

# MgO(001)基板上の W-Cr/Fe/MgO 積層膜の垂直磁気異方性

吉田優成<sup>1</sup>, 大島大輝<sup>1</sup>, 吉川大貴<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>, 加藤剛志<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>名古屋大学, <sup>2</sup>日本大学)

Perpendicular magnetic anisotropy of W-Cr/Fe/MgO trilayer films grown on MgO(001)

Y. Yoshida<sup>1</sup>, D. Oshima<sup>1</sup>, H. Yoshikawa<sup>2</sup>, A. Tsukamoto<sup>2</sup>, T. Kato<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Nagoya Univ., <sup>2</sup>Nihon Univ.)

## はじめに

スピン軌道トルク(SOT)磁化反転は、磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)において、高速かつ高効率な磁化反転技術として注目されている<sup>1)</sup>。SOT磁化反転応用に向けた課題は反転電流密度の低減であるが、その手法の一つとして、重金属層にスピンホール角の大きい材料を用いることが挙げられる。近年、TaやPtなどの重金属に3d遷移金属を混ぜることでスピンホール角が増大するという報告がなされている<sup>2)</sup>。そこで我々はスピンホール角の大きいWにCrを混ぜたW-Crに注目し、W-Cr/Fe/MgO積層膜を作製している。これまで、Cr/Fe/MgO積層膜において大きな垂直磁気異方性<sup>3)</sup>、大きな異方性の電界効果<sup>4)</sup>が報告されている。しかし、W-Cr/Fe/MgO積層膜の磁気異方性に関する報告はない。そこで、本研究ではMgO(001)基板上に(001)配向のW-Cr/Fe/MgO積層膜を作製し、真空中で熱処理を行い、その磁気特性を調べた。

## 実験方法

RFマグネトロンスパッタリング装置を用いて、MgO(001) sub/W<sub>x</sub>Cr<sub>100-x</sub>(10 nm)/Fe( $t_{Fe}$  nm)/MgO(10 nm)を成膜した。W-Cr薄膜はCrチップをのせたW複合ターゲットを用いて成膜し、 $x = 18, 44, 100$ の3種類のサンプルを作製した。 $t_{Fe}$ は0.4~1.2 nmの範囲で変化させた。成膜後、真空中で300°C~500°Cで1時間熱処理を行った。W-Crの組成推定及び結晶構造の解析にはX線回折法(XRD)を用いた。磁化曲線の測定には、交番磁界勾配型磁力計(AGM)を用い、一部試料は超伝導量子干渉振動試料型磁力計(SQUID-VSM)を用いて測定した。また、積層膜の実効垂直磁気異方性定数 $K_{eff}$ は、磁化曲線より算出した実効異方性磁界 $H_{keff}$ と飽和磁化 $M_s$ を用いて算出した。

## 実験結果

図1は $t_{Fe} = 0.6$  nmのW-Cr/Fe/MgO積層膜における $K_{eff}$ の熱処理温度依存性を示したものである。W/Fe/MgO積層膜では $K_{eff} \sim -1$  MJ/m<sup>3</sup>程度の負の値を示しているが、W-Cr/Fe/MgO積層膜では300~450°Cの熱処理によって垂直磁化膜が得られた。 $K_{eff}$ の最大値は1.53 MJ/m<sup>3</sup>であり、Cr/Fe/MgO積層膜と同程度となった<sup>3)</sup>。図2はW<sub>44</sub>Cr<sub>56</sub>/Fe/MgO積層膜の $K_{eff}$   $t_{Fe}$ のFe層厚依存性を示したものである。図2から求めた界面垂直磁気異方性定数 $K_i$ は2.35 mJ/m<sup>2</sup>であり、こちらもCr/Fe/MgO積層膜と同程度となった<sup>3)</sup>。講演では、W-Crのスピンホール角についても報告する。

## 参考文献

- 1) Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 096602 (2012).
- 2) B. Coester *et al.*, J. Magn. Magn. Mat. **523**, 167545 (2021).
- 3) J. W. Koo *et al.*, Phys. Lett. **103**, 192401 (2013).
- 4) T. Nozaki *et al.*, Phys. Rev. Appl. **5**, 044006 (2016).

