

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 9 月 21 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630265

研究課題名(和文)高集積スピンドバイスに対応できるレアメタルフリーCr系金属反強磁性薄膜の開発

研究課題名(英文)Cr-based metal antiferromagnetic film applicable for high intergration spin devices

研究代表者

中谷 亮一(Nakatani, Ryoichi)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60314374

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：膜面垂直スピン系スピバルブ薄膜に適用可能な反強磁性合金薄膜に関する検討として、bcc構造をベースとするCr-Al合金薄膜に着目し、中でも高い磁気モーメント、高いネール温度が期待できるX相Cr₃Al(001)エピタキシャル薄膜の形成と、X相Cr₃Al(001)薄膜を用いた垂直交換磁気異方性の発現について検討した。主な結果として、(1) 成長温度を323 - 673Kにおいて、MgO(001)基板上にX相Cr₃Al(001)薄膜がエピタキシャル成長すること、(2) Au/Co/X相Cr₃Al積層膜において、垂直磁気異方性と共に垂直交換異方性が発現することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We investigated the Cr-based antiferromagnetic thin film which possesses the bcc-based crystal structure for the perpendicularly-magnetized spin valve film. In particular, we focused on the X-phase Cr₃Al(001) thin film which is expected to possess the high magnetic moment and the high Neel temperature. Main results are (1) X-phase Cr₃Al(001) epitaxial film grows on the MgO(001) substrate in the growth temperature range of 323 to 673 K and (2) the Au/Co/X-phase Cr₃Al stacked films exhibit both perpendicular magnetic anisotropy and perpendicular exchange anisotropy.

研究分野：磁性材料

キーワード：スピントロニクス 反強磁性 Cr

1. 研究開始当初の背景

スピナルブ薄膜は、スピントロニクスデバイスの代表的な例であり、ハードディスクドライブの読出しヘッド等に利用されている。スピナルブ薄膜では、反強磁性層/強磁性層1/非磁性層/強磁性層2を基本構成とし、強磁性層1と2のスピンの方向の違いをデジタル情報に対応させる。2つの強磁性層のスピンの相対的な方向を変化させるために、反強磁性層を用いて強磁性層1のスピンの方向が固定される。IT機器の低消費電力化には、スピナルブ薄膜のスピンの方向を膜面垂直方向とすることが必要とされ、これにともなって、反強磁性層のスピンの方向も膜面垂直方向とすることが必要とされている。しかしながら、従来用いられてきたMn系反強磁性体では、スピンの方向を膜面垂直方向に限定することが困難であり、このため、新しい反強磁性合金薄膜の開発が必要とされている。

2. 研究の目的

本研究では、従来のMn系反強磁性合金に代わる新しい反強磁性体として、Cr基反強磁性合金に着目し、特に、MgOベースのトンネル磁気接合との整合性の良いbccベースの結晶構造を有するCr-Al合金薄膜に着目した。中でも、最大の磁気モーメントを持ち、高いネール温度(>900K)を有するX相Cr₃Al合金をメインターゲットとして、

- (1) X相Cr₃Al(001)エピタキシャル薄膜の作製、
- (2) X相Cr₃Al(001)/強磁性層の積層構造における垂直交換磁気異方性の発現について検討した。

3. 研究の方法

試料作製には、分子線エピタキシー(Molecular Beam Epitaxy: MBE)法を用いた。使用した製膜装置(VG-80M)の到達真空度は、10⁻⁹Pa以下である。作製した試料の構成は、上述した2つの目的に対して、それぞれ、

- (1) Cr₃Al(50nm)/MgO(001)-subs.
- (2) Au(5.0nm)/Co(0.5nm)/Cr₃Al(20nm)/MgO(001)-subs.

