

Anisotropic magnetoresistance effect in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films grown by molecular beam epitaxy

Weida Yin¹, Keita Ito¹, Takahiro Tanaka¹, Rie Y. Umetsu¹
(IMR, Tohoku Univ.¹)

【Introduction】

Anisotropic magnetoresistance (AMR) is a phenomenon whereby the resistivity of a material changes in response to the direction of an external magnetic field (H_{ex}). AMR represents a significant magnetoresistance effect and finds wide-ranging applications in fields such as magnetic sensors and magnetic storage. Fe_4N is an interesting ferromagnetic material showing negative AMR and the anomalous $\cos^4\theta$ term (C_4) significantly increase at low temperature (T).¹⁻³ AMR of $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films with $x = 1$ and 3 have been reported, but the origin of C_4 is still unclear.⁴ In this study, $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films with smaller incremental changes in x were fabricated and their AMRs were measured.

【Experiments】

The epitaxial $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films were grown on $\text{MgAl}_2\text{O}_4(\text{MAO})(001)$ substrates at 450 °C by molecular beam epitaxy. Fe and Ni were supplied by electron beam gun and N was simultaneously supplied by radio-frequency plasma gun. The structures of the samples were characterized by reflection high-energy electron diffraction and x-ray diffraction. The Ni/Fe ratio, x , in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films was characterized by electron probe micro analyzer as $x = 0, 0.6, 1.2, 1.6,$ and 2.2. The samples were microfabricated into a Hall bar shape, and AMR were characterized by using a physical properties measurement system. The sample was rotated under a steady H_{ex} of 3 T as shown in Fig. 1, and AMR was measured by four-probe method while changing the relative angle between H_{ex} and the current under different T of 6, 75, 200, and 300 K for all the sample.

【Results】

The $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films were epitaxially grown on the MAO(001) substrates, but the uniform $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ phase was hard to form with the increase of Ni composition and started to decompose into FeNi at approximately $x = 2.2$. The relationship between T and AMR ratio (r_{AMR}) in the $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films with different x is shown in Fig. 2. In the sample with $x = 1.2, 1.6,$ and 2.2, the r_{AMR} value is positive at 300 K. In contrast, negative r_{AMR} is obtained at 300 K in the samples with $x = 0$ and 0.6. The absolute value of r_{AMR} gradually increased with the decreasing T and the sign of r_{AMR} of the samples with $x = 1.2, 1.6,$ and 2.2 became negative. Particularly in the Fe_4N film, the $|r_{\text{AMR}}|$ rapidly enhanced to 9.8% at 6 K, which is much larger than the reported $|r_{\text{AMR}}|$ for Fe_4N films grown on $\text{MgO}(001)$ and $\text{SrTiO}_3(001)$ substrates.¹⁻³ The negative spin-polarization of density of states at the Fermi level (P) in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ is reported.⁵ Considering a theoretical model reported in ref. 6, the combination of negative r_{AMR} and negative P obtained at low temperature region means that minority spin transport is dominant in the $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films with x of 0 to 2.2. T dependence of C_4 will be discussed in the presentation.

Reference

- 1) M. Tsunoda *et al.*, Appl. Phys. Express **3**, 113003 (2010).
- 2) K. Kabara *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063003 (2014).
- 3) K. Ito *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 068001 (2012).
- 4) F. Takata *et al.*, J. Appl. Phys. **121**, 023903 (2017).
- 5) F. Takata *et al.*, J. Appl. Phys. **120**, 083907 (2016).
- 6) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024705 (2012).



Fig. 1 A schematic geometry of the transverse AMR measurement. Fig. 2 Temperature dependance of AMR ratio of $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films.

Co 基ホイスラーバルク単結晶の結晶方位を考慮した 異方性磁気抵抗効果の温度依存性

田中貴大、窪田崇秀*、古門聡士**、梅津理恵
(東北大金研、*東北大工、**静岡大総科技研)

Temperature dependence of anisotropic magnetoresistance effect considering crystal orientation of Co-based
Heusler bulk-single crystals

T. Tanaka, T. Kubota*, S. Kokado**, R. Y. Umetsu

(IMR Tohoku Univ., *Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ., **Grad. Sch. Integ. Sci. Tech. Shizuoka Univ.)

