## ハーフメタルホイスラー合金多層膜の電子状態に対する第一原理計算

福ヶ迫和輝、本多周太、伊藤博介

(関西大学)

First principles calculations for magnetic multilayers based on half-metallic Heusler alloys

K. Fukugasako, S. Honda, and H. Itoh

(Kansai Univ.)

## <u>はじめに</u>

ハーフメタル材料はスピン分極率が 100%であるため、次世代 MRAM の MTJ 材料への応用が期待さ れている。一方、反強磁性体は内部で磁気モーメントを打ち消しあい外部に磁場を漏洩させないため、 高密度に集積しても隣接 MTJ 間の相互作用を生じない。この2つの性質を併せ持つ"反強磁性ハーフメ タル"を開発することで、これまでにない新しいスピン素子を作成できる。ハーフメタル材料の1 つで あるホイスラー合金(X<sub>2</sub>YZ 構造)はバルクでは強磁性またはフェリ磁性である。そこで、2 種類のホイス ラー合金を組み合わせた多層膜を作成し、反強磁性ハーフメタルを実現しようという試みが行われてき た(中尾昌夫, 2008)。

本研究では様々なホイスラー合金多層膜に対して電子状態と磁性を計算し、新たな反強磁性ハーフメタル材料を探索する。そして、計算結果から応用上有益となる材料選択の指針を提案する。

## <u>模型と計算方法</u>

様々なホイスラー合金多層膜 X<sub>2</sub>YZ [1ML]/ X<sub>2</sub>'YZ[1ML]の (001)積層(Fig. 1 参照)における電子状態密度、スピン分極率 および磁気モーメントを、PAW と GGA を用いた第一原理 計算で求める。



Fig. 1 Magnetic multilayer based on half-metallic Heusler alloys

## 計算結果

Co<sub>2</sub>ScAs/Mn<sub>2</sub>ScAs 多層膜に対して得られた状態密度の結果を Fig.2 に示す。下向きスピン電子のバンドギャップの極近傍にフェルミ準位が位置し、ほぼハーフメタルとなっている。TABLE1 は本研究と先行研究(SabamTirpanci et al., 2013)における磁気モーメント M と状態密度のスピン分極率 P の典型的な結果である。本研究では、より M が小さく P が大きな多層膜(すなわち、より反強磁性ハーフメタルに近い材料)の候補を見つけることができた。



Fig. 2 Spin-resolved DOS

	Multilayers	M[µB]	P[%]
This Work	Fe <sub>2</sub> CrGa/Mn <sub>2</sub> CrGa	0.08	84.2
	Co <sub>2</sub> ScAs/Mn <sub>2</sub> ScAs	0.03	92.7
S.Tirpanci	Co <sub>2</sub> TiGe/Mn <sub>2</sub> TiGe	0.15	69.6
	Co <sub>2</sub> VGa/Mn <sub>2</sub> VGa	0.10	67.5

TABLE 1 Magnetic moment and spin polarization

## 酸化物基板上の Co<sub>2</sub>FeSi および Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜の成長形態の違い

<u>工藤康平</u><sup>1</sup>、濱崎恭考<sup>2</sup>、山田晋也<sup>1</sup>、阿保智<sup>1</sup>、合田義弘<sup>2</sup>、浜屋宏平<sup>1</sup> (1 阪大基礎工, 2 東工大物質理工)

Difference in crystal growth morphology between Co<sub>2</sub>FeSi and Co<sub>2</sub>MnSi films on oxide substrates K. Kudo<sup>1</sup>, Y. Hamazaki<sup>2</sup>, S. Yamada<sup>1</sup>, S. Abo<sup>1</sup>, Y. Gohda<sup>2</sup>, and K. Hamaya<sup>1</sup>

## (<sup>1</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., <sup>2</sup> Department of Materials Science and Engineering, Tokyo Inst. of Tech.)

