

FeNiN 薄膜からの脱窒素による $L1_0$ -FeNi 薄膜の形成

伊藤啓太¹、林田誠弘¹、水口将輝¹、末益崇²、柳原英人²、高梨弘毅¹
 (¹東北大学 金属材料研究所, ²筑波大学 物理工学域)

Formation of $L1_0$ -ordered FeNi films by nitrogen extraction from FeNiN films

K. Ito¹, M. Hayashida¹, M. Mizuguchi¹, T. Suemasu², H. Yanagihara², K. Takahashi¹
 (¹IMR, Tohoku Univ. ²Inst. of Appl. Phys., Univ. of Tsukuba)

背景

希土類や貴金属を含まない資源が豊富な元素で構成される、高い軸磁気異方性エネルギー(K_u)を有する強磁性体材料が求められている。我々は $L1_0$ -FeNi 規則合金に注目して単結晶薄膜の作製と、規則度および K_u の向上に取り組んできた。一方でごく最近、正方晶 FeNiN の多結晶粉末に対する、水素ガス雰囲気下熱処理による脱窒素法により、比較的高い規則度(0.71)を持つ多結晶 $L1_0$ -FeNi 粉末の合成が実現された²⁾。本研究では、脱窒素法により高規則度単結晶 $L1_0$ -FeNi 薄膜を作製し、より正確に K_u 等の磁気物性値を評価するために、分子線エピタキシー(MBE)法による単結晶 FeNiN 薄膜の作製と、それらに対する脱窒素処理を行った。

実験

Fe、Ni、高周波(RF) N_2 の同時供給による MBE 法により³⁾、 $SrTiO_3$ (STO)(001)、 $MgAl_2O_4$ (MAO)(001)、 MgO (001) 基板上に FeNiN 薄膜(20 nm)のエピタキシャル成長を試みた。成膜温度を 300 °C、 N_2 流量を 1.0 sccm、RF 入力を 240 W、Fe と Ni の蒸着レートはそれぞれ 0.040 Å/s および 0.038 Å/s で固定した。作製した試料に対し、温度 300 °C、時間 4 h、 H_2 流量 1 L/min での脱窒素熱処理を行った。試料の構造を Out-of-plane(ω - 2θ)および In-plane(ϕ - 2θ)X 線回折(XRD)で評価し、室温での磁化曲線を振動試料磁力計で測定した。

結果

XRD 測定の結果から、いずれの試料も a 軸配向 FeNiN 薄膜のエピタキシャル成長に成功し、膜面内に倒れた c 軸の方向が互いに 90°異なる、2 種類のバリエーションが形成された {FeNiN[001](100) || 基板[100](001)および FeNiN[010](100) || 基板[100](001)}。脱窒素後の XRD パターンは、上記のエピタキシャル関係を保ったまま窒素が抜けて FeNi が形成された場合のパターンと矛盾しなかった。Fig. 1(a)および 1(b)に、脱窒素後の試料の膜面内および面外に外部磁場を印加した際の磁化曲線を示す。参照として、単結晶 A1-FeNi 薄膜の磁化曲線も示した。Fig. 1(a)では脱窒素法で作製した FeNi 薄膜の方が A1-FeNi 薄膜よりも保磁力が大きく、残留磁化が小さい。Fig. 1(b)では、脱窒素法で作製した FeNi 薄膜の方が飽和磁場が大きい。これらの結果から、一軸磁気異方性が膜面内の 2 つの c 軸方向に付与された a 軸配向 $L1_0$ -FeNi 薄膜の形成が示唆された。Fig. 1(b)の磁化曲線から脱窒素後の試料の K_u は 9.9×10^5 erg/cm³ 程度と見積もられ、規則度は 0.1 程度と推測される⁴⁾。今後は、FeNiN 薄膜の作製条件や脱窒素処理条件を最適化し、規則度と K_u の向上を目指す。

謝辞

本研究は JSPS 科研費(No. 17K14651)、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(ESICMM)の支援を受けた。

参考文献

- 1)K. Takahashi *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 483002 (2017). 2)S. Goto *et al.*, Scientific Reports **7**, 13216 (2017).
- 3)F. Takata *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 058004 (2018). 4)T. Kojima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 010204 (2012).

