磁気コンプトン散乱法によるリチウム電池正極材料 $Li_xMn_2O_4$ のフェリ磁性発現メカニズムの解明

鈴木宏輔[1]、H. Hafiz[2,3]、B. Barbiellini[4,3]、折笠有基[5]、S. Kaprzyk[6,3]、辻成希[7]、山本健太郎[8]、星和志[1]、内本喜晴[8]、櫻井吉晴[7]、A. Bansil[3]、櫻井浩[1]
([1]群馬大、[2]Carnegie Mellon Univ.、[3]Northeastern Univ.、[4]LUT Univ.、[5]立命館大、[6]AGH Univ. of Sci. and Tech.、[7]JASRI、[8]京都大)

Ferrimagnetism of $Li_xMn_2O_4$ cathode material studied by magnetic Compton scattering

K. Suzuki[1], H. Hafiz[2,3], B. Barbiellini[4,3], Y. Orikasa[5], S. Kaprzyk[6,3], N. Tsuji[7], K. Yamamoto[8], K. Hoshi[1], Y. Uchimoto[8], Y. Sakurai[7], A. Bansil[3] and H. Sakurai[1]
([1]Gunma Univ., [2]Carnegie Mellon Univ., [3]Northeastern Univ., [4]LUT Univ., [5]Ritsumeikan Univ., [6]AGH Univ. of Sci. and Tech., [7]JASRI, [8]Kyoto University)

はじめに

スピネル型 $LiMn_2O_4$ は、高い動作電圧や構造の熱安定性などからリチウムイオン電池の正極材料として利用されているが、充放電を繰り返した際の容量低下が問題となっている。その原因として、リチウム挿入・脱離に伴う Mn 原子の価数変化による構造歪みが指摘されているが、その原因は完全には理解されていない。我々は、これまでコンプトン散乱法により $LiMn_2O_4$ のリチウム挿入に伴う酸化還元軌道として O 2*p* 軌道の重要性を指摘してきた[1]。本研究では、磁気コンプトン散乱法により Mn 原子の電子状態を明らかにするとともに、電極材料特性との関係についても明らかにすることを目的とした[2]。

実験方法

試料は、化学的にリチウム組成を調製した $Li_xMn_2O_4$（x = 0.41, 0.5, 0.92, 1.08）粉末を用いた。試料のリチウム組成は、ICP 分析により確認し、全磁化は SQUID (MPMS5-SW)磁力計を用いて測定した。磁気コンプトン散乱実験は SPring-8 の BL08W で行った。測定は、10 K で行った。

実験結果

図 1 に SQUID より得られた全磁化、磁気コンプトン散乱法により得られたスピン磁気モーメント、ならびに第一原理計算により得られた Mn 原子あたりの磁気モーメントを示す。4V 級リチウムイオン電池の動作領域であるリチウム組成 0 < x < 1 において、リチウム組成の増加と共に磁気モーメントが増加し、磁気コンプトン散乱法により得られたスピン磁気モーメントは、SQUID より得られた全磁化と良い一致を示すことがわかった。このスピン磁気モーメントの増加の原因を明らかにするため、第一原理計算により $Li_xMn_2O_4$ (x = 0, 0.5, 0.75, 1)の電子状態を調べた。その結果、x = 0 と 1 では電荷秩序状態を示し反強磁性となるのに対し、x = 0.5 と 0.75 では一部の Mn^{4+} がスピン転移し、フェリ磁性状態が発現することを見出した(図 2)。さらに、Mn 3*d* 電子は t_{2g} 軌道の対称性を持つことから、このフェリ磁性相によりリチウム挿入・脱離において結晶構造の歪みが抑制され、スピネル構造を安定化させることが示唆される。

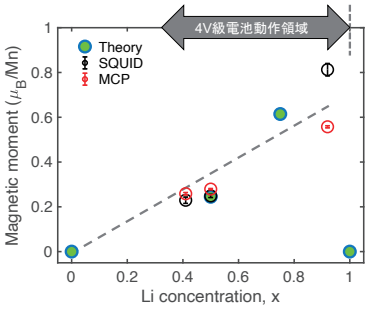


Fig. 1. Magnetic moment of $Li_xMn_2O_4$.

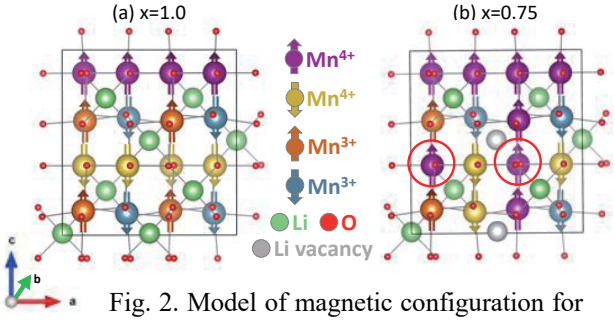


Fig. 2. Model of magnetic configuration for $Li_xMn_2O_4$ (x = 0.75 and 1.0).

参考文献

1) K. Suzuki *et al.*, Phys. Rev. Lett., 114, 087401 (2015).
2) H. Hafiz, K. Suzuki *et al.*, Phys. Rev. B 100, 205104 (2019).

CoFeB/MgO 多層膜における XMCD の磁場依存性

伊藤遥[1],鈴木真粧子[1],高橋学[1], 鈴木宏輔[1], 星和志[1],雨宮健太[2],櫻井浩[1]
（群馬大学[1],KEK 物構研[2]）

Magnetic field dependence of XMCD in CoFeB / MgO multilayer films

H.Ito[1]、M.Suzuki[1].M.Takahashi[1],K.Suzuki[1],K.Hoshi[1],K.Amemiya[2],H.Sakurai[1]
(Gunma University[1],KEK-IMSS[2])

はじめに

磁気抵抗メモリ（MRAM） 等のスピントロニクスデバイスにおいて垂直磁気異方性を有する Ta / CoFeB / MgO / CoFeB / Ta 磁気トンネル接合膜のスイッチング磁場の低減が求められている。

これまで我々は磁気コンプトン散乱を利用したスピン・軌道選択磁化曲線を測定し、スピンと軌道では磁化反転挙動が異なると報告してきた[1]。本研究では CoFeB/MgO 多層膜の X 線磁気円二色性(XMCD)の磁場依存性を測定し、磁気コンプトン散乱実験によるスピン磁化曲線（*Ms(H)*）と比較した。

実験方法

RF スパッタリング装置を用いて Si(111)基板上に $[CoFeB(4\ nm)/MgO(1\ nm)]_{200}$ 多層膜を作製した。CoFeB 膜はアモルファス構造であった。KEK-PF・BL-16A にて XMCD の磁場依存性を測定し、有効スピン磁化（*Mseff(H)*）および軌道磁化（*Ml(H)*）を求めた。入射 X 線および磁場は膜に対し垂直であった。測定温度は室温であった。

実験結果

Fig.1 に CoFeB/MgO 多層膜における *Ms(H)*[1], Fe および Co 吸収端から求めた *Ml(H)*を示す。Fig.2 に *Ms(H)*および Fe 吸収端および Co 吸収端から求めた *Mseff(H)*を示す。飽和磁化は印加磁場 1.5~2.5T の平均をとり規格化を行った。Fig.1 から *Ms(H)*と Fe 吸収端および Co 吸収端から求めた *Ml(H)*の磁場依存性はおおむね一致している。Fig.2 から *Ms(H)*と Fe 吸収端および Co 吸収端から求めた *Mseff(H)*の磁場依存性もおおむね一致していることが確認できる。

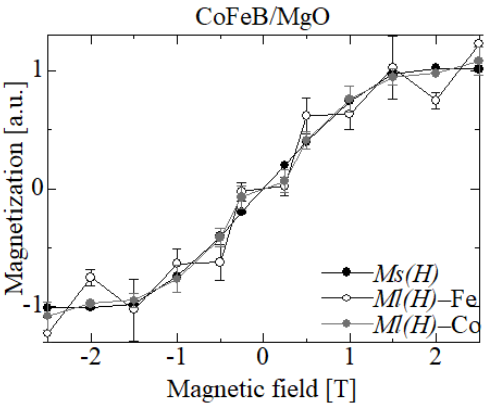


Fig.1 Spin magnetization curve(*Ms(H)*) and Orbital magnetization curve (*Ml(H)*)

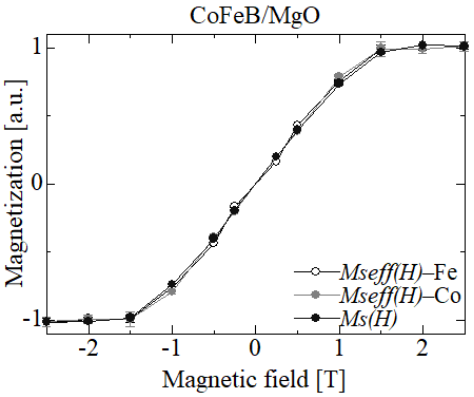


Fig.2 Effective spin magnetization curve (*Mseff(H)*) and Spin magnetization curve (*Ms(H)*)

[1] M.Yamazoe et al. J.Phys.Condens.Matter**28**(2016)　436001

Fe/Co 多層膜の磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性

塩田 椋平、伊藤 遥、鈴木宏輔、星和志、石井翔也、辻成希*、櫻井 浩
（群馬大、*JASRI、）

Magnetic field dependence of magnetic Compton profile of Fe / Co multilayer films

R. Shioda, H. Ito, K. Suzuki, K. Hoshi, S.Ishii,N. Tsuji*,and H. Sakurai
(Gunma Univ, *JASRI)

はじめに

近年、エネルギーハーベスティングあるいは環境発電と呼ばれる技術が注目されており、中でも磁歪を利用した振動発電が注目されている。ナノ構造を有する FeCo 合金では大きな磁歪があると報告されている。そこで、多層膜でナノ構造を付与した Fe/Co 系薄膜の磁気コンプトンプロファイル測定の磁場依存を測定し、電子状態の変化を調べた。

実験方法

RF スパッタリング装置を用いて Al フォイル基板上に Fe(xnm)/Co(ynm)(x,y=1,2,4,8)多層膜を作製した。全厚は 2μm であった。X 線回折測定で構造を調べた。Fe(1mn)/Co(1nm)と Fe(8nm)/Co(8nm)の試料について SPring-8 の BL08W にて磁気コンプトンプロファイルを測定した。印加磁場は膜面に垂直で、測定は室温であった。

実験結果

X 線回折測定の結果から Fe(8nm)/Co(8nm)多層膜では bcc(110)と hcp(002)の配向、Fe(1nm)/Co(1nm)多層膜では bcc(110)と bcc(200)の配向が確認できた。

Fig.1 は Fe(8nm)/Co(8nm)多層膜と Fe(1nm)/Co(1nm)多層膜の磁気コンプトンプロファイルの磁場依存性を示す。2.5T において Fe(8nm)/Co(8nm)多層膜と Fe(1nm)/Co(1nm)多層膜では Pz= 0 付近の MCP の形が異なる。これは結晶構造の違いを反映していることと考えられる。さらに、Fe(1nm)/Co(1nm)多層膜では Pz(au)=0 付近で、磁場依存性がある。一方、Fe(8nm)/Co(8nm)多層膜では磁場依存性がなかった。

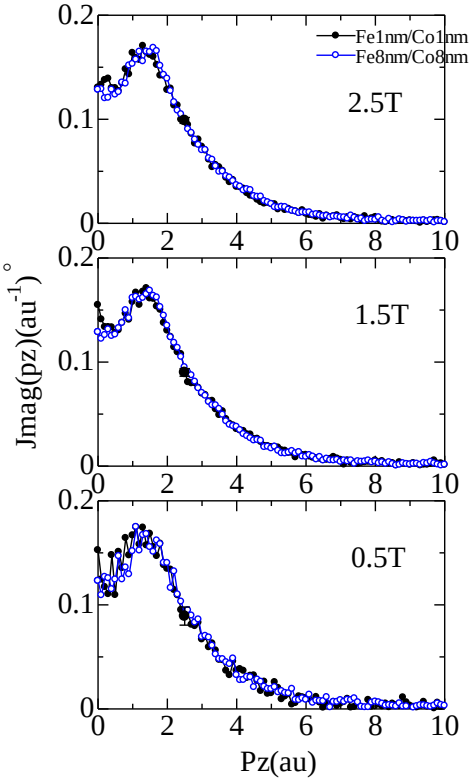


Fig.1 Magnetic Compton Profiles

参考文献

1)Hunter et al., Nat.Commun 2,518(2011).
2)Hiroshi Sakurai et al., Mater. Res. Express6 96114(2019).

ノンコリニア磁性体 $Mn_3Ni_{1-x}Cu_xN$ 薄膜の作製と磁気・電気的特性

三木竜太[A], 羽尻哲也[A], Kan Zhao[B], Hua Chen[C], Philipp Gegenwart[B], 浅野秀文[A]
（名大院工[A], アウクスブルク大[B], コロラド州立大[C]）
Growth and magnetic properties of non-collinear magnetic $Mn_3Ni_{1-x}Cu_xN$ films
R. Miki[A], T. Hajiri[A], K.Zhao[B], H.Chen[C], P.Gegenwart[B], H.Asano[A]
([A]Nagoya Univ., [B]Augsburg Univ., [C]Colorado State Univ.)

はじめに

ノンコリニア反強磁性体はノンゼロベリー曲率に起因した大きな内因性異常ホール抵抗を示す材料として注目されている(1,2)。逆ペロブスカイト型 Mn_3AN 系(A = Sn, Ni, Ga)は、Γ^{4g} と Γ^{5g} の 2 つのノンコリニア反強磁性スピン構造をとり、そのうち Γ^{4g} 構造において異常ホール効果(AHE)を発現することが知られている(2)。我々は、$Mn_3Ni_{1-x}Cu_xN$ に注目し、これまでに x = 0.65 の組成において AHE を示すことを報告してきた(3,4)。この系は、(111)面内にカゴメ格子を形成し、[111]方向にキャント磁化を発現する。バルクでは、x = 0.7 ~ 0.8 を境に、Cu 側でノンコリニア強磁性を、Ni 側ではノンコリニア反強磁性を示す。今回、組成と磁化および AHE の関係の調査を目的に様々な組成 x の薄膜を作製し、評価を行ったので報告する。

実験方法

Ar + N_2 混合ガス及び合金ターゲット($Mn_4Ni_{0.5}Cu_{0.5}$, Mn_4Cu)を用いた同時反応性マグネトロンスパッタ法により、MgO(111)基板上に $Mn_3Ni_{1-x}Cu_xN$ 薄膜の作製を行った。構造解析は X 線回折(XRD)、磁化測定は超伝導量子干渉計、異常ホール抵抗測定は物理特性測定装置を用いて行った。

結果

構造解析により、薄膜の歪み緩和とエピタキシャル成長を確認した。MgO(111)基板上に作製した x = 0, 0.5, 0.65, 0.70, 1 の薄膜の磁化の温度依存性を Fig. 1 に示す。いずれの組成においても、磁気秩序転移温度を境に磁化の挙動に変化がみられた。バルクの結果と同様に、Cu 量の増大に従って、転移温度の低下と、発現する磁化の最大値の増大がみられており、x = 0.70 前後にノンコリニア反強磁性とノンコリニア強磁性の境界が存在することが推測される。x = 0.5 および x = 0.65 の反強磁性薄膜における異常ホール抵抗測定において、x = 1 のものよりも大きな異常ホール伝導度を観測した。また、磁化と異常ホール伝導度の大きさに相関はみられなかった。これらのことから、反強磁性構造が異常ホール効果に寄与していることが示唆される。一方で、我々が作製した x = 0 薄膜においては、異常ホール効果の発現がなかった。x = 0.5, 0.65 薄膜においては、Ni を一部 Cu に置換することにより、Γ^{4g} 構造が安定し、AHE が発現したと考えられる。また、x = 0.5, 0.65 薄膜において AHC の値が大きく異なり、Cu 量により Γ^{4g} - Γ^{5g} 構造比に変化があることが考えられる。以上の結果から、元素置換による安定磁気構造の変化を、磁気・電気的特性の測定を通して観測できた。また、適切な置換量を選択することにより、より大きな異常ホール伝導度の実現の可能性が示唆された。

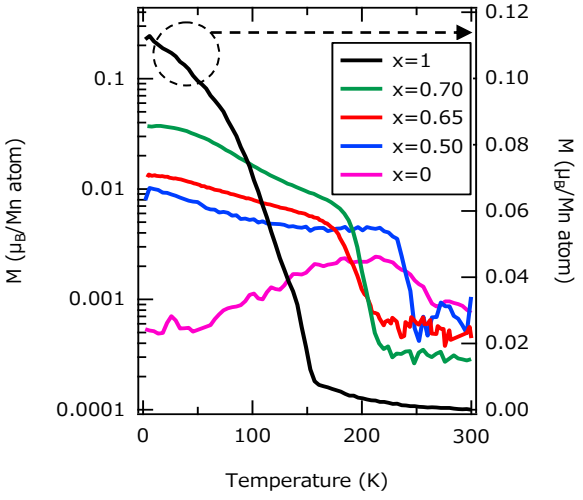


Fig. 1 Temperature dependences of magnetization of $Mn_3Ni_{1-x}Cu_xN$ films on MgO(111) substrates.

参考文献

1) V. T. N. Huyen *et al.*, Phys. Rev. B **100** 094426 (2019).
2) G. Gurung *et al.*, Phys. Rev. Mater. **3** 044409 (2019).
3) K. Zhao *et al.*, Phys. Rev. B **100** 045109 (2019).
4) R. Miki *et al.*, J. Appl. Phys. **127**, 113907 (2020).

層状構造 銅及びコバルト桂皮酸錯体の磁性

市村奏絵、藤原隆司、木田孝則*、萩原政幸*、鎌田憲彦、本多善太郎
(埼玉大院理工、*阪大先端強磁場)

Magnetic properties of layered copper and cobalt cinnamate complexes

K. Ichimura, T. Fujihara, T. Kida*, M. Hagiwara*, N. Kamata, and Z. Honda
(Saitama Univ., *AHMF, Osaka Univ.)

はじめに

遷移金属イオンに分子やイオンが架橋配位することで形成される多核金属錯体は、遷移金属イオン間に架橋配位子を通して超交換相互作用が働くため、秩序磁性を示す可能性がある。しかしながら、一般的に分子やイオンを介した超交換相互作用は反強磁性的であるため、多核金属錯体の多くは自発磁化を持たない。例外として金属間の OH^-や NO_3^-イオン中の酸素を介した 90°結合は強磁性相互作用を媒介することが知られており、そのような架橋配位結合を錯体中に形成させることで強磁性体やフェリ磁性体を得ることが出来ると考えられる。前述の OH^-や NO_3^-イオンによる 90°結合は錯体内では不安定構造であるため、カルボン酸などの架橋配位子をスペーサーとすることで構造を安定化させる必要がある。そこで本研究では強磁性やフェリ磁性を示す多核金属錯体を探索・合成することを目的として、カルボン酸の一種である桂皮酸(cinna)及びその誘導体をスペーサーに選定し、硝酸銅、硝酸コバルトと各種条件下で反応させた結果、目的の多核金属錯体を得た。錯体合成にはソルボサーマル法を用い、X 線回折(XRD)法により結晶構造を推定した。また各種試料の磁性を、超伝導量子干渉素子(SQUID)磁束計を用いて調査した。

実験方法

各種有機溶媒中に硝酸銅または硝酸コバルトと桂皮酸を加え撹拌した後、ステンレス製耐圧容器に入れ電気炉で加熱した。有機溶媒の種類、原料比、溶液濃度、加熱温度・時間を検討し、固形物が析出した場合、粉末及び単結晶 XRD 法により構造推定を行った。また、磁気測定には Quantum Design 社 MPMS-XL SQUID 磁束計を用いた。

実験結果

溶媒にエタノールを用い、金属硝酸塩 ：cinna = 1 : 1 で 100 ℃加熱を行った場合、層状構造を示唆する XRD パターンを示す多核金属錯体 M_2(cinna)$(NO_3)_3$ (M = Cu, Co)を得た(化学式は熱重量分析法により同定)。各錯体の磁気測定を行ったところ、Cu_2(cinna)$(NO_3)_3$ はキュリー点 T_C = 15 K の強磁性、Co_2(cinna)$(NO_3)_3$ は T_C = 50 K のフェリ磁性を示した(Fig.1)。また、温度 2 K で磁化曲線を測定したところ、Cu_2(cinna)$(NO_3)_3$ はほとんど保磁力を示さないのに対し、Co_2(cinna)$(NO_3)_3$ は±70 kOe の磁場掃引で 24 kOe 以上の大きな保磁力を示した(マイナーループのため正確な保磁力は不明)。これらの錯体の結晶構造は桂皮酸で隔てられた金属-硝酸イオン層を有していると考えられ、層内の NO_3 イオンを介した金属間の強磁性的相互作用により上記の磁性が発現したものと考えられる。

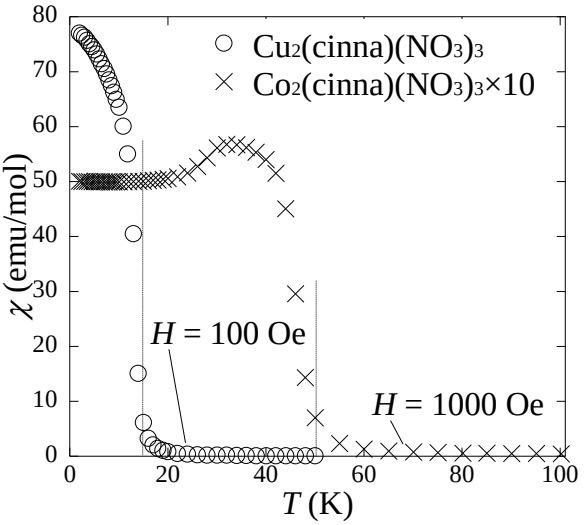


Fig.1 Magnetic susceptibility χ vs. temperature T curves for Cu_2(cinna)$(NO_3)_3$ and Co_2(cinna)$(NO_3)_3$.

