

令和 4 年 5 月 30 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15109

研究課題名(和文) C11b-Cr2Alに対する磁気転写によるNeelスピン軌道トルク評価法の確立

研究課題名(英文) Establishment of evaluation method for Neel spin orbit torque in C11b Cr2Al via magnetic transfer

研究代表者

豊木 研太郎 (Toyoki, Kentaro)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：90780007

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：反強磁性体のスタガード磁化はTHz領域で動作可能であり、次世代メモリへの応用が見込まれる。これを見据え、デバイス応用に必須となる、薄膜系におけるC11b Cr2Alの作製条件および、その磁気物性の検討を行った。その結果、高品質なC11b Cr2Al相の生成には873 K以上の温度、組成として27-33at.%-Alの範囲内が必要不可欠なことがわかった。また、一方で結晶の規則度のNeel温度への影響は小さいことがわかった。磁気抵抗効果測定を通じて、磁気異方性に関して検討を行った。その結果、C11b Cr2Al薄膜の磁気モーメントはc面内にある可能性が高いことがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

C11b Cr2Alの薄膜系における報告例は極めて少なく、これに関して詳細に検討した本研究の結果は十分に確立された反強磁性材料のライブラリに新たなメンバーを加えた点で学術的・社会的意義があると言える。特に、学術的側面而言えば、規則合金薄膜の系としても比較的大きな単位胞となるC11b構造の薄膜作製例として、その成長条件を明らかにしたことは大きいと考える。社会的には、応用の期待される反強磁性ベース次世代メモリの開発に向け材料の選択肢を増やした点で意義があると言える。

研究成果の概要(英文)：Staggered magnetization in antiferromagnetic materials has a possibility of the application to the next generation memory device with a THz operating frequency. In this perspective, the preparation condition and magnetic properties of C11b Cr2Al in thin film system were evaluated. As results, it was clarified that the formation temperature of C11b Cr2Al in thin film system was above 873 K. Added to that, the composition range with around 27-33at.%-Al provided the single phase C11b Cr-Al. The order parameter of C11b crystal was changed by the composition but did not affect to its Neel temperature much. Through the magnetoresistance measurement, the magnetic anisotropy of C11b Cr-Al was evaluated. As a result, it was indicated that the magnetic moment in C11b Cr-Al thin system possibly lie in the c-plane.

研究分野：磁性薄膜

キーワード：反強磁性 スピントロニクス 磁性薄膜 磁気抵抗効果

1. 研究開始当初の背景

反強磁性体は THz 領域の共鳴周波数を持ち、GHz 領域の共鳴周波数を持つ強磁性体に比べ、遙かに高い応答速度を持ちうる。したがって、反強磁性体をメモリなどへのデバイス応用を実現すれば、計算速度の向上が見込める。ただし、従来までは外場に対して鈍感な反強磁性体のデバイス応用は容易ではないと考えられてきた。しかし、近年では電気磁気効果[1]、Néel スピン軌道トルク[2]、スピン Hall 効果[3]と言った手段で、反強磁性体の磁気状態、すなわちスタガード磁化の操作が可能であることが示された。これにより、反強磁性体のデバイス応用への道が開かれたと言える。そのような背景から、反強磁性体材料のライブラリの拡張が求められている。

本研究では、この中で $\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ [4-6]に着目した。 $\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ は比較的資源リスクの低い元素で構成されるというデバイス応用の観点での利点を持つ。また、比較的軽元素で構成されていることから、磁化反転における粘性項となる Gilbert ダンピング定数も低く、高速動作に適していることが期待される。加えて、Néel 温度も 620 K 以上と比較的高く、デバイス応用上の耐熱性に関しても十分である[4, 5]。一方で、 $\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ は、デバイス応用上必須とも言える薄膜における作製例は少ない。また、その磁気異方性[4, 5]や状態図[6]に関しても複数報告例があるなど、不明な点も多い。