高スピン偏極率が期待されている Co 系ホイスラー合金は、磁気抵抗素子<sup>1,2)</sup>や半導体スピン素子<sup>3)</sup>に利用され、既に高いポテンシャルが示されつつある.一般的に、規則化した Co 系ホイスラー合金薄膜を得るためには、アニール処理(>300℃)を施すが、スピントロニクス素子中のヘテロ界面における原子の相互拡散に起因した素子性能の劣化が課題となっており<sup>4,5)</sup>、低温規則化技術の開発は極めて重要であると考えられる.本研究では、Co 系ホイスラー合金における低温規則化の可能性を探索するために、種々の酸化物基板を用意し、代表的な Co 系ホイスラー合金である Co<sub>2</sub>FeSi と Co<sub>2</sub>MnSi の薄膜を基板加熱無しの条件(80℃以下)で堆積することで、結晶成長形態の違いを詳細に観察し、Co 系ホイスラー合金薄膜の規則化における熱エネルギー以外の重要な要因について議論した.

分子線エピタキシー(MBE)法を用いて各種酸化物基板[MgO(100), SrTiO<sub>3</sub>(100)(STO), MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(100)(MAO)] 上に Co<sub>2</sub>FeSi および Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜(~25nm)を低温(80<sup>°</sup>C以下)で堆積した. Fig.1 には, Co<sub>2</sub>FeSi および Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜堆積後の RHEED 像を示す. 基板加熱を施していない条件であるにもかかわらず, Co<sub>2</sub>FeSi 薄膜は全ての 酸化物基板上でエピタキシャル成長したが, Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜は MgO 基板上を除いて結晶化さえも不十分である 様子が観測された. XRD 測定の結果から, Co<sub>2</sub>FeSi 薄膜中には全ての酸化物基板上で *L*2<sub>1</sub>規則構造の形成が 観測され, その規則度は約 0.5 であった. 一方, Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜中では全ての酸化物基板上で *L*2<sub>1</sub>規則構造の形 成は観測されず, MgO 基板上で *B*2 規則構造(規則度 約 0.8)のみが得られていることが判った.

Co<sub>2</sub>FeSiとCo<sub>2</sub>MnSiの格子定数がほぼ同程度であることを考慮すると, Fig.1で観測された上記の差異は,

基板との格子ミスマッチでは説明することができない.このような結晶 成長形態の違いは、SiやGeのような半導体基板上でも観測されている が<sup>3,6</sup>,Co系ホイスラー合金とSiやGeとの界面には一般的に化合物(シ リサイドなど)が形成されやすく、その影響を考慮する必要がある.一 方、今回の実験では、反応性の低い酸化物の表面に基板加熱無しで堆積 しているにもかかわらず、成長形態や規則化に明瞭な違いが現れてお り、別の要因を考察する必要がある.講演では、Co<sub>2</sub>FeSiおよび Co<sub>2</sub>MnSi の(100)面にそれぞれ存在するFe-Si面とMn-Si面に注目し、酸化物基板 表面の原子配列とそれらの結晶面の形成エネルギーなどの違いについ て議論する.

本研究の一部は,JST-CREST(JPMJCR18J1),科研費・基盤研究(A)(No. 16H02333),国際共同研究強化(B)(No. 18KK0111),スピントロニクス学術連携基盤と連携ネットワークの支援を受けた.

- 1) Y. Sakuraba et al., Appl. Phys. Lett. 88, 192508 (2006).
- 2) Y. Du et al., Appl. Phys. Lett. 107, 112405 (2015).
- 3) Y. Fujita et al., Phys. Rev. Appl. 8, 014007 (2017).
- 4) S. Cardoso et al., Appl. Phys. Lett. 76, 610 (2000).
- 5) B. Kuerbanjiang et al., Phys. Rev. B 98, 115304 (2018).
- 6) M. Kawano et al., Jpn. J. Appl. Phys. 52, 04CM06 (2013).



Fig. 1 Difference in the crystal growth between  $Co_2FeSi$  and  $Co_2MnSi$  films on oxide substrates.

