

パルスレーザー蒸着(PLD)法を用いた MgO 基板上 L1₀-FeNi の作製

齊藤真博¹, 伊藤久晃¹, 落合順也¹, 森あゆみ¹, 鈴木雄太¹, 富田正樹¹,
宮町俊生², 小森文夫², 小金澤智之³, 水口将輝⁴, 高梨弘毅⁴, 小嗣真人¹
(1.東京理科大学, 2.東京大学物性研究所, 3.JASRI, 4.東北大学金属材料研究所)

Fabrication of L1₀-FeNi on MgO substrate by using Pulsed Laser Deposition system

M. Saito, H. Ito, J. Ochiai, A. Mori, Y. Suzuki, M. Tomita

T. Miyamachi, F. Komori, T. Koganezawa, M. Mizuguchi, K. Takanashi, M. Kotsugi

(Tokyo Univ. of Sci., ISSP The Univ. of Tokyo, JASRI, IMR Tohoku Univ.)

はじめに

近年ではレアメタルの価格高騰と供給不安への懸念からユビキタス元素のみで構成されるレアメタルフリー磁性材料に注目が集まっている。こうした社会背景から我々は主相が Fe と Ni のみで構成され、高い磁気異方性を有する L1₀-FeNi に注目し、研究を進めてきた。L1₀-FeNi の磁気特性は界面のモフォロジーに大きく影響されることが Kojima ら¹⁾により示されている。またその一方で、Shen ら²⁾により特定の材料の薄膜成長においては、パルスレーザー蒸着 (PLD) 法を用いることで MBE 法に比べより layer-by-layer 成長に近い薄膜成長が可能であることが示されている。そこで我々は PLD を用いて L1₀-FeNi を作製することで規則度の向上と結晶磁気異方性 (K_u) の向上を試みたので報告する。

実験方法

試料の作製には YAG レーザーを光源とする PLD を用いた。基板には MgO を用い、アニール処理を行い、Fe シード層を蒸着した後、Au, Cu をバッファ層として蒸着した。FeNi 層との格子ミスマッチを低減し、平坦性を向上させるため、バッファ層の基板温度を様々に変えて系統的に調査した結果、基板温度は 300 °C に最適化されている。その後、単原子交互積層法を用いて FeNi 相を 50 ML 蒸着した。 K_u の向上を目的に、FeNi 蒸着時の基板温度依存性を調査し、試料の表面モフォロジーを AFM で観察すると共に、結晶構造は XRD で解析し、SQUID を用いて磁気特性を評価した。

実験結果

Fig. 1 に AFM により観察した FeNi 層の表面モフォロジーの一例を示す。本試料の構成は FeNi/Cu(50 nm)/Au(10 nm)/Fe(1 nm)/MgO-sub. で基板温度は 300 °C である。表面は観測領域のほぼ全域で平坦であることが確認されたが、大きさが 500 nm 程度の島状構造が幾つか観測された。そのファセットが MgO 基板の <110> 方位に沿うことが確認された。このことから FeNi 膜は MgO 基板に対してエピタキシャルに成長していることが示唆される。

Fig. 2 にこの試料の SQUID により測定した磁化曲線を示す。 $M_s = 800$ emu/cc, $K_u = 1.43 \times 10^6$ erg/cc であり、面内磁化膜であることが分かった。室温蒸着した FeNi 薄膜に対して K_u が大きく向上しており、磁化の向上も確認された。基板温度の上昇に伴い L1₀ 規則化が進行したことが示唆される。当日は放射光 XRD による結晶構造の評価、MFM によるマイクロな磁区構造の観察、室温蒸着試料との比較について議論を行う予定にしている。

参考文献

- 1) T. Kojima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 010204, (2012).
- 2) J. Shen *et al.*, Surface Science Reports **52**, 163, (2004)