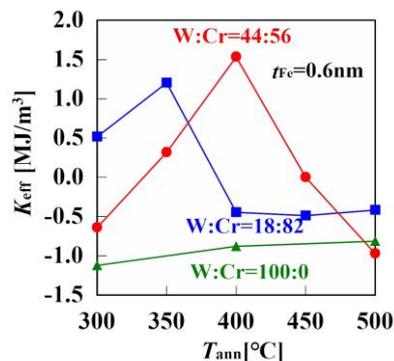


Fig. 1 Annealing temperature dependence of effective perpendicular anisotropy constant of W<sub>x</sub>Cr<sub>100-x</sub>/Fe(0.6nm)/MgO trilayer films with  $x = 18, 44, 100$ .

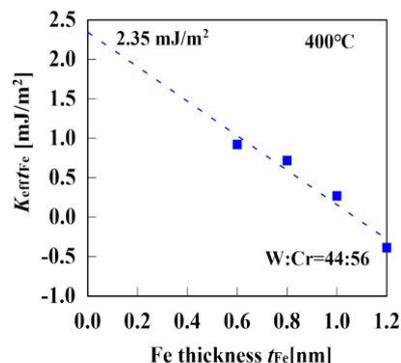


Fig. 2 Fe thickness dependence of  $K_{eff} t_{Fe}$  of W<sub>44</sub>Cr<sub>56</sub>/Fe/MgO trilayer films annealed at 400°C.

## Fe-Al/Cr-Al/Fe-Al 多層膜における垂直磁気異方性の発現

南 雄大<sup>1</sup>, 豊木研太郎<sup>1,2,3</sup>, 白土 優<sup>1,2,3</sup>, 中谷亮一<sup>1,2,3</sup>

(1 大阪大学大学院工学研究科, 2 大阪大学先導的学際研究機構, 3 大阪大学 CSRN)

Appearance of perpendicular magnetic anisotropy in Fe-Al/Cr-Al/Fe-Al multilayer

T.Minami, K.Toyoki, Y. Shiratsuchi, R.Nakatani

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2OTRI, Osaka Univ., 3CSRN Osaka Univ.)

### 緒言

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)の記録層・参照層には、垂直磁気異方性材料が主に用いられている。今後、省電力性や動作速度に優れる MRAM は、その需要が拡大することが予想され、希少金属を撤廃した垂直磁気異方性材料の開発が求められる。そこで、我々は研究例の少ない、合金系を用いた金属人工格子多層膜に関して研究することとした。その中で着目したのは、Cr は薄膜化した際に磁気モーメントの向きが垂直方向となるという報告である[1]。ただし Fe などの強磁性体との積層では、反磁場が高く磁化容易方向は面内方向となる。そこで、Fe と Cr に Al を添加して Fe-Al, Cr-Al とした時、磁気モーメントがそれぞれ減少および増加するという報告から[2][3], Fe-Al/Cr-Al 積層膜を作製することで垂直磁気異方性が実現できるのではないかと考えた。本研究では Fe-Al/Cr-Al/Fe-Al 多層膜を作製し、特に Cr-Al 膜厚の垂直磁気異方性への影響について検討した。

### 実験方法

分子線エピタキシー法(MBE)を用いて、Al(2 nm)/Fe-Al(5 nm)/Cr-Al(0.6, 1.2, 2.0, 2.5, 3.0 nm)/Fe-Al(3 nm)/MgO(001)薄膜を作製した。Fe-Al 層の組成は B2 規則度低下によってのみ強磁性が発現する  $\text{Fe}_{0.6}\text{Al}_{0.4}$  とし、Cr-Al 層の組成は Al 添加によって上昇する磁気モーメントがおおよそ飽和する  $\text{Cr}_{0.8}\text{Al}_{0.2}$  とした[2]。MgO 基板は水和物除去のため、製膜前に大気中にて 1273 K で 3 時間アニールした後に真空槽へ導入した。更に真空槽内で加速電圧 0.5 kV の Ar イオンミリングを 10 分間、1273 K のアニールを 1 時間行い、基板表面を平滑化した。製膜温度は 573 K とし、Al キャップ層のみ 373 K 以下とした。構造評価と組成評価にはそれぞれ X 線回折法と波長分散型蛍光 X 線分析法を用いた。飽和磁化および磁気異方性エネルギーの評価には振動試料型磁力計を用いた。これらの測定はすべて室温で行った。

