

# C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al 薄膜の結晶構造評価および Néel 温度の決定

豊木研太郎, 濱口峻祐, 白土優, 中谷亮一  
(大阪大学大学院工学研究科)

The evaluation of crystal structure and Néel temperature of C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al thin films  
Kentarō Toyoki, Shunsuke Hamaguchi, Yu Shiratsuchi, Ryoichi Nakatani  
(Graduate school of engineering, Osaka University)

**【研究背景】** トンネル磁気抵抗効果, 巨大磁気抵抗効果といった磁気抵抗(MR)効果はスピントロニクスデバイスの基幹をなす. 近年では, 双方ともに単結晶膜において高い MR 比が実現されることが報告されている. これに対して, 交換バイアスを通じて上下強磁性層間の反転磁場の差を生じしむための反強磁性層に関しては, 単結晶からなる膜構成を考慮すると, 未だ検討の余地があると言える. すなわち, 従来から主として用いられてきた Ir-Mn(111)系を代替し, 高 MR 比の Co-Fe(-B)/MgO(001)/Co-Fe(-B)系<sup>1)</sup>や Co<sub>2</sub>MnSi/Ag/Co<sub>2</sub>MnSi(001)系<sup>2)</sup>に対して格子整合の良い反強磁性体に関して検討する必要がある. そこで我々は単結晶 MR 積層膜に適合した反強磁性体として C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al に関して検討している. C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al は 600~700 K の高い Néel 温度や, MgO に対して 0.7%程度の低いミスフィットとなる格子定数などが報告されている<sup>3)</sup>. 我々は, これまでに C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al 膜における組成および製膜温度に対する相構成やエピタキシャル方位関係などに関して報告した. 本研究では, C11<sub>b</sub> Cr<sub>2</sub>Al 膜における Néel 温度および規則度の組成依存性に関して検討した.

**【実験方法】** 試料作製には分子線エピタキシー法を用いた. 基板は MgO(001)とした. Cr-Al 薄膜の設計膜厚および成長温度はそれぞれ 50 nm, 1073 K とした. 薄膜の Cr-Al 組成は製膜レート比によって変化させ, 製膜後波長分散型蛍光 X 線分析を用いて組成を同定した. 作製した試料の Al 組成は, 0~44at.%の範囲であった. 結晶構造評価には X 線回折を用いた. Néel 温度は電気抵抗率の温度依存性によって決定した.

**【実験結果】** Figure 1(a)に Al 組成を 44at.%とした試料の電気抵抗率の温度微分  $d\rho/dT$  の温度依存性を示す. 480 K 以下と 710 K 以上の領域では,  $d\rho/dT$  はほぼ一定であった. その間のおおよそ 653 K で  $d\rho/dT$  は極小値をとった. この極小値は Cr-Al の反強磁性秩序によって生じた擬ギャップが, Néel 温度を超えた際に消失し, キャリア密度が変化したこと起因すると考えられる. すなわち, この  $d\rho/dT$  が極小となる温度が Néel 温度に対応する.

Al 組成に対する Néel 温度の変化を Fig. 1(b)に示す. 図中の黒丸および白丸はそれぞれ本研究で得られた C11<sub>b</sub> Cr-Al 薄膜の Néel 温度およびバルクにおける報告値<sup>3)</sup>に対応する. C11<sub>b</sub> 相の単相領域 (Al 組成 28.6~34.5at.%) では Cr 組成の増加に伴い, Néel 温度増加する傾向および, その範囲外では Néel が概ね一定となる傾向に関して, 報告値と本研究とでは一致した結果が得られたと言える. また, Néel 温度の絶対値に関してもバルクの報告値と概ね合致した結果が得られた. 規則度に関しては特に Cr リッチ側組成では大きく低下する傾向が得られた. これらのことから, C11<sub>b</sub> Cr-Al の規則度は Néel 温度に対して比較的影響を与えないと推測される.

## 参考文献

- 1) K. Yakushiji *et al.*, Appl. Phys. Lett., **115**, 202403 (2019).
- 2) Y. Sakuraba *et al.*, Phys. Rev. B, **82**, 094444 (2010).
- 3) W. Köster and K. Grube, Z. Metallkund., **54**, 393 (1963).