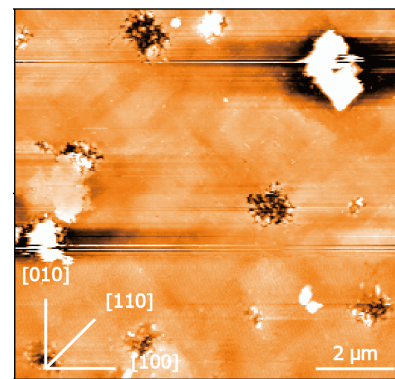


Fig. 1 Surface morphology of FeNi deposited at 300 °C

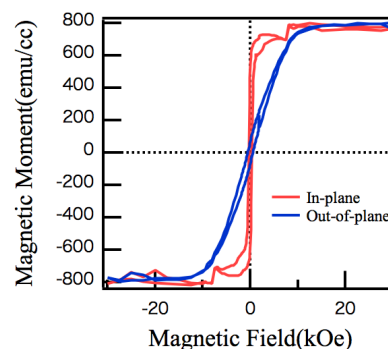


Fig. 2 Magnetization curves of FeNi deposited at 300 °C

RTA 処理した Pd-Sb 添加 L1₀-CoPt 薄膜の結晶配向性と磁気特性

国分 勇磨・神島 謙二・柿崎 浩一
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Crystal orientation and magnetic properties of Pd-Sb added L1₀-CoPt thin films prepared by RTA method

Y. Kokubun, K. Kamishima, and K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

1. 緒言

高度情報化に伴い、高密度記録が可能な記録媒体が求められている。L1₀-CoPt 薄膜は高い結晶磁気異方性を有するため¹⁾記録磁化を安定に保持出来ることから、次世代の記録媒体として有望視されている。当研究室では Pd および Sb を添加した CoPt 薄膜において、L1₀-CoPt 合金の磁化容易軸である <001> 方向が膜面垂直方向に配向することを報告した²⁾。本研究では、rapid thermal annealing (RTA) を導入し、熱処理条件を再検討することで配向性および磁気特性の向上を目的とした。

2. 実験方法

成膜には対向ターゲット型 rf マグネトロンスパッタ装置を用いた。ターゲットには Co 円板(76 mm^φ)上に Pt チップ(1 cm²), Pd チップ(1 cm²) および粒状の Sb を張り付けたものを用いた。チャンバー内を 2.0×10⁻⁶ Torr 以下に排気後、Ar ガス圧を 2.0×10⁻² Torr とした。スパッタ時の投入電力は 4.4 W/cm² とし、合成石英ガラス基板上に常温で成膜した。成膜後、赤外線ランプ加熱炉を用い、減圧中、500~700°C まで 40K/sec. で急速加熱後、5 分間の熱処理を行い試料を得た。

3. 結果および考察

Fig.1 は T_a = 500~700°C で 5 分間 RTA 処理をした PdSb-CoPt 薄膜の X 線回折図を示す。T_a = 500 および 550°C で熱処理した膜では、fcc-CoPt 相からの回折線のみが確認され、規則化が不十分である。T_a = 600°C 以上で熱処理した膜において fct-CoPt 相(001)面からの回折線が明確に認められる。T_a = 650 および 700°C の膜では(001)面からの回折強度が増大し、半値幅が減少することから結晶性の向上が確認できる。これは熱処理温度の上昇に伴い核形成から相変態に移行するためのエネルギーが増加し、規則化が進行したためと考えられる。

Fig.2 は T_a = 500~700°C で 5 分間 RTA 処理をした PdSb-CoPt 薄膜の磁化値(M)、膜面内方向(H_{c||})および膜面直方向(H_{c⊥})の保磁力を示す。磁化値は熱処理温度の上昇に伴い減少する傾向を示す。一方、膜面垂直方向の保磁力は T_a = 600°C 以上で熱処理した膜において 16 kOe を超える大きな値となり、T_a = 650°C の膜で最大 18 kOe が得られる。加えて、H_{c⊥}/H_{c||} は、T_a = 650°C の膜で最大値約 20 となり最も良好な垂直磁化膜となる。

参考文献

- 1) D.Weller, A.Moser, M.E.Best, W.Lee, M.F.Toney, M.Schwickert, J.U.Thiele, M.F.Doerner ; IEEE Trans. Magn., 36 (2000) 10.
- 2) 狩野智弘, 柿崎浩一, 神島謙二; 第 39 回日本磁気学会講演概要集(2015) 34.