#### 26aD - 3

## ホイスラー合金 CoFeVSi における正の線形磁気抵抗効果の起源

<u>山田晋也</u><sup>1</sup>, 小林慎也<sup>1</sup>, 真砂啓<sup>1</sup>, L. S. R. Kumara<sup>2</sup>, 田尻寛男<sup>2</sup>, 福島鉄也<sup>3,1</sup>, 阿保智<sup>1</sup>, 桜庭裕弥<sup>4</sup>, 宝野和博<sup>4</sup>, 小口多美夫<sup>5,1,4</sup>, 浜屋宏平<sup>1</sup> (<sup>1</sup>阪大基礎工, <sup>2</sup>JASRI, <sup>3</sup>阪大 IDS, <sup>4</sup>物材機構, <sup>5</sup>阪大産研) Origin of positive linear magnetoresistance effect in a Heusler alloy CoFeVSi S. Yamada<sup>1</sup>, S. Kobayashi<sup>1</sup>, A. Masago<sup>1</sup>, L. S. R. Kumara<sup>2</sup>, H. Tajiri<sup>2</sup>, T. Fukushima<sup>3,1</sup>, S. Abo<sup>1</sup>, Y. Sakuraba<sup>4</sup>, K. Hono<sup>4</sup>, T. Oguchi<sup>5,1,4</sup>, and K. Hamaya<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ., <sup>2</sup>JASRI, <sup>3</sup>IDS, Osaka Univ., <sup>4</sup>NIMS, <sup>5</sup>ISIR, Osaka Univ.)

強磁性ホイスラー合金である Mn<sub>2</sub>CoAl<sup>1)</sup>や Fe<sub>2</sub>CoSi<sup>2)</sup>において,外部磁場に対して正の値で線形的に増大し ていく特異な磁気抵抗(MR)効果が観測されている.この正の線形 MR 効果は,これらの材料のフェルミ準位 付近のバンド構造にギャップレス構造が存在するために発現している量子 MR 効果<sup>3)</sup>であると予想されてお り,それぞれ,Mn<sub>2</sub>CoAlではスピンギャップレス半導体<sup>1)</sup>,Fe<sub>2</sub>CoSiではゼロギャップハーフメタル<sup>2)</sup>が実現 している証拠であると議論されている.最近我々は,スピンギャップレス半導体としてのバンド構造が予想 されている四元等組成ホイスラー合金 CoFeVSi 薄膜を作製し,低温で同様の正の線形 MR を観測した<sup>4)</sup>.詳 細な電気・磁気伝導特性の評価とハンド計算の結果から,フェルミ準位付近の少数スピンバンド中にバナジ ウム(V)のdバンド由来のギャップレス構造が存在することを発見し<sup>4)</sup>,このVバンド由来の量子 MR 効果<sup>3)</sup> であると考察した.しかし,この考察には実験的な証拠が乏しいという課題があった.今回,低温 MBE 法<sup>4)</sup> を用いることで,CoFeVSiのVを Mn に置換した CoFe(V<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>)Si 薄膜の磁気伝導特性を評価し,CoFeVSi に おける正の線形 MR の起源がより明確になったので報告する<sup>5)</sup>.

非化学量論組成 MBE 法<sup>4)</sup>を用いて MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(100)基板上に基板温度 300 °C で CoFe(V<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>)Si 薄膜(x=0, 0.2, 0.5, 0.75)を形成し,磁場を膜面内に印加することで磁気伝導特性を評価した. Fig.1 に CoFe(V<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>)Si 薄膜の MR 比(%)の温度依存性を示す. 先行研究<sup>4)</sup>と同様に, Mn 置換量 x=0 の薄膜において正の線形 MR が観測さ れているが, x の増加に伴って MR 比の大きさは徐々に小さくなり, x = 0.75 で消失した. CoFeVSi の V を

Mn に置換した系のバンド計算から,これまで注目していた 少数スピンバンド中のV由来のギャップレス構造<sup>4)</sup>が,徐々 にバンドギャップへと変化していくことが判った.つまり, CoFeVSi における正の線形 MR 効果は,フェルミ準位付近 のV由来のギャップレス構造に起因する量子 MR 効果<sup>3)</sup>が 起源であると実験的にも確かめられた.講演では,異常分 散 XRD を利用した CoFeVSi 薄膜の構造評価および CoFe(V<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>)Si 薄膜の磁気特性・伝導特性についても述べ る.

本研究の一部は, JSPS 科研費(No. 16H02333, 17H06152, 18KK0111)とスピントロニクス学術連携基盤と連携ネット ワークの支援を受けた. 異常分散 XRD 測定は SPring-8 BL13XU(課題番号:2018A1016, 2018A2052, 2018A0927)で実 施した.