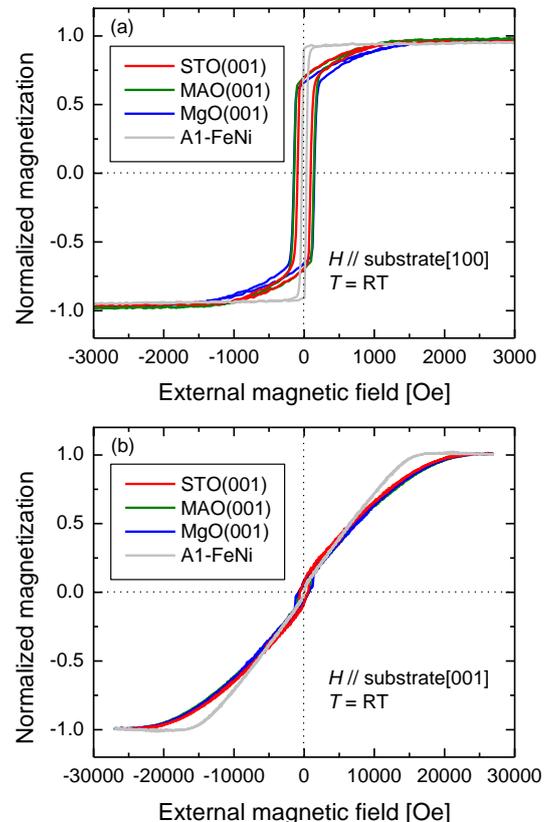


Fig. 1 Magnetization curves of FeNi films.
 $M_s = 1100$ emu/cm³.

MgO を配向制御下地膜に用いた FePd 薄膜の垂直磁気異方性

宮島 遼、神島 謙二、柿崎 浩一
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Perpendicular magnetic anisotropy of the FePd thin films on MgO seed layers

H. Miyajima, K. Kamishima, and K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

はじめに

L1₀ 規則合金に変態することで高い結晶磁気異方性を示す FePd 合金が高密度磁気記録媒体として研究されている。しかし FePd 合金の L1₀ 規則化には通常 500°C 以上に加熱した基板への薄膜堆積が必要であり、L1₀ 規則相が生成したとしてもその c 軸は膜面内および膜面直方向に混在する傾向がある¹⁾。本研究では下地膜として(200)配向 MgO 薄膜を用い、FePd 薄膜に対してエピタキシャル成長時の格子歪を加えることにより、L1₀ 規則化の促進を図るとともに、磁化容易軸である c 軸を膜面直方向に配向させることを目的とした。

実験方法

成膜には rf マグネトロンスパッタ装置を用いた。ターゲットには MgO 焼結体円板および Fe 円板上に Pd チップを貼り付けたものを使用した。チャンバー内を 8.5×10^{-7} Torr 以下に排気後、Ar ガスを導入し 12.5 mTorr とした。投入電力は 2.2 W/cm² とし、石英ガラス基板上に膜厚が約 130 nm となるように MgO 下地膜を成膜し、大気中 800°C で 5 時間熱処理した。この下地膜上に FePd 膜を膜厚が 70 nm となるように積層した。積層後、減圧下水素雰囲気中、800°C で 1 時間熱処理した後、急冷した。作製した試料の組成はエネルギー分散型 X 線分析装置(EDX)により定量し、結晶構造は X 線回折法(XRD)により解析し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)により測定した。

結果および検討

図 1 は石英ガラス基板上、MgO 下地膜上および熱処理後の MgO 下地膜上にそれぞれ成膜し 800°C で熱処理した FePd 薄膜の X 線回折図を示す。石英ガラス基板上に直接成膜した FePd 薄膜は fcc の不規則相であり、その最密充填面である(111)面が膜面内に優先配向する。対して MgO 下地膜上に積層した FePd 薄膜では L1₀ 規則相に由来する(001)面からの回折線が確認できることから、MgO 下地膜の効果によって規則化が促進されたといえる。また、熱処理後の MgO 下地膜を用いた試料では、L1₀-FePd 規則相の結晶性が向上するが、その c 軸は膜面直方向に完全に配向はしていない。

図 2 はこれらの膜の磁化値および保磁力を示す。全ての試料において磁化値に大きな違いは見られない。一方、MgO 下地膜上に積層した FePd 膜の膜面内(H_{C//})および膜面直(H_{C⊥})方向に測定した保磁力は FePd 単層膜に比べて小さく、規則化による保磁力の向上は確認できない。これは、MgO 下地膜上に積層した FePd 膜の結晶性が低く規則化が十分でないこと、連続膜であるために磁壁が生じたことなどが原因と考えられる。

参考文献

1) M. Futamoto *et al.* ; AIP ADVANCES, 6 (2016) 085302.

