

高スピン分極率  $\text{Co}_2\text{TiGe}/\text{Mn}_3\text{Ge}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}$  反強磁性二層膜の作製と評価

飯沼 真優, 高村 陽太, 中川 茂樹  
(東京工業大学)

Preparation and characterization of high spin polarizability  $\text{Co}_2\text{TiGe}/\text{Mn}_3\text{Ge}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}$  antiferromagnetic bilayer  
M. Iinuma, Y. Takamura, S. Nakagawa  
(Tokyo Institute of Technology)

## はじめに

超高集積かつps単位で超高速動作する反強磁性スピントロニクスデバイスを実現するには伝導電子が高偏極した反強磁性材料の開発が重要である。そこで我々は高スピン分極率材料である  $\text{Co}_2\text{TiGe}$ (CTG)および  $\text{Mn}_3\text{Ga}_{0.6}\text{Ge}_{0.4}$ (MGG)を反強磁性結合させた超格子膜による反強磁性電極構造を提案している<sup>1)</sup>。今回はCTGとMGGそれぞれの単層膜を成膜温度( $T_s$ )条件を変化させて作製し、良質なCTG単層膜が得られたので報告する。今後はCTGとMGGの二層膜の作製を行い、当日は二層膜における反強磁性結合の有無を報告する。

## 実験方法

すべての試料は対向ターゲット式スパッタ法で作製した。単結晶  $\text{MgO}(001)$ 基板上にCTG膜50nm, MGG膜36nmをそれぞれ成膜し, Taでキャップした。CTGは400-600°C, MGGは300-600°Cでそれぞれ $T_s$ を変化させ, 同じ温度でそのまま上部にTaを成膜した。

作製した試料の磁化特性は超伝導量子干渉計(SQUID), 結晶構造はX線回折法(XRD)で評価を行った。

## 実験結果

CTG単層膜のXRDピークをFig.1に示す。 $T_s=500-600^\circ\text{C}$ においてCTG(200)およびCTG(400)ピークが見られ $B2$ 構造での結晶化が確認できた。測定温度10Kでの $M-H$ 測定結果をFig.2に示す。 $T_s=600^\circ\text{C}$ 試料において最も良好な角型比のヒステリシスループが得られた。 $T_s=600^\circ\text{C}$ 試料における $M-T$ 測定結果をFig.3に示す。 $T_s=600^\circ\text{C}$ 試料においてキュリー温度 $T_c$ は360Kであり, 先行研究のバルク値 $T_c=380\text{K}$ <sup>2)</sup>と比較して妥当な値が得られた。

MGG単層膜はXRDピークにおいて $T_s=400-600^\circ\text{C}$ で $D0_{22}$ 構造の(002)および(004)ピークが出現し, 結晶化が確認できた。しかし,  $T_s=500-600^\circ\text{C}$ では他の析出物のピークも見られた。今後磁化特性等の更なる調査が必要である。

以上の結果よりCTG/MGG二層膜作製にあたって, CTG単層膜が結晶化し良好な磁化特性が得られる成膜温度条件を得ることができた。

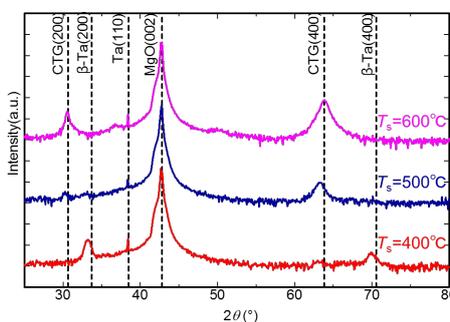


Fig.1 XRD peak of CTG single layer

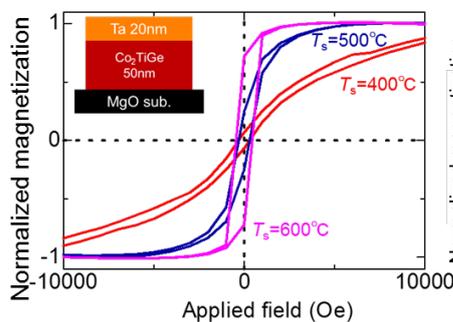


Fig.2  $M-H$  of CTG at measurement temperature 10K

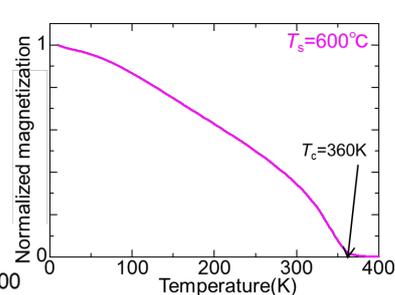


Fig.3  $M-T$  of CTG( $T_s=600^\circ\text{C}$ )