2. 研究の目的

以上のように、 $\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ はデバイス応用上の利点を持つ一方で、未だ不明な点の多い材料であると言える。そこで本研究では、スタガード磁化を用いた反強磁性ベース磁気記憶素子への応用を目指し、以下の点に取り組んだ。

(1) 薄膜作製条件の検討

$\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ 相の薄膜における作製例は決して多いとは言えない状況にある。さらに、言えばそこで、薄膜における $\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ 相の最適な製膜条件を明らかにすることを目的とした。このため、主として製膜時の最適な基板温度、および C11_b 相の形成される Cr-Al 組成範囲、さらに形成された C11_b 相の電気・磁気特性に関して明らかにすることを目的とした。

(2) 磁気異方性の検討

$\text{C11}_b\text{Cr}_2\text{Al}$ の磁気モーメントの向きに関しては 2 件の報告例があり確定的ではない。また、薄膜とした場合、磁気モーメントの向きがバルクと異なる可能性もある。そこで、薄膜系において磁気モーメントの向きを明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 試料作製および結晶性評価方法

試料作製には分子線エピタキシー(Molecular beam epitaxy: MBE)法を用いた。基板としては、 $\text{MgO}(001)$ 単結晶を用いた。設計膜厚は 50 nm とした。Cr, Al の蒸着源温度を制御することで、Cr, Al 組成比を変化させた。作製した $\text{Cr}_{1-x}\text{Al}_x$ 薄膜の組成は波長分散型蛍光 X 線分析(Wavelength dispersive fluorescence X-ray spectroscopy: WDS)法を用いた。作製した薄膜の構成相の分析および基板に対するエピタキシャル方位関係、 C11_b 相の規則度は、X 線回折(X-ray diffraction: XRD)によって決定した。

(2) $\text{Cr}_{1-x}\text{Al}_x$ 薄膜の電気および磁気特性評価

作製した $\text{Cr}_{1-x}\text{Al}_x$ 薄膜の電気特性評価および、それを通じた磁気特性評価を正確に行うために、フォトリソグラフィ法およびアルゴンイオンリング法を用いて、微細加工を施した。その後、Hall 係数および四端子法による電気抵抗率の温度依存性に関して評価した。電気抵抗率の温度依存性から、Néel 温度を見積もった。また、磁気抵抗比と磁場方位の関係から、 $\text{Cr}_{1-x}\text{Al}_x$ 薄膜の異方性軸に関して評価した。

4. 研究成果

(1) $\text{Cr}_{1-x}\text{Al}_x$ 薄膜の製膜温度と構成相

図 1 に $\text{Cr}_{1-x}\text{Al}_x$ 薄膜の組成を $x \sim 0.47$ とし、製膜時基板温度を変化させた場合の XRD プロファイルを示す。回折ベクトルは $\text{MgO}(001)$ に対して垂直とした。

製膜温度を 573 K 以下とした場合、 C11_b 相の 002 回折に対応する 20° 付近のピークが見られない。対して、 60.5° 付近には明瞭なピークが見られる。これは BCC 相由来のものであると考えられる。

873 K 以上では $60\sim 65^\circ$ 付近に見られるピークが 2 つに分離する。また、 20° 付近のピークに関してもわずかだが分離が見られる。これは高角側、低角側がそれぞれ C11_b 相、 Cr_5Al_8 相に対応すると考えられる。したがって、873 K 以上では、 C11_b 相と Cr_5Al_8 相の複相となっていると言える。