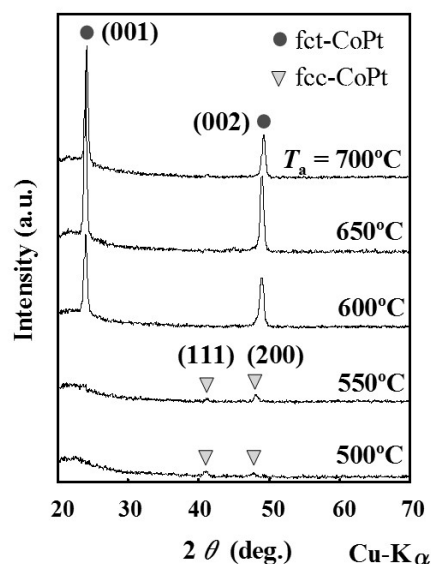


Fig.1 XRD patterns of the PdSb-CoPt thin films, then post annealed at various temperatures for 5min. by RTA method.

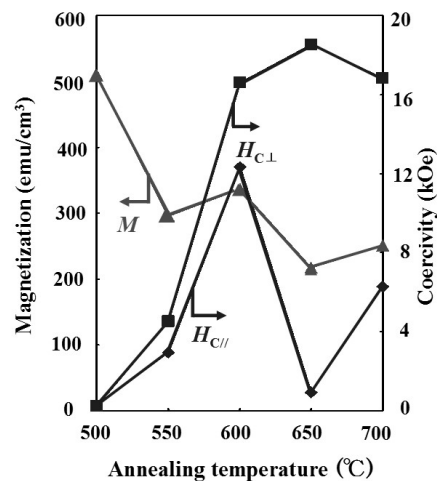


Fig.2 Dependence of magnetization and coercivity on annealing temperature for the PdSb-CoPt thin films annealed by RTA method.

VN および VC 下地層上に形成した平坦 FePt 薄膜の 配向性に及ぼすキャップ層の影響

清水智貴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 Cap-Layer on the Structure of FePt Alloy Thin Films Formed on VN and VC Underlayers
Tomoki Shimizu¹, 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 を持つため、高密度磁気記録媒体や MRAM への応用が検討されているが、デバイスへの応用には磁化容易軸である c 軸の配向制御、規則度の向上、膜の平坦性が必要となる。これまで我々は表面エネルギーの大きな下地層上に FePt 膜を形成することで膜の表面平坦性の向上を実現したが¹⁾、 c 軸の配向制御および規則度に関して問題点が残った。キャップ層を導入することで、面内方向に対する引張応力が強まり、配向制御が可能であるため²⁾、本研究では格子定数ミスマッチが大きく表面エネルギーの異なる 3 種の下地層上に FePt 膜を形成し、下地層材料およびキャップ層の有無が FePt 膜の配向性と規則度に及ぼす影響を調べた。

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。SrTiO₃(001) 基板上に基板温度 600 °C で 2 nm 厚の下地層を形成し、次いで 200 °C で 10 nm 厚の FePt 膜を形成した。FePt 膜上に基板温度 200 °C で 2 nm 厚のキャップ層を形成し、規則化促進のため 600 °C で熱処理を施した。同様な方法でキャップ層無しの試料も製膜した。構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁化曲線測定には VSM を用いた。