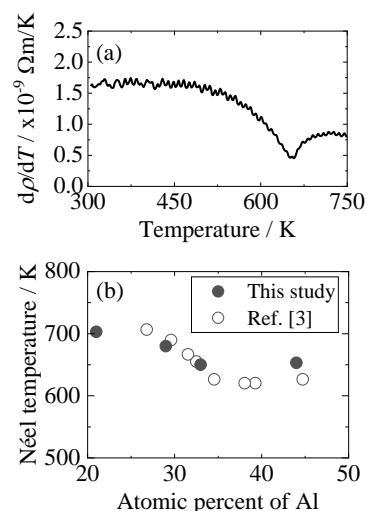


Fig. 1. (a) Cr-Al 薄膜(44at.%-Al)の抵抗率における温度微分  $d\rho/dT$  の温度変化. (b) Al 組成に対する C11<sub>b</sub> Cr-Al の Néel 温度の変化.

# MgO および SrTiO<sub>3</sub>(001)単結晶基板上における Fe-N 薄膜のエピタキシャル成長

今村光佑<sup>1</sup>・前田悠良<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・桐野文良<sup>2</sup>・稲葉信幸<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>東京藝大, <sup>3</sup>山形大)

Epitaxial Growth of Fe-N Thin Films on MgO and SrTiO<sub>3</sub> Single-Crystal Substrates of (001) Orientation  
Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Yura Maeda<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>2</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>3</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに**  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N はスピン偏極率が大きいことから、スピントロニクス分野での応用が検討されている。これまで、スパッタリングや MBE 法を用いて、形成条件を変えて磁気特性などが調べられている<sup>1-3</sup>。本研究では、反応性スパッタリング法により(001)基板上に Fe-N 薄膜を形成し、基板材料、基板温度、N<sub>2</sub>分圧が構造と磁気特性に及ぼす影響を系統的に調べた。

**実験方法** 超高真空 RF マグネトロンスパッタリング法を用いて、Ar と N<sub>2</sub> の混合ガス雰囲気下（全圧  $7 \times 10^{-1}$  Pa）で、Fe と N を反応させることにより MgO および SrTiO<sub>3</sub>(001)基板上に 40 nm 厚の Fe-N 膜を形成した。このとき、N<sub>2</sub>分圧比を 0~5%、基板温度を RT~600 °C の間で変化させた。評価には、結晶構造の解析に RHEED および XRD、表面形態の観察に AFM、磁気特性の測定に VSM を用いた。

**実験結果** MgO 基板上に形成した膜に対して観察した RHEED パターンを Fig. 1 に示す。N<sub>2</sub>分圧比 0%で基板温度 RT~600 °C では、 $\alpha$ -Fe(001)[110]||MgO(001)[100]の結晶方位関係で  $\alpha$ -Fe 膜が、N<sub>2</sub>分圧比 2.5~5%で基板温度 200~600 °C では、 $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N(001)[100]||MgO(001)[100]の結晶方位関係で  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 膜がエピタキシャル成長したことが分かる。N<sub>2</sub>分圧比 2.5~5%で基板温度 RT では、多結晶のリングパターンが現れている。 $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 単結晶薄膜に対して測定した XRD パターンの例を Fig. 2 に示す。RHEED 解析結果と同様に  $\gamma'$ 相からの回折を確認することができる。また、Fig. 3 に  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N および  $\alpha$ -Fe から構成される膜の磁化曲線を示す。いずれの膜も[100]方向が磁化容易となっていることが分かる。当日は、SrTiO<sub>3</sub> 基板上に形成した Fe-N 膜の結果も報告する。

