

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14651

研究課題名(和文) シリコン基板上への軽元素侵入型垂直磁化膜の創製

研究課題名(英文) Fabrication of light element interstitial perpendicularly magnetized films on silicon substrates

研究代表者

伊藤 啓太 (Ito, Keita)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：70791763

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：希少元素を用いない新奇軽元素侵入型垂直磁化強磁性体金属薄膜の創製を目指した。CoxMn4-xN薄膜の作製と磁気特性の評価に取り組んだ結果、Co/Mn比により磁気異方性と飽和磁化の制御が可能で、x=0.8では垂直磁化膜となり、x=0.8付近では飽和磁化が0に近づくことが明らかとなった。X線磁気円二色性測定による評価の結果、Co原子は逆ペロブスカイト格子の角のサイトを優先的に占有し、角のMn原子とは逆向きスピンの磁気モーメントを有することが明らかとなった。これが、x=0.8付近での磁化補償の起源であり、スピントロニクス応用に適した材料と言える。シリコン基板上への展開は今後の課題となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、貴金属やレアアース等の希少元素を用いない新奇軽元素侵入型垂直磁化強磁性体金属薄膜の創製に成功した。CoxMn4-xNの格子定数は半導体産業で用いられているSi(001)基板の格子定数に近いことから、本成果は希少元素を含まない強磁性体を使用した高機能スピントロニクスデバイスの実現と、既存のLSI技術とスピントロニクス技術の融合への一歩とであり、産業的意義のある成果と考える。

研究成果の概要(英文)：Fabrication of a novel light element interstitial perpendicularly magnetized ferromagnetic metal films without rare elements are conducted. As a result of fabricating CoxMn4-xN films and evaluating the magnetic properties, the magnetic anisotropy and saturation magnetization can be controlled by the Co/Mn ratio. It becomes perpendicularly magnetized films at x=0.8 and a saturation magnetization near x=0.8 is almost zero. As a result of characterization by x-ray magnetic circular dichroism measurements, it is revealed that Co atoms preferentially occupy the corner sites of the anti-perovskite lattice and have spin magnetic moments opposite to those of the corner Mn atoms. This is the origin of the magnetization compensation near x=0.8, and it can be said that this material is suitable for spintronics applications. Deployment on silicon substrates has become a future issue.

研究分野：磁性材料

キーワード：垂直磁化膜 スピントロニクス 軽元素 分子線エピタキシー 第一原理計算

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

電子が有する電荷とスピンの双方を利用して新機能デバイスの創製を目指す、スピントロニクス研究が注目を集めている。すでに、トンネル磁気抵抗効果を利用したハードディスクの読み取りヘッド、次世代ユニバーサル不揮発性メモリの1つである磁気ランダムアクセスメモリーが製品化されている。しかし、既存の半導体素子の性能限界を凌駕する、次世代の高機能スピントロニクスデバイスの実現には、高いスピン分極率や垂直磁気異方性(PMA)を有する新奇強磁性体薄膜材料の提案とデバイス作製技術の革新が急務である。

前者の要望に対し、申請者はこれまでに新たなスピントロニクス応用材料として、ありふれた3d遷移金属元素とNから構成される軽元素侵入型強磁性窒化物(図1)に注目して、分子線エピタキシー(MBE)法によるエピタキシャル薄膜の成長と物性評価に取り組んできた。完全スピン分極伝導が理論予想されている Fe_4N 、薄膜でPMAを発現する Mn_4N 等、軽元素侵入型強磁性材料は高いスピン分極率や強いPMAの実現が期待できる優れた材料群である。また、どの材料もSi(001)との格子不整合率が小さく(<2%)、産業で用いられているSi(001)基板上へのエピタキシャル成長が見込める。これらの特長に加えて、各サイトを占める3d遷移金属元素と軽元素の組み合わせが多数存在することから、材料探索の余地が広く残されており、 Fe_4N や Mn_4N よりも優れた磁気特性を有する、ありふれた元素のみで構成される軽元素侵入型強磁性材料の発見が期待されている。