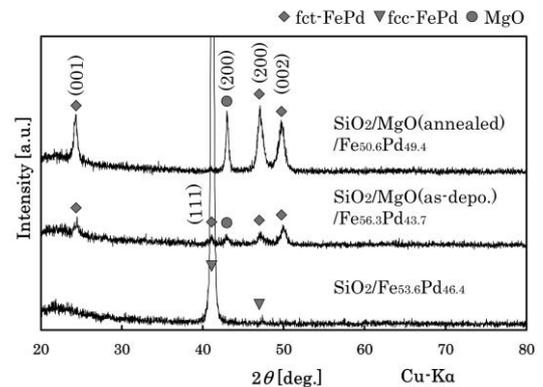


図 1 石英ガラス基板および MgO 下地膜上に成膜した FePd 薄膜の X 線回折図

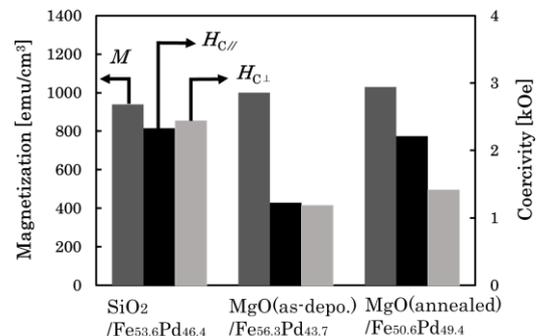


図 2 石英ガラス基板および MgO 下地膜上に成膜した FePd 薄膜の磁気特性

Mn_{3-x}Fe_xGa 組成変調薄膜の作製と磁気特性

佐藤啓、片山靖和、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大学)

Preparation of composition modulated Mn_{3-x}Fe_xGa thin films and their magnetic properties

K. Sato, S. Katayama, T. Shima and M. Doi
(Tohoku Gakuin University)

はじめに

MnGa 合金薄膜は飽和磁化(~ 200-600 emu/cm³)¹⁾、高結晶磁気異方性(~ 10-20 Merg/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エレク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。また、MnGa 薄膜は組成の変化により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ことが報告されている。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^{3,4)}。また、MnGa に Fe を添加した MnFeGa 薄膜においても知見を得ることが求められている。そのため本研究では、超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて Mn_{3-x}Fe_xGa 組成変調薄膜を作製し、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_{1.0} 合金を使用し、薄膜試料の作製は 8.9×10⁻⁷ Pa 以下の超高真空電子ビーム蒸着装置(UHV-EB)で行った。また、膜構成は MgO(100)単結晶基板にバッファ層として Cr を 5 nm、磁性層として Mn_{3-x}Fe_xGa を 20 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。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 Mn_{2.5}Fe_{0.5}Ga 薄膜の磁化曲線を示す。(a) は熱処理をしていない試料、(b)は 400°C で 1 時間熱処理をした試料である。(b)の試料では、(a)の試料と比較し角型性と磁気異方性が向上し、K_u = 6.4 Merg/cm³ が得られた。しかしながら、飽和磁化は熱処理によって低下し、M_s = 168 emu/cm³ であった。XRD の測定結果からは、熱処理による結晶構造の変化は見られなかったものの、c 軸の減少が確認された。講演では、Mn_{3-x}Fe_xGa 組成変調薄膜における磁気異方性および諸磁気特性と結晶構造の関係について報告する。

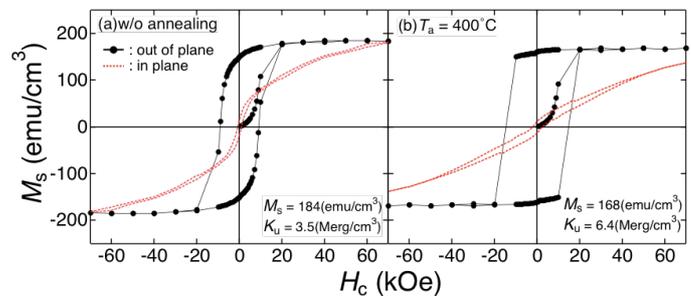


Fig. 1 Magnetization curves of Mn_{3-x}Fe_xGa thin films.