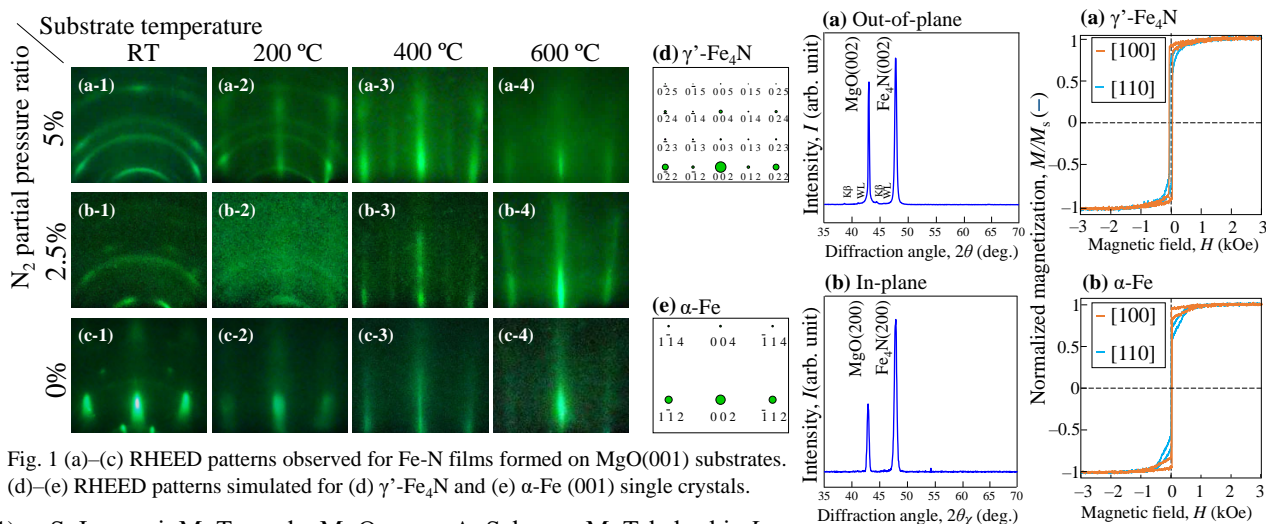


Fig. 1 (a)–(c) RHEED patterns observed for Fe-N films formed on MgO(001) substrates. (d)–(e) RHEED patterns simulated for (d)  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N and (e)  $\alpha$ -Fe (001) single crystals.

- 1) S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma, M. Takahashi, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 162, (2014).
- 2) K. Ito, S. Higashikozono, F. Takata, T. Gushi, K. Toko, T. Suemasu, *J. Cryst. Growth*, **455**, 66, (2016).
- 3) D. Gölden, E. Hildebrandt, L. Alff, *J. Magn. Magn. Mater.*, **422**, 407, (2017).

Fig. 2 (a) Out-of-plane and (b) in-plane XRD patterns of Fe<sub>4</sub>N film formed on MgO(001) substrate at 400 °C. N<sub>2</sub> partial pressure ratio is 5% (Fig.1 (a-3)).

Fig. 3 Magnetization curves measured for films consisting of (a)  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N (Fig.1 (a-3)) and (b)  $\alpha$ -Fe (Fig.1 (c-3)) single crystals.

# 電解めっき法により作製した Co-Ni 合金膜の構造と磁気特性

明田俊祐<sup>1</sup>・中村優太<sup>1</sup>・近藤輝<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>2</sup>・稲葉信幸<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国大, <sup>2</sup>東京藝大, <sup>3</sup>山形大)

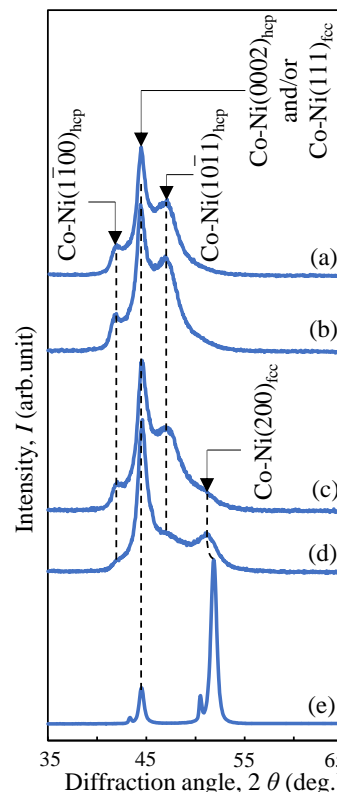
Structural and Magnetic Properties of Co-Ni Alloy Films Prepared by Electroplating

Shunsuke Aketa<sup>1</sup>, Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Hikaru Kondo<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>,  
Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>2</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>3</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>3</sup>Yamagata Univ.)