### 実験結果

すべての  $\text{Cr}_{0.8}\text{Al}_{0.2}$  膜厚において、面直方向が磁化容易方向であり、垂直磁気異方性を有していることが確認できた。面直方向磁場の磁化曲線と面内方向磁場の磁化曲線から磁気異方性エネルギーを算出した。Fig.1 に Cr-Al 膜厚ごとに磁気異方性エネルギーをプロットした図と、Cr-Al 膜厚 3 nm における磁化曲線を示す。磁気異方性エネルギーには、Cr-Al 膜厚に対する依存性は存在しないことが確認できる。このことからこの試料の垂直磁気異方性は Cr-Al の体積分率に影響されておらず、界面効果に由来している可能性があると言える。

### 参考文献

- 1) P. Bödeker, *et al.*, Phys. Rev. B, 59, 9408(1999).
- 2) A. Kallel, and F.D. Bergevin, Solid State Commun., 5, 955(1967)
- 3) E.P. Yelsukov, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater., 115, 271(1992)

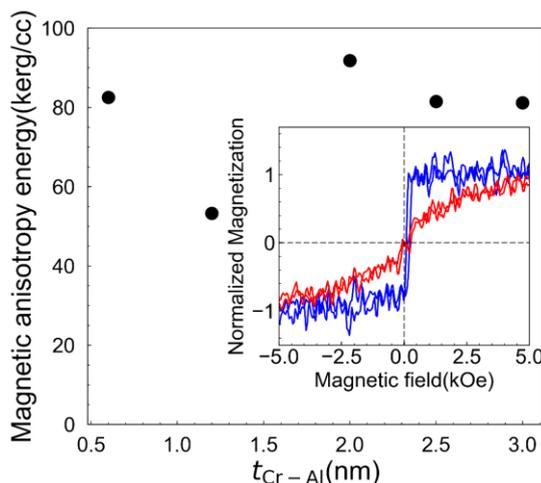


Fig.1 Magnetic anisotropy energy of  $\text{Fe}_{0.6}\text{Al}_{0.4}/\text{Cr}_{0.8}\text{Al}_{0.2}/\text{Fe}_{0.6}\text{Al}_{0.4}$  stacking film as function of the thickness of  $\text{Cr}_{0.8}\text{Al}_{0.2}$  layer. Inset shows magnetization curve for out-of-plane and in-plane directional magnetic field of stacking film whose thickness of  $\text{Cr}_{0.8}\text{Al}_{0.2}$  layer is 3 nm.

# 高角形比を有する CoPt/Pt 多層垂直磁化膜の電析法による作製

荒木大輝<sup>1</sup>、岡林潤<sup>2</sup>、高橋有紀子<sup>3,1</sup>、本間敬之<sup>1,4</sup>、園部義明<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>早大先進理工、<sup>2</sup>東大理、<sup>3</sup>物質・材料研究機構、<sup>4</sup>早大ナノライフ)

Fabrication of CoPt/Pt multilayered films with perpendicular magnetic anisotropy and high squareness ratio by electrodeposition

Daiki Araki<sup>1</sup>, Jun Okabayashi<sup>2</sup>, Yukiko Takahashi<sup>3,1</sup>, Takayuki Homma<sup>1,4</sup>, and Yoshiaki Sonobe<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Waseda Univ., <sup>2</sup>Univ. of Tokyo, <sup>3</sup>NIMS, <sup>4</sup>Res. Org. for Nano & Life Innovation of Waseda Univ.)

## はじめに

MRAM に応用される高角形比を有する垂直磁化膜は、主にスパッタ法を用いて 1 nm 以下の Co 層と Pt 層を積層して作製されている。電析法による多層垂直磁化膜の作製も報告されているが<sup>1)</sup>、磁化曲線における磁化容易軸方向の角形比は最大でも 0.7 程度であった<sup>1)</sup>。本研究では、浴中の金属種濃度を低下させ拡散を制御し、析出サイトにおける沿面成長を促進させることにより、高角形比を有する CoPt/Pt 多層膜の電析法による作製を試みた。

## 実験方法

Table.1 に本検討で用いた電析条件を示す。基板にはスパッタ法で作製した Pt(111)配向基板を使用した。今回は浴中の金属種濃度を低下させ拡散を制御し沿面成長させる検討を行った。参照電極には Ag/AgCl 電極を用い、室温にて電流制御によるパルス電析を行った。作製した多層膜の磁気特性は振動試料型磁力計を用いて評価した。

## 実験結果

Fig.1 に [CoPt/Pt]<sub>10</sub> 多層膜作製時の電流および電位の経時変化を示す。-0.10 mA で 10 sec 電析した際の電位は、初回を除き -800 mV にまで卑な方向にシフトした。-0.02 mA で 100 sec 電析した際の電位は開始時より貴な方向にシフトし、4 回目以降は -550 mV 程度となった。今回用いた電析浴系では Pt は -500 mV より卑な電位から、Co は -700 mV より卑な電位から析出することがサイクリックボルタメトリーから確認された。よって -0.10 mA 電析時は Co と Pt が共に析出し、-0.02 mA 電析時には Pt が析出したと考えられる。