YIGナノ結晶体から形成された薄膜における微細構造とスピンゼーベック起電力の相関解明

Elucidation of the correlation between microstructure and spin Seebeck voltage in films composed of YIG nanocrystals

◦正木信也[1], 山本幹也[1], 近藤慶太[1], 山田啓介[1], 黒川雄一郎[2],
塩田陽一[3], 森山貴広[3], 小野輝男[3], 湯浅裕美[2], 嶋睦宏[1]
岐阜大院自[1], 九大シス情[2], 京大化研[3]

◦S. Masaki[1], M. Yamamoto[1], K. Kondo[1], K. Yamada[1], Y. Kurokawa[2],
Y. Shiota[3], T. Moriyama[3], T. Ono[3], H. Yuasa[2], and M. Shima[1]
Gifu Univ.[1], Kyushu Univ.[2], Kyoto Univ.[3]

【緒言】ガーネット構造をもつ磁性絶縁体である $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG)は、ギルバートダンピング定数(損失定数)が小さくスピン波を長距離伝搬できることから、大きいスピンゼーベック(SSE)起電力[1]を得ることのできる物質として、近年、スピントロニクス分野において盛んに研究がなされている [1, 2]。本研究では、化学合成法である共沈法とスピンコート法およびアニール処理により、多結晶体のナノ粒子から形成された YIG 膜を作製し、アニール温度(T_a)を変数として YIG 膜の結晶構造、微細構造、磁気特性、SSE 電圧(V_{SSE})の変化を調べ、V_{SSE} と微細構造の相関を明らかにすることを目的とした。

【実験方法】Fe^{3+}, Y^{3+}の各硝酸水溶液を Fe^{3+} : Y^{3+} = 5 : 3 の割合で混合し、アンモニア水溶液を滴下し pH 9.5 を保持しながら共沈法により YIG 前駆体を合成した[3]。得られた YIG 前駆体をエタノール中に分散させ、スピンコート法により Si 基板上に塗布した。次に大気雰囲気下において、T_a = 1073～1223 K の温度で 30 min アニールを行い、YIG 膜試料を作製した。XRD, SEM, SPM を用いて試料の構造を評価し、VSM、強磁性共鳴(FMR)、SSE 起電力測定により磁気特性を調べた。

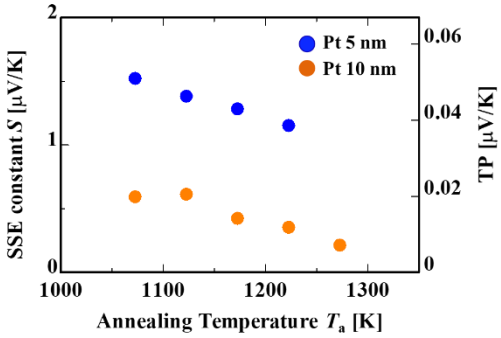


Fig.1. SSE constant S and TP as a function of T_a.

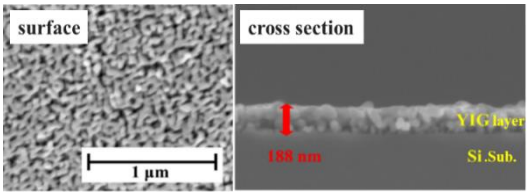


Fig.2. Surface and cross section images of YIG films measured by SEM.

【結果と考察】スピンゼーベック係数($S = V_{SSE}^{Sat}/\Delta T$)および熱電性能 ($TP = V_{SSE}^{Sat} \cdot L_Z/(L_x \cdot \Delta T)$) のアニール温度 T_a 依存性を図 1 に示す。T_a の増加に対し S 値の大きさが減少する結果が得られた。T_a =1173 K における YIG 膜の表面および断面の SEM 像を図 2 に示す。SEM 像から YIG ナノ粒子が凝集しており、画像解析から空隙率は 40%程あることがわかった。また、ナノ粒子の平均粒子径は T_a の増加とともに増大した。S 値の減少は、T_a の増加により YIG 膜を形成する表面の空隙が大きくなり、マグノン励起の不均一さ[4]に起因していると考えられる。本研究では、ナノ粒子の表面微細構造をアニール温度により制御することにより、SSE 起電力を変化させることができることを示した。

[参考文献] [1] K. Uchida, et al., *Nature* **455**, 778 (2008). [2] K. Uchida, et al., *Appl. Phys. Lett.* **97**, 172505 (2010); [3] B. Huang, et al., *J. Alloys Compd.* **558**, 56-61 (2013). [4] K.Yamada, et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **513**, 167253 (2020).

[謝辞] 本研究の一部は、京大化研と名大未来研の R2 年度共同利用・共同研究の助成を受けて行われた。

Bi:YIG/Pt におけるスピンゼーベック効果の保持力の温度差依存性

髙橋優太、高瀬つぎ子、山口克彦
（福島大）

Temperature difference dependence of coercive force of spin Seebeck effect in Bi:YIG/Pt

Y. Takahashi, T. Takase, K. Yamaguchi
(Fukushima Univ.)

はじめに

強磁性体と常磁性金属の接合系に温度差があるとき，その接合界面近傍にスピン流が誘起される現象として「スピンゼーベック効果(以下 SSE)」がある．誘起されたスピン流は常磁性金属を介し，温度差に比例した電圧に変換される [1]．この機構により生成された電圧(以下 SSE 電圧)の温度差依存性は，様々な材料において報告がなされている．しかし，SSE 電圧の保持力に着目した報告は少なく，その温度依存性について系統的に調査された報告はない．本研究では，Bi:YIG/Pt 試料における SSE 電圧の保持力の温度差依存性について，系統的に調査した結果を報告する．

実験・結果

有機金属分解法を用いて，厚さ 0.45mm の石英ガラス基板上に多結晶 Bi:YIG 膜を製膜した後，簡易スパッタ装置(Ar・10Pa)により Pt 膜を 10nm 積層した．さらに，試料全体を大気圧下で 600℃・1hour の熱処理を施した Bi:YIG/Pt 試料 [2]を用いる．

Fig.1 に各温度差における SSE 電圧と磁場のヒステリシス曲線の測定結果を示す．Fig.1 の測定に用いた試料の面積は 7mm×13mm，Bi:YIG 膜の膜厚は約 400nm である．Fig.1 より SSE 電圧がゼロとなる時の外部磁場(以下 SSE 電圧の保持力)が温度差によって変化していることが確認された．さらに，同じ面積，Bi:YIG 膜の膜厚が約 200nm の試料においても同様の現象が確認された．また，Fig.2 に SSE 電圧の保持力の温度差依存性を示す．加えて，外部磁場がゼロとなる時の SSE 電圧(以下残留 SSE 電圧)も示す．それぞれ，Fig.1 以外の温度差も含め，外部磁場を＋から－，－から＋に印加したときの絶対値を平均した値で示す．Fig.2 より残留 SSE 電圧は既知の通り温度差に比例したが，SSE 電圧の保持力は従来とは異なり，ΔT=15K 付近を境に急激に変化していることが確認された．この SSE 電圧の保持力の変化の要因について，試料の面積や Bi:YIG 膜の膜厚を変化させ，系統的に SSE 電圧の保持力の温度依存性を示し，その関連性を検討する．

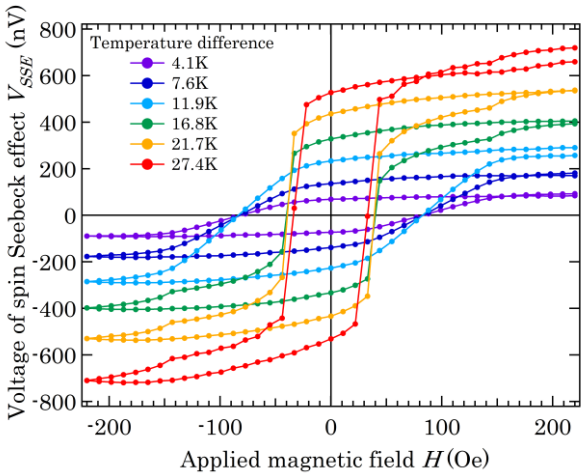


Fig.1 Hysteresis curve of voltage of spin Seebeck effect and magnetic field at each temperature difference

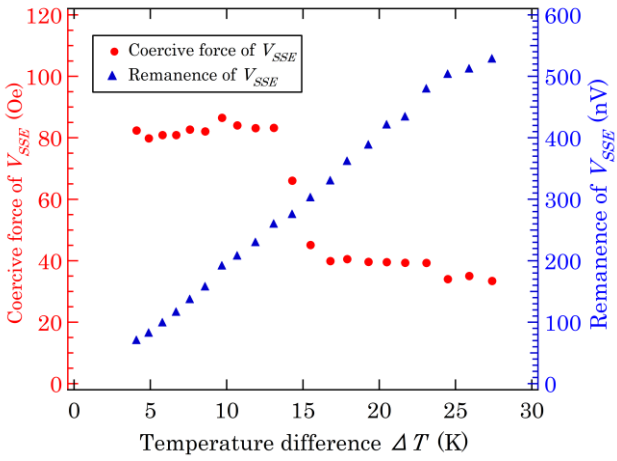


Fig.2 Temperature difference dependence of coercive force of V_{SSE} and remanence of V_{SSE}

参考文献

1) K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh: *Appl. Phys. Lett.*, **97**, 172505 (2010).
2) Y. Takahashi, T. Takase, and K. Yamaguchi: *T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues).*, **4**, 14-17(2020).

酸化鉄ナノ粒子分散膜を用いたスピン熱電変換の観測

黒川雄一郎、濵田勇樹、湯浅裕美
（九大）

Observation of spin-thermoelectric conversion using Fe-oxide nanoparticle assembled film

Y. Kurokawa, Y. Hamada, H. Yuasa
(Kyushu Univ.)

序論

電子スピンを用いた熱電変換技術は、熱流と直交する方向へ電圧を発生させることから発電素子の小型化が可能であり、環境発電やセンサーなどへの応用が期待されている。電子スピンを用いた熱電変換は、主に磁性金属薄膜を用いた異常ネルンスト効果や、[1] 磁性絶縁体とスピン軌道相互作用の大きな重金属の二層膜を用いたスピンゼーベック効果などに基づいている。[2] これらの効果を用いた発電では大面積の薄膜を用いることで発電量を増大させていくことが可能となるが、従来法では薄膜の作製に真空装置を用いた成膜が用いられており、また、材料によっては高温での熱処理が必要となり、素子作製は簡単ではない。そこで、この研究では酸化鉄ナノ粒子を用い、スピンコート法による簡便な成膜法で熱電発電が可能な磁性薄膜を得ることが可能かどうかを検討した。

実験方法

トルエン中に分散させた酸化鉄(Fe_3O_4)ナノ粒子(IO-O20-50, Cytodiagnostics Inc.)を熱酸化 Si 基板上に滴下し、その後スピンコートによりナノ粒子分散膜にした。作製したナノ粒子分散膜は真空中で熱処理を行い、溶媒を揮発させた。最後に、重金属層として Pt を 5nm 酸化鉄ナノ粒子分散膜上に堆積し、試料とした。

スピン熱電変換の観測は以下のように行った。まず、2 つのペルチェ素子で試料を挟み、Si 基板の上部と下部に高温部と低温部を設けることで試料に対して垂直に熱勾配を印可した。その後、試料に対して水平方向に磁場を掃引しながら、磁場に対して直交する方向の電位差を測定し、熱勾配から得られる起電力を測定した。

実験結果

真空中で熱処理を行った試料に対し、Pt を積層する前に電気抵抗を測定したところ、有限の電気抵抗が観察されず、絶縁体であることが分かった。試料である Fe_3O_4 は金属的な導電性を有することから、ナノ粒子分散膜中では十分にナノ粒子同士が近づいておらず、粒子が個々に存在することが予想された。その後、Pt を積層した試料の電気抵抗を測定したところ金属的な導電性が得られ、ナノ粒子同士が Pt 膜を通して金属的につながったことが予想された。図 1 に熱勾配を印可した元で磁場を掃引し、電圧を測定した結果を示す。結果から、外部磁場に対し明瞭なヒステリシスが得られ、ナノ粒子を分散させた膜でスピン熱電変換が観察可能であることが分かった。

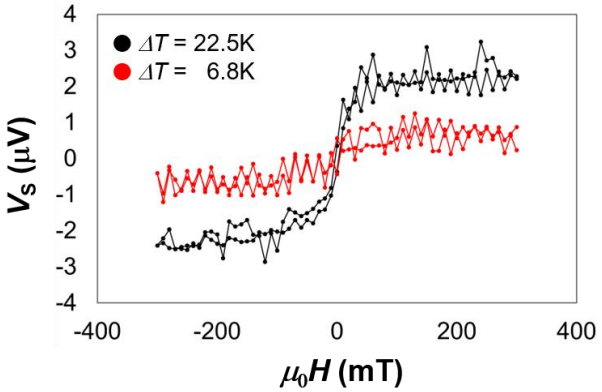


Fig. 1 Spin thermoelectromotive force (V_s) in Fe-oxide nanoparticle assembled film as a function of magnetic field (H) for two temperature difference (ΔT)

参考文献

1) M. Mizuguchi, et. al., Appl. Phys. Express **5**, 093002 (2012).
2) K. Uchida, et al., Appl. Phys. Lett. **97**, 172505 (2010).

謝辞

本研究は、パロマ財団の助成を受けて行われた。

Cu基非平衡合金における巨大スピンホール効果

増田啓人[1]、モダックラージクマール[2]、関剛斎[1,2,3]、内田健一[1,2,3]、ラウヨンチャン[1,3]、
桜庭裕弥[2,4]、井口亮[2]、高梨弘毅[1,3,5]
（[1]東北大金研、[2]物材機構、[3]東北大CSRN、[4]JST PRESTO、[5]東北大CSIS）

Large spin Hall effect in non-equilibrium Cu-based alloys

H. Masuda[1], R. Modak[2], T. Seki[1,2,3], K. Uchida[1,2,3], Y. Lau[1,3], Y. Sakuraba[2,4], R. Iguchi[2], and K. Takanashi[1,3,5]
(IMR, Tohoku Univ.[1], NIMS[2], CSRN, Tohoku Univ.[3], JST PRESTO[4], and CSIS, Tohoku Univ.[5])

はじめに 非磁性物質におけるスピンホール効果および逆スピンホール効果は、電流–スピン流間の相互変換を可能にするため、スピントロニクス研究において必要不可欠な現象となっている。スピンホール角 (α_{SH}) はその変換効率を意味し、大きな α_{SH} を示す材料の探索がデバイスの高性能化に向けた重要課題である。一般的にはスピン軌道相互作用の大きいPtやTa、Wなどで大きな α_{SH} が得られ、これらの単一非磁性金属が代表的なスピンホール材料として広く利用されている。一方で、スピン軌道相互作用の小さい物質を母相として、元素添加や合金化によって大きな α_{SH} を実現する研究も報告されている。中でも、現在用いられている配線技術と親和性が良いCuに対し、Ir[1-4]やBi[5]を添加することによって数%以上の α_{SH} が得られることは、応用上の大きな利点として注目されている。しかしながら、Cu-Ir及びCu-Biの平衡状態図において固溶限は10 at.%以下と狭く、熱非平衡状態図にない非平衡合金がどの程度のスピンホール効果を示すかは明らかになっていない。そこで本研究では、非平衡Cu二元系合金に着目し、組成傾斜膜におけるスピンペルチェ効果を熱イメージングすることでスピンホール効果を一括評価できるコンビナトリアル手法[6]により、広範な組成領域においてCu-Ir合金及びCu-Bi合金のスピンホール効果を調べた。さらに、コンビナトリアル手法により判明した最大の α_{SH} が得られるCu-Irに対して高調波ホール電圧測定を行い、α_{SH} を定量評価した。

実験結果 コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、$Y_3Fe_5O_{12}$（YIG）基板上に0 nmから0.5 nmまで層厚を傾斜させたウェッジ形状のCu層およびIr層またはBi層を交互積層させることによって、総膜厚10, 20, 及び30 nmの組成傾斜膜を成膜した。Cu-Ir組成傾斜膜に対して電子線マイクロアナライザーによる組成分析及びX線回折法を用いた構造解析を行ったところ、合金組成に対して格子定数が直線的に変化していることが分かった。また、試料断面の透過型電子顕微鏡像には異相が観測されず、これらの構造解析の結果は、広い合金組成範囲において非平衡Cu-Ir合金薄膜を実現できていることを意味している。

ロックインサーモグラフィーによる熱イメージング用試料には、ワイヤー形状の組成傾斜膜を用いた。スピンペルチェ効果による温度変調の空間分布を調べることで、Cu-Ir (Cu-Bi) 合金におけるスピンホール効果のIr (Bi) 濃度依存性を一括評価したところ、Cu-Ir合金では電流密度あたりの温度変調振幅が x_{Ir} = 25 at.%近傍で極大を示し、この組成領域にてスピンホール効果の増大が示唆された。一方、非平衡Cu-Bi合金薄膜ではスピンペルチェ効果による温度変調が小さく、大きなスピンホール効果は観測されなかった。

上記の温度変調が増大した非平衡Cu-Ir合金におけるスピンホール角を定量評価するため、Al_2O_3 (0001) 基板上に成膜した $Cu_{76}Ir_{24}$/CoFeB 二層膜からなるホールバー素子を作製し、ホール電圧の高調波測定を行ったところ、α_{SH} = 6.29 ± 0.19 % という値が得られた。この α_{SH} の値はPtの α_{SH}[7]と匹敵する大きさであり、非平衡Cu-Ir合金がスピンホール材料の候補になることが示された[8]。

参考文献

1) Y. Niimi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 126601 (2011). 2) M. Yamanouchi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 212408 (2013). 3) J. Cramer *et al.*, *Nano Lett.* **18**, 1064 (2018). 4) H. Masuda et al., *Phys. Rev. B* **101**, 224413 (2020). 5) Y. Niimi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 156602 (2012). 6) K. Uchida *et al.*, *Sci. Rep.* **8**, 16067 (2018). 7) L. Liu *et al*., *Phys. Rev. Lett.* **106**, 036601 (2011). 8) H. Masuda *et al*, *Comms. Mater.* (accepted).