実験結果 Fig. 1 に MgO, VN, VC 下地層上に形成した FePt 膜の面外および面内 XRD パターンを示す。キャップ層が無い場合、いずれの膜に対しても面外と面内 XRD パターンにおいて基本反射に加えて超格子反射が観察されるため、 c 軸が膜面内に向いた $L1_0(100)$ および $L1_0(010)$ バリエントが混在していることが分かる。一方、キャップ層を設けた場合、いずれの下地層を用いても面内の超格子反射が確認されず c 軸が膜面直に向いた $L1_0(001)$ バリエントのみになるように配向が制御されていることが分かる。XRD の結果より算出した MgO, VN, VC 下地層上の FePt 膜の規則度 S はキャップ層が無い場合、それぞれ $S = 0.1, 0.2, 0.1$ と低い値であったが、キャップ層を設けた場合、 $S = 0.5, 0.6, 0.3$ にそれぞれ増大し、キャップ層を形成することで規則度の向上が実現できた。Fig. 2 にキャップ層の有無で FePt 膜の磁化曲線を比較した結果を示す。いずれの下地層を用いてもキャップ層を形成することで垂直磁気異方性が増大していることが確認できる。この結果より下地層を用いた場合においてもキャップ層の導入が c 軸の垂直制御に有効であることが分かった。当日は VC および VN キャップ層を用いた結果も発表する予定である。

参考文献

- 1) 清水, 中村, 落合, 大竹, 二本, 桐野, 稲葉: 信学技法, **116**, MR2016-40 (2016).
- 2) M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 167 (2015).

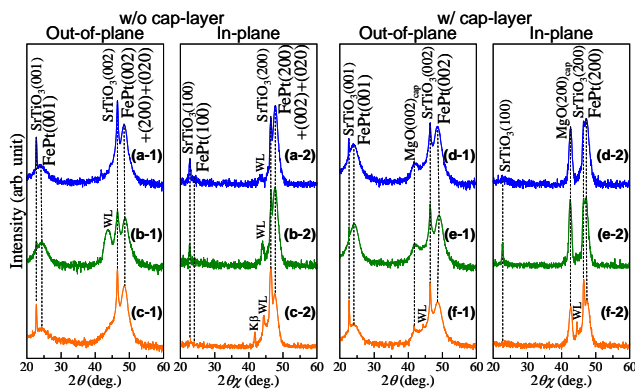


Fig. 1 (a-1)–(f-1) Out-of-plane and (a-2)–(f-2) in-plane XRD patterns of FePt films (a)–(c) without and (d)–(f) with MgO cap-layers deposited on [(a), (d)] MgO, [(b), (e)] VN, and [(c), (f)] VC underlayers.

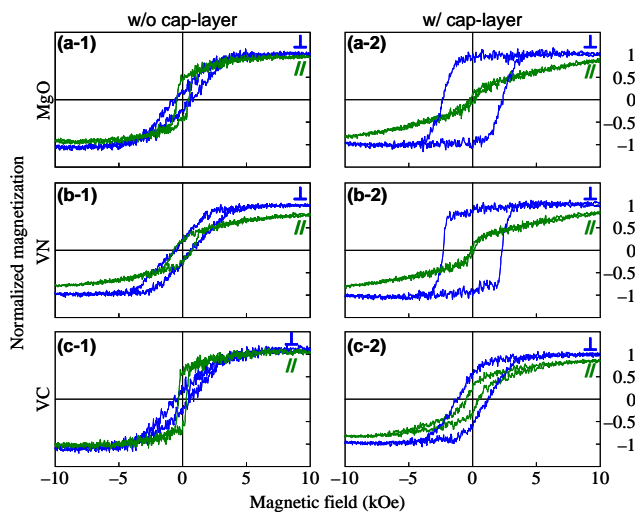


Fig. 2 Magnetization curves measured for FePt films (a-1)–(c-1) without and (a-2)–(c-2) with MgO cap-layers deposited on (a) MgO, (b) VN, and (c) VC underlayers.