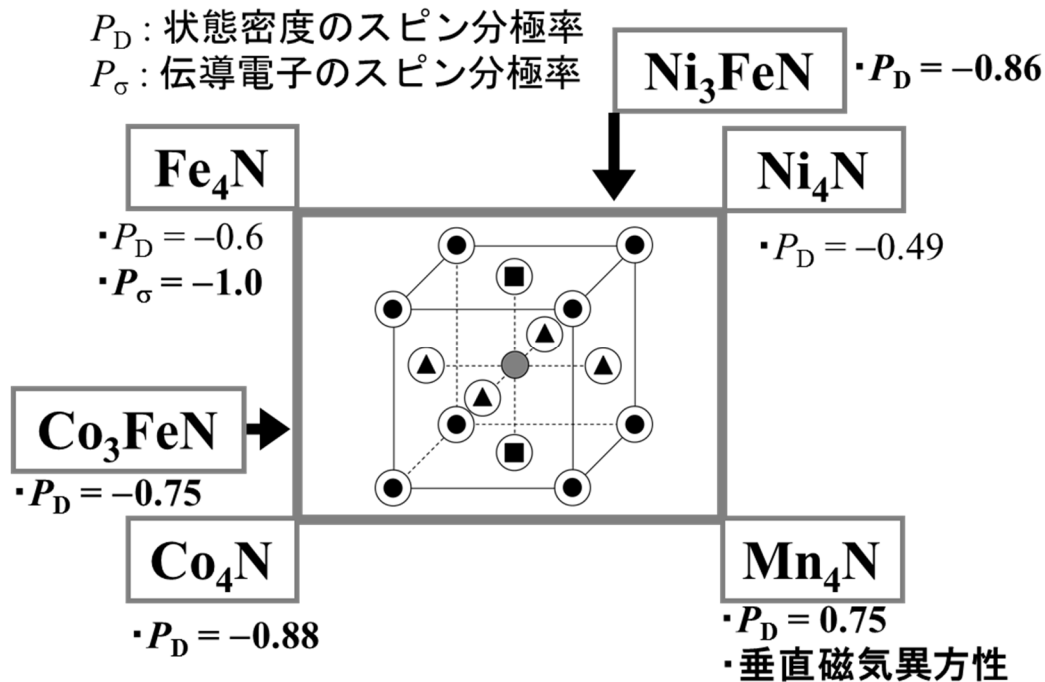


図1 軽元素侵入型強磁性窒化物の特長

2. 研究の目的

本研究では、理論計算および実験を組み合わせ、希少元素を用いない新奇軽元素侵入型垂直磁化強磁性体金属薄膜の創製を目指した。第一原理計算により、金属・合金材料に資源が豊富な窒素等の軽元素を侵入させた結晶モデルを仮定して電子構造および磁気構造を計算し、薄膜においてPMAの発現が予想される材料のスクリーニングを行った。計算によりPMAの発現が見込まれた材料の薄膜をMBE法で結晶成長し、成長条件を最適化した。まずは、格子不整合率が小さい $SrTiO_3$ (STO)(001)基板上への軽元素侵入型垂直磁化強磁性体金属薄膜のエピタキシャル成長の実現を目指し、最終的には、産業で広く用いられているSi(001)基板上へのエピタキシャル成長とPMAの実現を目指した。

3. 研究の方法

過去の実験報告例や本研究での第一原理計算の結果から、新奇軽元素侵入型垂直磁化強磁性体金属薄膜材料として有望と見込まれたフェリ磁性 $Co_xMn_{4-x}N$ 薄膜の作製と磁気特性の評価を行った。MBE法により、STO(001)基板上に膜厚10nm程度のCo/Mn比 x を変えた $Co_xMn_{4-x}N$ 薄膜($x = 0, 0.8, 1.1, 2.3, 2.8, 4.0$)を作製した。 $Co_xMn_{4-x}N$ 薄膜は、基板温度450°CでCo、Mn、高周波 N_2 プラズマの同時供給により成膜した。成膜後に、酸化防止用のAuキャップまたはAlキャップ層をMBE装置内で施した。CoとMnの供給レートを変えることにより x が異なる試料を作製し、ラザフォード後方散乱測定と電子線マイクロアナライザ測定を用いて x を評価した。試料の結晶性を、反射高速電子回折とX線回折(XRD)測定により評価した。磁化曲線は、超電導量子干渉磁束計を使用して測定した。-50~50 kOeの外部磁場(H)を試料の面内方向([100])または面直方向([001])に印加し、300 Kにて測定した。 $x = 0, 0.8, 4.0$ の試料についてはX線磁気円二色性