## 参考文献

- 1) S.Tirpanci. et al., J. Appl. Phys. **113** 043912 (2013). 2) J.Barth et al., Phil. Trans. R. Soc **369** 3588-3601(2011).

## Cu<sub>2</sub>Sb 型 MnGaGe 規則合金薄膜の磁気特性の下地層依存性

孫銘嶺<sup>1,2</sup>, 窪田崇秀<sup>1,3</sup>, 伊藤啓太<sup>1,3</sup>, 高橋茂樹<sup>4</sup>, 園部義明<sup>4</sup>, 高梨弘毅<sup>1,3</sup>  
 (東北大学金属材料研究所<sup>1</sup>, 東北大学大学院工学研究科<sup>2</sup>,  
 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター<sup>3</sup>, サムスン日本研究所<sup>4</sup>)

### Buffer layers dependence of magnetic properties for Cu<sub>2</sub>Sb-type MnGaGe films

Mingling Sun<sup>1,2</sup>, Takahide Kubota<sup>1,3</sup>, Keita Ito<sup>1,3</sup>, Shigeki Takahashi<sup>4</sup>, Yoshiaki Sonobe<sup>4</sup> and Koki Takanashi<sup>1,3</sup>  
 (Institute for Materials Research, Tohoku University<sup>1</sup>, Graduate School of Engineering, Tohoku University<sup>2</sup>,  
 Center for Spintronics Research Network, Tohoku University<sup>3</sup>, Samsung R&D Institute Japan<sup>4</sup>)

#### Introduction

Memory industry is an indispensable part of the information society. In order to meet the upcoming 5G era, next generation memories must possess higher speed to be used as cache memory and greater capacity to be used as main memory. Magnetoresistive random access memory (MRAM), a candidate of next generation memories, has attracted significant attention for its non-volatile attribute and high working speed. Nowadays, the latest semiconductor technology node is approaching to 7 nm. From the viewpoint of thermal stability, the magnetic anisotropy energy ( $K_u$ ) of the materials which are used to deposit the electrodes of magnetic tunnel junctions must be high enough to make appropriate use of the latest nano-fabrication process. Therefore, the research and development of magnetic materials with high  $K_u$  are very crucial. Our group has been working on Cu<sub>2</sub>Sb-type MnGaGe films. In our previous study, the saturation magnetization of 260 emu/cm<sup>3</sup> and  $K_u$  of  $8.1 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> were found in our MnGaGe films deposited on MgO (100) substrates [1]. However, the poor squareness of magnetization curves and the relatively large orientation dispersions of MnGaGe layers were observed, showing that the orientation dispersion of MnGaGe layers are relatively large. In this presentation, we will report the optimizing experiments of MnGaGe films by using several buffer layers.

#### Experimental

All metallic layers were deposited by using an ultrahigh-vacuum magnetron sputtering system with a base pressure less than  $4 \times 10^{-7}$  Pa, and a MgO layer was deposited by using an electron beam evaporation system. The stacking structure of this work was MgO (100) substrate/buffer layer(s)/ MnGaGe ( $t$ )/MgO (2 nm)/Ta (5 nm). The layer thickness,  $t$ , was varied from 5 nm to 100 nm. MnGaGe layers were deposited by co-sputtering technique using a MnGa target and a Ge target. Different types of buffer layers such as Cr (60 nm), Cr (60 nm)/Pt (5 nm), Cr (20 nm)/Ru (40 nm) and Cr (60 nm)/MgO (2 nm) were used. After the deposition process, the samples were annealed in a stand-alone vacuum furnace. X-ray diffraction (XRD) measurements were carried out using the Bruker D8 Discover system, and magnetization curves were measured by a vibrating sample magnetometer at room temperature.