C11_b 相と Cr_5Al_8 相はいずれも 20° 付近にピーク

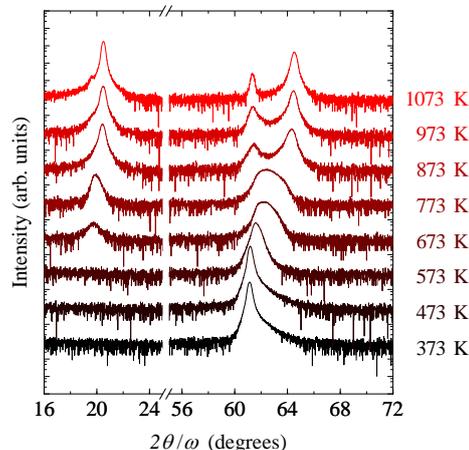


図 1. 種々の製膜温度に対する $\text{Cr}_{0.53}\text{Al}_{0.47}$ 薄膜の XRD プロファイル。

を持つ。したがって、製膜温度 673, 773 K において、 $C11_b$ 相と Cr_5Al_8 相のいずれが存在しているかは、図 1 に示した結果だけでは判別し難い。そこで、面内 XRD を測定した結果、 Cr_5Al_8 相にのみ現れる回折ピークが観測された。したがって、673-773 K の範囲内では Cr_5Al_8 相が存在すると考えられる。

以上より、製膜温度 573 K 以下では BCC 単相、673-773 K の範囲内では BCC 相と Cr_5Al_8 相の複相、873-1073 K 以上では $C11_b$ 相と Cr_5Al_8 相の複相となることがわかった。したがって、本研究で着目する $C11_b$ 相の形成には少なくとも 873 K 以上の製膜温度を要すると言える。

(2) $Cr_{1-x}Al_x$ 薄膜の製膜温度と電気特性

設計組成を Cr_3Al とした Cr-Al 薄膜の製膜温度と電気抵抗率および電気抵抗率の温度係数の関係を調べた。その結果、この組成領域では負の電気抵抗率の温度係数を持つことがわかった。また、製膜温度を 473 K とした場合、電気抵抗率およびその温度係数の絶対値は最大となった。製膜温度が高くなり、 $C11_b$ 相が形成されるとともに電気抵抗率は低下することもわかった。これは、先行研究[7]と一致する結果である。すなわち、 Cr_3Al 組成で形成される BCC もしくは X 相と呼ばれる Cr-Al 合金は半金属となる。

この半金属となった Cr-Al 合金の詳細な特性を検討するために、Hall 効果測定および Seebeck 効果測定を行った。その結果、半金属 Cr_3Al の支配的キャリアは低温では電子であり、高温では正孔となることがわかった。また、半金属 Cr_3Al における正孔キャリアはそれぞれ比較的軽い有効質量を持つこともわかった。

(3) $Cr_{1-x}Al_x$ 薄膜の組成と結晶性および Néel 温度

XRD の回折角度および、回折強度の理論計算との比較によって、 $C11_b$ 相の結晶性を評価した。

具体的には、格子定数と、 Cr, Al 原子配置の規則度と Cr サイトの原子位置に関して検討した。その結果、 $C11_b$ 相は Cr_2Al の化学量論組成から Cr リッチ側となると、規則度が低下することがわかった。すなわち、Al サイトを Cr が置換するだけでなく、Cr サイト Al の増加も伴うことが示唆された。また、規則度の低下に伴って、正方晶ひずみが緩和され、BCC に近づくことがわかった。

図 2 に $Cr_{1-x}Al_x$ 薄膜の Néel 温度の組成依存性を文献値とともに示す。 $x = 0.29$ 以上の Al リッチ領域においては、過去の文献値と概ね一致する結果となった。一方で、Cr リッチ領域では過去の文献に比べ、低い Néel 温度となった。これは、 $x = 0.2$ 程度の組成領域では過去の文献では BCC 相が形成されていたことによると考えられる。

$x = 0.21$ の組成の Cr-Al 薄膜に対する XRD 解析では、 $C11_b$ 相は $x=0.27$ に比べて、遥かに規則度が低かった。それにも関わらず、両者を比較すると Néel 温度がほとんど変わらないという結果となった。したがって、 $C11_b$ 相の Néel 温度は、規則度にほとんど依存しないということが明らかになった。