Fig. 2 に作製した電析積層膜の磁化曲線を示す。同図より膜面に対して垂直方向が容易軸であり、垂直方向の保磁力  $H_c$  は 1.1 kOe、異方性磁界  $H_k$  は約 8 kOe、角形比は 1 であることが示された。また飽和磁化  $M_s$  は膜厚を 20 nm とすると  $230 \text{ emu} \cdot \text{cm}^{-3}$  と計算された。浴中の金属種濃度を低下させ拡散を制御し、析出サイトにおける沿面成長を促進させることにより、角形比が 1 である垂直磁気異方性を有する多層膜を電析法で作製可能であることを明らかにした。

## 謝辞

本研究の一部は CREST(No.JR-MJCR21C1)の支援により実施された。

## 参考文献

- 1) K. Kudo, K. Kobayashi, and Y. Sato, *Electrochim. Acta*, **47**, 335-357 (2001)

Table.1 Electrodeposition conditions

Working electrode	Pt(15 nm)/Ta(5 nm)/SiO <sub>2</sub> /Si	
Counter electrode	Pt mesh	
Reference electrode	Ag/AgCl	
Temperature	25°C	
Bath composition	CoSO <sub>4</sub>	1 mM
	H <sub>2</sub> PtCl <sub>6</sub>	0.1 mM
Current	CoPt layer	-0.10 mA
	Pt layer	-0.02 mA

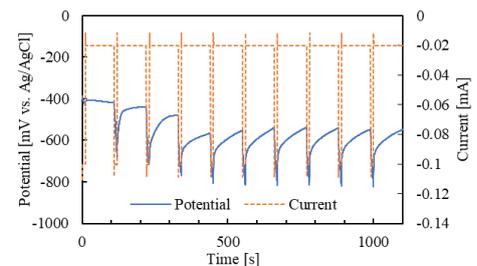


Fig.1 Profiles of potential and applied current during electrodeposition.

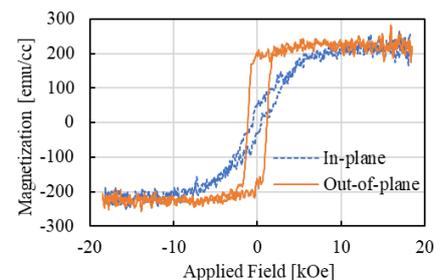


Fig.2 Magnetization curves for the electrodeposited CoPt/Pt film.

# 128° Y-cut LiNbO<sub>3</sub> 基板にスパッタ成膜した Co 薄膜の 面内一軸磁気異方性の基板加熱温度依存性

鹿野早希<sup>1</sup>, 小野頌太<sup>2</sup>, 山口明啓<sup>3</sup>, 嶋睦宏<sup>1</sup>, 山田啓介<sup>1</sup>  
(岐阜大院自<sup>1</sup>, 東北大<sup>2</sup>, 兵庫県大<sup>3</sup>)

Substrate heating temperature dependence of in-plane uniaxial magnetic anisotropy of Co thin films  
deposited on 128° Y-cut LiNbO<sub>3</sub> substrates

S. Shikano<sup>1</sup>, S. Ono<sup>2</sup>, A. Yamaguchi<sup>3</sup>, M. Shima<sup>1</sup>, and K. Yamada<sup>1</sup>  
(Gifu Univ.<sup>1</sup>, Tohoku Univ.<sup>2</sup>, Univ. of Hyogo<sup>3</sup>)

【緒言】近年、機械的ひずみを加えることで二次元材料の特性を変化させることを誘発し、電氣的または光学的な特性の変化をもたらす

「Straintronics (歪み電子工学)」の研究が盛んに行われている<sup>[1]</sup>。磁性材料において、このような機械的ひずみによる磁気特性の変化に関する研究の歴史は古く、「磁歪」としてよく知られている。以前の本研究室の報告において 128° Y-cut LiNbO<sub>3</sub> (LNO) 基板上に Ni, Fe 薄膜をスパッタ成膜すると、強磁性薄膜の面内方向に大きな面内一軸磁気異方性( $K_u$ )が誘起されることが確認された<sup>[2,3]</sup>。本研究では、結晶構造の異なるコバルトに注目し、LNO 基板上にスパッタ成膜した Co 薄膜の  $K_u$  を調べることを目的とした。初めに  $K_u$  の Co 膜厚依存性を調べ、次に基板加熱温度依存性を調べた。