異なるバッファ層上の Mn_xGa 薄膜の磁気特性

高橋勇圭、佐藤啓、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大学大学院工学研究科)

Dependence of magnetic properties on different buffer layers of Mn_xGa thin films

Y. Takahashi, K. Sato, T. Shima, M. Doi

(Graduate School of Engineering, Tohoku Gakuin University)

はじめに

$Mn-Ga$ 規則合金膜は飽和磁化($M_s = 200-600 \text{ emu/cm}^3$)¹⁻³⁾、高い磁気異方性($K_u = 10-23.5 \text{ Merg/cm}^3$)¹⁻³⁾を示すことが知られている。従って、近年では $Mn-Ga$ 合金薄膜は新規永久磁石材料やスピニエレク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。 $Mn-Ga$ 薄膜は組成によって強磁性からフェリ磁性を示し、チューナブルな飽和磁化と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 $Mn-Ga$ 合金薄膜や様々なバッファ層で作製された報告も少ない。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異なるバッファ層上における Mn_xGa 薄膜の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 $5 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 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。薄膜作製時は到達真空度 $8.9 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ 以下、基板温度 $T_s = 300 \text{ }^\circ\text{C}$ 、熱処理温度 $T_a = 300 \sim 500 \text{ }^\circ\text{C}$ 、熱処理時間 3h とした。また膜構成は $MgO(100)$ 基板上に様々なバッファ層(Cr, Fe, Pt, Au)を 5 nm、磁性層として $MnGa$ を 20 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。作製した薄膜の組成をエネルギー分散型 X 線分析装置(EDX)、結晶構造を X 線回折装置(XRD)、表面粗さを原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性は超伝導量子干渉型磁束計(SQUID)を用いて評価した。また、薄膜表面を反射高速電子線回折装置(RHEED)により、その場観察を行った。

実験結果

Fig.1 に薄膜作製時の Cr または Pt バッファ、磁性層の $MnGa$ 薄膜をその場観察した RHEED パターンを示す。RHEED パターンでは Cr バッファにおいて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、 $MnGa$ 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。しかしながら、Pt バッファにおいては Cr バッファに比べ、ややリング状のパターンが見られており、多結晶に近い成長が確認された。講演では Mn 組成とバッファ層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。

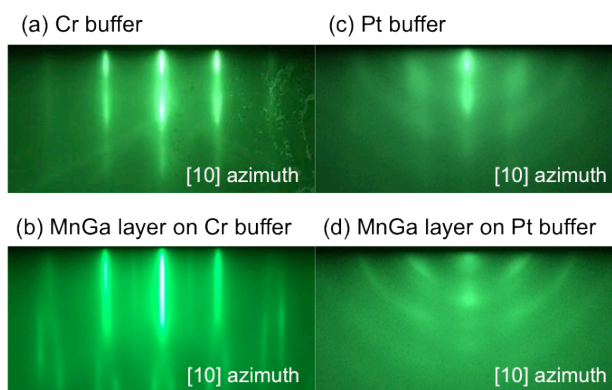


Fig.1 RHEED patterns of $Mn-Ga$ thin films.

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).
- 2) K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, A. Sugihara, T. Miyazaki and S. Mizukami: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **55**, 010305 (2016).
- 3) Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jpn.* **1**, 30-33 (2017).

Mn_xGa 薄膜における磁気特性の Fe バッファ層厚依存性

佐藤啓、高橋勇圭、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大学大学院工学研究科)

Thickness dependence of Fe buffer layer on magnetic properties for Mn_xGa thin films

K. Sato, Y. Takahashi, T. Shima, M. Doi

(Graduate School of Engineering, Tohoku Gakuin University)