(XMCD)測定を行い、得られた実験スペクトルを理論計算により求められた理論スペクトルと比較した。加えて、磁化曲線から求めた M_S の x 依存性とも比較することで、 x に対する $\text{Co}_x\text{Mn}_{4-x}\text{N}$ の磁気構造の変化と格子中の $3d$ 遷移金属元素の優先占有サイトを考察した。また、 $\text{Si}(001)$ 基板上への $\text{Co}_x\text{Mn}_{4-x}\text{N}$ 薄膜の作製も試みた。

4. 研究成果

結晶性の評価の結果、 $\text{Co}_x\text{Mn}_{4-x}\text{N}$ 薄膜のエピタキシャル成長に成功した。図 2 に $x=0.8, 1.1, 2.3, 2.8$ における磁化曲線と M_S の x 依存性を示す。赤線および青線は、それぞれ膜面内および面直方向に外部磁場を印加した際の磁化曲線である。 $x \leq 0.8$ では PMA を示し、 x を変えることで広範囲で M_S の大きさを制御できた。 $x = 0.8$ 付近では M_S が 0 に近接したことから磁化補償が起きたと考えられる。図 3 に XMCD 測定と理論計算との比較から考察された、 $\text{Co}_x\text{Mn}_{4-x}\text{N}$ における $3d$ 遷移金属元素の配置と磁気構造を示す。赤、青、緑、黄色の矢印はスピン磁気モーメントの大きさと向き、黒色の矢印は M_S の大きさと向きを示している。Co 原子は格子の角のサイトを優先的に占有し、角のサイトの Mn 原子とは逆向きのスピン磁気モーメントを有することが明らかとなり、これが $x = 0.8$ 付近での磁化補償の起源と考えられる。

$x = 0.8$ については、PMA と磁化補償による小さな M_S の両立が実証されたことから、例えば電流駆動磁壁移動デバイス等のスピントロニクス応用に適した材料と言える。本研究によって、最近のスピントロニクス分野において着目されている PMA と磁化補償が、希少元素を用いない材料系において両立されたことは非常に有意義な結果と考える。 $\text{Si}(001)$ 基板上への $\text{Co}_x\text{Mn}_{4-x}\text{N}$ 薄膜の作製はシリサイドの形成が問題となり実現できなかったことから、今後の課題である。

