## Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N エピタキシャル薄膜の飽和磁化と垂直磁気異方性の評価

Saturation magnetization and perpendicular magnetic anisotropy in epitaxial Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N films <sup>o</sup>伊藤啓太<sup>1,2,3</sup>, 安富陽子<sup>1</sup>, 鹿原和樹<sup>2</sup>, 具志俊希<sup>1</sup>, 東小薗創真<sup>1</sup>, 都甲薫<sup>1</sup>, 角田匡清<sup>2</sup>, 末益崇<sup>1</sup> (1.筑波大 数理物質, 2.東北大 工, 3.日本学術振興会)

<sup>o</sup>K. Ito<sup>1,2,3</sup>, Y. Yasutomi<sup>1</sup>, K. Kabara<sup>2</sup>, T. Gushi<sup>1</sup>, S. Higashikozono<sup>1</sup>, K. Toko<sup>1</sup>, M. Tsunoda<sup>2</sup>, and T. Suemasu<sup>1</sup> (1.Inst. of Appl. Phys., Univ. of Tsukuba, 2.Dept. of Electron. Eng., Tohuku Univ., 3.JSPS) E-mail: bk200511420@s.bk.tsukuba.ac.jp

【背景】我々は、新たなスピントロニクス応用材料として、逆ペロブスカイト型強磁性金属窒化物に注目している。Mn<sub>4</sub>N はフェリ磁性を示し、MgO(001)や SrTiO<sub>3</sub>(STO)(001)基板上に作製した薄膜では、垂直磁気異方性(PMA)が報告されている<sup>1-3)</sup>。これまでに、Co<sub>x</sub>Fe<sub>4-x</sub>N等の様々な逆ペロブスカイト窒化物混晶について、理論および実験の双方からの材料探索と物性評価が行われてきたが、Mn<sub>4</sub>N の Mn の一部を Co で置換した Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N については、*x*を変えたエピタキシャル薄膜の作製、磁気特性の評価、理論計算による物性予想が充分に行われていない。本研究では、Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N 薄膜をエピタキシャル成長し、その基本的な磁気物性の解明を目的とした。

【実験】固体 Co、Mn、高周波プラズマ N の同時供給による分子線エピタキシー法により、STO(001) 基板上に厚さ 10 nm 程度の Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N (x = 0, 0.2, 0.5, 0.8, 1.1, 1.3, 1.7, 2.3, 2.8, 3.6, 4.0)薄膜を成長し た。Out-of-plane および In-plane X 線回折(XRD)または逆格子マップ測定により、Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N 薄膜 の結晶性と格子歪みを評価した。超伝導量子干渉磁束計を用いて、外部磁場の印加方向を膜面直 と面内方向で変えて室温での磁化曲線を測定し、飽和磁化( $M_s$ )と PMA を評価した。厚さ 25 nm 程 度の Mn<sub>4</sub>N および Co<sub>0.2</sub>Mn<sub>3.8</sub>N 薄膜に対しては、磁気トルク測定を行った。また、第一原理計算に より、Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N (x = 0, 1, 3, 4)の  $M_s$ を計算し、実験結果と比較した。CoMn<sub>3</sub>N(Co<sub>3</sub>MnN)について は、立方格子の角に Co(Mn)、面心に Mn(Co)が入った構造で計算した。

【結果・考察】XRD 測定の結果から、 $Mn_4N$  や  $Co_4N$  に近い組成の試料では高品質な  $Co_xMn_{4-x}N$ 薄膜のエピタキシャル成長に成功したが、 $Mn_4N$  と  $Co_4N$  の中間の組成では結晶性が悪化した<sup>4)</sup>。 いずれの試料も膜面内方向の格子定数 *a* が面直方向の格子定数 *c* よりも大きくなり、膜面内方向 に引張り歪みが生じた(*c/a*=0.98~0.99)。磁化曲線の測定から、*x* < 1.0 の試料では PMA が発現する 一方で、*x* > 1.0 の試料は面内磁化膜になることがわかった<sup>4)</sup>。Fig. 1 に実験および第一原理計算か ら求めた  $M_8$  の *x* 依存性を示す。*x* に対する  $M_8$  の変化の傾向は、実験と計算でおおむね一致した。 Fig. 2 に  $Co_{0.2}Mn_{3.8}N$  薄膜の磁気トルク曲線を示す。 $Mn_4N$  および  $Co_{0.2}Mn_{3.8}N$  薄膜の一軸磁気異方 性エネルギーは、それぞれ 1.1 Merg/cc、0.96 Merg/cc となり、 $Mn_4N$  への Co 添加により減少した。  $Co_{0.4}Mn_{4-x}N$  の  $M_8$  と磁気異方性は、*x* を変えることにより制御可能といえる。

【謝辞】JSPS 科研費基盤 A(No. 26249037)、JSPS 特別研究員奨励費、東北大通研プロ(H26/A04)の支援を受けた。 1)Y. Yasutomi, K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 17A935 (2014). 2)X. Shen *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 072410 (2014). 3)K. Kabara and M. Tsunoda, J. Appl. Phys. in press. 4)安富、伊藤他、第75回応用物理学会秋季学術講演会, 18a-S2-6, (2014).



Fig. 1 x dependence of  $M_{\rm S}$  in the Co<sub>x</sub>Mn<sub>4-x</sub>N films.



Fig. 2 Magnetic torque curves of the Co<sub>0.2</sub>Mn<sub>3.8</sub>N film.