はじめに

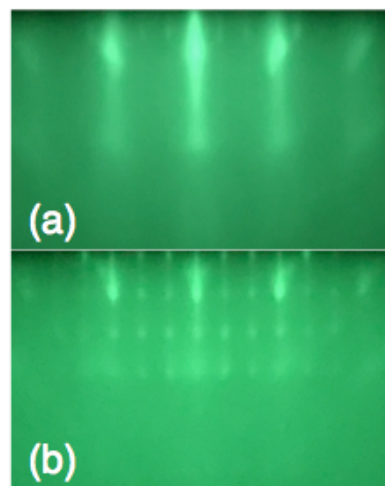
MnGa 合金薄膜はチューナブルな飽和磁化(200 ~ 600 emu/cm³)、高結晶磁気異方性(~ 10⁷erg/cm³)¹⁾、高スピン分極率(~ 88%)²⁾を示し、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁石材料やスピントロニクスデバイスの次世代材料として魅力的な特性を持っている。MnGa 合金薄膜は現在盛んに研究が行われているが、蒸着法を用いた MnGa 合金薄膜の報告はわずかしかない。本研究では、超高真空蒸着法を用いて Fe バッファ層の膜厚変化に伴う Mn_xGa 薄膜の磁気異方性および諸磁気特性の関係を明らかにすることを目的とした。

実験方法

ターゲット材料にはアーク溶解炉で作製した Mn_{1.0}Ga 合金を使用した。成膜は超高真空電子ビーム蒸着装置(EB)で行い、基板には MgO(100)単結晶基板を用いた。膜構成はバッファ層として Fe を 1 nm または 5 nm、主層として Mn_xGa を 20 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。成膜手順は、700 °C で 30 分基板洗浄したのち、バッファ層を成膜、その後 300 °C で主層の Mn_xGa を成膜し、最後に室温でキャップ層の Cr を成膜した。結晶構造は X 線回折装置(XRD)、結晶成長評価を反射高速電子線回折装置(RHEED)、磁気特性は超伝導量子干渉磁束系(SQUID)、表面形態は原子間力顕微鏡(AFM)、組成分析はエネルギー分散型 X 線分析(EDX)を用いて評価した。

実験結果

Fig. 1. に Fe バッファ層 5 nm、1 nm 上に成膜した Mn_{2.2}Ga 薄膜の RHEED パターンを示す。Fe バッファ層 5 nm ではそれぞれのストリークの間隔が MgO 基板、Fe バッファ層と一致しており、ほぼエピタキシャルな成長が確認できた。しかし 1 nm においては 3 倍周期の表面構造が確認でき、完全にエピタキシャルな成長ではないと考えられる。磁化測定の結果から、Fe バッファ層 5 nm においては Fe の面内方向の磁化が強く現れ、面内容易軸となったが、1 nm においては垂直容易軸が確認された。講演では Mn 組成を変化させた薄膜と Fe バッファ層の膜厚変化に伴う磁気異方性および諸磁気特性の関係について報告する。



[100] azimuth

Fig. 1. RHEED patterns for Mn_{2.2}Ga thin films 20 nm on (a) Fe buffer layer 5 nm, and (b) 1 nm.

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).
- 2) B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterlik, and C. Felser, *Appl. Phys. Lett.* 90, 152504 (2007).

反強磁性 MnN 薄膜のエピタキシャル成長と交換結合特性

吉田 拓也、羽尻 哲也、倪 遠致、石野 直、浅野 秀文
(名大院工)

Epitaxial growth of antiferromagnetic MnN thin films and exchange-coupling properties

T. Yoshida, T. Hajiri, Y. Z. Ni, S. Ishino and H. Asano
(Nagoya Univ.)

はじめに

近年、反強磁性体(AFM)/強磁性体(FM)積層構造では、FMを介してAFM磁気モーメントの制御が可能である事が明らかになり¹⁾、FMよりも省電力化・高速化が期待される、AFMを主体としたAFMスピントロニクスに向けた研究が精力的に行われてきている。その中で我々は、Mn₃GaN (AFM)/Co₃FeN (FM) 積層膜において $T=4\text{ K}$ で、界面交換結合とAFMスピントランスファートルクにより、AFM磁気モーメントの電流駆動磁化スイッチングを報告した²⁾。今回は、室温での磁化スイッチングを目指すために660 Kと高いネール温度を有する反強磁性MnN³⁾とハーフメタルCo₃FeN積層膜に注目し、高品質なMnNエピタキシャル成長膜の作製と、Co₃Feおよびスピニ注入に有利なハーフメタルCo₃FeNとの積層膜で交換結合特性評価を行ったので報告する。