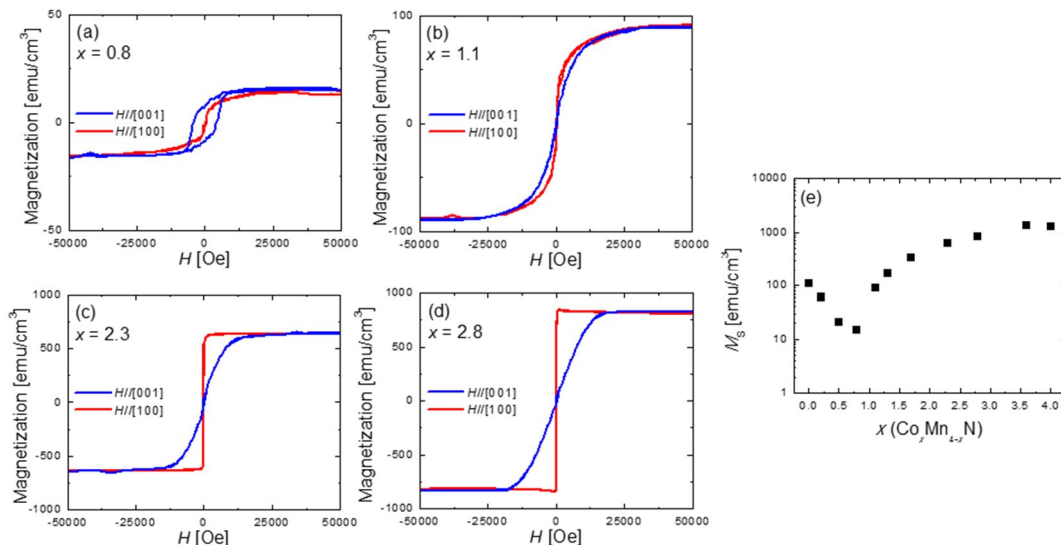


図 2 (a) $x=0.8$ 、(b) 1.1 、(c) 2.3 、(d) 2.8 における試料の磁化曲線と(e) M_S の x 依存性

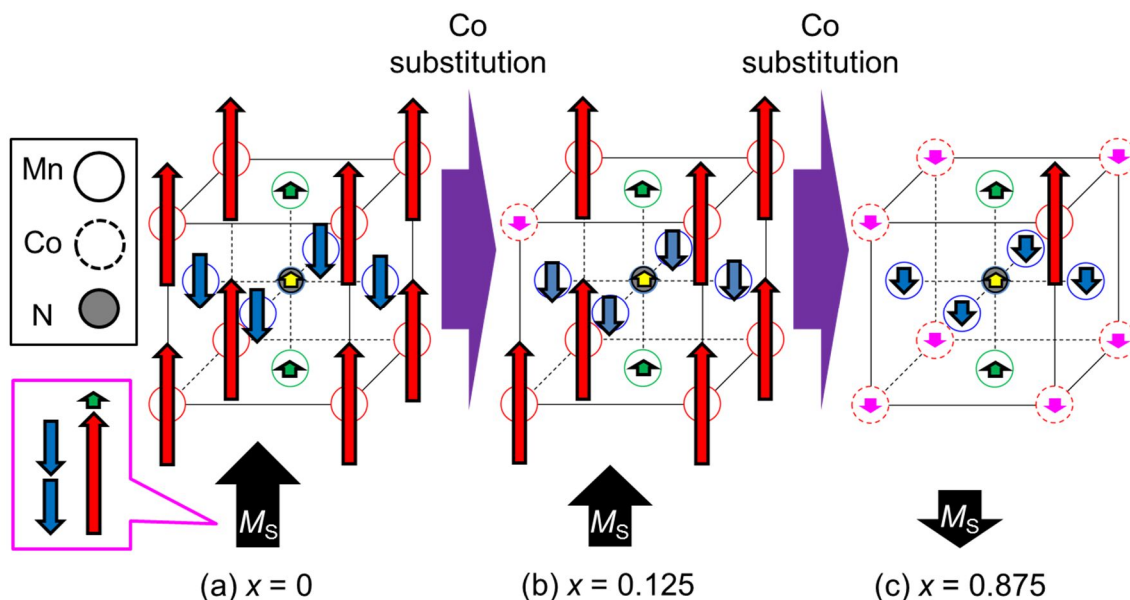


図 3 本研究から予想された(a) $x=0$ 、(b) 0.125 、(c) 0.875 における $3d$ 遷移元素の配置と磁気構造

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 F. Takata, K. Ito, Y. Takeda, Y. Saitoh, K. Takanashi, A. Kimura, T. Suemasu	4. 巻 2
2. 論文標題 Preferred site occupation of 3d atoms in NixFe4-xN (x=1 and 3) films revealed by x-ray absorption spectroscopy and magnetic circular dichroism	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 024407-1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.2.024407	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Ito, Y. Yasutomi, S. Zhu, M. Nurmatam, M. Tahara, K. Toko, R. Akiyama, Y. Takeda, Y. Saitoh, T. Oguchi, A. Kimura, T. Suemasu	4. 巻 101
2. 論文標題 Manipulation of saturation magnetization and perpendicular magnetic anisotropy in epitaxial CoxMn4-xN films with ferrimagnetic compensation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104401-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.104401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Pub lons https://publons.com/researcher/2297357/keita-ito/

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----