- 1) S. Ouardi et al., Phys. Rev. Lett. 110, 100401 (2013).
- 2) Y. Du et al., Europhys. Lett. 103, 37011 (2013).
- 3) A. A. Abrikosov, Phys. Rev. B 58, 2788 (1998).
- 4) S. Yamada et al., Phys. Rev. Mater. 2, 124403 (2018).
- 5) S. Yamada et al., (submitted).



Fig. 1 Field-dependent MR ratio at various temperatures for the epitaxial  $CoFe(V_{1,x}Mn_x)Si$  films.

## Structural-order dependence of anomalous Hall effect in Co<sub>2</sub>MnGa full-Heusler alloy thin films

Q. Wang<sup>1</sup>, Z. Wen<sup>2</sup>, T. Kubota<sup>1,3</sup>, T. Seki<sup>1,3</sup>, and K. Takanashi<sup>1,3</sup>.
 <sup>1</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan
 <sup>2</sup>National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan
 <sup>3</sup>Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Anomalous Hall effect (AHE) is attracting great attention as a new scheme for generating spin current for novel spintronic devices. <sup>[1,2]</sup> Recently, a large AHE has been reported in Co<sub>2</sub>MnGa full Heusler alloy films with an anomalous Hall angle of ~10%. <sup>[3,4]</sup> The origin of the large AHE was attributed to the topological properties of their electronic structures. It has also been reported that the electronic structures of Heusler alloys can be tuned by changing their degree of structural order. <sup>[5]</sup> In this study, the dependence of the AHE on the degree of structural order was investigated in Co<sub>2</sub>MnGa full Heusler alloy thin films by varying the deposition temperatures.

The Co<sub>2</sub>MnGa films with the thickness of 30 nm were deposited by a sputter system at different deposition temperatures of RT, 200 °C, 400 °C, 500 °C and 600 °C. The structures of the thin films were characterized by X-ray diffraction (XRD) with out-of-plane and in-plane scans. The (002) and (004) peaks were observed for all the samples regardless of the deposition temperature, which indicates the films were grown along the (001) orientation on MgO(001) substrates. By tilting the samples to  $\chi = 54.7^{\circ}$ , the (111) peaks were also detected. With increasing the deposition temperature, the (111) peak appeared and was clearly observed at the temperatures of 500 °C and 600 °C. The degree of structural order of the samples was evaluated as a function of deposition temperature. The Co<sub>2</sub>MnGa films possess two kinds of ordered structures:  $L2_1$  and B2 structures. The degree of order for B2 structure increases with increasing the deposition temperature from RT to 400 °C, then is nearly saturated with a degree of B2-ordering of ~80% from 400 °C to 600 °C. The degree of order for  $L2_1$  structure starts to increase at 400 °C. The maximum degree of  $L2_1$ -order of 40% was achieved in the sample deposited at 600 °C.

In order to evaluate the AHE, the films were microfabricated to Hall bar structure. The dependence of anomalous Hall resistivity on the deposition temperature and measurement temperature were investigated. Large anomalous Hall angles were observed for the samples deposited at 400 °C, 500 °C, and 600 °C. Anomalous Hall angles of ~14% at 10 K and ~12% at 300 K were achieved at maximum. Considering the structural order of  $Co_2MnGa$  films, it is found that the samples containing  $L2_1$  order show enhanced AHE. The mechanism on the structural order dependence of AHE could be the variation of electronic band structures due to the different order in the  $Co_2MnGa$  films. By further investigating the dependence of Hall conductivity on longitudinal conductivity, we have found that the dominant contribution to the AHE in the system is intrinsic contribution. This research could contribute to the design of new materials exhibiting large AHE by the control of structural order.

#### Reference

- [1] Taniguchi et al., Phys. Rev. Appl. 3, 044001 (2015).
- [2] Iihama et al., Nat. Electron. 1, 120 (2018).
- [3] Nakatsuji et al., Nature 527, 212 (2015).
- [4] Nayak et al., Sci. Adv. 2, e1501870 (2016).
- [5] Miura et al., Phys. Rev. B 69, 144413 (2004).