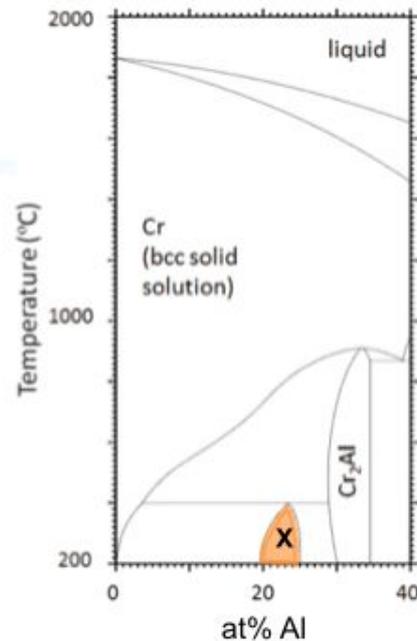
とした。Cr₃Al相の成長温度は、(1)の構成試料に対しては、X相の形成が期待される573Kを中心として、323K~873Kで変化させた。Cr₃Al合金薄膜のCr-Al組成は、CrおよびAlの成長速度により、図1に示したCr-Al系平衡状態図[J. Murray, J. Phase Equilib., vol. 19, pp. 367-375 (1998).]において、X相が形成されるAl濃度22-23at%となるように制御した。

作製した薄膜の構造評価は、反射高速電子線回折(Reflection high-energy electron diffraction: RHEED)、X線回折を用いて行った。RHEED観察は、薄膜作製過程でin situでの観察とした。XRD測定として、Cu Kα線を用いた2θ/θ測定ならびに、放射光を用いた2次元逆格子マッピングを行った。放射光を

用いたX線回折実験については、高エネルギー加速器研究機構 フォトンファクトリーBL-8Aにおいて行った。

磁気特性評価には、振動試料型磁力計(Vibrating sample magnetometer: VSM)、磁気光学 Kerr 効果(Magneto-optic Kerr effect: MOKE)測定を用いた。VSMによる磁化曲線測定は、室温で行い、磁場印加印可方向は膜面内方向および、膜面垂直方向とした。MOKE測定は、測定温度を80-310Kとし、磁場印加方向を膜面垂直方向とした極 Kerr 効果配置で行った。また、作製した薄膜には、反強磁性ドメインの再配列の促進を目的として、膜面垂直方向に3kOeの磁場を印加した状態で、573K、30分の磁場中熱処理を施した。

X相Cr₃Alは、電気抵抗の温度依存性に特徴を有するため、電気抵抗率の温度依存性も合わせて測定した。電気抵抗率の測定には、4端子法を用いた。電気抵抗率の絶対値を高精度に求めるために、作製下は薄膜をフォトリソグラフィ法とArイオンミリング法を用いて、Hallバー構造に微細加工した。



Cr-Al binary alloy.

図1 Cr-Al2元系状態図. [J. Murray, J. Phase Equilib., vol. 19, pp. 367-375 (1998).]

4. 研究成果

(1) X相Cr₃Alエピタキシャル薄膜の作製

図2に、成長温度を573Kとして作製したCr₃Al薄膜のRHEED像を示す。電子線の入射方向は、MgO基板の(a)[100]方向および(b)[110]方向である。観察されたRHEEDパターンは、MgO(001)基板の上にbcc表示でのCr₃Al(001)薄膜がエピタキシャル成長したものと説明でき、この結果は、MgO(001)基

板上で Cr(001) 薄膜がエピタキシャル成長した際に観察される RHEED 像と類似する。

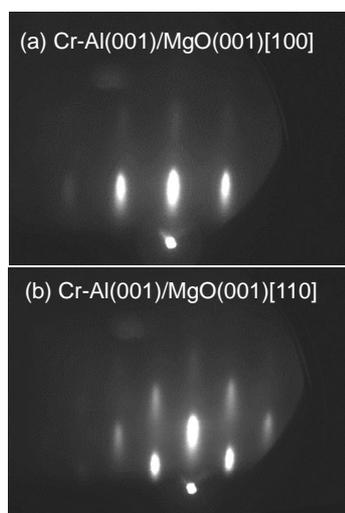


図 2 573 K で作製した Cr₃Al 合金薄膜の RHEED 像。

図 3 に、種々の温度で作製した Cr-Al 合金薄膜の XRD プロファイルを示す。MgO(001) に起因する回折ピークに加えて、bcc 基準での Cr₃Al(002) (X 相基準では、Cr₃Al(211)) に起因する回折ピークが観測され、極点測定においても RHEED 像と整合する結果が得られた。さらに、これまでの報告では、X 相 Cr₃Al は結晶子サイズが小さく、回折実験による検討が困難とされてきたが、放射光を用いた 2 次元逆格子マッピングにより、X 相 Cr₃Al に起因する明確な回折を観測しており、観察された回折パターンを用いて、薄膜が単結晶薄膜であることも確認している。また、放射光実験により得られた回折強度比を用いて規則度を算出した結果、約 0.67 となった。成長温度を 873 K とした場合、平衡状態図では、Cr₂Al 相と Cr-Al 固溶体の 2 相共存領域となることが予測されている。実際には、図 3 に示したように、873 K で作製した場合は、X 線回折プロファイルにおいて、C11_b 構造に