(4) $C11_b$ Cr-Al 薄膜の異方性

$C11_b$ Cr-Al 薄膜に対して、磁気抵抗比の磁場方位依存性を評価した。この際には、 $x=0.29, 0.31$ の試料を用いた。

磁気抵抗比の磁場依存性から、 $C11_b$ Cr-Al 薄膜の磁気抵抗効果は正常磁気抵抗効果の寄与が大きく、磁気モーメントの方位に由来した異常磁気抵抗効果の寄与が小さいことがわかった。具体的には、20 kOe の磁場下における異常磁気抵抗効果の寄与は、正常磁気抵抗効果のおよそ 1/3 程度であった。

以上に述べたように、 $C11_b$ Cr-Al における異常磁気抵抗効果の寄与は小さい。加えて、磁気抵抗比の絶対値に関しても数 ppm と小さい値であった。したがって、異方性軸の評価に際しては、精密な測定および解析が必要となることがわかった。そこで、本研究では、磁気抵抗比の磁場方位依存性を Fourier 変換することで詳細に検討を行った。その結果、 $C11_b$ Cr-Al の磁気異方性が c 面に無い場合観測されるであろう、4 回対称成分は観測されなかった。これは、磁気異方性が c 面内にあるという参考文献[5]を支持する結果である。このことより、 $C11_b$ Cr-Al 薄膜の磁気異方性は c 面内にあると考えられる。

<参考文献>

[1] X. He *et al.*, Nat. Mater., **9**, 579 (2010), [2] P. Wadley *et al.*, Science, **351**, 587 (2016), [3] T. Moriyama *et al.*, Sci. Rep., **8**, 14167 (2018), [4] M. Atoji, J. Chem. Phys., **43**, 222 (1965), [5] M. A. Susner *et al.*, J. Magn. Magn. Mater., **392**, 68 (2015), [6] F. J. A. den Broeder *et al.*, Phys. Stat. Sol. (a), **67**, 233 (1981), [7] Z. Boekelheide *et al.*, Phys. Rev. B, **85**, 094413 (2012). [8] W. Köster and K. Grube, Z. Metallkund., **54**, 393 (1963), [9] A. Kallel and F. de Bergevin, Solid Stat. Commun., **5**, 955 (1967)

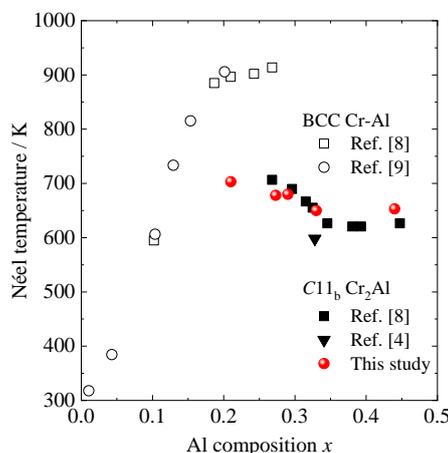


図 2. $Cr_{1-x}Al_x$ 薄膜の Néel 温度の組成依存性。赤点は本研究の結果、白点および黒点はそれぞれ BCC 相および $C11_b$ 相における文献値である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Toyoki Kentaro, Hayashi Masayuki, Hamaguchi Shunsuke, Kishida Noriaki, Shiratsuchi Yu, Ishibe Takafumi, Nakamura Yoshiaki, Nakatani Ryoichi	4. 巻 620
2. 論文標題 Dominant carrier of pseudo-gap antiferromagnet Cr3Al thin film	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physica B: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 413281 ~ 413281
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.physb.2021.413281	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3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 濱口 峻祐, 豊木 研太郎, 白土 優, 中谷 亮一
2. 発表標題 C11b構造を有するCr2Al(001)薄膜の作製
3. 学会等名 第44回 日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 豊木研太郎、濱口峻祐、佐藤歩美、種田利空、白土優、中谷亮一
2. 発表標題 高規則度C11b-Cr2Al薄膜の作製とNeel温度の決定
3. 学会等名 日本金属学会2020年春期（第166回）講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 豊木研太郎、濱口峻祐、白土優、中谷亮一
2. 発表標題 C11b Cr2Al 薄膜の結晶構造評価およびNeel 温度の決定
3. 学会等名 第45回 日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------