Co_2MnGa 薄膜におけるスピン偏極ワイル分散と巨大異常ネルンスト効果の観測

角田一樹[1]、桜庭裕弥[2]、増田啓介[2]、河野嵩[3]、鹿子木将明[3]、後藤一希[2]、
Weinan Zhou[2]、宮本幸治[4]、三浦良雄[2]、奥田太一[4]、木村昭夫[3]
([1]原子力機構、[2]物材機構、[3]広大院理、[4]広大放射光)

Observation of spin-polarized Weyl cones and giant anomalous Nernst effect in Co_2MnGa films

K. Sumida[1], Y. Sakuraba[2], K. Masuda[2], T. Kono[3], M. Kakoki[3], K. Goto[2],
W. Zhou[2], K. Miyamoto[4], Y. Miura[2], T. Okuda[4], and A. Kimura[3]
([1]JAEA, [2]NIMS, [3]Hiroshima Univ., [4]HiSOR)

背景

異常ネルンスト効果は強磁性体に熱流を流した際に、温度勾配と磁化の外積方向に電場が生じる現象である。これまで、異常ネルンスト効果による熱電能は磁化の大きさに比例すると考えられてきたが、近年、反強磁性体を含むいくつかの磁性材料でこの経験則が破綻していることが明らかになってきた[1]。特に強磁性ホイスラー合金 Co_2MnGa の室温における熱電能は約 6.0 μV/K に達しており、Fe などの典型的な強磁性体の約 10 倍の大きさに匹敵する[2]。このような巨大異常ネルンスト効果には、フェルミ準位近傍のトポロジカルに非自明な電子構造が重要な役割を果たしていると考えられている。しかし、異常ネルンスト効果と電子構造の正確な対応関係は未だ明らかになっていない。また、Co_2MnGa の熱電能は薄膜では 3.0 μV/K 程度しか実現されていない点も大きな問題である[3]。本研究では、組成比を緻密に制御した Co_2MnGa 薄膜に着目し、異常ネルンスト効果による熱電能と電子構造の対応関係の解明を目的とした。

実験条件

組成比を制御した Co_2MnGa 薄膜は Co, Mn, Co_2MnGa ターゲットを利用したコスパッタ法で MgO 基板上に作成した。試料表面の汚染を防ぐため、薄膜試料をポータブルチャンバーによって光電子分光装置に大気に晒すことなく輸送し、[100]方向に磁化した状態でスピン・角度分解光電子分光を行った。また、実験結果との比較のため、$L2_1$ 規則相における Co_2MnGa の第一原理計算も行った。

実験結果

Co_2MnGa 薄膜の異常ホール、ネルンスト伝導度を測定したところ、価電子数を増やすに従って系統的に増加することが明らかとなった（図 1(a,b)）。観測された熱電能は最大で 6.2 μV/K に達し、強磁性体薄膜としての最高値を記録した。また、残留磁化を利用したゼロ磁場での異常ネルンスト効果の観測にも成功した。最も高い異常ホール、ネルンスト伝導度を観測した試料に対してスピン・角度分解光電子分光を行ったところ、フェルミ準位近傍にスピン偏極した複数のワイルコーンが存在していることが明らかとなった（図 1(c)）。第一原理計算（図 1(d)）との比較により、これらのワイルコーンが波数空間上で巨大な仮想磁場（ベリー曲率）を生み出す源となっていることを突き止め、電子構造と熱電能の対応関係を明らかにした[4]。

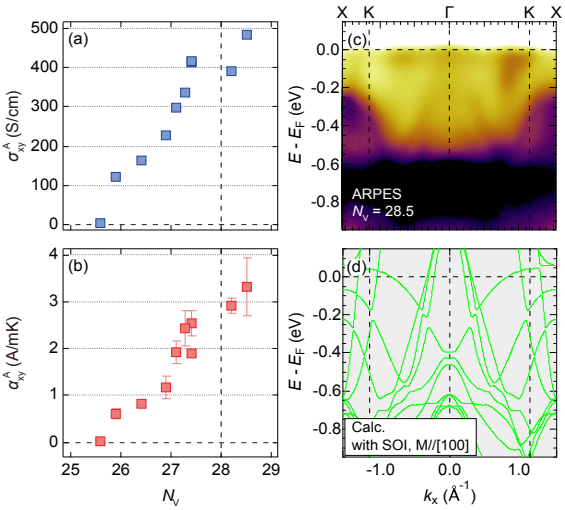


図 1 (a,b) Co_2MnGa 薄膜の異常ホール、ネルンスト伝導度の価電子数依存性。(c,d) 光電子分光および第一原理計算によって求めたフェルミ準位近傍のバンド分散。

参考文献

[1] M. Ikhlas *et al*., Nat. Phys. **13**, 1085 (2017). [2] A. Sakai *et al*., Nat. Phys. **14**, 1119 (2018).
[3] G.-H. Park *et al*., Phys. Rev. B **101**, 060406(R) (2020). [4] K. Sumida *et al*., Comms. Mater., in press.

$Fe_{2-x}MnGa_{1+x}$(x = 0～0.5)合金の磁気特性とメスバウァー効果

三浦悠太、嶋敏之、土井正晶
（東北学院大工）

Magnetic characteristics and Mössbauer effect of $Fe_{2-x}MnGa_{1+x}$(x = 0 ~ 0.5) alloys.

Y. Miura, T. Shima, M. Doi
(Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

$D0_{22}$型 Mn-Ga 系材料では高い磁気異方性や高い保磁力が確認されているが、フェリ磁性に起因する低飽和磁化が報告されている。本研究室では Fe を含めた Fe-Mn-Ga 合金において 400 ºC 以上の高温熱処理した試料の結晶構造と磁気特性はすでに報告した[1]。本研究では $Fe_{2-x}MnGa_{1+x}$ (x = 0 ~ 0.5)合金の組成を変化させることで結晶構造および磁気特性の変化を調べた。その結果、Ga リッチな組成にすると磁化が大幅に増加する結果が得られた。$Fe_{2-x}MnGa_{1+x}$ (x = 0, 0.5)において磁化の増加の原因をメスバウアー効果による超微細磁気構造の解析について行っている。今回 $Fe_{2-x}MnGa_{1+x}$(x = 0.3, 0.4)におけるメスバウアー効果について超微細磁気構造の解析について報告する。また、磁気特性の熱処理手法依存性についても検討し、磁気相転移の観点から考察した。

実験方法

試料の作製はアーク溶解炉を用いて、Ar ガス雰囲気中で真空度が 2.3×10^{-2} Pa 以下で合金が均一になるように表裏 2 回ずつアーク溶解を行った。また、原材料は Fe (4N)、Mn(5N)、Ga(6N)を使用した。合金を作製した後、ダイヤモンドやすりで粉末化し、真空度が 2.3×10^{-2} Pa 以下で真空封入した。マッフル炉を用いて熱処理を行い、取り出した後に水で急冷した。また熱処理温度 800ºC で均質化処理した試料においても検討を行った。各種評価は、組成分析をエネルギー分散型 X 線装置（EDX）、結晶構造を X 線回折装置（XRD）磁気特性は物理特性測定装置(PPMS – VSM)、^{57}Co 線源のメスバウアー効果で測定評価を行った。また作製した試料において組成分析の結果から組成による誤差が 3%以下の合金を用いて行った。

実験結果

$Fe_{2-x}MnGa_{1+x}$ (x = 0 ~ 0.5)合金は熱処理温度 350 ºC で bcc 相が確認され、Ga がリッチとなる $Fe_{1.5}MnGa_{1.5}$ 合金でも同様に bcc 相が確認された。格子定数の変化は最大で 0.21 %増大した。また Ga の組成を増やすことで磁化は単調に増加していき、Fe_2MnGa の室温での磁化は M_{80kOe} = 27.7 emu/g に対し $Fe_{1.5}MnGa_{1.5}$ では磁化が M_{80kOe} = 81.0 emu/g であり、Fe_2MnGa の飽和磁化に対して約 3 倍以上の磁化の増加が確認された。この結果は Fe_2MnGa のフェリ磁性から $Fe_{1.5}MnGa_{1.5}$ の強磁性へ磁気相転移に起因すると考えられる。またメスバウアー効果の結果から Fe_2MnGa では室温で常磁性の単相を示し、$Fe_{1.5}MnGa_{1.5}$ では室温で Fe_2MnGa と超微細パラメータが等しい常磁性の相と、内部磁場が 184.9 kOe である強磁性の相の二相を示した。このとき $Fe_{1.5}MnGa_{1.5}$ の体積分率は常磁性相が 20%で、強磁性相が 80%となり、部分的にフェリ磁性から強磁性へと磁気相転移したと考えられる。また $Fe_{1.7}MnGa_{1.3}$ と $Fe_{1.6}MnGa_{1.4}$ のメスバウァー効果の結果から Ga の組成増加に伴い、常磁性相の割合が低下し、強磁性相の割合が増加する結果が得られた。講演では、均質化処理し作製した合金についても比較検討した結果を報告する。

参考文献

1) A. Koeba and T. Shima and M. Doi, Jpn. Appl. Phys., 55, 07MC04 (2016).

金属磁性体における２サイト型磁気異方性の第一原理的評価

小田 洋平[1]・栂 裕太[2]・三浦 大介[3]・佐久間 昭正[3]
([1]福島高専・[2]東大・[3]東北大)

First-principles evaluation of 2-site-type magnetic anisotropy in metal magnetic materials

Y. Kota[1], Y. Toga[2], D. Miura[3], and A. Sakuma[3]
([1]Fukushima KOSEN, [2]The Univ. of Tokyo, [3]Tohoku Univ.)

1　はじめに

原子スピン模型を用いた磁化ダイナミクスや有限温度磁性のシミュレーションは磁性材料の性能を理論的に解析するための有力な手段となっている．古典ハイゼンベルグ模型のハミルトニアンは通常 $\mathcal{H}_0 = \sum_{i\neq j} J_{ij}\vec{S}_i\cdot\vec{S}_j + \sum_i K_i(S_i^z)^2$ と記述され，第１項は交換相互作用，第２項は１イオン異方性をそれぞれ表す．ここで i, j はサイトインデックス，$\vec{S}$ はローカルスピンであり，物質パラメータである交換相互作用定数 J と磁気異方性定数 K は第一原理計算によってその物質固有の値を得ることが可能である．しかしながら磁気異方性を記述する際に，酸化物のような電子の局在性が強い磁性体の場合は１イオン異方性の形でも問題ないと思われるが，金属のような遍歴性の強い磁性体の場合は（仮に古典ハイゼンベルグモデルへのマッピングが認められるとしても）１イオン異方性のみでは不十分な可能性がある．現に種々の $L1_0$ 型合金について副格子間の磁気異方性エネルギーの第一原理計算の報告例[1]があり，これは例えば $\mathcal{H}_2 = \sum_{i\neq j} K_{ij}S_i^zS_j^z$ のような形で記述される２サイト型の磁気異方性を導入する必要性があることを示唆している．そこで本研究では電子のスピン軌道相互作用に由来する金属磁性体の２サイト型の磁気異方性エネルギー K_{ij} を第一原理計算によって評価したので，その結果を報告する．

2　結果および考察

Fig. 1(a) は $L1_0$ 型規則構造の FeNi 合金の結晶構造の模式図である．ここで 1, 2 を Fe サイト，3, 4 を Ni サイトとして，Fe と Ni の１サイト型の磁気異方性エネルギーをそれぞれ K_1, K_3，最隣接 Fe–Fe 間，Ni–Ni 間の２サイト型の磁気異方性エネルギーをそれぞれ K_{12}, K_{34}，最隣接 Fe–Ni 間の異方性エネルギーをボンドの方向で区別して K_{13}, K_{14} とおく．Fig. 1(b) は磁化方向を変化させたときのエネルギー変化から求めた K_1, K_3, K_{12}, K_{34}, K_{13}, K_{14} の計算結果である．磁化を (A) [001] 方向と [100] 方向に向けた場合のエネルギー差から求めた場合，および，(B) [001] 方向と [010] 方向に向けた場合のエネルギー差から求めた場合の結果が示されている．この結果から全体の磁気異方性に大きく寄与するのは Fe と Ni それぞれの１サイト型の磁気異方性であることが分かる．しかしながら２サイト型の磁気異方性も定量的には無視できず，実際のボンドの本数を考慮すれば１サイト型の磁気異方性に匹敵する寄与をもたらす．また K_{13}, K_{14} に着目すると，等価なボンドでも磁化の回転面によってエネルギー変化の挙動が異なることに加えて，$K_{13}^{\mathrm{A}} = K_{14}^{\mathrm{B}}$, $K_{13}^{\mathrm{B}} = K_{14}^{\mathrm{A}}$ となっていることが確認される．講演では２サイトのボンドの方向と磁化回転によるエネルギー変化の関係を考察した結果について議論する予定である．

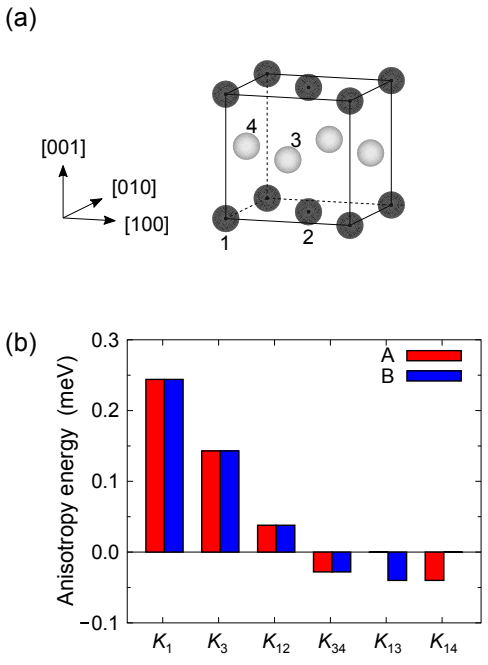


Fig. 1　(a) Crystal structure of $L1_0$-type ordered alloy and (b) calculation result of 1-site- and 2-site-type magnetic anisotropy energy.

References

1) L. Ke, Phys. Rev. B **99**, 054418 (2019).

正方晶 $NiCo_2O_4$ 薄膜における円錐型異方性

小泉 洸生、　柳原 英人
（筑波大学）

Easy-cone anisotropy in tetragonal spinel $NiCo_2O_4$ film

Hiroki Koizumi, and Hideto Yanagihara
(University of Tsukuba)

【背景】

$NiCo_2O_4$(NCO)は、A サイトに Co、B サイトに Co と Ni が配列する逆スピネル構造を有しており、室温より高いキュリー温度や、酸化物の中では比較的高い電気伝導率を示すなどの特性を有しているため、スピントロニクス材料としても魅力的な物質である[1]。また $MgAl_2O_4$(001) (MAO)基板上に作製することで、NCO が垂直磁気異方性(PMA)を示すことが薄膜試料において確認されている。この PMA の起源については、A サイトにある Co^{3+}に圧縮歪が導入されることで生じることがシングルイオンモデルを用いた計算により示された[2]。そのため、NCO は全温度範囲で PMA を有すると信じられているが、実験的に温度依存性などの詳細な磁気異方性を測定したものはない。そこで本研究では、PMA を有する NCO 薄膜の磁気異方性を詳細に測定した。

【実験】

試料は、Ar+O_2(4:1)雰囲気中でターゲットに NiCo(1:2)合金を用いて反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により $MgAl_2O_4$(001) (MAO)基板上に作製した。作製した試料は、反射高速電子回折(RHEED)、X 線回折法(XRD)による結晶構造の評価、VSM による磁気特性、磁気トルク計による磁気異方性の評価、異常ホール効果による電気特性の評価を行った。

【結果】

RHEED 観察並びに XRD 測定により、MAO 基板上に NCO がエピタキシャル成長しており、膜には圧縮歪が導入されていることが確認された。作製した NCO 薄膜について磁気トルク測定を行うと、室温付近では、先行研究と同様に PMA を有することが確認された。しかし、温度を下げるにつれて低温では cone 異方性へと変化していくことが確認された(図 1)。また、図 2 に示すように、試料を傾けた状態で異常ホール効果測定を行うと、傾ける角度(α)に依存して、異常ホール効果における角型比($(SR)_{AHE}$)が、変化しており、ある角度以上で角型比が 1.0 を超えていることが確認された。これは低温においては磁化容易方向が膜面垂直方向から傾いていることを意味し、磁化容易面が円錐面となる磁気異方性の存在を示唆している。講演では、より詳細な実験結果について議論する。

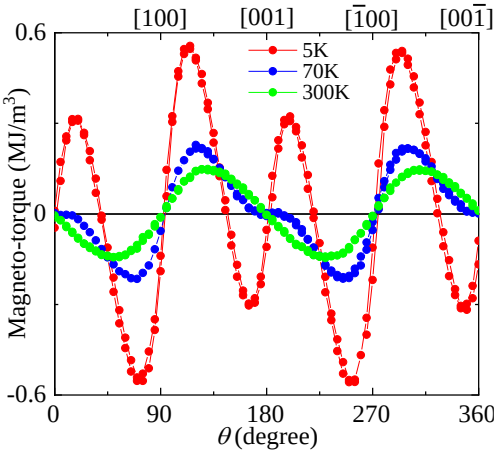


図 1　磁気トルク曲線の温度依存性

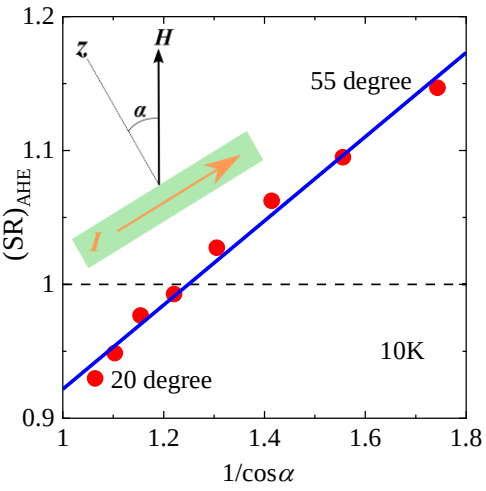


図 2　異常ホール効果の角度依存性

参考文献

1)　X. Chen, *et al.*, Advanced Materials **31**, 1805260 (2019).
2)　C. Mellinger, *et al.*, Physical Review B **101**, 014413 (2020).

傾斜配向磁性膜の本質的な一軸異方性の定量解析

◦宮崎 大輝，田河 育也，本多 直樹（東北工大）斉藤 伸（東北大）

Quantitative analysis of intrinsic uniaxial anisotropy of tilt-oriented magnetic film

◦Daiki Miyazaki, Ikuya Tagawa, Naoki Honda (Tohoku Inst. of Tech.) and Shin Saito (Tohoku Univ.)

はじめに　磁気記録のトリレンマにおける高熱擾乱耐性と書き込み容易性の両立の解決方法として、磁気エネルギーを高く保ったまま反転磁界を低減できる ECC（Exchange-Continuous Coupled）構造が提案されている[1]。さらに、ECC の磁気異方性軸に 10°程度の傾斜を与えることで、より大きな反転磁界低減効果が得られることが報告されている[2]。また、磁気異方性軸(容易軸)を傾斜させるため、スパッタ粒子入射角度が斜めになるよう基板を配置することにより結晶配向軸が傾斜した磁性膜の作製が試みられている[3]。

傾斜配向膜では、異方性軸も容易軸が傾斜した分だけ傾くが、反磁界は膜面に対して法線方向に働くので、異方性磁界と反磁界に角度差が生じる。従来は、この角度差を考慮しないまま、磁気異方性エネルギーが導出されていた。これに対して我々は、反磁界成分を含む実効的な結晶磁気異方性エネルギーK_u^{eff}と、反磁界を補正した磁性結晶粒の本質的な異方性エネルギーK_u^{grain}を分離する方法を提案した[4]。本論文では、3 次元極座標 X 線回折（XRD）によるロッキングカーブ測定、および、極 Kerr による反転磁界の角度依存性測定[5]なども含め、斜め配向膜と垂直配向膜との定量的な比較を行う。

実験結果　斜め配向膜は、基板を傾斜させてスパッタ粒子の入射角を 30°とする特殊なコリメータを用いて Pt(10 nm)/Ta(5 nm)傾斜下地層を形成した後、通常のコリメータを用いて Co/Pt 多層磁性膜を形成した。単原子 3 層の Co と単原子 2 層の Pt の組成で（Co/Pt = 3L/2L）、総厚 20nm である。3 次元 XRD による構造解析の結果、Co/Pt 磁性層が、Pt 下地層の結晶配向軸の傾斜角を保ったままヘテロエピタキシャル成長していること、そして、結晶配向軸は垂直からスパッタ入射方向へ約 8°傾いていることがわかった。

Fig.1 は、斜め配向 Co/Pt 多層膜と通常の垂直 Co/Pt 多層膜のトルク曲線である。斜め配向膜では、位相が容易軸から 14.4°、困難軸から 16.2°シフトしていることがわかる。結晶軸傾きが約 8°であるにもかかわらず、垂直反磁界の影響により、実効的な異方性軸は約 15°傾いていることを示す。このような斜め配向磁性膜において、実効的な結晶磁気異方性エネルギー K_u^{eff}、および、磁性結晶粒の磁気異方性エネルギー K_u^{grain} を導出するため、以下の方法を考案した。まず、結晶軸傾斜配向膜のエネルギーは、

$$E = K_{u1}\sin^2(\theta-\alpha) + K_{u2}\sin^4(\theta-\alpha) - M_sH\cos(\varphi-\theta) + 2\pi {M_s}^2\cos^2\theta$$

で与えられる。ここで、θ、φ、および α は、それぞれ膜面垂直方向からの磁化、磁場、および結晶軸の傾斜角度である。これより、トルク L は、

$$L = {K_u}^{eff}\sin2(\theta-\beta) + 1/2K_{u2}\sin4(\theta-\alpha)$$

となる。K_u^{eff} と K_{u2} は、測定されたトルク曲線のフーリエ解析によって得られる。ここで、β は実効的な容易軸の角度である。また、K_{u1} は、

$$K_{u1} = [-(2K_{u2} - 4\pi {M_s}^2\cos2\alpha) + \sqrt{\{16\pi^2 {M_s}^4(\cos^2 2\alpha - 1) + 4{K_u}^{eff^2}\}}]/2$$

となり、$K_u^{grain} = K_{u1} + K_{u2}$ である。したがって、磁気異方性軸の傾斜を考慮した K_u^{eff} と K_u^{grain} の両方が導出される。

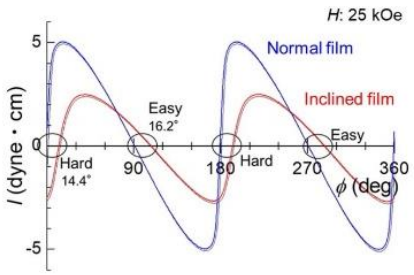


Fig. 1 Torque curves of a normal perpendicular and an inclined anisotropy Co/Pt films.