#### Results and discussions

From the XRD measurement results, we know that undesired 110 and 220 peaks appeared for all the annealed samples using single metal buffer layers. In contrast, samples using Cr/MgO hybrid buffer layer exhibited (001) orientation clearly. Neither 110 nor 220 peak appeared in the Cr/MgO samples after the annealing process. In addition, the squareness of magnetization curves and FWHM of the 001 diffraction were improved for the Cr/MgO samples.

This work was partially supported by the Murata Science Foundation and Cooperative Research Project of CRDAM-IMR, Tohoku Univ. MS and TK thank Issei Narita for technical supports.

#### Reference

[1] M.-l. Sun, *et al.*, *The 2019 Joint MMM-Intermag Conference*, **DH-09** (2019).

## CoGa 下地層を用いた MnAl(001)配向膜の形成

大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡

(名古屋大学)

Fabrication of (001)-textured MnAl film on CoGa buffer layer

D. Oshima, T. Kato, S. Iwata

(Nagoya Univ.)

### はじめに

(001)配向下  $L1_0$ -MnAl は高い垂直磁気異方性を有し、ダンピングも小さいことから、磁気ランダムアクセスメモリや磁気記録媒体の材料として有望視されている。(001)配向の MnAl の下地層としては Cr や Cr 系合金が用いられているが<sup>1)</sup>, 一般的に MnAl 膜の膜厚が薄くなると磁気特性が劣化する傾向がある。一方で、同様の結晶構造を持つ  $L1_0$ -MnGa では、CoGa 下地層を用いるのが効果的という報告がある<sup>2)</sup>。本研究では、CoGa 下地層を用いて MnAl 膜を形成し、その特性を評価したので報告する。

### 実験方法

各層はマグネトロンスパッタ法により堆積し、その膜構成は、Cr (2 nm) / MnAl (5 or 15 nm) / CoGa (0 or 30 nm) / Cr (20 nm) / MgO(001) sub.とした。Cr および CoGa 下地層はそれぞれ基板温度 400 °C で堆積し、ポストアニールを 600 °C で 30 min 行った。MnAl は成膜時の基板温度を  $T_s$ , ポストアニール温度を  $T_a$  として形成した。

### 実験結果

Fig. 1 に CoGa が 0 もしくは 30 nm のときの 5 nm 厚の MnAl 膜の磁化曲線, 原子間力顕微鏡像, X 線回折プロファイルを示す。なお, MnAl 成膜時の基板温度は  $T_s = 200$  °C として, ポストアニールは行っていない。CoGa 膜を挿入しない Cr バッファ直上のものに比べ, CoGa 膜を挿入したものでは MnAl 膜の飽和磁化が大きく, 角型比も良好な結果が得られた。また, Cr 上では表面形状に不均一性が見られるが, CoGa 上ではそれが改善され, 均一な表面形状が観察されている。X 線回折プロファイルでは, どちらの膜においても MnAl の 001, 002 ピークが観測されていることから, (001)配向した MnAl 膜が形成されていることがわかるが, 回折ピーク強度は CoGa 上のもののほうが大きい。これは CoGa 上では MnAl 膜の結晶性が向上することを示している。さらに,  $T_s = 200$  °C,  $T_a = 500$  °C とすると, 磁気特性の向上が見られることを確認している。CoGa 層挿入による各種特性の向上は 15 nm 厚の MnAl 膜でも確認され, CoGa 層挿入は MnAl 層の成長に効果的であることがわかった。

### 参考文献

- 1) M. Hosoda *et al.*, J. Appl. Phys., vol. 111, 07A324 (2012).
- 2) K. Z. Suzuki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., vol. 55, 010305 (2016).