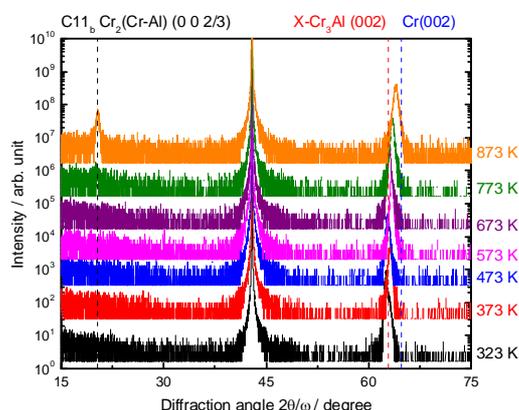


図 3 種々の成長温度で作製した Cr₃Al 合金薄膜の XRD プロファイル。

起因する回折ピークが観察された。この結果は、過去の報告とも一致する。

図 4 に、作製した Cr₃Al 薄膜の電気抵抗率の温度依存性を示す。一般的な金属において、フォノン散乱から予測される電気抵抗率の温度依存性と異なり、温度低下にともない電気抵抗率が上昇していることが分かる。これは、X 相への規則化にともなって、バンド構造に半金属的な擬ギャップが形成するためである。4.2 K における電気抵抗率は、1743 μΩ·cm であり、過去の報告と同じオーダーである。また、成長温度が上昇すると共に、電気抵抗の負の温度依存性は観測されず、873 K で作製した薄膜では、通常の金属と同様の電気抵抗の正の温度依存性が観測された。これは、図 3 に示した XRD 回折結果とも一致する。XRD 測定と電気抵抗率測定の結果、成長温度が 673 K 以下では、X 相 Cr₃Al(001) エピタキシャル薄膜が形成できることが明らかになった。

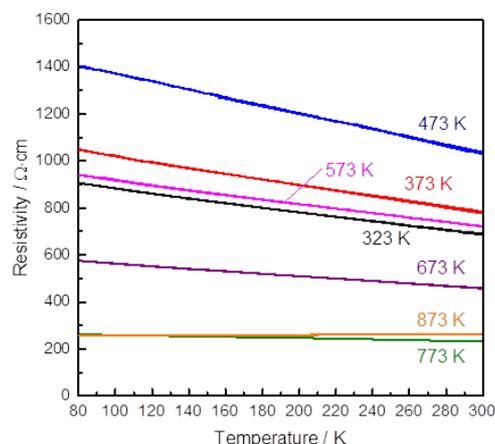


図 4 種々の成長温度で作製した Cr₃Al 薄膜の電気抵抗率の温度依存性。図中に示しあ通知は Cr₃Al 層の成長温度を表わす。

(2) Au/Co/X 相 Cr₃Al(001) エピタキシャル薄膜における垂直交換バイアス

図 5 に、20 nm 厚さの X 相 Cr₃Al(001) 層上に Au(5.0 nm)/Co(0.5 nm) 2 層膜を積層した薄膜の磁化曲線を示す。なお、Co は X 相 Cr₃Al(001) 表面上でエピタキシャル成長し、hcp-Co(1120) を形成していることを RHEED 像より確認している。図から、磁場印加方向を膜面垂直方向とした場合に、磁化が飽和しやすく、また、高い保磁力を示すことから、垂直磁気異方性が発現していることが分かる。室温での飽和磁化は、約 1450 emu/cc であり、Co のバルク値 (1400 emu/cc) とほぼ同等の値を示す。上述したように、本薄膜に対して、膜面垂直方向の 3 kOe の磁場中、573 K で磁場中熱処理を行っているにもかかわらず、室温では膜面内方向と膜面垂直方向のいずれの場合においても、交換バイアスは観測されない。このため、膜面垂直方向に磁場を印加した極 Kerr 効果測定での配置で、交換バイア