はじめに

負の符号を示す異方性磁気抵抗効果(AMR)は、ハーフメタル型強磁性体(HMF)であることの必要条件とされ、簡易的に HMF の性質を評価する上で有用な手段であると理論的に示唆されている¹⁾。しかしながら、HMF となり得るホイスラー合金において結晶方位を考慮した AMR の報告例は限られており、ハーフメタル性と AMR の結晶方位依存性との関係を実験的に系統的に解明されることが望まれる。そこで、本研究では Co 基ホイスラー合金のうち高いキュリー温度を有する Co_2MnGe および Co_2FeSi のバルク単結晶試料を用いて、三次元的な結晶方位を考慮した AMR およびその温度依存性を報告する。

実験方法

バルク単結晶試料はブリッジマン法にて作製された。試料はラウエ回折パターンにより確認された特定の結晶方位([100]、[110]、または[111])に沿って短冊状に加工した。その試料を 3T の定常磁場下で回転させ、磁場と電流方向(結晶方位と平行)との相対角度を変化させながら四端子法にて 6 K から 300 K の温度範囲で測定を行った。AMR 比は $\text{AMR}_\theta = (\rho(\theta) - \rho_\perp) / \rho_\perp \times 100 (\%)$ と定義される。ここで $\rho(\theta)$ は磁場と電流方向との相対角 θ における観測された抵抗率を、 ρ_\perp は θ が 90 度の時の抵抗率を表す。

実験結果

Fig.1 に AMR 比の角度及び温度依存性の結果を示す。 Co_2MnGe では、[100]・[110]・[111]の全方位で負の AMR が観測された。温度が 6 K から 300 K まで変化しても符号は変わらず、AMR 比の絶対値もわずかに増加する程度であった。一方、 Co_2FeSi では、[110]・[111]では負の AMR が、[100]では 6 K において正の AMR が観測された。また温度上昇に伴い、AMR 比の絶対値が低下した。なお、[100]・[110]における AMR の符号の結果は、古門らが提案した結晶場効果を取り入れた s-d 散乱モデル²⁾との整合性が確認された。

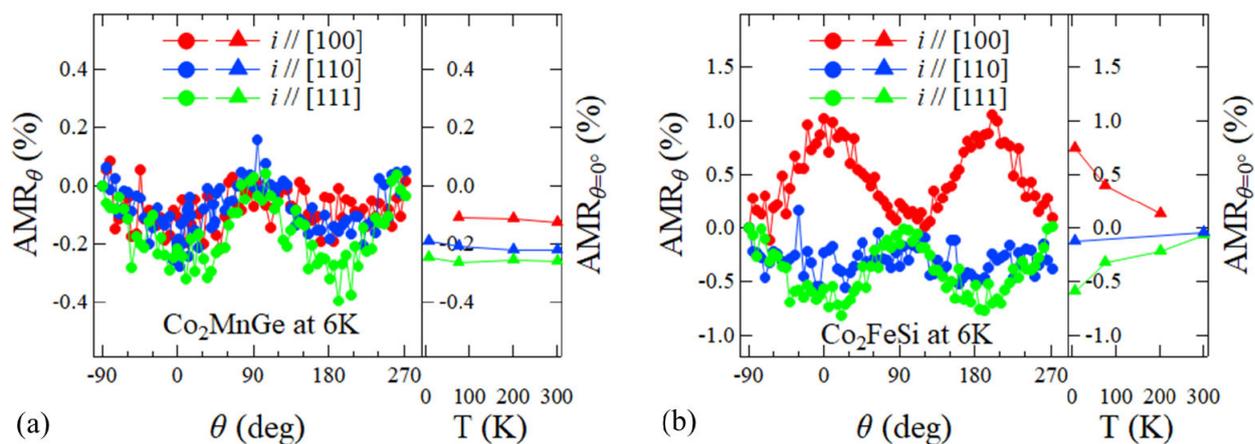


Fig.1 Angle and temperature dependence of AMR ratio of (a) Co_2MnGe and (b) Co_2FeSi .

参考文献

- 1) S. Kokado, M. Tsunoda, K. Harigaya and A. Sakuma: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 024705 (2012).
- 2) S. Kokado and M. Tsunoda: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **88**, 034706 (2019).