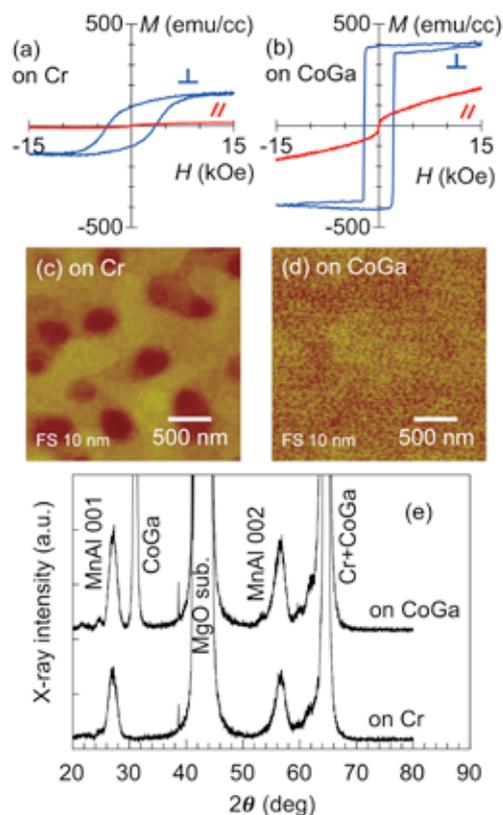


Fig. 1 (a), (b)  $M$ - $H$  curves, (c), (d) AFM images, (e) x-ray diffraction profiles of MnAl films grown on (a), (c) (e) Cr or (b), (d) (e) CoGa buffer layer.

Ga 組成の異なる  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  膜における磁気特性の膜厚依存性

川辺 泰之、宮崎 孝道、遠藤 恭 (東北大学)

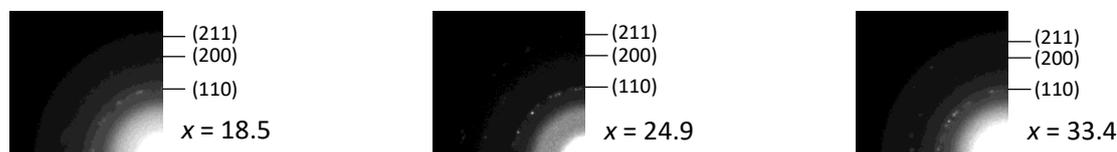
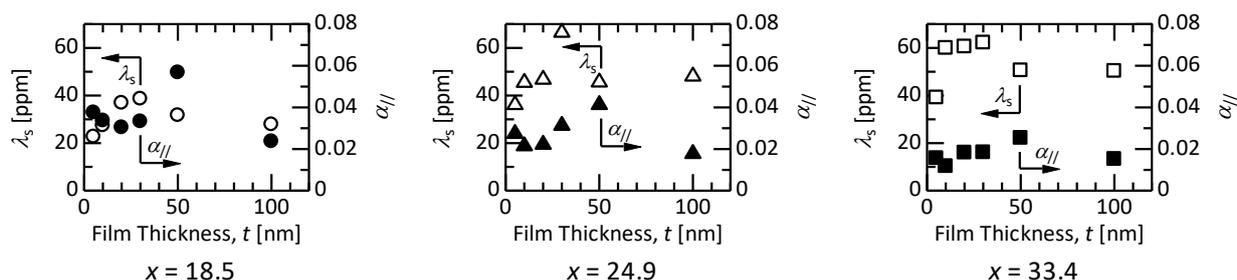
Thickness Dependence of Magnetic Properties for  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  Films with Various Ga Compositions ( $x$ )

Yasuyuki Kawabe, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo (Tohoku Univ.)

**はじめに** 巨大磁気ひずみを有する Fe-Ga 膜は、高速・小型・エネルギー高効率な高周波デバイスへの応用に向けて<sup>1)</sup>、構造や磁気および電気特性に関する検討が行われている。我々のグループも含めて、これまでの研究では、Ga 組成 20 at.% 近傍の Fe-Ga 膜における磁気特性の膜厚による変化<sup>2,3)</sup>や、特定の膜厚での高周波磁気特性の Ga 組成による変化<sup>4)</sup>について検討されてきた。本研究では、Ga 組成の異なる Fe-Ga 膜における静的および高周波磁気特性の膜厚による変化について検討した。