【実験方法】マグネトロンスパッタリングを使用して、1 cm×1 cm の LNO 基板、Si 基板上に、ベース真空度  $4.5 \times 10^{-4}$  Pa、成膜速度  $2.0 \times 10^{-1}$  nm/s の条件下で Co 薄膜を成膜した。Co の膜厚( $t$ )は、2.1 nm~23.1 nm の膜厚の試料を作製した。基板加熱温度依存性の研究では、スパッタ時間を 37 秒で固定し、基板加熱温度( $T_h$ )は 100~300 °C の範囲とし、成膜を行った。VSM により磁気特性を調べ、XRD により結晶構造を評価した。

【結果と考察】図 1 に  $t=5.9$  nm, As depo.(~30 °C) の試料における磁化曲線の面内磁場の印加方向( $\chi$ )依存性を示した。LNO 基板上の(01.2)方向が容易軸となり、Co 薄膜の面内方向に異方性が誘起されていることが確認できた。図 2 は図 1 の磁化曲線の解析結果から求めた  $K_u$  の膜厚依存性について示した結果である。膜厚  $t=5.9$  nm のとき  $K_u$  が最大になった。その理由は、XRD 解析結果から、hcp-Co (112)面に高配向した Co 薄膜が成膜されたことが原因であることがわかった。第一原理計算結果より、hcp (112)面における Co 原子の並びが  $K_u$  の方向と関係していることがわかった。図 3 は、 $t=5.9$  nm における  $K_u$  の基板加熱温度依存性について示した結果である。 $T_h$  の増加に伴い  $K_u$  は減少した。XRD 解析結果から、 $T_h$  の増加によって LNO 基板上の(2-1.0)方向に配向した hcp (112) が形成されたことにより、 $K_u$  の効果が減少したことが明らかになった。

## 参考文献

- [1] W. Hou, et al., *Nat. Nano-technol.* **14**, 668-673 (2019).
- [2] M. Ito, et al., *Apply. Phys. Lett.* **119**, 152407 (2021).
- [3] M. Ito, et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **564**, 170177 (2022).

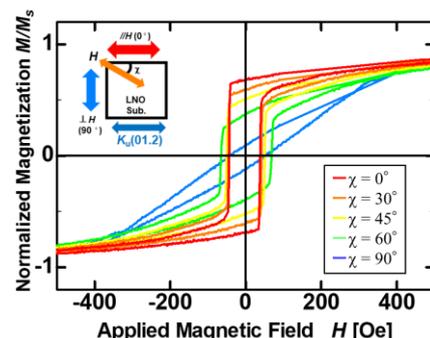


Fig. 1 Magnetic hysteresis loops of Co film on LNO at  $t = 5.9$  nm.

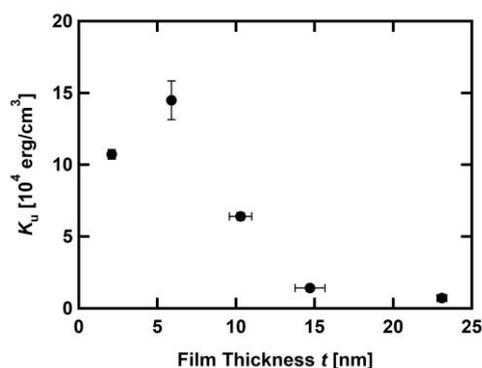


Fig. 2  $K_u$  as a function of  $t$ .

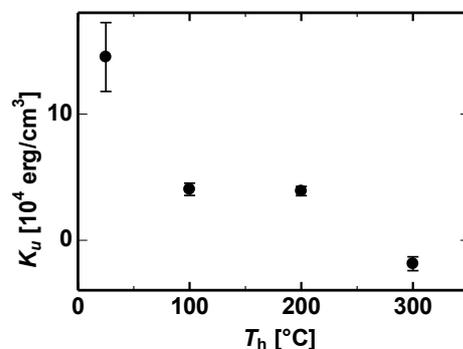


Fig. 3  $K_u$  as a function of  $T_h$ .