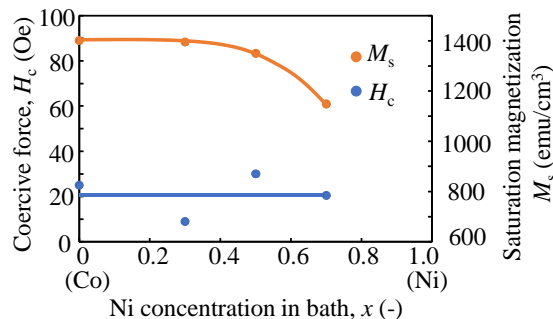
**はじめに** 軟磁性薄膜は、磁気センサや電磁シールドなどの幅広い分野で活用されており、用途によりマイクロメートル・オーダーの膜厚が要求される。厚膜形成には、めっき法が有効である<sup>1,2)</sup>。しかしながら、代表的な磁性元素である Fe は耐薬品性が低く、めっき浴中に含まれる酸や塩基と反応しやすい。そのため、めっき法により Fe 基合金の膜を形成することは容易ではない。一方、同じく磁性元素の Co や Ni は比較的安定性が高く、Co-Ni 合金膜の結晶構造を fcc に制御することができれば、軟磁性特性を得ることができる。本研究では、電解めっき法により Co-Ni 合金膜の形成を試み、構造と磁気特性を調べた。

**実験方法** 膜形成には揺動機構を備えた電気めっき装置を使用した。陽極には純度 99.98% の Ni 板を使用し、陰極には銅基板を使用した。また、浴温度を 50 °C、pH を 2.2、陰極電流密度を 0.95 A/cm<sup>2</sup> とした。浴構成試薬には、Co, Ni イオンの供給源としてそれぞれ硫酸コバルト (CoSO<sub>4</sub>・7H<sub>2</sub>O)、硫酸ニッケル (NiSO<sub>4</sub>・6H<sub>2</sub>O)、pH 緩衝剤としてクエン酸 (C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>・H<sub>2</sub>O)、陽極溶解促進剤として塩化ナトリウム (NaCl)、応力緩和剤としてサッカリンナトリウム (C<sub>7</sub>H<sub>4</sub>NNaO<sub>3</sub>S・2H<sub>2</sub>O) を用いた。Co と Ni イオンの合計の濃度を 0.20 mol/L とし、これらのイオンの比率を変えることにより膜組成を変化させた。構造評価には XRD を、磁気特性評価には VSM を使用した。

**実験結果** Fig. 1 にめっき浴の Co と Ni イオンの濃度比  $x$  を変化させた際の膜の XRD パターンを示す。Co リッチ組成の膜では、hcp(1100), (0002), (1011) 反射が現れていることから、hcp 相が形成されており、Ni リッチ組成では、fcc(111), (200) 反射を確認することができることから、fcc 相が得られていることがわかる。Fig. 2 に  $x$  と  $M_s$ ,  $H_c$  の関係を示す。 $x=0$  では、 $M_s=1400$  emu/cm<sup>3</sup> となり、バルクの Co の値に近い値になった。また  $x=0.5$  付近までは  $M_s$  が緩やかに減少し、 $x=0.5$  を超えると大きく減少している。このことは、浴組成と膜組成が異なっていることを示唆している。 $H_c$  は Ni イオンの割合との相関的な関係は顕著には現れなかった。



**Fig. 1** XRD patterns of Co-Ni thick films grown in Plating bath; (a)  $x=0$  (b)  $x=0.3$ , (c)  $x=0.5$ , (d)  $x=0.7$ , (e)  $x=1.0$



**Fig. 2** Coercive force,  $H_c$  and Saturation magnetization,  $M_s$  vs Ni concentration in bath,  $x$

- 1) T. Yanai, K. Koda, J. Kaji, H. Aramaki, K. Eguchi, K. Takashima, and H. Fukunaga: *AIP Adv.*, **8**, 056127 (2018).
- 2) A. Nakamura, M. Takai, K. Hayashi, and T. Osaka: *J. Surf. Finish. Soc. Jpn.*, **47**, 934 (1996).

# Fe-Ga-C 薄膜における 構造と静的・動的磁気特性の C 組成依存

村松省吾、宮崎孝道、遠藤恭

(東北大学)

Dependence of structure and static and dynamic magnetic properties of Fe-Ga-C thin films on C composition

Shogo Muramatsu, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo

(Tohoku Univ.)