Fig.2 に、極 Kerr 装置によって測定した垂直方向の残留保持力、すなわちスイッチング磁界 H_{sw} の印加磁場角度依存性を示す。グラフの形状より、磁壁移動型ではなく微粒子型に近い磁化反転であることがわかる。また、結晶軸が 8°傾いていることに対応して、磁場角度 8°において H_{sw} が極大となっていることから、垂直方向のスイッチング磁界が低減できていることがわかる。ただし、低減率は 2.6%であり、さらなるスイッチング磁界の低減のため、ECC 構造と組合せるなどの工夫が必要である。

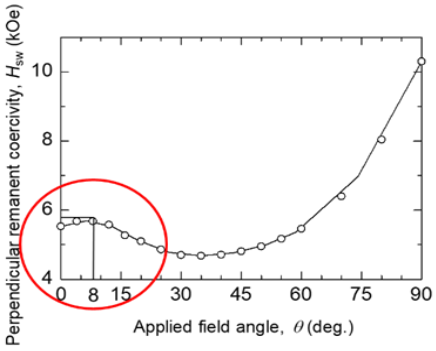


Fig. 2 Angle dependence of H_{sw} of an inclined anisotropy Co/Pt film obtained with polar Kerr measurement.

参考文献　[1] R. Victora, et al., *IEEE Trans. Magn.*, 41(2), pp.537-542 (2005). [2] N. Honda, et al., *IEEE Trans. Magn.*, 53(2), 3200207 (2017). [3] N. Honda, et al., *IEICE Technical Report*, 116, 348, MR2016-38, pp.51-56 (2016). [4] D. Miyazaki, et al., *IEEE Intermag 2020 Digests*, CS-02 (2020). [5] D. Hasegawa, et al., *J. Magn, Magn, Mat.*, 320, pp.3027-3031 (2008).

強磁性･強誘電／強磁性金属積層膜での電界印加磁気転写に向けた高飽和磁化･垂直磁化 $BiFeO_3$ 系強磁性･強誘電薄膜材料の探索

吉村 哲，山本 大地，武田 航太朗，尾関 拓海，江川 元太
(秋田大)

Development of $BiFeO_3$ based thin film materials with perpendicular anisotropy and large saturation magnetization for application to magnetization reversal of multiferroic / metallic magnetic laminated film by applying electric field

S. Yoshimura, D. Yamamoto, K. Takeda, T Ozeki, G. Egawa
(Akita Univ.)

はじめに　強磁性・強誘電材料は，電場(E)もしくは磁場(H)による磁化(M)および電気分極(P)の方向制御が可能とされていることから，電圧駆動型の革新的な次世代電子デバイス用材料として研究が活発化してきている．磁気デバイスに本材料を使用する場合，磁気特性において，垂直磁気異方性（K_u）（大きな垂直保磁力（$H_{c\perp}$）），高いスピン分極率（P），大きな磁気 Kerr 回転角（θ_k）などが求められる．著者らは近年，酸化物薄膜の，高速成膜・高電圧成膜・アーク放電の抑制，に効果的な反応性パルス DC スパッタリング法を用い，$(Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe_{0.72}Co_{0.28})O_3$ 薄膜を作製した結果，70 emu/cm^3 を超える M_s，4 kOe を超える $H_{c\perp}$，など，$BiFeO_3$ 系薄膜としてはこれまで報告されたことがない良好な磁気特性が得られたことを報告し，本薄膜において，走査型プローブ顕微鏡を用いたサブミクロンスケールでの電界印加磁化反転にも成功した[1]．しかしながら，本材料において高い K_u や P や θ_k が得られている訳ではないことから，本材料単体でデバイス化することは容易でない．本問題に対して，昨年，金属強磁性薄膜を強磁性･強誘電薄膜に積層し，積層膜への電界印加により反転した強磁性･強誘電薄膜の磁化でもって金属強磁性薄膜の磁化を反転させる「磁気転写」を提案し，強磁性･強誘電$(Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe_{0.72}Co_{0.28})O_3$ 薄膜 / 金属強磁性$[Co/Pd]_n$ - 積層膜において，そのデモンストレーションに成功した[2]．本研究では，強磁性･強誘電薄膜のデバイス応用の可能性を大いに広げる「磁気転写」をより容易に実現することが可能な，飽和磁化が大きく垂直磁気異方性を有する材料薄膜の探索を行った．

方法　$(Bi_{0.4\text{-}0.5}A_{0.6\text{-}0.5})(Fe_{1\text{-}x}M_x)O_3$（$A$ = Ca, Sr, Ba, La, Nd, Gd, M = 無し, Co）(BAFMO) 薄膜 (膜厚 200 nm) を，反応性パルス DC スパッタリング法（周波数：100 kHz，電力：150 W，デューティー比：2:1）を用いて，熱酸化膜付き Si 基板/Ta(5 nm)/Pt(100 nm)下地層上に成膜した．積層膜は，Ta を室温，Pt を 300℃，BAFMO を 695℃, の基板温度で成膜した．Bi に対する置換元素 A の置換量は約 50 at%とし，Fe に対する置換元素 M(Co) の置換量は 4, 12, 28 at%と変化させた．構造解析はX線回折装置(XRD)により，磁気測定は振動試料型磁力計(VSM)により，誘電測定は強誘電体特性評価システムにより，それぞれ評価を行った．

結果　Fig.1 に，作製した BAFMO 薄膜の M_s および $H_{c\perp}$ の置換元素材料および置換量に対する変化を示す．置換元素 A にアルカリ土類金属を用いた場合，原子番号が大きくなると M_s が増大した．ただし，Ca や Sr を用いた薄膜の結晶性が良くなく，多くの酸素欠損の存在により本来の M_s が得られないかった可能性もある．酸素欠損を抑制可能な作製方法での再検討が必要である．H_c に関しては，置換元素に関わらず，膜面垂直方向よりも面内方向の方が大きく，K_u は負であると考えられる．置換元素 A にランタノイドを用いた場合，A の置換のみでは大きな M_s と $H_{c\perp}$ は得られないが，M の Co 置換量の増大に従い，M_s も $H_{c\perp}$ も増大し，$(Bi_{0.5}Nd_{0.5})(Fe_{0.72}Co_{0.28})O_3$ 薄膜においては，高飽和磁化（M_s：120 emu/cm^3），明瞭な垂直磁気異方性（$H_{c\perp}$：3 kOe，$H_{c\perp}$ / $H_{c//}$：3），が得られた．本結果と，M のみを Co で置換した Bi(Fe,Co)O_3 薄膜においては垂直磁気異方性が見られなかった他研究の報告結果から，$BiFeO_3$ 系薄膜において大きな飽和磁化および垂直磁気異方性を得る指針として，まだ定かではないが，A を 50 at%程度のランタノイドで置換して M を 25 at%以上の Co で置換することが効果的と思われる．

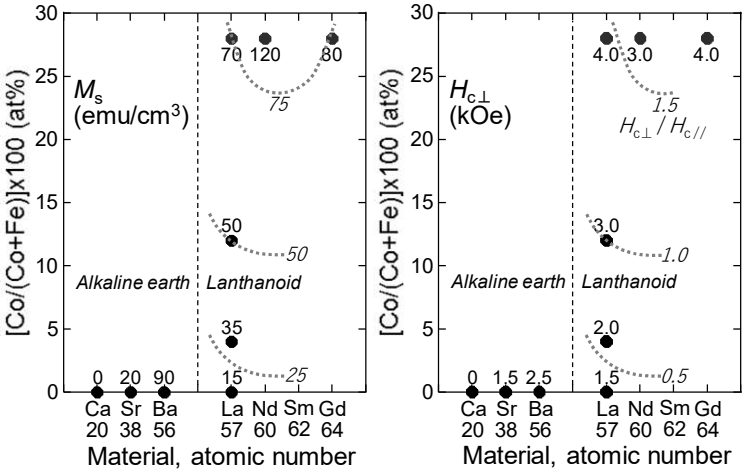


Fig. 1 M_s and $H_{c\perp}$ of (Bi,A)(Fe,M)O_3 films with various film composition.

参考文献　1) 吉村 第 42 回日本磁気学会学術講演会, 13aA-5.，2) 吉村 第 43 回日本磁気学会学術講演会, 25aB-3.

$Co_2FeSi/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$- $PbTiO_3$ 界面マルチフェロイク構造における異方性磁気抵抗効果の電界変調

宇佐見喬政[1]，藤井竣平[1]，山田晋也[2,1]，白土優[3,2]，中谷亮一[3,2]，浜屋宏平[2,1]
（[1]阪大基礎工，[2]阪大基礎工 CSRN，[3]阪大工）

Electric-field modulation of anisotropic magnetoresistance effect in $Co_2FeSi/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})$-$PbTiO_3$ heterostructures

T. Usami[1], S. Fujii[1], S. Yamada[2,1], Y. Shiratsuchi[3,2], R. Nakatani[3,2] and K. Hamaya[2,1]
([1]Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ., [2]CSRN, Osaka Univ., [3]Grad. Sch. Eng., Osaka Univ.)

強磁性体/強誘電体ヘテロ構造からなる界面マルチフェロイクの応用が期待されている [1]．界面マルチフェロイクでは，強誘電体への電界印加で生じた結晶歪みが，強磁性体/強誘電体ヘテロ界面における磁気弾性結合を介して強磁性体の磁化や磁気異方性を変調する [1,2]．強誘電体 $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$- $PbTiO_3$ (PMN-PT)は，大きな圧電定数を有することから，界面マルチフェロイクにおいて大きな磁性の変調効果が期待されている [3]．今回，PMN-PT 上への強磁性ホイスラー合金 Co_2FeSi 薄膜の作製と異方性磁気抵抗効果(AMR)の電界変調について報告する．

分子線エピタキシーを用いて Co_2FeSi 薄膜（膜厚~30 nm）を PMN-PT(001)基板上に基板温度 350°C で成長したところ，成長中の RHEED 像は 2 次元エピタキシャル成長を示唆するストリークパターンであった．Fig. 1 の面内 XRD 測定において，Co_2FeSi 薄膜の{111}面回折が観測されていることから，Co_2FeSi 薄膜が $L2_1$ 規則構造を有していることが判る．この薄膜の磁化測定の結果，飽和磁化は約 5 μ_B/f.u.となり，これまで我々が報告した高スピン偏極率 Co_2FeSi 薄膜と同等の値を示した [4]. 以上より，高品質な Co_2FeSi 薄膜を PMN-PT(001)基板上に成長することに成功したと判断した．

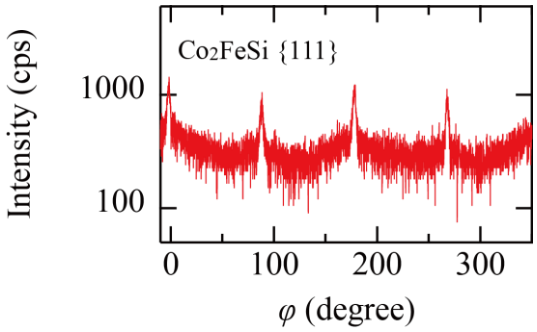


Fig. 1. XRD phi scan profile for the {111} planes of the Co_2FeSi film on PMN-PT(001).

この Co_2FeSi/PMN-PT 構造をホールバー素子に加工し，試料の[001]方向に電界 E を印加しながら AMR を測定した．Fig. 2 に Co_2FeSi/PMN-PT 構造における AMR 比，$\{[R_{\parallel}-R_{\perp}]/R_{\perp}\}\times100$ (%)，の電界依存性(-8 kV/cm → +8 kV/cm → -8 kV/cm)を示す．電界印加に伴う AMR 比の変化に加え，電界ゼロ付近にヒステリシス的な挙動が観測されている．PMN-PT(001)における分極反転電界（抗電界）は約 1.2 kV/cm と報告されており [5], 今回得られた AMR 比のヒステリシス挙動も抗電界付近で急峻な変化を示していることから，Fig. 2 に示した AMR 比の電界依存性は PMN-PT の分極反転過程を反映していると考えている．講演会では，多結晶 Co_2FeSi/PMN-PT 構造との比較をふまえて上記の現象を議論する．

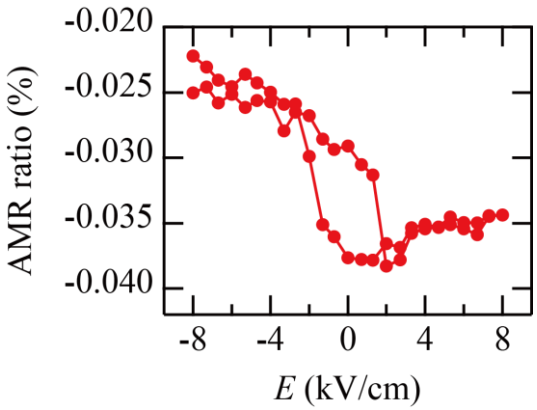


Fig. 2. Electric field dependence of the AMR ratio for an epitaxial Co_2FeSi/PMN-PT(001).

本研究は，JST-CREST(JPMJCR18J1)の支援を受けた．

[1] T. Taniyama, J. Phys. Condens. Matter **27**, 504001 (2015).
[2] S. Zhang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 137203 (2012).
[3] G. Dunzhu *et al.*, Mater. Res. Express **6**, 066114 (2019).
[4] S. Yamada *et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 082511 (2010).
[5] L. Yang *et al.*, Sci. Rep. **4**, 4591 (2015).

Voltage-controlled, strain-mediated magnetic domains in a multiferroic heterostructure having interfacial perpendicular magnetic anisotropy

S. P. Pati[1]. I. Suzuki[2], S. Sugimoto[2] and T. Taniyama[1]
[1]Department of Physics, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8602, Japan
[2]National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Significant research activities on voltage control of magnetism are progressing because of its profound physics and enormous potential for application. Recently demonstrated memory and logic devices use an interfacial multiferroic (iMF) heterostructure in order to achieve ultra-low power dissipation in the device [1,2]. To achieve high magnetoelectric coefficient (α) for higher efficiency of the device, artificial iMF heterostructures are favorable rather than single phase multiferroics. There are several ways to demonstrate iMF materials i.e. mediated by strain, exchange bias, charge, and redox etc. Strain mediated iMF comprising a ferromagnet (FM) and a ferroelectric (FE) material are proved to be promising candidates. In this work, we demonstrate the effect of voltage induced polarization switching of a FE PMN-PT substrate on the magnetic domain switching of coupled perpendicularly magnetized Ni/Cu multilayers.

We fabricated a multilayer heterostructure of PMN-PT (001) (sub.)/Fe(1)/Cu(9)/[Ni(2)/Cu(9)]$_8$/Au(5) by using ultra-high vacuum molecular beam epitaxy (MBE). X-ray diffraction measurement confirmed the epitaxial growth of the multilayers. Room temperature magnetic hysteresis measurements in the in-plane and out-of-plane magnetic fields by a vibrating sample magnetometer (VSM) reveals the interfacial perpendicular magnetic anisotropy (iPMA) due to tensile strain in the Ni layers sandwiched between the Cu layers. One of the main challenges in realizing mutiferroic based magnetoelectric memories is to switch perpendicular magnetic anisotropy with a control voltage. Electric field dependent magnetic domain structure was captured by magneto-optical Kerr effect (MOKE), where voltage was applied across the thickness of the heterostructure. Fig. 1 (a) and (b) demonstrates the Kerr microscopy results measured at 0 V and +50V respectively with a magnetic field of -45 Oe. A clear change of contrast was demonstrated attributing the voltage induced domain switching. A gradual evolution of magnetic domains was realized by varying the applied voltage. This result was supported by voltage dependent Kerr spectroscopic signal, which exhibits mostly a hysteresis like curve due to non-volatile switching of PMN-PT polarization (109° switching). In general, when FE domains of PMN-PT undergo 109° switching, it leads to a change in the elongated diagonal direction from the [110] axis to the [-110] axis due to the rhombic distortion. Strain mediated magnetization switching occurs with the application of electric field ≈ ± 60 V (≈1.2 kV/cm). Moreover, gradual increase in the initial value of Kerr signal was also detected while measuring minor loops of different cyclic electric fields (Fig.2). Distinct voltage induced lattice strain in the PMN-PT substrate should play an important role in the switching process of the perpendicular magnetization of the Ni layers, giving rise to the ME effect in the heterostructure.

This work was supported in part by by JST CREST Grant No. JPMJCR18J1, JSPS Bilateral Joint Research Projects Grant No. JPJSBP120197716, and the Asahi Glass Foundation.

Reference

1) N.A. Spaldin *et al.* Nat. Mater. **18**, 203 (2019)
2) J.-M Hu *et al.* Nat. Commun. **2**, 553 (2011)

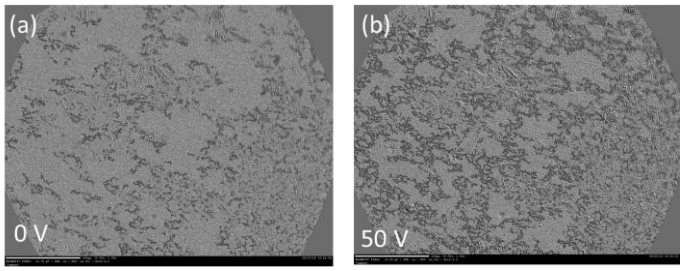


Fig. 1 Voltage dependent magnetic domain structure in FE/FM heterostructure with application of a gate voltage of (a) 0 V and (b) 50 V

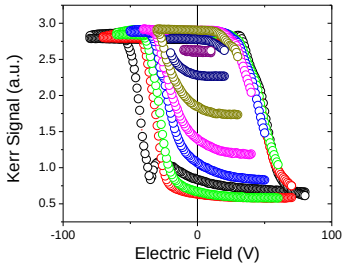


Fig. 2. Electric field dependent Kerr signal demonstrating the multilevel switching of magnetization.

$Fe_3Si/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})$-$PbTiO_3$ 構造の磁気伝導特性

藤井竣平[1]，宇佐見喬政[1]，山田晋也[2,1]，白土優[3,2]，中谷亮一[3,2]，浜屋宏平[2,1]
([1]阪大基礎工，[2]阪大基礎工 CSRN，[3]阪大工)

Magnetotransport properties of a $Fe_3Si/Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})$-$PbTiO_3$ interfacial multiferroic heterostructure

S. Fujii[1], T. Usami[1], S. Yamada[2,1], Y. Shiratsuchi[3,2], R. Nakatani[3,2], K. Hamaya[2,1]
([1]Grad. Sch. Eng. Sci., Osaka Univ., [2]CSRN, Osaka Univ., [3]Grad. Sch. Eng., Osaka Univ.)

強磁性体/強誘電体ヘテロ界面を用いたマルチフェロイクの応用が期待されている[1]．これまで，様々な強磁性薄膜/$Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})$-$PbTiO_3$ (PMN-PT)ヘテロ構造において磁化や磁気異方性等の電界制御が報告されているが[2]，ホイスラー合金 Fe_3Si/PMN-PT 系の報告例はない．本講演では，分子線エピタキシー(MBE)を用いて作製した Fe_3Si/PMN-PT 界面マルチフェロイク構造の作製とその磁気伝導特性について述べる．

MBE[3]を用いて Fe_3Si 薄膜(膜厚: ~30 nm)を PMN-PT(001)基板上に基板温度 350℃で成長したところ，RHEED 像は明瞭なストリークパターンを示したことから，2 次元エピタキシャル成長に成功したと考えられる．面内 XRD 測定から Fe_3Si 薄膜は PMN-PT(001)基板に対して面内に 45° 回転して成長していることが判明した．また，4 回対称の{111}ピークの観測から，Fe_3Si 薄膜中には DO_3 規則構造が形成されていることが確認された．

Fe_3Si 薄膜の面内結晶方位[100]または[110]方向に電流 I を印加することのできる 2 種類のホールバーを作製し(Fig.1 挿入図), 静磁場を約 2 kOe 印加した状態で面内に回転しながら抵抗値 R の変化を測定した．抵抗値の変化から AMR(%){= [$R(\phi)$-$R_\perp$]/ $R_\perp$ × 100}の角度(ϕ)依存性を算出した結果を Fig. 1 に示す．ここで，ϕ は電流 I と印加磁場方位のなす角である．電流 I を[110]方向に印加した場合は AMR 比が負で比較的大きな値を示す一方で，[100]方向に対しては正を示し，その大きさは 4 分の 1 程度であった．このような AMR 比の正負混在の挙動は，Fe_3Si/GaAs(001)エピタキシャル薄膜の先行研究と一致しているが[4], 詳細なメカニズムは未だ不明である．

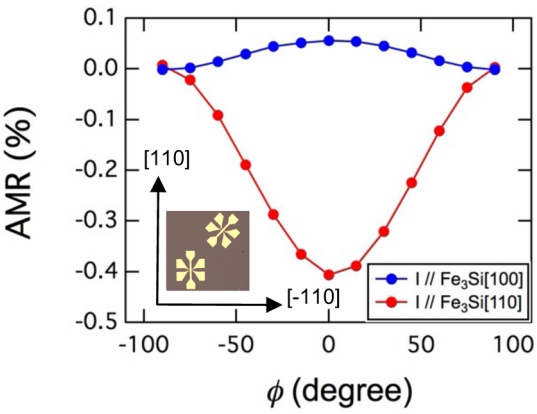


Fig. 1. AMR ratio for Fe_3Si[100] and [110] Hall-bar devices. $\phi = 0$ means that the current direction is parallel to the external magnetic field of 2 kOe.