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) B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterlik, and C. Felser, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 152504 (2007).
- 3) Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jan.* **1**, 30-33 (2017)
- 4) K. Sato, Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *JMSJ*, submitted.

$L1_0$ -MnGa/ Cr/ $D0_{22}$ -MnGa 3層膜の微細加工と磁気特性

菊地優祐、幕田裕和、嶋敏之、土井正晶

(東北学院大学)

Microfabrication and magnetic properties of $L1_0$ -MnGa/ Cr/ $D0_{22}$ -MnGa tri-layer thin films

Y.Kikuchi, H.Makuta, T.Shima, M.Doï

(Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

情報化が進み日々生成される情報量は増加し記録媒体の高密度が望まれている。近年 HDD は微細化によりその容量を急激に増加させているが、それに伴う問題点として熱ゆらぎが挙げられ、更なる微細化に対して求められる一軸磁気異方性定数 K_u は $10\text{Merg}/\text{cm}^3$ であると報告されている。また、磁性層を磁氣的に分断することで多値の情報を記録することができる多値記録媒体が現在の記録密度の限界を大きく引き上げる可能性を秘めているとして期待されている。我々の研究室では $L1_0$ -FePt を用いた FePt/MgO/ FePt 多層円形ドットを作製した。その磁気特性を観察したが下層と上層の保磁力差はドットサイズ(D)を小さくするにつれて減少し、 $D=0.3\mu\text{m}$ の時、保磁力差の消失が確認された。飽和磁化が高いことによる磁気双極子相互作用の影響や磁気異方性が同値であることから加工後の保磁力が近似してしまうことが原因と考えられる。MnGa 合金は、組成変調により $L1_0$ 構造及び $D0_{22}$ 構造を示し、それぞれ異なる一軸磁気異方性定数、また FePt に比べ低い飽和磁化を有する。そこで本研究では多値記録媒体への応用に向けた、MnGa 多層薄膜及びドット試料の磁気特性の解明を目的とした。

実験方法

試料は超高真空多元スパッタリング装置を用いて作製した。酸化マグネシウム単結晶基板上にバッファ層として Cr を 5 nm 成膜した。400 °C で 30 分間アニールした後、基板温度 300 °C で $L1_0$ -MnGa 層を交互積層法により積層した、ポストアニーリングは 400 °C で 60 分間行った。試料を室温に冷まし、キャップ層またはスペーサー層として Cr($t_{\text{Cr}}=0\sim 40\text{ nm}$)を成膜した。多層薄膜の場合、再び試料温度を 300 °C まで加熱し $D0_{22}$ -MnGa 層を交互積層法により積層しポストアニーリングを行った。その後室温に戻しキャップ層には Cr を用いた。円形ドット試料は $D = 2.0\mu\text{m}$ 以下で作製した。レジストとして TGMR3.6cp(Negative type)を塗布し、EB リソグラフィにより露光した。その後 Ar イオンミリングにより微細加工を行った。結晶構造は XRD、ドット形状は AFM、磁気特性は SQUID または MOKE で測定した。

実験結果

作製した多層薄膜の XRD 測定結果より、 $t_{\text{Cr}}=1\sim 40\text{ nm}$ の時 $L1_0$ -MnGa または $D0_{22}$ -MnGa 層のピークがそれぞれ観察された。また SQUID 測定結果より $t_{\text{Cr}}=5\sim 40\text{ nm}$ の時保磁力差によるステップが確認された。微細加工後の円形ドット試料の MOKE 測定結果より、 D の減少に伴い保磁力差の減少が確認された。 $t_{\text{Cr}}=5\text{ nm}$ では $D=0.2\mu\text{m}$ で保磁力差の消失が確認された。しかしながら更なる微細化により磁気異方性の差異から再び保磁力差が現れることが期待される。