量子アニーリングによる不規則性トンネルバリア設計

名和 憲嗣^{1,2}, 鈴木 健司³, 増田 啓介², 田中 宗^{4,5}, 三浦 良雄^{2,6}

(三重大院工¹, 物材機構², TDK³, 慶大理工⁴, 慶大 WPI-Bio2Q⁵, 大阪大 CSRN⁶)

Quantum-annealing approach for designing cation-disordered spinels for magnetic tunnel junctions

K. Nawa^{1,2}, T. Suzuki³, K. Masuda², S. Tanaka^{4,5}, and Y. Miura^{2,6}

(Mie Univ.¹, NIMS², TDK³, Keio Univ.⁴, WPI-Bio2Q, Keio Univ.⁵, CSRN, Osaka Univ.⁶)

はじめに

第一原理計算と機械学習によるデータ駆動の材料開発、いわゆるマテリアルズ・インフォマティクス (MI) が急速に発展しており、材料を構成する元素種や組成比、規則性・不規則性などの様々な自由度を所望の物性に合わせて最適化するための手法開発が多く行われている。最近では、組合せ最適化問題に特化した量子アニーリング (QA) を用いた手法も提案され¹⁾、この手法がバイズ最適化 (BO) よりも優れた探索効率を示し得ることが、Li バッテリー材料を例に示された²⁾。本研究では、スピントロニクス材料に対する QA 法の有用性を検証すべく、磁気トンネル接合素子 (MTJ) の有望なバリア材料である逆スピネル MgGa₂O₄ (MGO) に注目し、全エネルギー (ΔE_{Total})、トンネル磁気抵抗比 (TMR) および素子抵抗 (RA) に対するカチオン不規則配列の最適化を試みた。

解析方法・結果

9 原子層の逆スピネル MGO を用いた Fe/MGO/Fe(001)-MTJ において、カチオンの Mg と Ga は八面体サイトを不規則に占有し、この不規則配列の組み合わせの数は 252 (= 10C₅) 通りとなる。この中からランダムに選んだ 20 構造に対して第一原理計算を行い ΔE_{Total} , TMR, RA の訓練データを作成し、機械学習の Factorization machine (FM) と量子アニーリングを組み合わせた FM+QA 法²⁾により、次候補のカチオン配列を予測した。予測された MTJ 構造の第一原理計算と FM+QA 法による予測を繰り返し、各物性に対して最適な MTJ 構造が得られるまでに必要な構造数を調べた³⁾。

Fig. 1(a)の通り、FM+QA 法は、 ΔE_{Total} と TMR を最適化するカチオン配列の探索には他手法 (FM+SA, BO, RS) より優れた効率を示したが、RA の最適化においては BO が最も優れた探索効率を示した。よって、FM+QA 法の優位性は目的とする物理量に依存する結果が得られた。カチオン配列の特徴を調べたところ、高 TMR (低 RA) を示す MTJ では Mg (Ga) が MGO 層の中央領域に集中して分布していた。第一原理計算の解析から、MGO 層の中央領域に Mg (Ga) が分布することでバリア高さが高く (低く) なり、これが高 TMR (低 RA) の起源であることが分かった [Fig. 1(b), (c)]。本研究は、TDK 株式会社、科研費 (JP20H02190, JP20K14782, JP21H01750, JP21K03391, JP22H04966, JP22K14290, JP23H05447, JP23H05447), JST (JPMJPF2221), WPI-Bio2Q の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) K. Kitai, *et al.*, Phys. Rev. Res. **2**, 013319 (2020).
- 2) K. Hatakeyama-Sato, *et al.*, Adv. Intell. Syst. **3**, 2000209 (2021).
- 3) K. Nawa, T. Suzuki, K. Masuda, S. Tanaka, Y. Miura (submitted).

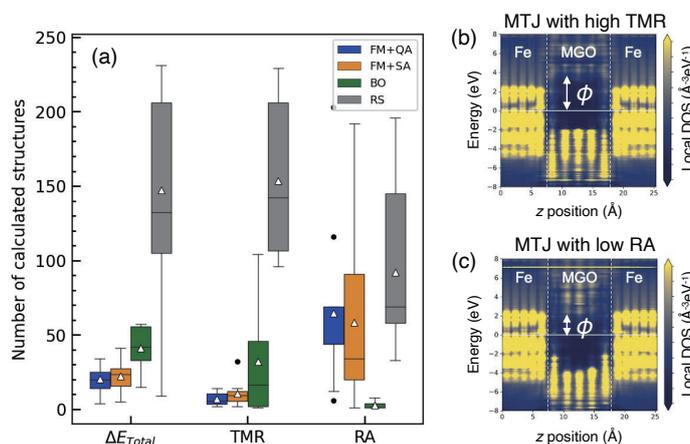


Fig. 1 (a) Searching efficiency for optimizing ΔE_{Total} , TMR, and RA with a comparison of FM+SA (simulated annealing), BO (Bayesian optimization), and RS (random search). (b) and (c) Local density of states projected on real-space MTJ structure showing the highest TMR and lowest RA.