# Structural insight using anomalous XRD into Mn<sub>2</sub>CoAl inverse Heusler alloy films fabricated by magnetron sputtering, IBAS and MBE techniques

L. S. R. Kumara<sup>1</sup>, H. Tajiri<sup>1</sup>, J. Wang<sup>2</sup>, Z. Chen<sup>2</sup>, W. Zhou<sup>2</sup>, Y. Sakuraba<sup>2</sup>, K. Ueda<sup>3</sup>, S. Yamada<sup>4</sup>, K. Hamaya<sup>4</sup>, and K. Hono<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan
 <sup>2</sup>National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki, 305-0047, Japan
 <sup>3</sup>Graduate School of Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan
 <sup>4</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka University, Toyonaka, 560-853, Japan

Recently, spin gapless semiconductor (SGS) [1] attracts much attention due to its unique half-metallic and zero-gap semiconductor behaviors, which could be applicable to novel spintronics devices. In SGS, an almost zero band gap in the up-spin state and a usual band gap in the down-spin state are expected at the Fermi level [2]. Several recent papers on Heusler alloys reported the SGS properties that can be expected from such a band structure; however, their magnetic and transport properties such as positive linear MR ratio and semiconducting temperature dependence of resistivity are still in debate. It is known that atomic arrangements, i.e. *XA*-type and *L*<sub>21</sub>-type structures, and its disorder strongly influence their SGS properties. In this respect, laboratory XRD is not sufficient to distinguish structural differences in Heusler alloys due to the nearly identical atomic scattering factors of constituent elements, e.g. those of Co and Mn at Cu  $K\alpha$ . Therefore, careful structural evaluation of SGS materials are a key to solve the above discrepancies of magnetic behavior.

In this report, using synchrotron anomalous XRD, evaluated we atomic arrangements and their disorder in Mn<sub>2</sub>CoAl (MCA) thin films fabricated by magnetron sputtering, ion-beam assisted sputtering (IBAS), and MBE [3]. Here, we briefly explain only on the results by MBE. The lab. XRD shown in Fig. 1(a) apparently indicates well-defined epitaxial MCA films. However, STEM-EDS (Fig1.(b)) shows there exist two phases of different elemental compositions (Mn-rich and Co-rich phases). Based on the above results, we constructed structural candidates for these two phases. AXRD results of 111, 002, and 004 reflections at Mn and Co K absorption edges are shown in Fig. 1(c) and (d), where calculations for the final structural models of the two phases, i.e. the  $L2_1B$  and disordered  $L2_1$ structures respectively shown in Fig. 1(e) and (f), well reproduced the experimental results. The synchrotron XRD were performed on BL13XU at SPring-8. This work is partly supported by JSPS KAKENHI (17H06152, 18KK0111).

#### Reference

 M. E. Jamer *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 142403 (2013).
 I. Galanakis *et al.*, Appl. Phys. Lett. **115**, 093908 (2014).
 L. S. R. Kumara *et al.*, J. Magn. Mag. Mater. to be submitted.



Fig.1 (a) Lab. XRD patterns of  $Mn_2CoAl$  films fabricated by MBE. Inset: 111 reflection profile. (b) STEM-EDS mapping of Mn and Co in  $Mn_2CoAl$  film. Calculated and experimental anomalous XRD  $I_{111}/I_{004}$  and  $I_{002}/I_{004}$  profiles at (c) Mn K-edge and (d) Co K-edge. Crystal structures of (e) Mn –rich phase ( $L2_1$ B structure) and (f) Co-rich phase (disordered  $L2_1$  structure).

## Coドープ Mn<sub>3</sub>Ga 反強磁性ホイスラー合金の交換バイアス効果

吉原 優紀<sup>1,2</sup>, エルフィック ケルビン<sup>2</sup>, 内田 裕久<sup>1</sup>, 井上 光輝<sup>1</sup>, 廣畑 貴文<sup>2</sup> (<sup>1</sup> 豊橋技術科学大学, <sup>2</sup>ヨーク大学)

> Exchange bias effects on Co-doped Mn<sub>3</sub>Ga antiferromagnetic Heusler alloy Y. Yoshihara<sup>1,2</sup>, K. Elphick<sup>2</sup>, H. Uchida<sup>1</sup>, M. Inoue<sup>1</sup> and A. Hirohata<sup>2</sup> (<sup>1</sup>Toyohashi University of Technology, <sup>2</sup>University of York)