これらのホールバー試料に対して，PMN-PT の[001]方向に電界 E を-8 kV/cm から+8 kV/cm の範囲で印加し，各電界において，EMR(%) = [AMR(E)-AMR(0)]/AMR(0) × 100 としてプロットした結果が Fig. 2 である．EMR 比の変化は Fe_3Si[100]方向のホールバー試料の方が顕著であることがわかる．この挙動は，電界印加時に PMN-PT 中に生じる分極方向(Fig. 2 挿入図)[5]と関連しており，Fe_3Si/PMN-PT 界面の磁気弾性結合を捉えている結果であると考えられる．

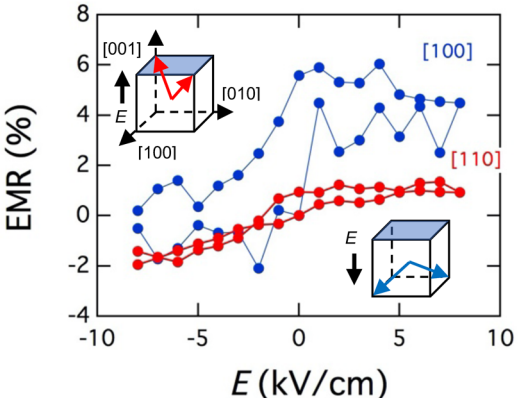


Fig. 2. EMR ratio for Fe_3Si[100] and [110] Hall-bar devices. The inset shows the polarization vector under different voltages. The red and blue arrows in the cubic crystal indicate the direction of the polarization in PMN-PT.

本研究は，JST-CREST(JPMJCR18J1)の支援を受けた．

[1] T. Taniyama, J. Phys: Condens. Matter. **27**, 504001 (2015).
[2] T. Wu *et al.,* Appl. Phys. Lett. **98**, 012504 (2011).
[3] K. Hamaya *et al.*, Appl. Phys. Lett. **93**, 132117 (2008).
[4] H. Y. Hung *et al.*, J. Cryst. Growth **323**, 372 (2011).
[5] S. Zhang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 137203 (2012).

位相的データ解析を用いた強磁性形状記憶合金における自由エネルギー推定

仙井　遼平[1]，Alexandre Lira Foggiatto[1]，小嗣　真人[1]

（東京理科大学[1]）

Prediction of free energy in ferromagnetic shape memory alloy by using topological data analysis

Ryohei Seni[1], Alexandre Lira Foggiatto[1], Masato Kotsugi[1]

(Tokyo Univ. of Sci.[1])

はじめに

近年、IoT の急速な普及に伴い、デバイスの電源を安定的に確保する方法として注目されているのが、強磁性体形状記憶合金（FSMA）の磁歪を用いた環境発電である[1]。FSMA はマルテンサイト変態によるマルチバリアント組織を有しており金属組織と磁区構造の間には複雑な自由エネルギーのやりとりがあるため、微視的な組織構造と巨視的な機械的特性の対応関係は未だ完全に明らかにされていない。

そこで我々は位相的データ解析を用いて微視的な磁区構造と巨視的な弾性ひずみの対応関係を構築することを試みた。パーシステントホモロジー(PH)は上記の微細組織の特徴抽出をする上で有用な手法である[2]。また本研究では弾性ひずみの背後にある弾性エネルギーに対し、教師なし学習による推定を試みた。

実験方法

研究では FePd の磁区構造を Landau–Lifshitz–Gilbert(LLG)方程式で、マルテンサイト組織を時間依存の Ginzburg–Landau(TDGL)方程式によって計算し、内部応力を共有することで、FSMA のマルチバリアントと磁区構造を計算した(Fig. 1)[3]。得られた磁区構造は実際に観察された Fe-31.2at%Pd の磁区と近い構造を有しており[4]、妥当な計算結果と考えられる。得られた磁区構造に対して PH を適用し、パーシステンス図の主成分分析(PCA)を行った。

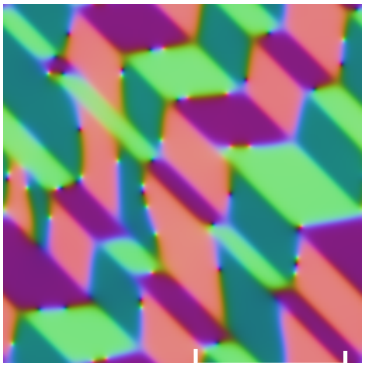


Fig.1 The magnetic domain structure simulated by LLG equation.

実験結果

第一主成分と磁気弾性エネルギーの間には相関があることが分かった(Fig. 2)。また他のエネルギー項についても、同様に正の相関があることが分かった。これによって磁区構造の幾何学的情報のみから内在する全エネルギー項の推定が可能であることが示唆された。

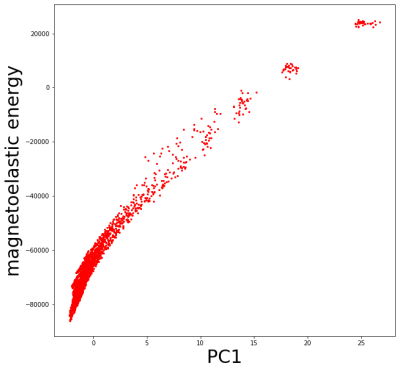


Fig.2 The plot diagram of first principal component (PC1) vs magnetoelastic energy

参考文献

[1] T.Ueno, Journal of Applied Physics ***117*** (2015), 17A740.

[2] T. Yamada, et al. J. Vac. Surf. Sci. ***62***, (2019), 153.

[3] Li, L. J., *et al*. Acta Materialia ***59*** (2011), 2648-2655.

[4] Y.Murakami, *et al.* Acta Materialia ***54*** (2006), 1233-1239.

位相的データ解析を用いた磁化反転過程における拡張型ランダウ自由エネルギー地形の描画

國井創大郎、Alexandre Lira Fogiatto、三俣千春、小嗣真人
（東理大基礎工、物質・材料研究機構）

Drawing of Extended-Landau free energy in magnetic reversal process using Topological data analysis

Sotaro Kunii、Alexandre Lira Fogiatto、Chiharu Mitsumata、Masato Kotsugi
(Tokyo Univ. of Science、NIMS)

はじめに

電気自動車の急速な普及（EV シフト）を背景に、モータのエネルギー変換効率の向上が求められている。モータでは軟磁性材料の保磁力の抑制が求められており、保磁力を決定付ける磁化反転現象の理解は極めて重要である。磁化反転は自由エネルギー地形の鞍点によって特徴づけられ、伝統的には磁化と外部磁場を説明変数とするランダウ理論が広く知られている。その一方、ランダウ理論では平均場を仮定しているため、磁化分布の空間不均一性を取り扱うことが困難であり、実材料の磁化反転現象を説明することは困難であった。そこで本研究では、Persistent homology（PH）を用いて磁区構造の形状を特徴抽出し、得られた特徴量を説明変数とする新たなモデル「拡張型ランダウ自由エネルギー地形」を描画した。特に、磁化分布の不均一性を取り扱え、磁化反転挙動の説明が可能なモデルを教師なし機械学習によって定めた。

実験方法

実験は、LLG 方程式を用いて、異なる位置に点欠陥を持つパーマロイ薄膜の正方形の系に対してシミュレーションを行った。磁区画像は PH 解析を行い、Persistence Diagram（PD）を出力し特徴抽出を行った。教師なし機械学習は多次元尺度構成法（MDS）を用い、2 次元に次元削減を行った。

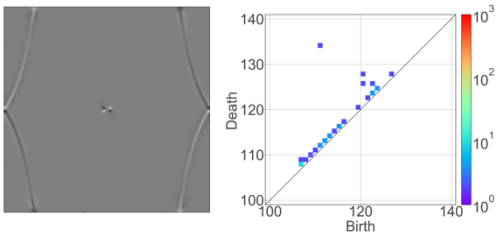


Fig.1 Generated magnetic domain image(left) and PD(right)

実験結果

Fig.1 に中央に 10 px の正方形の欠陥を入れた、シミュレーションで生成された前駆現象の z 成分の磁区画像（左）と対応する 0 次元の PD（右）を示した。PD では、z 成分への漏れ磁場による欠陥周囲の磁化の変化及びブロッホ磁壁、磁化の回転を特徴抽出した。

Fig.2 に MDS で得られた散布図を示す。静磁エネルギーと交換エネルギーを合計した自由エネルギーは、中央から円錐状に連続的に分布することが確認できた。また、飽和磁化領域のデータ点は中心に集中し、磁化反転に伴い中心から外側に移動し、保磁力近傍では中心から大きく離れた領域に円周上に分布することが確認できた。MDS におけるデータ間の距離は形の違いを反映するため、本図では磁区構造変化と自由エネルギーの変化を同時に表現できたと示唆される。

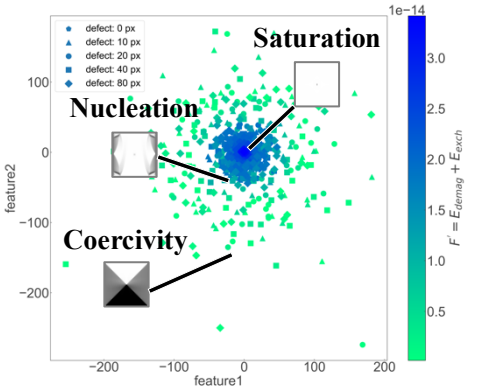


Fig.2 Scatter plot using MDS (dots show magnitude of sum of exchange and demanganization energy)

参考文献

1) A. Vansteenkiste *et al*., AIP Advances **4**, 107133 (2014)
2) T. Yamada and M. Kotsugi *et al.* , Vac. Surf. Sci. ***62***, (2019) 153
3) I. Obayashi, Y. Hiraoka, and M. Kimura J. Appl. Comp. Topo. 1 (2018) 421-449

磁気光学測定によるコバルトフェライト薄膜の局所歪みの評価

王 世浩、西川 雅美、石橋 隆幸
(長岡技科大)

Characterization of local structure in cobalt ferrite thin films by magneto-optical spectroscopy

Shihao Wang, Masami Nishikawa, Takayuki Ishibashi
(Nagaoka Univ. of Tech.)

コバルトフェライト(CFO)薄膜は正方歪みを導入することにより、大きな垂直磁気異方性を示す[1]。この原因は、Co^{2+}を含む８面体の歪みが原因と考えられている[2]。しかし、磁気異方性増大のメカニズムに関して局所的な歪みとの関係は、これまで実験的に明らかになっていない。そこで本研究では、歪みの異なるCFO 薄膜[3]について、可視から近赤外領域の磁気光学スペクトルを測定し、Co^{2+}に関連した光学遷移について調査を行った。

CFO 薄膜は、有機金属分解(MOD)法を用いて作製した。ガラス基板へ MOD 溶液(CoFe-O4(1:2), (株)高純度化学研究所)をスピンコートにより塗布(3000 rpm, 30 sec)し、乾燥（100℃，10 min）をホットプレートで行った。その後、管状炉を用いて仮焼成（Tpre :310~350℃，30 min）および本焼成（730℃, 10 h; N_2 流量: 400 mL/min）を行った。磁気光学スペクトルの測定は、円偏光変調法を用いたマルチチャンネル磁気光学スペクトロメーター[4]を使用した。測定の波長範囲は　350~2100 nm とした。

Fig.1 に CFO 薄膜の Faraday 楕円率スペクトルを示す。すべての試料について、400~900 nm の波長範囲に Co^{2+}(Oh)-Fe^{3+}(Oh) 電荷移動遷移(CT 遷移)と Co^{2+}(Td) $^4A_2$-$^4T_1$(P) 結晶場遷移(d-d 遷移)が重畳した信号と 1300~1700 nm に Co^{2+}(Td)の $^4A_2$-$^4T_1$(F) d-d 遷移による信号が観察された。また、仮焼成温度が異なると、400~900 nm のスペクトル構造が大きく変化した。一方、1300~1700 nm の Co^{2+}(Td) の d-d 遷移は、仮焼成温度の変化に対して変化しないため、400~900 nm 範囲における変化は Co^{2+}(Oh)-Fe^{3+}(Oh) CT 遷移による信号強度が変化したものと考えられる。

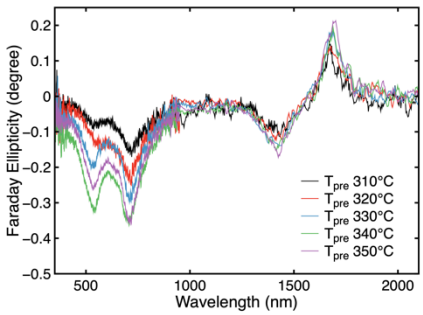


Fig.1 Faraday ellipticity spectra of CFO thin films.

Fig.2 に CFO 薄膜の仮焼成温度と面外方向の格子定数および 540 nm におけるファラデー楕円率の関係を示す。このグラフから、格子定数は仮焼成温度が高くなると、格子定数が小さくなり、340℃の時に最低となり、350℃では少し大きくなっている。楕円率の大きさにも同じ傾向が見られたため、CFO 薄膜に生じた歪みと楕円率の大きさとの間に相関があることが示唆された。

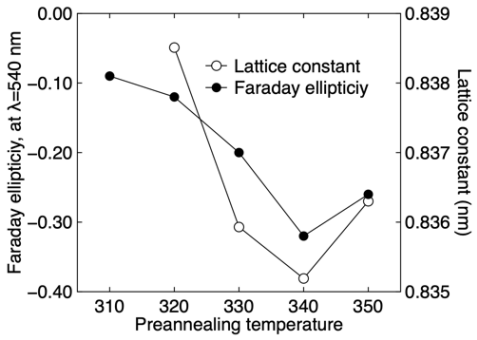


Fig.2 Faraday ellipticity at 540 nm and lattice constant of CFO thin films.

本研究の一部は、JST 委託研究「電子論に基づいたフェライト磁石の高磁気異方性化指針の確立」の助成を受けて行われた。

参考文献

1) T. Niizeki et al., Appl. Phys. Lett., 103(16), 2013, 162407.
2) J. Inoue, H. Yanagihara, E. Kita. Mat. Res. Exp., 1(4), 2014, 046106.
3) K.Yasuda, M. Nishikawa, T. Ishibashi, Jpn. J. Appl. Phys., 59(SE), 2019, SEEA01.
4) S. Wang et al., Jpn. J. Appl. Phys., 59(SE), 2019, SEEA02.

ナノワイヤーAg/Bi:YIG 複合構造体におけるファラデー効果の FDTD シミュレーション

Ilham Surya Priasmoro，髙田一紀，Nanda Aulia Rahma，水戸慎一郎*，後藤太一，中村雄一，
P. B. Lim，井上光輝**，内田裕久
（豊橋技科大，*東京高専，**高専機構）

FDTD simulation of the Faraday effect on nanowire Ag / Bi: YIG composite structure

S. P. Ilham, K. Takada, A. R. Nanda, S. Mito*, T. Goto, Y. Nakamura, P. B. Lim, M. Inoue**, H. Uchida
(Toyohashi Univ. of Tech., *NIT, Tokyo College, **National Institute of Technology)

はじめに

ビスマス置換イットリウム鉄ガーネット(Bi:YIG)は強い磁気光学効果と高い透過率を備えた、磁気光学用途に適した材料である。しかし Bi:YIG はファラデー回転角がそれほど大きくないため、大きな回転角を得るためには厚い材料が必要になる。よって薄膜の磁気光学デバイスでは利用できる角度に制限がある。これを解決する 1 つの方法は貴金属粒子で発生する局在型表面プラズモン共鳴を利用することである [1]。しかしファラデー回転角の増加が得られるが透過率が低くなってしまうという欠点があった。したがって、本研究では、この欠点を克服することを目的として、断面が長方形のナノワイヤーAg/Bi:YIG 複合構造体について FDTD シミュレーションを用いて透過率が高く、ファラデー回転角が大きくなる構造について考察する。

磁気光学応答の FDTD シミュレーション

シミュレーションで用いた構造のモデルを Fig. 1 に示す。ナノワイヤーAg の断面は長方形であり，その周りに Bi:YIG がある複合薄膜である。Bi:YIG の膜厚は 110 nm であり、Ag の断面は幅 85 nm、高さ 110 nm、Ag ナノワイヤーの周期は 340 nm である。垂直に入射する偏光の電界面が x 軸方向と同じ向きのときを 0 deg.とし、90 deg.（y 軸方向）まで変化させた。

Fig. 2 に計算で求めた(a)透過率と(b)ファラデー回転角のスペクトルを示す。Fig. 2(a)より、どの角度でも 620 nm 以上の波長では高い透過率を示している。また偏光の角度が 40 deg、波長 605 nm のとき、波長 600 nm で透過率 47.5%が得られ、ファラデー回転角は-3.17 deg まで増大した。またこの波長では楕円率が 0.05 deg.とたいへん小さかった。このことから、この構造では、高い透過率と大きなファラデー回転角が得られるだけでなく、透過光もほぼ直線偏光になっている結果が得られた。ファラデー回転角の増大のメカニズムを理解するために、この構造の電界強度分布の解析を行なったところ、この構造では Ag ナノワイヤでの光吸収が起き、局在型表面プラズモン共鳴が発生していることがわかった。

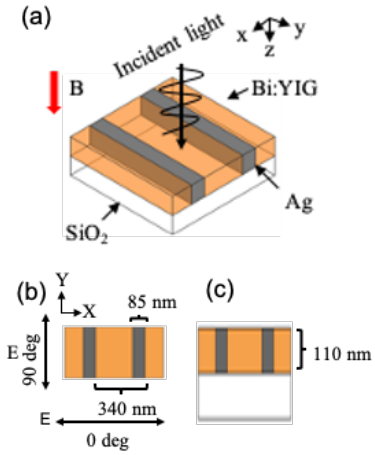


Fig. 1 Model of nanowire Ag / Bi: YIG composite structure (a) 3D view (b) Top view (c) Front view

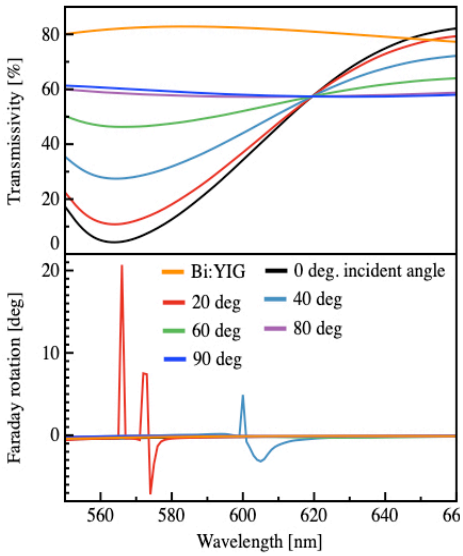


Fig. 2 Calculated transmissivity and Faraday rotation spectra when the angle of the incident polarization plane is changed from 0 to 90 deg.

参考文献

1) H Uchida et al, J. Phys. D: Applied Physics. 44, No. 6, p.064014. (2011).