**実験方法** 5 ~ 100 nm 厚の  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  (Fe-Ga) 膜はガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリングを用いて製膜した。なお、膜の酸化を防ぐために 5 nm 厚の Cr 層を試料表面に積層した。作製した膜の組成 ( $x = 18.5, 24.9, 33.4$ ) に関しては、EDX を用いて評価した。作製した膜の構造に関しては、TEM、XRD を用いた一方、磁気特性に関しては、VSM、光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪装置 ((株) 東栄科学産業製)、ブロードバンド FMR (B-FMR) 測定法を用いて評価した。

**結果および考察**  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  膜における結晶構造は、Ga 組成および膜厚によらず bcc 多結晶であった (図 1)。このような構造を有する  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  膜の飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) と面内有効ダンピング定数 ( $\alpha_{//}$ ) を評価した。それらの結果を図 2 に示す。 $\lambda_s$  に関しては、いずれの Ga 組成においても膜厚の増加とともに増加し、 $t = 30$  nm にて極大をとり、さらに膜厚が増加すると緩やかに減少した。 $\lambda_s$  の値は、Fe-Ga バルク合金<sup>5)</sup>や Fe-Ga 多結晶膜<sup>6)</sup>と比較して低くなった。この原因は、膜の結晶方位が主に [111] 方向を向いていることと、膜の結晶粒径が小さく微結晶状態となっていることによるものと考えられる。一方、 $\alpha_{//}$  に関しては、いずれの Ga 組成においても膜厚の増加とともにほぼ一定となり、 $t = 50$  nm にて極大をとり、さらに膜厚が増加すると減少した。また、いずれの  $\alpha_{//}$  の値も、低磁気ひずみを有する  $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$  膜の結果と比べるとおよそ 4-7 倍ほど高くなった。この原因は、2-マグノン散乱や異方性分散といった磁氣的不均一性によるものと考えられる。

Fig. 1. Selected-area diffraction (SAD) patterns of 10-nm-thick  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  films ( $x = 18.5, 24.9, \text{ and } 33.4$ ).Fig. 2. Thickness dependence of the saturation magnetostriction ( $\lambda_s$ ) and the in-plane effective damping constant ( $\alpha_{//}$ ) for  $\text{Fe}_{100-x}\text{Ga}_x$  films ( $x = 18.5, 24.9, \text{ and } 33.4$ ).

**謝辞** 本研究の一部は、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター、東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター、および情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) の支援のもとで行われた。また、本研究の一部は、科研費基盤研究 (B) (No. 17H03226) の支援のもとで行われた。

**参考文献** 1) B. K. Kuanr *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 115, 17C112 (2014)., 2) A. Javed *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 107, 09A944 (2010)., 3) Y. Endo *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, 53, 11, 2502305 (2017)., 4) Y. Kawabe *et al.*, *T. Magn. Soc. Jpn.*, 3, 34 (2019)., 5) A. E. Clark *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, 36, 3238 (2000)., 6) N. A. Morley *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 105, 07A912 (2009).

## Co-Fe-B 薄膜における構造と磁気特性の膜厚による変化

田中 治憲, 宮崎 孝道, 遠藤 恭 (東北大学)

Change in Structural Characteristics and Magnetic Properties for Co-Fe-B Thin Films with Thickness

H. Tanaka, T. Miyazaki, Y. Endo (Tohoku University)

### はじめに

Co-Fe-B 薄膜は, MRAM やスピントルクダイオードなどのスピントロニクスデバイスにおける磁気トンネル接合素子の強磁性電極層に用いられる有力な材料の 1 つであり, その動的磁気特性に関して盛んに研究が行われている<sup>1)</sup>. しかしながら, Co-Fe-B バルク合金の飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) が 20 ppm と高いにもかかわらず<sup>2)</sup>, これまでの研究では  $\lambda_s$  および  $\alpha$  と動的磁気特性との関係について検討されていない. 本研究では,  $\lambda_s$  と動的磁気特性の重要なパラメータの 1 つであるダンピング定数 ( $\alpha$ ) との関係把握するために, 膜厚の異なる Co-Fe-B 薄膜の構造と磁気特性について詳細に検討した.