## <u>はじめに</u>

反強磁性ホイスラー合金は、強磁性体との界面において交換バイアス磁界の発生やスピンホール効果の発 現が報告されるなど、スピントロニクスデバイスの発展に向けて興味深い報告がなされている<sup>[1]</sup>. IrMn など のレアメタルを用いる HDD 用 MR ヘッドや MRAM などに対する代替材料としての期待も大きい. 我々はこ れまで、Mn<sub>3</sub>Ga 反強磁性ホイスラー合金に Fe をドープした(Mn, Fe)<sub>3</sub>Ga 薄膜について、CoFe および Co/Pt 強 磁性層との間における面内および面直の交換バイアス効果の発現と組成依存性を確認し、Mn サイトへの強磁 性原子ドープが交換バイアスの操作に有効であることを実験的に示した<sup>[2]</sup>. 本報告では、Mn<sub>3</sub>Ga に Co をドー プした Mn<sub>2</sub>CoGa 薄膜について、交換バイアス磁界など各種特性について測定を行った結果を報告する.

## 実験方法

高真空プラズマスパッタ装置により、Si 基板上に Ta (5)/Ru (35)/(Mn, Co)<sub>3</sub>Ga (30)/CoFe (3.3)もしくは [Co (1.0)/Pt (1.6)]<sub>3</sub>/Ta (5) (膜厚:nm)を成膜した. Mn<sub>3</sub>Ga への Co ドープは直径 5.5 mm および 2.8 mm のペグをター ゲット上に配することで行った. 400K, 10 kOe で一方向に磁化させたサンプルを 100K まで冷却した後、反 転磁界下で活性化温度  $T_{act}$ に上昇させ、そのときの磁化状態を振動試料型磁力計による磁化曲線として取得 することで、交換バイアス磁界  $H_{ex}$ の測定とブロッキング温度の評価を行った.  $T_{act}$  = 100, 150, 200, 250, 300K とした. また、リフトオフ法によりホールバー構造の素子を作製し、抵抗率の評価を行った.

#### 実験結果

Fig. 1 および Fig. 2 は  $T_{act}$  = 100 K ~ 300 K の範囲で熱活性化を行ったあとに測定した  $Mn_{2.18}Co_{1.09}Ga$  の面 内・面直磁化曲線をそれぞれ示している.  $T_{act}$ が上昇するに従って  $H_{ex}$  は正方向へシフトしていく様子が観測 された.角形性は面直に対しより良く, $H_{ex}$ がゼロとなるブロッキング温度  $T_B$  はそれぞれ 197 K, 186 K 付 近と算定された.この結果は、 $Mn_3Ga$  への Co ドープが Fe と同様に交換バイアス効果の操作に対して有効 であることを示している.本発表では、他組成における交換バイアス効果やホール効果についても報告する.

## 参考文献

- 1) A. Hirohata et al., Journal of Physics: Applied Physics D 50 (2017) 443001.
- 2) T. Ogasawara et al., Journal of Magnetism and Magnetic Materials 484 (2019) 307–312.



**Figure 1**. In-plane magnetization curves of  $Mn_{2.18}Co_{1.09}Ga$  (30)/CoFe (3.3) bilayers measured at 100K after thermal activation at  $T_{act}$ .



Figure 2. Out-of-plane magnetization curves of Mn<sub>2.18</sub>Co<sub>1.09</sub>Ga / [Co (1.0)/Pt (1.6)]<sub>3</sub> bilayers measured at 100K after thermal activation at T<sub>act</sub>.

## (001)配向 Cu<sub>2</sub>Sb 型 MnAlGe 多結晶薄膜の磁気特性

窪田崇秀<sup>1,2</sup>,小田洋平<sup>3</sup>,伊藤啓太<sup>1,2</sup>,梅津理恵<sup>1,2</sup>,孫銘嶺<sup>1</sup>,水口将輝<sup>1,2,4</sup>,高梨弘毅<sup>1,2</sup>
(1東北大金研、2東北大 CSRN、 3福島高専、4 JST-CREST)
Magnetic Properties of poly-crystalline Cu<sub>2</sub>Sb-type MnAlGe films with a (001)-texture

Takahide Kubota<sup>1,2</sup>, Yohei Kota<sup>3</sup>, Keita Ito<sup>1,2</sup>, Rie Y Umetsu<sup>1,2</sup>, Mingling Sun<sup>1</sup>,