# $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> の結晶磁気異方性における局所歪みの効果に関する検討

小田 洋平<sup>1</sup>・佐久間 昭正<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup> 福島高専・<sup>2</sup> 東北大)

Investigation of local distortion effect on magnetocrystalline anisotropy in  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>

Y. Kota<sup>1</sup> and A. Sakuma<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>NIT Fukushima Col., <sup>2</sup>Tohoku Univ.)

## 1 はじめに

窒化鉄 Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> は N 添加による Fe の巨大磁気モーメントが実験的に観測されて以降、盛んに研究が行われてきた物質である。Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> の結晶構造については、立方晶の Fe [Fig. 1(a)] 内の Fe-Fe 間に N 原子が侵入すると立方晶が大域的には一軸方向に伸びて軸比  $c/a$  が約 1.1 の正方晶となり [Fig. 1(b)], さらに N の周囲の Fe が Fe-N の距離を保つために局所的に歪んだ構造 [Fig. 1(c)] になるが、これは  $\alpha''$  構造と呼ばれている。もともと  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> はソフト材料として着目されてきた物質であったが、 $\alpha''$  構造自体は正方晶であることに起因して一軸磁気異方性の発現が期待されることから、近年はハード材料としても注目を集めている。実際に第一原理計算によって  $K_u = 0.6 \text{ MJ/m}^3$  程度の結晶磁気異方性が得られることが報告されており<sup>1)</sup>、加えて希土類や貴金属元素を含んでいないことから、希少元素フリー磁石の候補の一つとして期待されている面もある。実験においては  $c/a$  が 1.1 となる正方晶試料を作製できても、期待される  $K_u$  が得られない場合もあり、結晶磁気異方性に対して他にも重要な因子があるものと考えられる。そこで本研究では、 $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> に内在する局所的な歪み (Fig. 1(b)→Fig. 1(c) における Fe の位置の変化) の効果に着目して理論的な検証を行った。

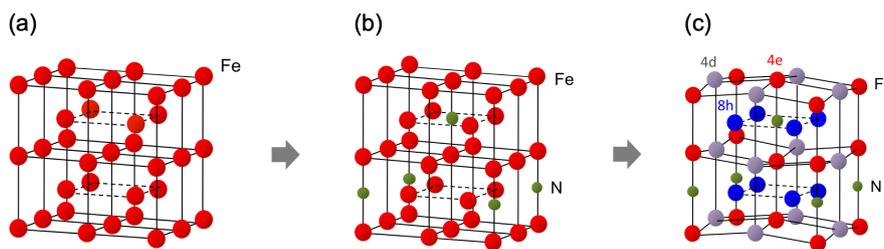


Fig. 1 Crystal structure of (a) cubic Fe, (b) tetragonal Fe + N, and (c)  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub>.

## 2 結果および考察

Figure 2 は VASP を用いた第一原理計算によって求めた  $\alpha''$ -Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> の  $K_u$  と 4e サイトの Fe のワイクフ位置  $z$  依存性である。  $c/a$  の値を 1.1 に固定して  $z$  を変化させており、 Fig. 1(b) の局所的な歪みのない構造は  $z = 0.25$ , Fig. 1(c) の局所的に歪んだ平衡状態はおおよそ  $z = 0.29$  に対応する。得られた計算結果は、大域的には  $c/a$  が 1.1 であっても局所的な歪みの有無により  $K_u$  の大きさが著しく異なることを示唆している。したがって、規則的な  $\alpha''$  構造から N の位置に乱れを含む  $\alpha'$  構造やマルテンサイトになると、局所的な歪みの効果が限定的となり  $K_u$  が小さくなっていくことが一つの可能性として考えられる<sup>2)</sup>。この可能性を確かめるために、N が入る位置を変化させた Fe<sub>16</sub>N<sub>2</sub> の  $K_u$  についても検討したので、その結果についても報告する予定である。

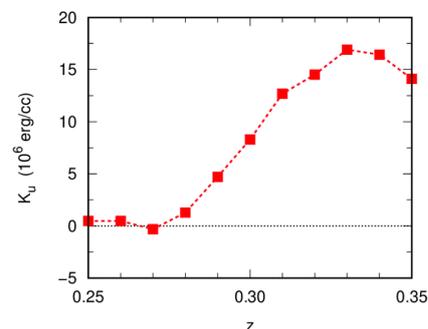


Fig. 2 Calculated  $K_u$  as a function of  $z$ .

## References

- 1) L. Ke *et al.*, Phys. Rev. B **88**, 024404 (2013).
- 2) A. Sakuma, J. Appl. Phys. **133**, 205102 (2023).