### 実験方法

試料作製は RF スパッタリング装置を用いた. 作製した試料の膜構成に関しては, ガラス基板上に膜厚を 3 ~ 100 nm と可変させた Co-Fe-B ( $\text{Co}_{37}\text{Fe}_{43}\text{B}_{20}$ ) 薄膜である. なお, 組成については, EDX および飽和磁化値をもとにして決定した.

作製した薄膜の結晶構造および表面形状評価には, XRD, TEM および AFM を用いた. また, 磁気特性評価には, VSM, 光透過法を用いた高感度薄膜磁歪測定装置およびブロードバンド強磁性共鳴 (B-FMR) 測定装置を用いた.

### 実験結果および考察

XRD パターンからわかるように (図 1), 膜厚によらず回折ピークは観測されなかった. これらの結果から, Co-Fe-B 薄膜の結晶構造は, 膜厚に依存せず, いずれもアモルファスであることがわかった. 一方, 表面粗さ (RMS) は, 膜厚によらずほぼ一定となり, それらの値はおおよそ 1 nm であった. この結果は, 膜表面が比較的平坦であることを示唆している.

このような結晶構造および表面形状を有する Co-Fe-B 薄膜の磁気特性を評価した. その結果を図 2 に示す.  $\lambda_s$  は, 膜厚 10 nm 付近まで増加し, さらに膜厚を増加させるとほぼ一定となった. また, いずれの膜厚においても  $\lambda_s$  の値は 40 ~ 70 ppm であり, バルク値 (20 ppm) に比べて高くなった. この原因は製膜時の応力誘起によるものと考えられる. 一方,  $\alpha$  は膜厚の増加とともに 0.011 から 0.005 へと急激に減少し, 膜厚 10 nm 以上ではほぼ一定となった. とりわけ, 10 nm 以下の膜厚における  $\alpha$  の増大は, 材料固有の  $\alpha$  に加えて, 異方性分散などの磁気的不均一性によるものと考えられる.

### 謝辞

本研究を行うにあたり, 試料作製および測定の一部に関して, 東北大学電気通信研究所 石山 和志 教授, 榎 修一郎 准教授, 東北大学多元物質研究所 北上 修 教授, 岡本 聡 准教授, 菊池 伸明 助教のご協力を得ました. ここに深謝します. 本研究の一部は, 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター, 東北大学先端スピントロニクス研究開発センター, 東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センターの支援により行われた. また, 本研究の一部は, 科研費(No. 17H03226)の補助のもとで行われた.

### 参考文献

- 1) D. D. Djayaprawira *et al*, Appl. Phys. Lett., **86**, 092502 (2005).
- 2) R. C. O'Handley, *Modern Magnetic Materials Principles and Applications*, John Wiley & Sons, Inc., NY, USA, (1999).

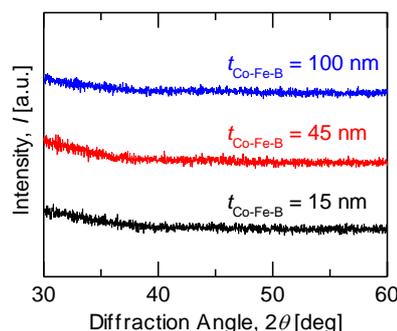


Fig. 1. X-ray diffraction patterns for  $\text{Co}_{37}\text{Fe}_{43}\text{B}_{20}$  thin films with various thicknesses.

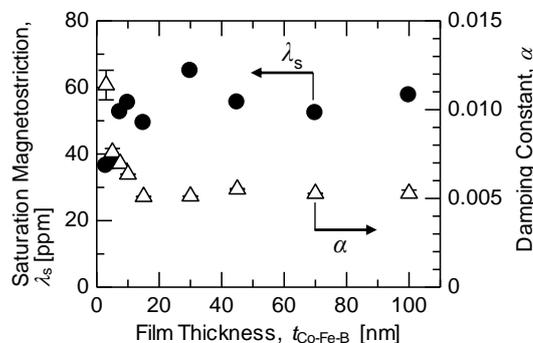


Fig. 2. Change in the saturation magnetostriction ( $\lambda_s$ ) and damping constant ( $\alpha$ ) of  $\text{Co}_{37}\text{Fe}_{43}\text{B}_{20}$  thin films with thickness.