N に関しては 2 K でも常磁性を示した。M-T測定から Ni<sub>3</sub>FeN の  $T_C$ は 266 K と見積もられ、Ref. 2 の結果を支持 するものとなった。Fig. 2 に NiFe<sub>3</sub>N および Ni<sub>3</sub>FeN の AMR 比の T依存性を示す。Ni<sub>3</sub>FeN の室温における AMR 比はほぼ 0 であり、 Ref. 3 の結果とは異なった。また、双方の試料で低温領域にて負 の AMR 効果が観測された。Kokado らの理論によれば、負の AMR 効果は  $s_1 \rightarrow d_1$ または  $s_1 \rightarrow d_1$ の s-d 散乱で説明される<sup>4</sup>。第一原理計 算の結果、NiFe<sub>3</sub>N および Ni<sub>3</sub>FeN のフェルミ準位における状態密 度は 3d 少数スピンが支配的であるため、これらの負の AMR 効果 は  $s_1 \rightarrow d_1$ の散乱機構に起因する。したがって、NiFe<sub>3</sub>N と Ni<sub>3</sub>FeN に



ついても、Fe<sub>4</sub>N と同様に少数スピン伝導が優勢といえる。 Fig. 2 *T* versus AMR ratio of Ni<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N (*x* = 1 and 3). **謝辞** 本研究は JSPS 科研費(Nos. 26249037 and 14J01804)、東北大通研プロ(H26/A04)の支援を受けた。磁化測定は、筑波 大学 喜多・柳原・Sharmin 研究室および研究基盤総合センター低温部門のご協力で行った。

参考文献 1) 角田ら, まぐね 11, 125 (2016). 2) X. G. Diao *et al.*, J. Appl. Phys. 85, 4485 (1999). 3) R. Loloee, J. Appl. Phys. 112, 023902 (2012). 4) S. Kokado and M. Tsunoda, J. Phys. Soc. Jpn. 84, 094710 (2015).