## はじめに

巨大な飽和磁歪を有する Fe-Ga 合金薄膜は高速かつ小型な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている。我々はこれまでに Fe-Ga 多結晶薄膜における静的・動的磁気特性の Ga 組成による変化を検討し、それらの保磁力とダンピング定数が高くなることを報告した<sup>(1)</sup>。この結果は Fe-Ga 多結晶薄膜を高周波磁気デバイスへ応用するためには、それらの磁気特性を改善する必要があることを示している。そこで本研究では、Fe-Ga 膜の軟磁性化および高周波磁気特性の改善を目指して、C を添加した Fe-Ga-C 薄膜を作製し、C 組成の異なる Fe-Ga-C 薄膜の構造と静的・動的磁気特性について検討・議論する。

## 実験方法

50 nm 厚の  $(\text{Fe}_{0.75}\text{Ga}_{0.25})_{100-x}\text{C}_x$  ( $x=3.7-15.5$ ) をガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリングを用いて製膜した。作製した試料の組成に関しては飽和磁化値から算定した。表面形状については AFM を、結晶構造については XRD および TEM を用いて評価した。また、静的・動的磁気特性については VSM、光てこ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 FMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

## 実験結果

Fe-Ga-C 薄膜における容易軸方向の保磁力 ( $H_c$ ) およびダンピング定数 ( $\alpha$ ) の C 組成依存性を図 1 示す。 $H_c$  に関しては C 組成 7.5 at.% を除いて、C 組成の増加にともない減少する傾向であった。これらの値は先行研究で見られた Fe-Ga-C 膜 (10–30 Oe)<sup>(2)</sup> に比べて少し高い値となった。この違いは製膜方法の違いに由来すると考えられる。また、これらの値は C 組成が 8 at.% 以上の領域において、Fe-Ga 多結晶膜 (50 Oe)<sup>(1)</sup> に比べて低い値となった。 $\alpha$  に関しては C 組成の増加にともない 0.02 から 0.01 まで減少したのち、8 at.% 以上の C 組成領域では 0.01 程度でほとんど一定となった。これらの値は、C 組成の高い領域において Fe-Ga 多結晶膜 (0.04)<sup>(3)</sup> と比べて 4 分の 1 程度と低く、高周波磁気特性を著しく改善できたことを提案している。8 at.% 以上の C 組成領域では他の軟磁性材料と同等の値となることがわかった。

以上の結果は Fe-Ga 合金への C の添加により Fe-Ga 多結晶膜の軟磁気特性および高周波磁気特性を改善できることを表している。

**謝辞** 本研究の一部は、JSPS 科研費 JP17H03226 の助成と、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター (CIES)、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター (CSIS)、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター (CSRN) 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ました。

**参考文献** (1) 川辺泰之ら, T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), **3**, 34-38 (2019). (2) Xianfen Liang et al, IEEE MAGNETIC Lett. **10**, 5500705 (2019). (3) Daniel B. Gopman et al., IEEE TRANSACTIONS, VOL. 53, NO.11, (2017).

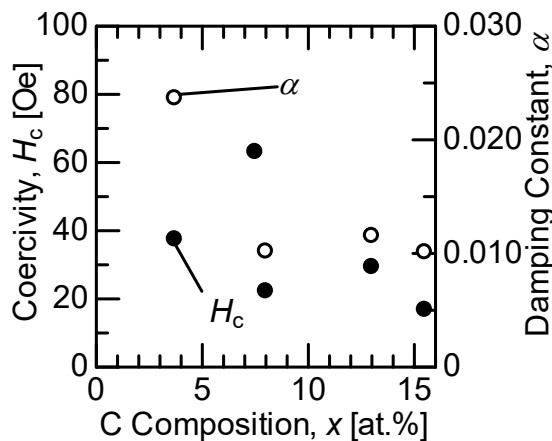


Fig.1 Dependence of coercivity and damping constant on the C composition for the Fe-Ga-C thin films

## Co 組成の異なる Co-Fe-B 薄膜における 静的・動的磁気特性に関する研究

田中治憲, 宮崎孝道, 栢修一郎\*, 遠藤恭 (東北大学, \*東北学院大学)

Study on Static and Dynamic Magnetic Properties of Co-Fe-B Thin Film with Various Co Compositions

H. Tanaka, T. Miyazaki, S. Hashi\*, Y. Endo (Tohoku Univ., \*Tohoku Gakuin Univ.)

### はじめに

STT-MRAM, スピンロジック素子, スピン MEMS センサなどの新規スピントロニクスデバイスの創製に向けて, これらのデバイスを構成する Co-Fe-B 薄膜の静的・動的磁気特性に関する研究が盛んに行われている. なかでも, 飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) とダンピング定数 ( $\alpha$ ) は, デバイス創製に直結する主要な磁気パラメータの一つであり,  $\lambda_s$  と  $\alpha$  を詳細に理解する必要がある. 従来の研究では, Co-Fe-B 薄膜における  $\lambda_s$  と  $\alpha$  の B 組成による変化<sup>1)</sup>などについて報告されている. 一方で, これらのパラメータの相関の有無について報告された例はない. 本研究では, Co 組成の異なる Co-Fe-B 薄膜における静的・動的磁気特性について詳細に検討を行い,  $\lambda_s$  と  $\alpha$  の性質および相関について議論する.