水素アニールによる保磁力 15 kOe の Si 基板上 $L1_0$-CoPt の作製

遠山諒[1]、河智史朗[2,3]、山浦淳一[2,3]、村上洋一[2,3]、細野秀雄[2]、真島豊[1,2]
([1]東工大フロンティア材料研究所、[2]東工大元素戦略研究センター、[3]KEK 物質構造科学研究所)

Fabrication of $L1_0$-ordered CoPt with high coercivity of 15 kOe on Si substrates by hydrogen annealing

R. Toyama[1], S. Kawachi[2,3], J. Yamaura[2,3], Y. Murakami[2,3], H. Hosono[2], Y. Majima[1,2]
([1] MSL, Tokyo Tech, [2] MCES, Tokyo Tech, [3] IMSS, KEK)

はじめに

CoPt 合金は、アニール処理によって $A1$ 不規則相から $L1_0$ 規則相に構造変態すると、強い垂直結晶磁気異方性や高い保磁力を示すことが知られており、MRAM や超高密度 HDD などの次世代スピントロニクスデバイスへの応用を見据えた研究がなされている[1,2]。我々はこれまでに、Si 基板上に作製した CoPt 薄膜の結晶構造、磁気特性、表面形態の解析を行い、真空アニール後に $L1_0$-CoPt が形成されることを報告してきた[3,4]。Pt/Co 二層蒸着薄膜においては、急速加熱 (RTA) 装置を用いたアニールによる相互拡散により、$L1_2$-$CoPt_3$、$L1_0$-CoPt、$L1_2$-Co_3Pt を含む傾斜薄膜が形成され、2.1 kOe の保磁力を示した[3]。さらに、二層膜と総膜厚のほぼ等しい$(Co/Pt)_4$ 八層薄膜においては、真空アニール後に球状の $L1_0$-CoPt が形成され、2.7 kOe の保磁力を示すことを報告した[4]。本研究では、さらなる保磁力の向上に向けて、保磁力の増大が報告されている水素アニール[5]を導入し、Si 基板上 CoPt 薄膜の磁気特性、結晶構造、表面形態の解析を行ったので報告する。

実験方法

電子線蒸着により、熱酸化膜付き Si 基板 [Si (525 μm)/SiO_2 (50 nm)] 上に、[Co (1.2 nm)/Pt (1.6 nm)]$_4$ 多積層薄膜を作製した。その後、Ar/H_2 混合ガス雰囲気下において、RTA 装置を用いたアニール処理を行い、$L1_0$ 規則化を試みた。作製した試料の磁気特性、結晶構造、表面形態は、それぞれ SQUID VSM (MPMS3)、放射光 XRD (KEK BL-8B)、SEM により評価した。

実験結果

VSM 測定結果より、800 °C で 60 分のアニール処理を行った試料において、約 15 kOe の高い保磁力を示すことが分かった。また、放射光 XRD の結果より、$L1_0$-CoPt *001*, *110* に起因する超格子反射を確認したことから、$L1_0$ 規則相の形成を確認した。これらの結果から、水素雰囲気中のアニール処理によって、高い保磁力を持つ $L1_0$-CoPt の Si 基板上への作製が確認された。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省「元素戦略プロジェクト＜研究拠点形成型＞」、東京大学物性研究所共同利用の支援により行われた。

参考文献

[1] S. Bhatti, R. Sbiaa, A. Hirohata, H. Ohno, S. Fukami, and S. N. Piramanayagam, Mater. Today **20**, 530 (2017).
[2] D. Weller and A. Moser, *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 4423 (1999).
[3] R. Toyama, S. Kawachi, S. Iimura, J. Yamaura, Y. Murakami, H. Hosono, and Y. Majima, *Mater. Res. Express* **7**, 066101 (2020).
[4] R. Toyama, S. Kawachi, J. Yamaura, Y. Murakami, H. Hosono, and Y. Majima, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, 075504 (2020).
[5] F. Yang, H. Wang, H. Wang, J. Zhang, J. Zhu, Q. Li, and Y. Jiang, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 115001 (2009).

パルスレーザー蒸着(PLD)法による Cu 下地層の最適化および $L1_0$-FeNi 磁性薄膜の作製

中尾 太一[1], 宮下 拓也[1], 熊谷 卓也[1], 齋藤 彪我[1], 古矢 大悟[1], 小嗣 真人[1]
(東京理科大学[1])

Fabrication of Cu under layer and $L1_0$-FeNi by using Pulsed Laser Deposition system

T. Nakao[1], T. Miyashita[1], T. Kumagai[1], H. saito[1], D. Furuya[1], M. Kotsugi[1]
(Tokyo Univ. of Sci.[1])

緒言

近年、レアアースの価格高騰と供給不足への懸念から、ありふれた元素のみで構成されるレアアースフリー磁性材料に注目が集まっている。そこで我々は、Fe と Ni が c 軸方向に交互に積層した構造を持つことで面直方向に磁化用意軸を持ち、非常に高い磁気異方性(K_u)を発現すると期待されている $L1_0$-FeNi に着目し研究を進めてきた[1]。そして、パルスレーザー蒸着(PLD)法を用いて $L1_0$-FeNi の作製を試みた結果、蒸着時基板温度 300℃にて作製試料中で最大の K_u を観測した[2]が垂直磁化の実現には至らず、表面状態や結晶構造のさらなる最適化が必要であると考えられる。本研究では下地層の構成の簡便化と各条件の最適化を行い、異種元素の添加などから下地層の格子定数を制御し FeNi へ結晶歪みを導入し K_u を向上させることを目的としている。本報告では PLD 法により作製した下地層の Cu を蒸着後加熱により最適化し、今回作製した新下地層と従来の下地層を用いて作製した FeNi 薄膜の比較を行った。また、新下地上に作製した FeNi の蒸着時基板温度ごとの各物性の調査を行なった。

実験方法

PLD 法により MgO(100)基板上に Cu を室温で 25 nm 蒸着し、その後 300℃で 30 分間加熱し新下地層 Cu(25 nm)/MgO-sub を作製した。FeNi 層は Fe と Ni を交互に 50ML 積層し、従来の下地層 Cu(50 nm)/Au(10 nm)/Fe(1 nm)/MgO-sub 上に作製した FeNi との比較を行なった。また、新下地での FeNi の蒸着時基板温度(T_s)を室温(RT)~400℃の間で変化させながら試料を作製し物性の調査を行なった。表面の平坦性の評価には反射高速電子線回折(RHEED)・原子間力顕微鏡(AFM)、結晶構造の評価には X 線回折(XRD)、磁気特性の評価には超伝導量子干渉磁力計(SQUID)を用いた。

実験結果

Fig.1 に従来の Cu/Au/Fe/MgO-sub 下地上に T_s = 300℃で積層した FeNi と、今回新たに作製した Cu/MgO-sub 新下地上に同条件で作製した FeNi について SQUID により測定した磁化曲線を示す。Cu/MgO-sub 新下地を用いた FeNi の飽和磁化 M_s は 660 emu/cc、K_u は 6.78x10^5 erg/cc と従来の下地を用いた試料と同程度の値となることが確認できた。当日は Cu/MgO-sub 新下地の平坦性や結晶性の評価、T_s を変え作製した試料の表面形状、結晶構造、磁気特性の詳細についても報告する。

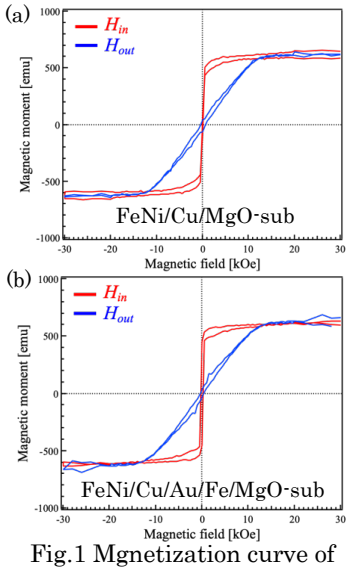


Fig.1 Mgnetization curve of (a)new under layer, (b)previous under layer FeNi deposition at 300℃

参考文献

[1] M. Kotsugi *et al.*, Appl. Phy. Express 3, 013001, (2010)
[2] M. Saito *et al.*, Appl. Phy. Letters 114, 072404, (2019)

六方晶系 FeNi 多層膜の作製と磁気特性調査

宮下拓也[1]、齋藤彪我[1]、中尾太一[1]、熊谷卓也[1]、古矢大悟[1]、小嗣真人[1]
(東京理科大[1])

Investigation of fabrication and magnetic property of hexagonal-FeNi multilayer films

Takuya Miyashita[1], Hyuga Saito[1], Taichi Nakao[1], Takuya Kumagai[1], Daigo Furuya[1] and Masato Kotsugi[1]
(Tokyo Univ. of Sci.[1])

緒言

近年の急速な情報化社会の発展や環境・エネルギー問題に対する解決策の一つとして、我々のグループでは $L1_0$-FeNi を代表とする規則合金薄膜の開発を行ってきた[1][2]。特に FeNi 合金はレアアースフリーであり、高い飽和磁化(M_s)を有し、構造を適切に制御することで高い磁気異方性(K_u)を有することから、垂直磁化膜やスピントロニクス材料の候補として注目を集めている[3][4]。そこで今回この正方晶系(fct)の規則合金の構造を、理論予測からも高い磁気特性を有すると予測されている六方晶系(hex)に拡張し高い磁気異方性を誘起することに着目した。しかし hex-FeNi は熱的に平衡相でなく、作製が非常に困難であるとされてきた。本研究では一般的に酸化物薄膜の作製に使用されるパルスレーザー蒸着(PLD)法を金属薄膜の作製に応用することで非平衡相の作製に取り組んだ。

方法

基板として六方晶構造を有する Al_2O_3(0001)基板を使用し、基板上に Cu を PLD 法により蒸着した。この時の蒸着時基板温度(T_s)、蒸着後熱処理温度(T_p)、蒸着後熱処理時間(t_p)を変化させ系統的に調査し平坦かつ結晶性の高い下地層を作製した。FeNi 層は最適化した Cu 下地層上に積層し、同様に T_s を変化させ調査した。表面平坦性及び表面形状の評価を反射高速電子線回折(RHEED)と原子間力顕微鏡(AFM)、結晶構造の評価を X 線回折(XRD)、磁気特性の評価を超伝導量子干渉磁力計(SQUID)を用いて行った。

結果考察

Fig.1 に磁気特性調査から算出された M_s、K_u をまとめた結果を示す。まず T_s と M_s、K_u の関係であるが、どちらも 300 ℃にて最大値をとったことを確認した。平坦性、結晶性の評価も含め、低温領域では結晶性が低いこと、高温域ではインターミキシングにより界面構造が崩壊したことにより、磁気特性が T_s ＝ 300 ℃にて最大となったと考えられる。またこの時点で本研究にて作成された FeNi 薄膜が、同 PLD によって作製された $L1_0$-FeNi よりも高い磁気特性を有することが確認できた。当日は下地層に関する調査結果や FeNi 薄膜の表面状態、結晶状態に関する詳細な結果も報告する。

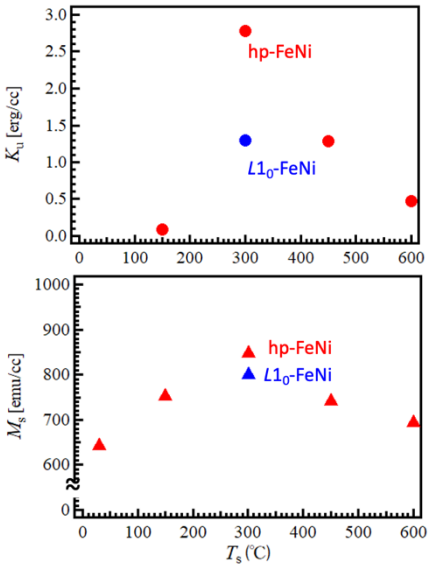


Fig.1 Relationship of T_s vs M_s and K_u for hex-FeNi. $L1_0$-FeNi for comparison is fabricated by our group[1].

参考文献

1) M. Saito et al., Appl. Phy. Letters **114,** 072404, (2019)
2) H. Ito et al., AIP Advances **9,** 045307, (2019)
3) M. Kotsugi et. al., Appl. Phy. Express **3**, 013001, (2010)
4) M. Kotsugi et al., Journal of Magnetism and Magnetic Materials **326**, 235-239 (2013)

Cr(001)下地層上に形成したエピタキシャル Mn-Ge 合金薄膜の構造解析

野呂翔太[1]・中野光太郎[1]・大竹充[1]・二本正昭[1]・川井哲郎[1]・桐野文良[2]・稲葉信幸[3]
([1]横浜国大，[2]東京藝大，[3]山形大)

Structure Analysis of Epitaxial Mn-Ge Alloy Thin Films Formed on Cr(001) Underlayers

Shota Noro[1], Kotaro Nakano[1], Mitsuru Ohtake[1], Masaaki Futamoto[1], Tetsuroh Kawai[1], Fumiyoshi Kirino[2], Nobuyuki Inaba[3]
([1]Yokohama Nat. Univ., [2]Tokyo Univ. Arts, [3]Yamagata Univ.)

はじめに　大きな一軸磁気異方性エネルギー（K_u），小さな飽和磁化（M_s），小さなダンピング定数（α）をもつ硬磁性規則合金材料は，スピン注入型磁気抵抗メモリの磁気トンネル接合素子への応用に向けて研究されている．$L1_0$（CuAu 型，$tP4$），$D0_{22}$（Al_3Ti 型，$tI8$）構造を持つ Mn 系合金はこれらの特性を満たす材料として注目されている．$D0_{22}$ 構造を持つ Mn_3Ge 合金は，M_s が 100 emu/cm^3 程度と Mn 系磁性合金の中でも特に小さく，K_u も 10^7 erg/cm^3 オーダーと大きい[1]．これまでスパッタ法を用いて製膜を行い，100 nm 厚程度の Mn_3Ge 薄膜が $D0_{22}$ 構造を持ち，垂直磁気異方性を有することが調べられてきた[1]．しかしながら，デバイス応用について考えるためには数～数十 nm オーダーの膜厚における構造と磁気特性を把握する必要がある．本研究では，RHEED による結晶成長のその場観察が可能な分子線エピタキシー（MBE）法を用いて Cr(001)単結晶下地層上に Mn-Ge 薄膜を作製し，組成が成長，構造，磁気特性に及ぼす影響について系統的に調べた．

実験方法　MgO(001)基板上に 300 °C の基板温度で 5 nm 厚の Cr(001)下地層を形成し，その後，20 nm 厚の Mn_xGe_{100-x}（at. %）膜を作製した．組成は $x = 0$～100 の全範囲で変化させた．その場観察による結晶構造評価には RHEED，格子定数や規則度の評価には XRD，表面形態観察には AFM，磁化曲線測定には VSM を用いた．

実験結果　異なる組成の Mn-Ge 薄膜に対して観察を行った RHEED パターンを Fig. 1 に示す．$Mn_{75}Ge_{25}$ 周辺において，Fig. 1(c-1)，(c-2)のように成長初期段階から，Fig. 1(c-3)に示す $D0_{22}$ 構造に対応するパターンが得られ，Mn-Ge(001)[100]$_{D0_{22}}$ ‖ Cr(001)[1$\bar{1}$0]の結晶方位関係で $D0_{22}$ 構造を持つ Mn-Ge(001)単結晶膜が得られていることが分かった．$D0_{22}$ 構造の化学量論組成から Mn の割合を減らしていくと，$Mn_{50}Ge_{50}$ 周辺においては，Fig. 1(b-3)に示す格子定数が 0.94 nm 程度の単純立方格子（cP，原子数不明）を有する結晶表面のパターンが Fig. 1(b-1)，(b-2)のように見られ，Mn-Ge(001)[1$\bar{1}$0]$_{cP}$ ‖ Cr(001)[1$\bar{1}$0]の方位関係で単結晶膜が成長していることが分かった．これはバルクでは報告のない相であり，薄膜特有の相であると考えられる．さらに Mn の割合の小さい $Mn_{20}Ge_{80}$ の組成周辺においては，Fig. 1(a-3)に示す $A1$（fcc）構造のパターンが，Fig. 1(a-1)，(a-2)のように見られ，Mn-Ge(001)[100]$_{A1}$ ‖ Cr(001)[1$\bar{1}$0]の方位関係で単結晶膜が成長していることが分かった．Mn リッチの組成域においては，Fig. 1(d-1)，(d-2)のように，Fig. 1(d-3)に示す $A12$（α-Mn 型，$cI58$）相に対応するパターンが見られ，Mn-Ge(001)[1$\bar{1}$0]$_{A12}$ ‖ Cr(001)[1$\bar{1}$0]の方位関係で単結晶膜が成長していることが分かった．このように，300 °C の基板温度での Cr(001)下地層上の Mn_xGe_{100-x} 薄膜の結晶構造は，x を 100 から小さくしていくと，$A12$ → $D0_{22}$ → cP → $A1$ と変化することが分かった．当日は，組成が合金規則度や磁気特性に及ぼす影響についても報告する．

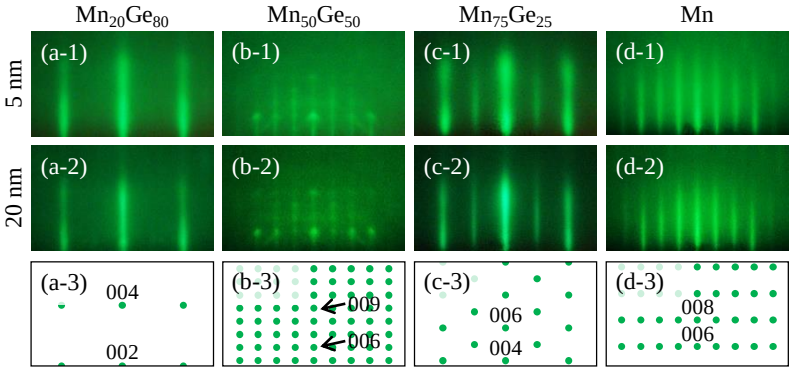


Fig. 1　(a-1)–(d-2) RHEED patterns observed for Mn_xGe_{100-x} films formed on Cr(001) underlayers. The incident electron beam is parallel to MgO[100]. (a-3)–(d-3) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (001) single-crystal surfaces with (a-3) $A1$, (b-3) cP, (c-3) $D0_{22}$, and (d-3) $A12$ structure.

1)　A. Sugihara, K. Suzuki, T. Miyazaki, and S. Mizukami: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **54**, 083001 (2015).

Mn_xFe_yGa 薄膜における磁気特性の作製手法依存性

片山靖和、渡邊彩恵、峯田陸、嶋敏之、土井正晶
(東北学院大)

Dependence of fabrication method on magnetic properties of Mn_xFe_yGa thin films

S.Katayama, S.Watanabe, R.Mineta, T.Shima, M.Doi
(Tohoku Gakuin Univ.)