Masaki Mizuguchi<sup>1,2,4</sup>, and Koki Takanashi<sup>1,2</sup>

(1 IMR, Tohoku Univ., 2 CSRN, Tohoku Univ., 3 NIT Fukushima college, 4 JST-CREST)

## はじめに

低飽和磁化を示す垂直磁化薄膜は、スピン移行トルク書込み型の磁気ランダムアクセスメモリの磁化反転 層として低反転電流密度化のために重要である。これまでに、 $D0_{22}$ 型の $Mn_3Ga^{1,2}$ 、 $Mn_3Ge^{3}$ や $L1_0$ 型の $MnGa^{2}$ 、  $MnAl^{4)}といった材料が注目されてきたが、それらは面心正方晶系の結晶構造であり、最密安定結晶面が(001)$ 面以外であるために、(001)配向の MgO 障壁層を用いる磁気トンネル接合と組み合わせるためにはエピタキシャル成長した下地を用いる等のプロセス上の制約があった。Cu<sub>2</sub>Sb 型の MnAlGe は 300 emu/cm<sup>3</sup>程度と比較的低い飽和磁化を示し、エピタキシャル薄膜で 5 × 10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup>程度の垂直磁気異方性エネルギーと 0.03 程度 $の比較的小さなギルバート磁気緩和定数を示すことが報告されている材料である <sup>5,6</sup>。MnAlGe の <math>K_u$  は他の Mn 系垂直磁化材料に及ばない一方で、Cu<sub>2</sub>Sb 型材料系は無配向基板上に(001)配向で作製できるという利点が ある <sup>7</sup>。しかしながら、多結晶 MnAlGe 薄膜の定量的な磁気特性を報告した先行研究は無いことから本研究 では多結晶 MnAlGe 薄膜の結晶構造並びに磁気特性を定量的に明らかにすることを目的とした。

## 実験方法

試料は超高真空マグネトロンスパッタ装置を用い、熱酸化膜付きのシリコン基板上に作製した。積層構造 は、基板 | Mn-Al-Ge 100 nm | MgO 2 nm | Ta 3 nm とした。Mn-Al-Ge 層は Mn-Al ターゲットと Ge ターゲット からの同時放電により作製し、薄膜組成は Mn<sub>1.08</sub>Al<sub>0.90</sub>Ge<sub>1.02</sub> である。成膜温度は全層室温とした。MgO | Ta の 保護層成膜後にスパッタ装置から取り出し、真空熱処理炉で 300 – 500 ℃ で熱処理を行った。試料の結晶構 造と磁化曲線をそれぞれ室温にて X 線回折(XRD)装置と振動試料型磁力計を用いて測定した。

#### 実験結果

XRD 測定の結果、熱処理後の試料は全て(001)配向を示すことを確認した。また、磁化曲線の測定により、 熱処理後のすべての試料が垂直磁化となることを確認した。飽和磁化と薄膜膜面垂直方向並びに面内方向の 磁化曲線の面積差より求めた  $K_u$ は、熱処理温度 500 °C の試料でそれぞれ最大値の 270 emu/cm<sup>3</sup>, 4.4 × 10<sup>6</sup> erg/cm<sup>3</sup>となった。いずれの値もエピタキシャル薄膜の報告 <sup>5)</sup>に近く、多結晶膜においても良好な垂直磁化膜 が得られることが明らかになった。講演では Ge 組成依存性の実験結果も合わせて報告する。

## <u>謝辞</u>

本研究は(公財)村田学術振興財団の支援を受けて行われた。また、東北大金研の成田一生技術職員の技術支援に感謝申し上げます。

## 参考文献

- 1) F. Wu et al., Appl. Phys. Lett. 94, 122503 (2009). 2) S. Mizukami et al., Phys. Rev. Lett. 106, 117201 (2011).
- 3) S. Mizukami et al., Appl. Phys. Expres 6, 123002 (2013). 4) M. Hosoda et al., J. Appl. Phys. 111, 07A324 (2012).
- 5) S. Mizukami, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 142405 (2013), Y. Kato *et al.*, US Patent 8,520,433 B1 (2013), 加藤他, 特許 第 5499264 号 (2014).
- 6) S. Mizukami et al., J. Appl. Phys. 120, 142102 (2016).
- 7) R. Sherwood et al., J. Appl. Phys. 42, 1704 (1971), D. Bacon et al., US Patent: 3,676,867 (1972).