実験方法

反応性マグネトロンスパッタ法によりMnターゲットを用いてMnN薄膜をMgO基板(001)(格子ミスマッチ: -1.0%)、MgAl₂O₄(MAO)基板(001)(格子ミスマッチ: -5.3%)上に、基板温度325 °C、膜厚30-50 nm、スパッタガスAr+5-50 N₂%、ガス圧1-4 Pa、の範囲で作製した。

交換結合磁界(H_{ex})はCo₃Feターゲットを用いてCo₃Fe、Co₃FeNを積層させ、温度400 °C、磁場10 kOeでアニールして測定を行った。

実験結果

Fig. 1に、基板温度325 °Cで作製したMnN薄膜の面直XRDパターンを示す。MgO基板とMAO基板との両方で、N₂=8%-50%と広いN₂%範囲での成長が確認され、N₂=18%で θ 相MnNの a 軸長理論値(0.4256 nm)に近い格子定数(0.4249 nm)が得られた。またMgO基板上では、X線回折(XRD)パターンからはMnN(200)ピーク付近にラウエ振動が確認でき、ロッキングカーブ半値幅(FWHM)が0.049 °と狭い高品質なMnNが得られていることが分かった。Fig. 2にMnN上に室温でCo₃Feを積層させた積層膜における磁化曲線を示す。交換結合磁界は、それぞれの基板においてN₂=10%で最大値を示したが、MgO基板上でより大きな $H_{ex}=230\text{ Oe}$ が発現した。このMnNは、XRDパターンから理論値に近い格子定数と狭いFWHMを有しており、反強磁性体MnNの結晶性と交換結合特性の関係性を示していると考えられる。

参考文献

- 1) B. G. Park, *et al.*, Nature Mat. **10**, 347 (2011).
- 2) H. Sakakibara *et al.*, J. Appl. Phys., **117**, 17D725 (2015).
- 3) A. Leineweber *et al.*, J. Mater. Chem. **10**, 2827 (2000).

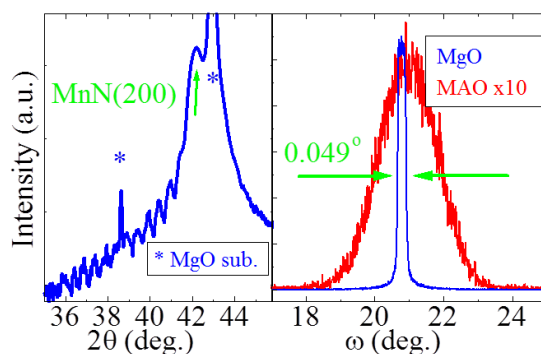


Fig.1. Out-of-plane XRD pattern of MnN deposited on MgO sub. (blue line) and MAO sub. (red line)

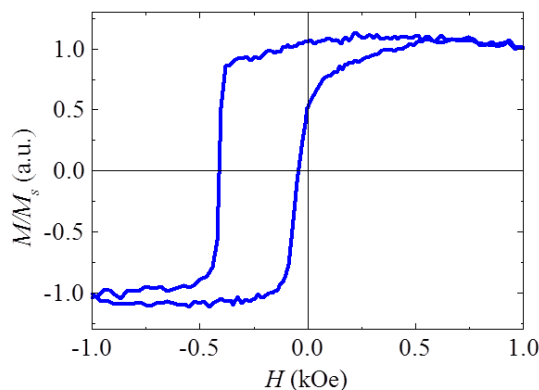


Fig.2. M-H loops of MgO sub./MnN/Co₃Fe bilayer, measured at 300 K after annealing at 400 °C in the field of 10 kOe.