### 実験方法

5, 10, 30 nm 厚の  $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$  (Co-Fe-B) 薄膜を, 145  $\mu\text{m}$  のガラス基板上に RF スパッタ装置を用いて作製した. 作製した Co-Fe-B 薄膜の Co 組成 ( $x$ ) は, 0 ~ 80 at.% と変化させた. 作製した薄膜の構造は, XRD および AFM を用いて評価した. また, 静的・動的磁気特性は VSM, 光てこ法による高感度薄膜磁歪測定装置および VNA と伝送線路からなるブロードバンド FMR 測定法を用いて評価した.

### 結果および考察

図 1 は膜厚の異なる Co-Fe-B 薄膜における飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) の Co 組成依存性である. いずれの膜厚においても,  $\lambda_s$  は Co 組成の増加にともないいったん増加しその後単調に減少した. これらの結果は, バルクにおける  $\lambda_s$  の Co 組成に対する変化<sup>2)</sup>と類似している. また, いずれの膜厚および Co 組成においても,  $\lambda_s$  値はバルク値に比べておおむね高くなった. この原因は, 製膜時に膜と基板の間に応力が誘起されたことによるものと考えられる. 面内有効ダンピング定数 ( $\alpha_{//}$ ) は, いずれの膜厚においても, Co 組成 ( $x$ ) の増加にともない, Co 組成リッチ側で増加する傾向が見られた (図 2). これらの傾向は, 異方性分散等の磁気的不均一性に由来するものと考えられる. また,  $\lambda_s$  と  $\alpha_{//}$  の相関に関しては, 膜厚により異なっていて, その原因は現在検討中である. 以上の結果より,  $\lambda_s$  と  $\alpha_{//}$  は膜厚によらず Co 組成に大きく依存することがわかった.

### 謝辞

本研究の一部は, 科研費基盤研究 (B) (No. 17H03226) の補助と, 東北大学 CSRN, 東北大学 CSIS, 東北大学 CIES および ASRC の支援のもので行われた.

参考文献 1) C. L. Platt et al., IEEE Trans. Magn. 37, 2302 (2001)., 2) R. C. O'Handley, PRB 18, 930 (1978).

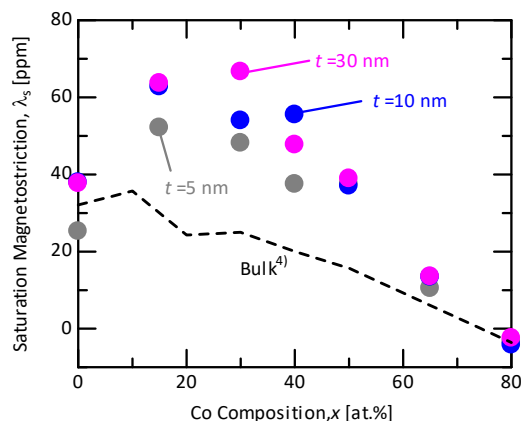


FIG. 1. Relationship between  $\lambda_s$  vs  $x$  for various thick  $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$  thin films.

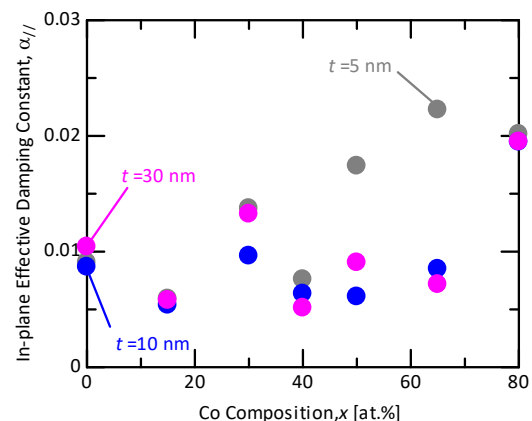


FIG. 2. Change in  $\alpha_{//}$  of various thick  $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$  thin films with Co compositions ( $x$ ).