はじめに

Mn-Ga 薄膜はバルク調整可能な飽和磁化(M_s ~ 200-600 emu/cm^3) [1]、高い垂直磁気異方性(K_u ~ 10 - 20 Merg/cm^3) [1]、高スピン分極率(~ 88 %) [2]を示すことが知られている。そのため、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁石材料やスピンエレクトロニクスデバイスの次世代材料としての幅広い可能性を有している。現在、Mn-Ga 薄膜は盛んな研究が行われているが蒸着法を用いた報告はわずかしかない [1) 3)]。そのため、当研究室では蒸着法を用いた Mn-Ga 薄膜の研究を行ってきたが、先行研究より膜厚の減少に伴う垂直磁気異方性の減少が報告されている。従って、本研究では Mn-Ga に Fe を添加した Mn_xFe_yGa 薄膜を作製し、組成変化に伴う磁気異方性および諸磁気特性の関係を明らかにし、膜厚を薄くした際の磁気特性の変化を調べることを目的とした。また、蒸着法およびスパッタリング法を用いて試料を作製することにより、作製手法のよる磁気特性への影響を検討した。

実験方法

試料は超高真空電子ビーム蒸着装置および超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて作製した。膜構成は MgO (100) sub. / Mn-Fe-Ga / Cr (10 nm)である。主層の Mn-Fe-Ga の膜厚は $t_{Mn\text{-}Fe\text{-}Ga}$ = 1, 2, 3, 5, 10, 20 nm と変化させた。はじめに、基板処理を 700ºC で 30 分間行った後、Mn_xFe_yGa を基板温度 T_s = 200ºC で Mn-Ga と Fe を交互積層させることにより成膜を行った。その後、T_a = 300 ºC で 30 分間熱処理し、キャップ層として Cr を室温で成膜した。作製した試料の組成はエネルギー分散型 X 線回折装置(EDX)、結晶構造は X 線回折装置(XRD)、磁気特性は超伝導量子干渉時束計(SQUID)で評価し、表面荒さは原子間力顕微鏡(AFM)で観察した。また、超高真空電子ビーム蒸着法を用いた試料作製では結晶成長は反射高速電子回折装置(RHEED)によりその場観察を行った。

実験結果

蒸着法を用いて作製した Mn_xFe_yGa 薄膜では全組成の試料において、膜厚の減少に伴い $t_{Mn\text{-}Fe\text{-}Ga}$ = 5 nm 近傍で面内容易軸から垂直容易軸へと変化し、飽和磁化(M_s)および垂直磁気異方性(K_u)の上昇が確認され、x = 0.5、y = 2.5 で最大の飽和磁化 M_s = 878 emu/cm^3、x = 1.5、 y = 1.5 で非常に大きな垂直磁気異方性 K_u = 20.1 (Merg/cm^3)が得られた。XRD パターンより、膜厚の減少に伴う c 軸の格子定数が減少する傾向および RHEED 構造解析により a 軸を算出した結果、膜厚の減少伴う格子定数の増加が確認された。また、蒸着法とスパッタ法の両手法を用いて作製した $Mn_{0.5}Fe_{2.5}Ga$ において、飽和磁化は作製手法による大きな差は確認されなかった。然しながら、蒸着法を用いた試料においては $t_{Mn\text{-}Fe\text{-}Ga}$ = 1 nm で垂直磁気異方性の発現が確認されたが、スパッタ法を用いて作製した試料においては全ての膜厚において面内容易軸を示すことが確認された。従って、蒸着法を用いて作製した場合、スパッタ法と比較して面内容易軸から垂直容易軸へと変化しやすいことが考えられる。講演では、磁気特性の膜厚依存性および作製手法依存性について格子歪の観点から考察する。

参考文献

1) Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, T. Magn. Soc. Jpn., 1, 30-33(2017).
2) B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterik, and C. Felser, Appl. Phys. Lett., 90, 152504 (2007).
3) K. Sato, Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, T.Magn. Soc. Jpn., 2, 48-51 (2018)

$C11_b$ 構造を有する Cr_2Al(001)薄膜の作製

濱口 峻佑，豊木 研太郎，白土 優，中谷 亮一
大阪大学大学院工学研究科

Fabrication of $C11_b$-type Cr_2Al(001) thin film

Shunsuke Hamaguchi, Kentaro Toyoki, Yu Shiratsuchi and Ryoichi Nakatani
Graduate School of Engineering, Osaka University

【はじめに】

近年，強磁性トンネル接合(MTJ)素子を使用することで，ハードディスクの磁気ヘッドや不揮発性磁気抵抗メモリの性能が大幅に向上している．中でもトンネル障壁絶縁層材料に MgO(001)層を用いた積層膜において，高い TMR 比が報告されている[1]．MTJ 素子の動作を容易にするために，一方の強磁性層の磁化は反強磁性体や Synthetic フェリ磁性体を用いて磁気的に固定される．強磁性層に Co-Fe(-B)を用いる場合，MTJ 素子では MgO 層と Co-Fe(-B)層を(001)配向させることが重要である．一方，従来のスピンバルブ薄膜に用いられてきた反強磁性体は Mn-Ir(111)層が用いられており，上記 MTJ 素子膜の各層との格子整合性の観点から(001)配向した反強磁性層を用いた高い交換バイアス膜の実現が望まれる．

Cr_2Al[2]は $C11_b$ 構造を有する反強磁性体であり，Cr_2Al(001)配向させた場合の MgO(001)との格子ミスフィット 0.84%と小さくなることが期待できる．しかしながら，これまでに $C11_b$ Cr_2Al 薄膜に関する研究はほとんど行われておらず，$C11_b$ Cr_2Al の成長条件を始め，$C11_b$ Cr_2Al を用いた交換バイアスに関する研究も行われていない．本研究では，分子線エピタキシー(MBE)法を用いて MgO(001)基板上での $C11_b$ Cr_2Al(001)薄膜の形成について検討した．

【実験方法】

試料作製には，分子線エピタキシー(MBE)法を用いた．MgO(001)単結晶基板を大気雰囲気下 1273 K で 3 h 熱処理した後，超高真空中で Ar イオンミリング，および，1073 K で 1 h アニールすることで基板表面の水和物などの除去と基板表面の平坦化を行った．Cr_2Al の成長温度を 323, 373, 473, 573, 673, 773, 873, 973, 1073 K, 膜厚を 50 nm として製膜した．製膜前に水晶振動子を用いて両元素の成長速度を測定・制御し，Cr : Al = 2:1 の組成比となるように成長速度を調整した．作製した試料の構造を，X 線回折(XRD)測定を用いて評価した．

【実験結果】

Figure 1 に代表的な XRD プロファイルとして，成長温度を 473, 673, 873, 1073 K として作製した試料に対する測定結果を示す．成長温度を 473 K とした場合，$C11_b$ Cr_2Al(200)と考えられる回折ピークが観測された．成長温度の上昇とともに，$C11_b$ Cr_2Al(200)に起因すると考えらえる回折ピーク強度は低下し，一方，$C11_b$ Cr_2Al(006)および $C11_b$ Cr_2Al(002)に起因すると考えられる回折ピークが観測された．この結果は，成長温度の上昇とともに *a* 面配向から *c* 面配向に変化することを示唆するが，成長温度を 873, 1073 K とした場合でも，$C11_b$ Cr_2Al(200), (006)に起因する回折ピークが観測され，完全な *c* 面配向製の実現には，成長温度のみでなく，適切なバッファー層の選定など，更なる検討が必要であることがわかった．

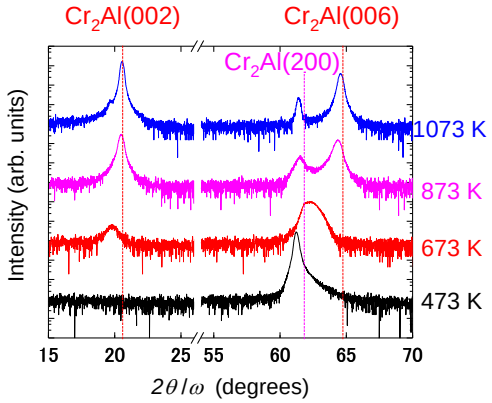


Fig. 1 473, 673, 873, 1073 K で作製した薄膜の XRD プロファイル．

参考文献

1) S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, K. Ando, Nat. Mater. **3** (2004) 868–871.
2) A. Kallel, Comptes Rendus Acad. Sci. B **268** (1969) 455-458.

MgO/Co/Pt 積層膜における磁気異方性および ダンピング定数の電界効果

砂古口藍子、大島大輝、岩田聡*、加藤剛志
（名古屋大、*名産研）

Electric field effect of magnetic anisotropy and damping constant in MgO/Co/Pt trilayers

A. Sakoguchi, D. Oshima, S. Iwata*, T. Kato
(Nagoya Univ., *NISRI)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)は、高い書き換え耐性があり、高速で読み書きが可能な不揮発性メモリとして注目される一方で、書き込み時の消費電力の低減が課題である。電界アシスト磁化反転[1]は，現在主流のスピン移行トルク（STT）磁化反転に対し，書き込み時の電力を飛躍的に低減できる技術として注目されている。電界アシスト磁化反転において安定した書き込みを行うためには、電界印加時における磁性膜の磁化ダイナミクスを理解する必要がある[2]。本研究では、垂直磁気異方性を示す MgO/Co/Pt 積層膜において、垂直磁気異方性とダイナミクスの電界による変調を時間分解磁気光学 Kerr 効果(TRMOKE)を用いて調べた。

実験方法

スパッタリング装置にて、ITO(35 nm)/MgO(10 nm)/Co(1.2 nm)/Pt(1.6 nm)/Ta(10 nm)/熱酸化膜付き Si 基板を成膜した。異常ホール効果(AHE)測定のため、Ar^+エッチング装置を用いて十字のパターンを作製し、クロス部分に電圧印加用電極を配線して–3 V~3 V の電圧を印加した。磁化ダイナミクスを調べる TRMOKE では、中心波長 1040 nm、パルス幅 500 fsec、繰り返し周波数 100 kHz のファイバーレーザを光源とし、Pump 光として波長 1040 nm、Probe 光として二次高調波の 520 nm のレーザー光を試料に入射した。測定の際、外部磁界を膜面法線方向から 73° の角度、5-14 kOe の範囲で印加した。測定した磁化の歳差運動を減衰振動関数 $\exp(-\tau/t)\sin(\omega t)$でフィッティングし、角周波数 ω と緩和時間 τ から実効異方性磁界 H_{keff}、g 係数、ダンピング定数 α を算出した。

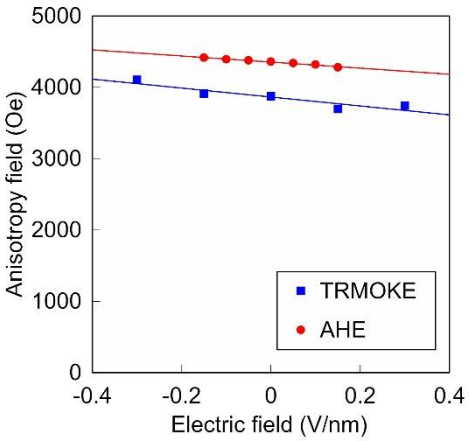


Fig.1 Electric field dependence of effective magnetic anisotropy field of the MgO/Co/Pt trilayer

実験結果

Fig. 1 は AHE と TRMOKE 測定から得た H_{keff} の電界依存である。両測定において電界の増加に伴い、H_{keff} は直線的に減少した。AHE と TRMOKE の測定から得た磁気異方性の電界効果はそれぞれ –32 fJ/Vm，–47 fJ/Vm である。Fig. 2 は α の電界依存を示している。α は電界が印加されていない場合，$\alpha = 0.024$ 程度であったが，電界の増加に伴い減少し、0.3 V/nm の電界で 0.019 まで減少した。これは，MgO/CoFeB/Ta 積層膜[3]で報告されている値の 5 倍程度の電界効果であった。

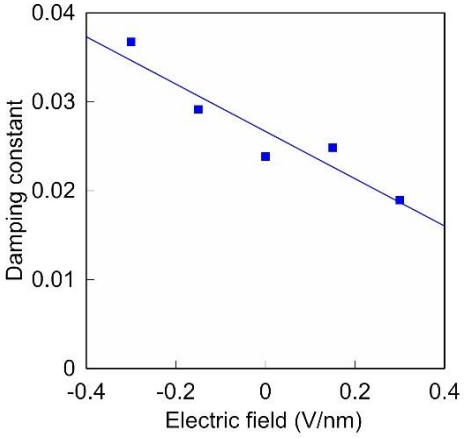


Fig.2 Electric field dependence of damping constant of the MgO/Co/Pt trilayer

参考文献

1) W. Wang, *et al*., Nat. Mater. **11**, 64 (2012).
2) R. Matsumoto, *et al*., Appl. Phys. Express **12**, 053003 (2019).
3) A. Okada, *et al*., Appl. Phys. Lett. **105**, 052415 (2014).

FeCo/Pt/CoNi 多層膜による DMI の強化

大原健太郎，劉小晰
（信州大工）
Enhancement of DMI on Multi-layer FeCo/Pt/CoNi
Kentaro Ohara, Xioaxi Liu
(Shinshu University)

はじめに

強磁性体と重金属からなる空間反転対称性の破れた磁性多層膜において，ジャロシンスキ・守谷相互作用(DMI)によってカイラル磁壁や磁気スキルミオンなどのトポロジカル磁気構造は発現し，それがスピントロニクス研究として注目されている．磁気スキルミオンはナノスケールの極小なサイズで，トポロジカル的にも保護されているため，超高密度・超低消費電流の磁気記録デバイスへの応用が期待されている[1]．そのため，磁気スキルミオンの応用の実現には磁気スキルミオンが室温かつゼロ磁場を含む広い環境の範囲において安定していることが望まれる．磁気スキルミオンの発現には DMI を有し，膜構造の非対称性が必要であるといわれている．DMI は強磁性体と重金属の界面に生じる相互作用であり，これまで先行研究の多くは DMI の強化を行うために同じ磁性体を異なる重金属が挟むことによる磁気スキルミオンの発現である．一方で，異なる磁性層を挟む重金属の磁気スキルミオンの発現についての報告は少ない．したがって今回は，Pt/FeCo/Pt/CoNi/Pt の多層膜（FeCo/Pt/CoNi 膜）において同条件で製膜した Pt/CoNi/Pt/CoNi/Pt（CoNi/Pt 膜）の多層膜より DMI が強化されたことについて報告する．

実験結果

Fig.1 に CoNi/Pt 膜と FeCo/Pt/CoNi 膜のヒステリシスループ，磁気光学カー効果（MOKE）顕微鏡の観察結果を示す．二つの膜はマグネトロンスパッタ装置によって製膜しており，それぞれの膜の層の厚さは 0.5nm 以下になるようにした．その結果，CoNi/Pt 膜では保磁力が 70Oe 程度の垂直磁気異方性を示したのに対し，FeCo/Pt/CoNi は保磁力，残留磁化がほぼ 0 な軟磁性を示した．これは一般的にスキルミオンが発現するヒステリシスループの形であり，スキルミオンの発現が期待できる[2]. 次に MOKE 顕微鏡を用いて，磁区構造を観察したところ，Fig.1（b）で CoNi/Pt 膜は DMI がほぼ 0 な磁区構造を得られたのに対して，Fig.1（c）で FeCo/Pt/CoNi 膜は DMI が大きい値を示す磁区構造を得られた．また実際に 8Oe の垂直外部磁場を与えたとき，FeCo/Pt/CoNi 膜でスキルミオンの発現を確認することができた．したがって，異なる磁性体を挟む重金属の構造で DMI を大きく強化することができることを確認した．

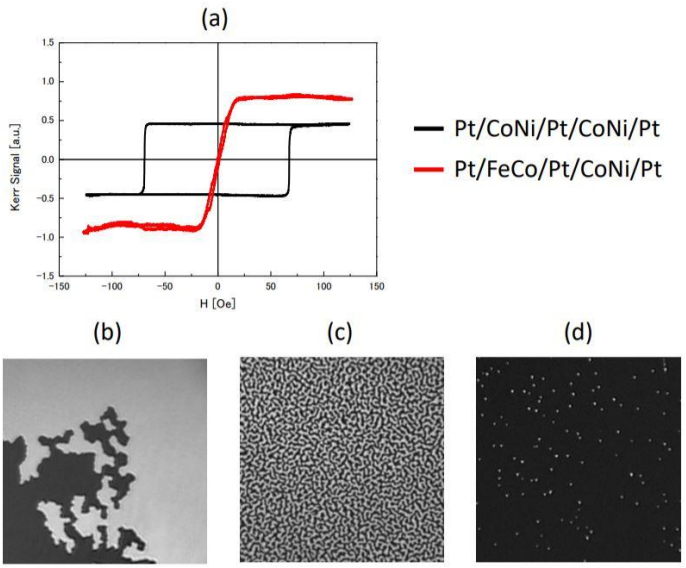


Fig. 1 (a)Hystereis Loops for Perpendicular Magnitization.
(b,c)MOKE images at zero field room temperature (Pt/CoNi/Pt/CoNi/Pt) and (Pt/FeCo/Pt/CoNi/Pt)
(d)MOKE images applying 8Oe Perpendicular field to (Pt/FeCo/Pt/CoNi/Pt).

参考文献

1)　W. Jiang, G. Chen, et al. Physics Reports. 704（2014）1-49.
2)　T. Nozaki, Y. Jibiki,et al. Appl. Phys. Lett. 2019, 144 012402

$[Fe/Co/Ni]_n$ 多層膜の作製と温度の最適化

齋藤 彪我[1]，宮下 拓也[1]，熊谷 卓也[1],中尾 太一[1]，古矢大悟[1],小嗣 真人[1]
（東京理科大学[1]）

Fabrication of $[Fe/Co/Ni]_n$ thin films and optimization of temperature

Hyuga Saito[1], Takuya Miyashita[1], Takuya Kumagai[1], Taichi Nakao[1], Daigo Furuya[1], Masato Kotsugi[1]
(Tokyo Univ. of Sci.[1])

はじめに

社会の次世代エネルギーの発展に伴い、高い磁気異方性をもつハード磁性材料は非常に重要な役割を果たす。さらに、資源の枯渇リスクや環境破壊の観点から、貴金属フリーの新規磁性材料が求められている。そこで我々は、レアアースフリーかつ高い一軸異方性をもつ規則合金に着目し、$L1_0$ 合金のパルスレーザー蒸着(PLD)法による人工創製と物性調査に取り組んできた。しかしながら、既往の研究では２元系合金に限定されており、元素種および積層順、また蒸着温度には検討の余地が大きく残されている。

そこで本研究では、PLD 装置を用いて Fe、Co、Ni を蒸着元素とし、単原子構造積層により、新たな磁気多層膜の創製を行った。さらに蒸着温度を変えたものを複数作製し、それらの表面構造、結晶構造解析、磁気特性解析を行うことによって作製温度の最適化を行った。

実験方法

実験では、MgO(001)単結晶上に PLD 装置による単原子交互積層法を用いて成膜を実施した。試料の内容としては、Cu 25 nm の下地層の上に(Fe/Co/Ni)を 1 単位として 51ML 蒸着した。このときの蒸着温度を室温から 600℃まで 100℃ごとに変化させた。作製した試料については、各層ごとに反射高速電子回折(RHEED)を用いた表面の面内格子定数の調査を行った。物性解析では、原子間力顕微鏡(AFM)を用いて表面平坦性の調査し、X線回折(XRD)を用いて結晶構造を評価した。さらには超伝導量子干渉磁力計(SQUID)を用い、磁気特性評価を行った。

実験結果

Fig1 に XRD 測定で得られた Fe/Co/Ni 試料の 200℃、300℃、400℃においての面外スペクトルを示す。本測定結果より、どの蒸着温度においても Cu(002)ピークと Cu(004)ピークの広角側にそれぞれ試料由来と見られるピークが出現した。また、温度が上がるごとにそれらのピークが低角側にシフトしていく傾向が見られた。

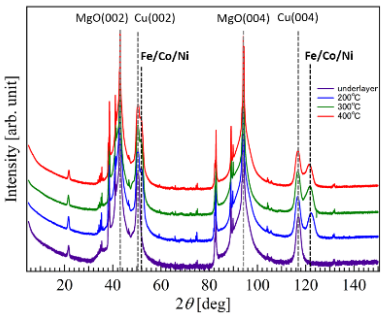


Fig.1 XRD patterns of Fe/Co/Ni sample

Fig2 に SQUID 測定で得られた蒸着温度 300℃作製の Fe/Co/Ni 試料の磁化曲線を示す。磁気ヒステリシスより、飽和磁化 M_s は 549 emu/cc、磁気異方性エネルギーK_u は 9.39×10^4 erg/cc と算出された。まず磁化容易軸は面内方向であった。今回の試料では蒸着レートの遅れにより M_s、K_u ともに値が小さかったが、今後は特性の更なる向上が期待される。

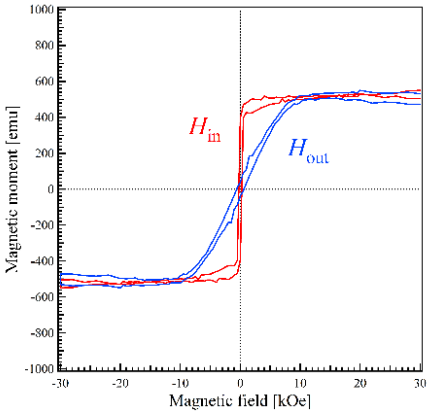


Fig.2 Magnetization curve of Fe/Co/Ni deposited on 300℃

参考文献

[1] M. Saito et. al., Appl. Phy. Letters114, 072404, (2019)
[2] T. Kojima et. al., Jpn. J. Appl. Phys., 51, 010204, (2012)
[3] H. Ito et al., AIP Advances 9, 045307 (2019)

Perpendicular magnetic anisotropy of Fe/cubic CrO/MgO heterostructures

Y. Iida[1, 2], Q. Xiang[2], T. Scheike[2], Z. Wen[2], J. Okabayashi[3], T. Ohkubo[2], K. Hono[1,2], H. Sukegawa[2] and S. Mitani[1,2]

[1] Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

[2] Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba 305-0047, Japan

[3] Research Center for Spectrochemistry, The University of Tokyo, Tokyo 113-0033, Japan

Single-crystalline Fe/MgO interfaces show large perpendicular magnetic anisotropy (PMA) of 2 mJ/m^2.[1)] The hybridization of Fe-3d_z^2 and O-2p_z orbitals plays an important role for PMA at Fe/MgO interface.[2)] Moreover, the magnetic anisotropy at Fe/oxide interface can be tuned by the electric field,[3)] and large voltage control magnetic anisotropy (VCMA) coefficients of 290 fJ/Vm at Fe/MgO interface were reported.[4)] Experimental and theoretical approaches have also been performed for enhancing PMA and VCMA by inserting heavy metals into Fe/MgO interface.[5,6)] Thus, Fe/MgO based magnetic tunnel junctions (MTJs) are promising for voltage-control magnetoresistive random access memory. In this study, we investigated structure and magnetic properties of Fe/MgO heterostructures formed by a sputtering process and found the formation of rock-salt-type CrO at the Fe/MgO interface, which shows interface PMA energies of 1.55 mJ/m^2.

The multilayered stacks of MgO substrate (001)//MgO(5 nm)/Cr(30 nm)/Fe(0.7 nm)/MgO(2 nm) were prepared by rf-sputtering. MgO substrate and Cr buffer were annealed at 500 ºC. After the deposition, post-annealing was performed at T_a = 300, 400, 500 ºC, and an as-deposited sample was also prepared for comparison. The structural analyses were performed using aberration corrected scanning transmission electron microscopy (STEM) with energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS). In as-deposited samples, the oxidation of Fe layer was confirmed, suggesting that it was oxidized during the sputter-deposition of MgO layer. After the post-annealing with T_a = 500 ºC, Cr-oxide was segregated between Fe and MgO layers. From the nanobeam electron diffraction (NBD) patterns, the Cr-oxide layer was characterized as the rock-salt type structure. In addition, it was found that the Fe oxide was reduced by Cr and returned to pure Fe.