と保磁力の温度依存性について検討した。

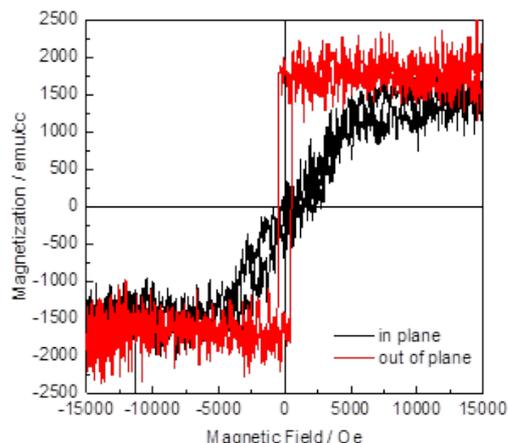


図5 Au/Co/Cr₃Al 積層膜の磁化曲線。磁場印可方向は、膜面垂直北方向（赤線）と膜面内方向（黒線）とした。

図6に、保磁力と交換バイアスの温度依存性を示す。温度低下にともない、200 K以下で垂直交換バイアスが発現し、また、さらに温度を低下させることで交換バイアス磁場が上昇していることが分かる。77 Kにおいて、約66 Oeの交換バイアスが観測された。実験値には、約14 Oeのエラーがあるが、これは、磁化曲線測定における磁場刻みに対応する。交換バイアスは、約200 Kまで観測されるが、それ以上の温度では消失しており、交換バイアス磁場に対するブロッキング温度の上昇が今後の課題となる。また、保磁力は室温において約500 Oeであったが、77 Kにおいては1200 Oeまで上昇しており、交換バイアス磁場の温度依存性と比較して、顕著な温度依存性を示す。このため、上記の交換バイアス磁場のブロッキング温度の上昇と共に、保磁力の低下も今後の課題となる。

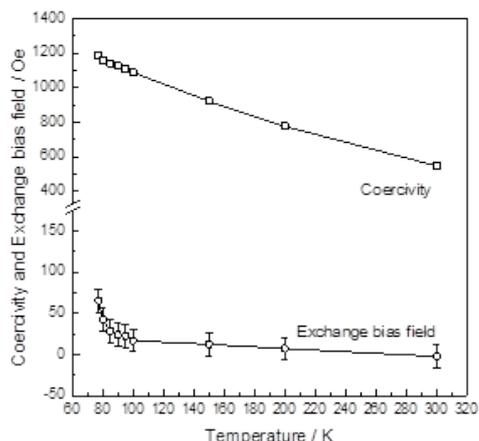


図6 Au/Co/Cr₃Al 積層膜における膜面垂直方向の保磁力と交換バイアス磁場の温度依存性。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

播本祥太郎, 白土 優, 中谷亮一, 反強磁性 X 相 Cr₃Al(001) 薄膜の作製と交換バイアスの発現, 伸学技報 (ICICE Technical Report), 査読無, Vol. 114, 2014, pp. 7-10.

〔学会発表〕(計 3 件)

播本祥太郎, 白土 優, 中谷亮一, 反強磁性 X 相 Cr₃Al(001) 薄膜の作製と交換バイアスの発現, 電気情報通信学会 MR 研究会 / 日本磁気学会第 60 回 ナノマグネティクス専門研究会, 柏崎, 新潟, 2014 年 10 月 2 日 ~ 3 日.

播本祥太郎, 西村隆志, 豊木研太郎, 白土 優, 中谷亮一, X 相 Cr₃Al(001) エピタキシャル薄膜の作製と Au/Co/X 相 Cr₃Al における垂直交換磁気異方性, 日本金属学会 2014 年春期 (第 154 回) 講演大会, 東京工業大学 (目黒区, 東京), 2014 年 3 月 21 日 ~ 24 日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中谷 亮一 (NAKATANI, Ryoichi)
大阪大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 60314371

(2) 研究分担者

白土 優 (SHIRATSUCHI, Yu)
大阪大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 70379121