垂直磁化の導電性コバルトフェライト電極を用いた 磁気トンネル接合素子のトンネル磁気抵抗効果

田中 雅章, 市川 知幸, 眞下 大輔, 森下 雅也, 小見山 遥*, 本多 周太**, 小野 輝男*, 壬生 攻
(名工大工, *京大化研, **関西大シス理)

Tunnel magnetoresistance effect of magnetic tunnel junctions
using perpendicularly magnetized conductive cobalt ferrite electrodes

M. A. Tanaka, T. Ichikawa, D. Mashimo, M. Morishita, H. Komiyama, S. Honda, T. Ono, and K. Mibu
(Nagoya Inst. Tech., *Kyoto Univ., ** Kansai Univ.)

はじめに

コバルトフェライト(CFO)は逆スピネル構造を持つフェリ磁性であり、面内方向の引っ張り歪みを受けた(001)配向のCFO薄膜は大きな垂直磁気異方性を示す[1-2]。我々はFeリッチのCFO薄膜を作製するときの作製条件を調整することで、 Fe^{2+} がほとんど存在しないため絶縁性を示すI-CFO (Insulative- $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_{4+\delta}$ ($0 < x < 1$))と Fe^{2+} と Fe^{3+} が存在することで導電性を示すC-CFO (Conductive- $\text{Co}_y\text{Fe}_{3-y}\text{O}_4$ ($0 < y < 1$))の垂直磁化膜を作り分けができることを報告した[3]。また、絶縁性のI-CFO薄膜のトンネル型スピフィルター効果を使って100 Kで-28%の効率を示すスピン注入を観測した[4]。本研究では、第一原理計算から少数スピンを持つ電子が伝導に支配的で高いスピン注入効率が期待できる導電性のC-CFOに注目し、垂直磁化を持つC-CFO薄膜を強磁性電極とする非磁性層バリアの磁気トンネル接合(MTJ)素子を作製し、このMTJ素子に対してトンネル磁気抵抗(TMR)効果の測定を行うことでC-CFO薄膜のスピン注入効率を評価した。

実験方法

パルスレーザー堆積法でMgO(001)基板上にバッファ層I-CFO(20 nm)、MTJ素子の下部強磁性電極C-CFO(20 nm)、非磁性トンネルバリア層MgO(2.5 nm)の順番で製膜した。その上に上部強磁性電極としてCo(1.0 nm)/{Tb(0.45 nm)/Co(0.65 nm)}₁₅/Co(2.0 nm)またはC-CFO(10 nm)/Pt(3.0 nm)の多層膜を作製し、それぞれMTJ-1とMTJ-2とした。X線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価を行い、SQUID磁束計を用いて磁化測定を行った。またフォトリソグラフィとArイオンミリングを用いて直径が数 μm のMTJ素子を作製したのち、膜面垂直方向に外部磁場を印加して磁気抵抗測定を行い、観測されたTMR効果からスピン注入効率を評価した。

実験結果

MgO(001)基板上ではバッファ層のI-CFOと下部強磁性電極層のC-CFOは(001)方向にエピタキシャル成長し、基板の影響を受けて面内方向の引張歪みが存在することがわかった。また、磁化測定からMTJ素子用の多層膜は下部・上部強磁性電極ともに垂直磁化を示し、C-CFO層は垂直磁気異方性が誘起されていることがわかった。磁気抵抗測定から、MTJ-1素子は100 Kにおいて上下の強磁性層の磁化が反平行状態で抵抗値が小さくなる-5%の負のTMR効果が観測された。一方でMTJ-2では100 Kにおいて上下の強磁性層の磁化が平行状態で抵抗値が小さくなる+6%の正のTMR効果が観測された。第一原理計算からC-CFOでは少数スピンを持つ電子が伝導に支配的でCoでは多数スピンを持つ電子が伝導に支配的なため、C-CFO層とCo層を用いたMTJ-1では負のTMR効果が観測され、上下の強磁性層にC-CFO層を用いたMTJ-2では正のTMR効果が観測されたと考えられる。以上のように、本研究ではC-CFO薄膜による垂直磁化方式のトンネル接合の作製に成功した。MTJ-2で観測されたTMR比からジュリエールの式で見積もられたC-CFO層のスピン注入効率は-3%であった。

参考文献

- [1] H. Yanagihara *et al.*, J. Appl. Phys. 109, 07D122 (2011). [2] J. Okabayashi *et al.*, Phys. Rev. B 105, 134416 (2022). [3] M. Morishita *et al.*, Phys. Rev. Mater. 7, 054402 (2023). [4] M. Tanaka *et al.*, Appl. Phys. Lett. 122, 042401 (2023).