The magnetic properties were investigated using a vibrating sample magnetometer. Saturation magnetizations increased with the post-annealing temperatures. The stacks with T_a = 400, 500 ºC show effective PMA energies of 0.82 and 0.77 MJ/m^3, respectively. Interface PMA energies of 1.55 mJ/m^2 were achieved in the samples with T_a = 500 ºC, suggesting that the PMA occurs at the Fe/CrO interface. Our demonstration revealed that the diffusion of Cr leads to the well-controlled flat heterostructure, resulting in a cubic CrO ultrathin layer stabilized at Fe/MgO interface.

Acknowledgements

We thank J. Uzuhashi for the structural analyses. This work was partly supported by the JSPS KAKENHI Grant Number 16H06332. Y. I. acknowledges the National Institute for Materials Science for the provision of the NIMS Graduate Research Assistantship.

References

1) J. W. Koo *et al*., Appl. Phys. Lett. **103**, 192401 (2013).
2) H. X. Yang *et al*., Phys. Rev. B **84**, 054401 (2011).
3) T. Maruyama *et al*., Nat. Nanotechnol. **4**, 158 (2009).
4) T. Nozaki *et al*., Phys. Rev. Appl. **5**, 044006 (2016).
5) T. Nozaki *et al*., APL Mater. **6**, 026101 (2018).
6) K. Masuda *et al*., Phys. Rev. B **98**, 224421 (2018).

Rashba型スピン軌道結合が誘起するFe/Au(111)界面の垂直磁気異方性

岡林潤[1]、李松田[2]、境誠司[2]、三井隆也[2]、小林康浩[3]、田中清尚[4]、三谷誠司[5]
[1]東大理、[2]量研機構、[3]京大複合研、[4]分子研、[5]NIMS

Perpendicular magnetic anisotropy induced by Rashba-type spin-orbit coupling in Fe/Au

J. Okabayashi[1], S. Li[2], S. Sakai[2], T. Mitsui[2], Y. Kobayashi[3], K. Tanaka[4], and S. Mitani[5]
[1]UTokyo, [2]QST, 3Kyoto Univ., [4]IMS, [5]NIMS

Au（111）表面上のFe超薄膜は、界面における軌道混成の変調によりFe層が垂直磁気異方性を示すことが報告されている[1]。第一原理計算やモデル計算、及び磁気円二色性(XMCD)による研究が20年来行われてきた[2,3]。しかし、界面のFeの3d軌道状態と軌道角運動量の異方性は明確ではなく、スピン軌道相互作用が絡んだ特異なバンド構造の元素別な軌道分解解析が重要になる。特に、Rashba型スピン軌道相互作用が誘起する垂直磁気異方性について理論的に提唱されており[4]、空間・時間反転対称性の破れたトポロジカルスピン軌道物性の舞台ともなりうる。本研究では、極薄Fe堆積に伴う界面電子状態を調べるために、γ線領域のメスバウアー分光、軟X線領域のX線磁気円二色性(XMCD)、真空紫外領域の角度分解光電子分光(ARPES)を用いてFe/Au(111)界面の軌道状態を議論することを目的とする。

試料作製について、超高真空中にてAu(111)表面に3分子層（ML）のFeを150℃にて電子線蒸着により堆積した。メスバウアー分光測定用に界面1層には^{57}Fe同位体を用い、他は安定核種^{56}Feを用いた。最表面にはAu 1nmの被覆層を用いた。単結晶成長を高速電子線回折により確かめた。放射光メスバウアー分光について、SPring-8 B11XUにて14.4 keVの偏光入射光を用い、20 Kにて垂直磁場印加中に測定を行った。XMCD測定について、高エネルギー研PF BL-7A(東大理)にて行った。また、分子科学研究所UVSORにて、直線偏光を用いたARPESを行った。

磁化測定では、Fe 3 ML/Au(111)の構造において垂直磁気異方性を観測した。面内面直の磁化曲線の異方性が0.01 μ_Bであり、軌道異方性エネルギーに換算すると10^5 J/m^{3}となった。さらに、放射光メスバウアー分光では、微細構造の解析により、原子核内部磁場が界面にて増大した。この理由は、界面の軌道磁気モーメントの増大を反映していることとして説明できることが判った。角度依存XMCDにて、軌道磁気モーメントの異方性はΔm_{orb}=0.01 μ_Bとなり、磁化測定と同等の軌道異方性を説明できる。さらに、試料作製後に超高真空中を搬送し、その場(in-situ)ARPESを行った。Au(111)の表面状態は、Rashba分裂していることを確認し、その上にFeを堆積し、*s*, *p*直線偏光を用いたARPESを行った。面内・面直軌道を分解したバンド分散を観測し、3 MLのFe堆積の電子状態は、バルクFeと異なるAu(111)表面とのpd混成軌道を示した。

これらの結果により、Fe/Au(111)の界面の軌道状態と垂直磁気異方性を議論できる[5]。

(1)　*メスバウアー分光にて軌道磁気モーメントを検出できるか*　メスバウアースペクトルにおける内部磁場は$H_{hf} = H_{Fermi} + H_{dipole} + H_{orb}$と表され、原子核周囲の*s*軌道が軌道モーメント(H_{orb})を有し、*sd*結合を通して*d*軌道の磁気モーメントが判る。Auとの界面の成分にてH_{hf}の増大があり、これが軌道モーメントの増大に起因し、XMCDによる軌道成分の見積もりと一致することが判った。

(2)　*Fe/Au(111)の垂直磁気異方性の起源は何か*　Au原子のスピン軌道相互作用によりRashba分裂したAu(111) 6p表面準位が界面にてFeと結合することで、Feの軌道異方性はAuのスピン軌道相互作用を通して獲得できるものと考えられる。このように、異種界面のそれぞれの特性を活かした結果として界面垂直磁気異方性が生じる可能性があり、界面新機能性の開拓に繋がる。

参考文献

[1] K. Shintaku et al., Phys. Rev. B **47**, 14584 (1993).　[2] O. Toulemonde et al., J. Appl. Phys. **95**, 6565 (2004)
[3] P. Ohresser et al., Phys. Rev. B **64**, 104429 (2001).　[4] S.E. Barnes et al., Sci. Rep. **4**, 4105 (2013).
[5] J. Okabayashi et al., submitted.

Si_3N_4 添加 Fe 薄膜の成膜条件と膜構造の関係

三浦直之，桐野文良*，成田克，稲葉信幸，高橋豊
（山形大学大学院理工学研究科，*東京藝術大学）

Relationship between deposition condition and film structure of Si_3N_4-added Fe thin films

Naoyuki Miura, Fumiyoshi Kirino*, Yuzuru Narita, Nobuyuki Inaba, and Yutaka Takahashi
(Graduate School of Science and Technology, Yamagata Univ, *Tokyo Univ. of Arts)

はじめに　電子機器の作動周波数の高周波化に伴い素子間での電磁波干渉が問題視されているが，現在実用化されているフェライト系電波吸収体では数 GHz 以上の帯域において良好な吸収特性を得られないため新たな電波吸収材料の開発が必要である [1]．高周波帯における電磁波ノイズの吸収方法として磁性体の強磁性共鳴が挙げられ，その自然共鳴周波数を高周波シフトさせるためには高異方性磁界，高飽和磁化の磁気特性を有し，さらに棒状または偏平状の磁性粒子形状が望ましいとされている [2]．そこで本研究では磁性体 Fe，高周波帯での表皮効果を避けるため誘電体 Si_3N_4 を用いた材料を作製し，その構造及び特性変化を成膜時の Ar ガス圧とアニールのそれぞれの条件を変え調べたので，これを報告する．

実験方法　Fe-Si_3N_4 薄膜は Si_3N_4 ターゲットと Fe チップを用いた RF マグネトロンスパッタにより Si 基板上に室温成膜した．同チップ配置にて成膜を行い，Ar ガス圧は 0.5 Pa (Fe_x:Si_{100-x}, x=72), 2.0 Pa (x =65), 5.0 Pa (x=57)の 3 種類とし，アニール試料は成膜後に真空中にて 300 ℃で 30 分間の熱処理を施した．構造は XRD, SEM 及び TEM，磁気特性は VSM，電気特性は四探針測定法を用いてそれぞれ評価した．

実験結果　表面 SEM 像から Ar 2.0 Pa 及び 5.0 Pa で凹凸を持つ表面構造がみられた．それらの詳しい評価のため断面 TEM 観察を行ったところ Ar 0.5 Pa では粒はみられず高倍率にて bcc Fe (110)の格子像が確認され(Fig. 1(a)), Ar 5.0 Pa では平均粒径(短軸) 2.8 nm の柱状粒がみられたが格子像はみられなかった(Fig. 1(b))．また Out-of-plane XRD では 0.5 Pa のみ bccFe(011)の配向がみられた．電気抵抗率(90 K)は bulk Fe と比較し 15.7(0.5 Pa)～319(5.0 Pa)倍の値を示した．これらから高圧成膜によってグレインを持つ構造が見られることがわかった．次に膜質と磁気特性の向上を目的とし，同条件成膜後に真空中で 300 ℃30 分間のアニールを施した．XRD では 2.0 Pa で新たに bccFe(011)の配向がみられた．電気抵抗率はいずれも減少した．磁気特性は飽和磁化が平均 13.5 %増加した．さらに磁化曲線の概形を比較したところ，高圧試料の磁化曲線が図のような変化を示した(Fig. 2)．これらからアニールは膜質向上，結晶成長と飽和磁化の増加に寄与することがわかった．また磁化曲線の概形変化について柱状粒との結びつきを検討する必要がある．発表では異なるチップ配置の結果も含めて報告する．

参考文献

1) T. Tsutaoka, J. Appl. Phys. 93, 2789 (2003)
2) 平塚信之『軟磁性材料のノイズ抑制設計法』科学情報出版株式会社, vol.1, p190(2015)

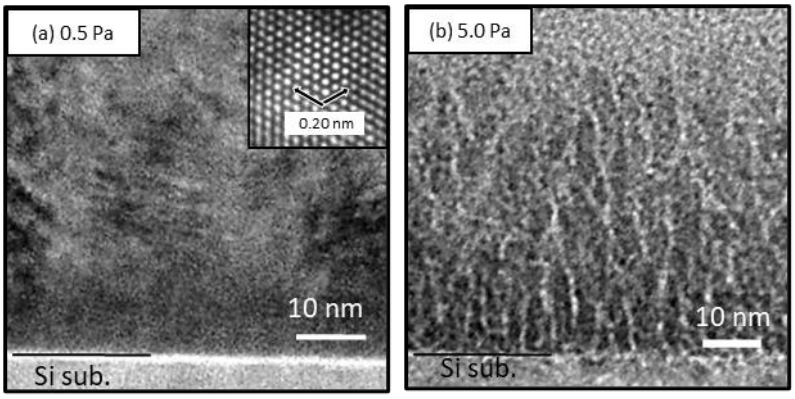


Fig. 1 Cross-sectional TEM images of Fe-Si_3N_4/ Si film deposited at different Ar gas pressures (a) 0.5 Pa and (b) 5.0 Pa. Inset: HR lattice image of Fe (111)

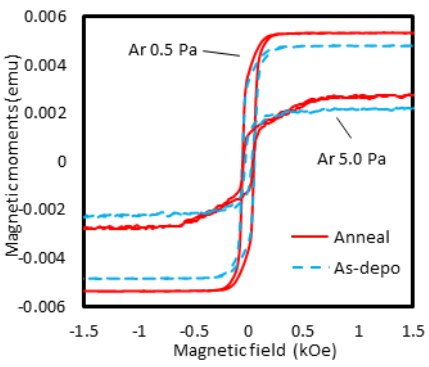


Fig. 2 In-plane M-H loops of Fe-Si_3N_4/ Si film.

異なる磁気異方性主軸をもつ2層膜界面におけるねじれたスピン構造

小野田　浩成[1], 雨宮　健太[2], 柳原　英人[1]
([1] 筑波大学, [2] 高エネルギー加速器研究機構物質構造研究所)

Twisted spin structure at the interface of bilayers having different magnetic anisotropy

H. Onoda[1], K. Amemiya[2], and H. Yanagihara[1]
([1] University of Tsukuba, [2] KEK IMSS)

1　はじめに

低消費電力デバイスの実現に向け，電圧磁化反転方式の研究が盛んに行われている．電圧による磁化反転を実現し得る候補の1つとして，電気磁気（ME）効果が挙げられる．2005年に桂らによって，サイクロイド型磁気構造においてスピン軌道相互作用を組み込んだ計算により電気分極が発現するモデル（非線形ME効果）が提唱された[1]．しかし，単一物質内におけるサイクロイド型らせん磁気構造は不安定であり，非線形ME効果の観測例はほとんど低温でのものである．一方このモデルに従うと，ネール型90°磁壁（ねじれスピン構造）においても電気分極の発現が期待できる．そこで我々は非線形ME効果が発現する新たな系として，磁気異方性主軸の異なる絶縁性強磁体2層膜におけるME効果について検討している．この構造では，一方の膜は垂直磁化膜で，もう一方の膜は形状磁気異方性が強く面内磁化膜となっている必要がある．本研究では，深さ分解X線磁気円二色性（XMCD）[2]を用いて磁気異方性主軸の異なる絶縁性強磁体2層膜界面におけるスピン構造を調べた．

2　実験

試料はRFマグネトロンスパッタリング法で作製した．MgO(001)基板上に垂直磁化膜として$(Co,Fe)_3O_4$ (CFO)を50 nm，その上に面内磁化膜としてγ-Fe_2O_3 (GFO)を30 nm成膜した．スピンの向きを調べるために，深さ分解XMCD測定をKEK BL-16で行った．測定前に膜面垂直方向から30°傾けた方向に磁場を印加し，その残留状態について調べた．その後，膜面内方向に磁場を印加した状態について調べた．また，スピンのヘリシティを調べるため直入射（NI），斜入射（GI），逆斜入射（iGI）の3方向に対してXMCD測定を行った．ここで，GI (iGI)は基板法線方向から45° (-45°)である．

3　結果および考察

Fig. 1にFeの残留状態における深さ分解XMCDの結果を示す．GIとiGIの結果から，XMCD強度は表面に近いほど強くなる傾向を示し，これは表面に近いほど磁化の面内成分が強いことを意味する．また，Coの残留状態におけるXMCD強度は深さに依らず一定であったことから，Co，すなわち，CFOの磁化の向きは膜面垂直方向であることが分かる．これらの結果から，GFOの磁化の向きが界面から表面に向かってねじれていると予測できる．講演当日は，磁化の傾きをパラメータとした深さ分解XMCDスペクトルのフィッティング結果も報告する．

References

1) H. Katsura *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 057205 (2005).
2) M. Sakamaki and K. Amemiya, *Rev. Sci. Instrum.*, **88**, 083901 (2017).

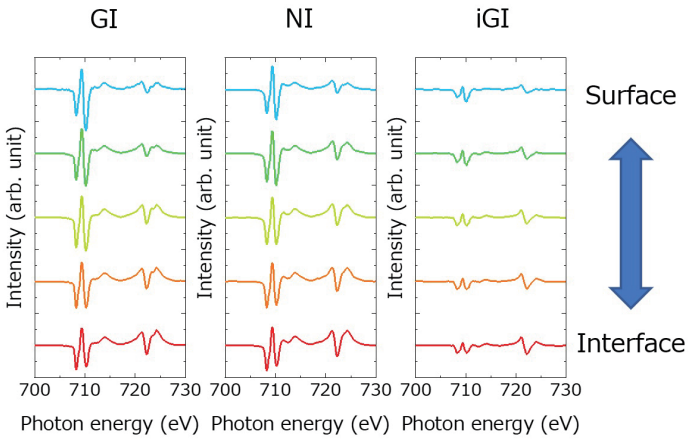


Fig. 1　Fe 2p → 3d XMCD spectra for Fe in remanent at the GI, NI, and iGI configurations.

水素雰囲気下で熱処理された単層グラフェンの磁気特性

園田蓮、木村恭輔、藤原裕司、小林正、神保睦子*
（三重大、*大同大）

Magnetic properties of monolayer graphene annealed in hydrogen atmosphere

R.Sonoda,K.Kimura,Y.Fujiwara, T.Kobayashi, M.Jimbo
(Mie Univ.,*Daido Univ.)

はじめに

グラフェンは高い電子移動度や熱伝導率などの特徴から、近年注目されている材料の一つである。一般的にグラフェンは反磁性を示す[1]が、表面および端部への官能基の結合や欠陥より、強磁性や超常磁性の性質を発現するという理論的な報告[2)3)]がされている。炭素と軽元素の組み合わせで強磁性が発現した場合、価格や入手のしやすさに優れているため、新規な磁性材料として期待されている。本研究では酸化させたグラフェンを水素含有雰囲気下で還元することにより、磁気特性を制御することを目指した。

実験方法

この実験では、Cheap Tube 社より購入した単層のグラフェンを使用した。この単層グラフェンは修正ハマー法により作製されたものである。試料は、約 5wt%の塩酸で酸処理した後に蒸留水を加え 1 日ほど放置し、その後上澄みを廃棄する。これを繰り返すことで金属不純物を取り除いた。熱処理による試料の還元は Ar ガス中および Ar +H_2 混合ガス中で行い、処理温度の条件を 400℃から 900℃で変化させ比較した。試料の磁気特性を VSM、化学結合状態を XPS、結晶構造を XRD で評価した。また、磁気的不純物の確認を EPMA で行った。

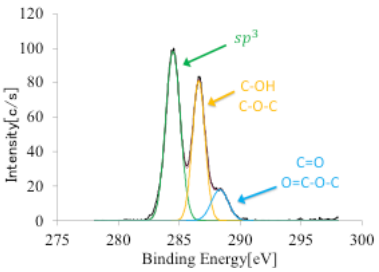


Fig.1 XPS spectrum of GO

実験結果

Fig.1 に熱処理前の試料の XPS の測定結果を示す。スペクトルはガウス関数を用いてピーク分離した。Fig.2 は Ar +H_2 混合ガス中で熱処理した試料の結果を示す。熱処理前の試料は sp^3 と C-OH、O=C-OH のピークが存在している。熱処理後は、sp^3 のピークが sp^2 に移動し C-OH のピークが小さくなっている。これは熱処理によって官能基が減少し, 試料が還元されたためだと考えられる。

Fig.3 に Ar +H_2 混合ガス中熱処理前後の酸化グラフェンの典型的なヒステリシスループを示す。還元前の酸化グラフェンは反磁性を示したのに対し、還元後の酸化グラフェンは強磁性を示し、約 0.01 emu/g の飽和磁化が確認できた。また、Ar 雰囲気中で熱処理された酸化グラフェンは強磁性を示さなかった。

これらの結果は、酸化グラフェンの磁気特性を決定する上で、H_2 の化学吸着が重要な役割を果たしていることを示している。

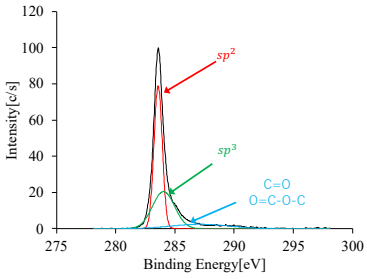


Fig.3 XPS spectrum of reduced GO

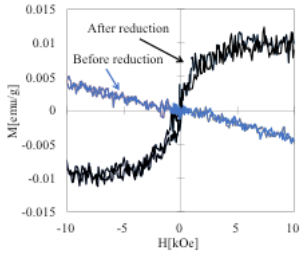


Fig.3 Typical hysteresis loops.

参考文献

1) M. Koshino : TANSO, **243**, pp. 104 - 109, 2010.
2) M. Maruyama et al.: J. Phys. Soc. Jpn., **73**, pp. 656 - 663, 2004.
3) J. Zhou et al.: Nano Lett., **9** No.11, pp. 3867 - 3870, 2009.

磁気光学イメージングに適するグラニュラー薄膜の材料探索

北原旭，橋本良介*，後藤太一，中村雄一，Pang Boey Lim，井上光輝**，内田裕久
（豊橋技科大，*鈴鹿高専，**高専機構）

Material investigation of granular thin films suitable for magnetooptial imaging

A. Kitahara, R. Hashimoto*, T. Goto, Y. Nakamura, P. B. Lim, M. Inoue**, H. Uchida
(Toyohashi Univ. of Tech., *NIT. Suzuka College, **National Institute of Technology)

はじめに

鉄鋼の破壊原因の一つに疲労亀裂があり，マイクロクラックと呼ばれる微小欠陥から進展することが知られている。微小な亀裂を高分解能で検査する技術の開発によって，建造物の安全性を保つことができるようになる。鉄鋼材の傷からの漏れ磁束を観察できる方法として磁気光学（Magneto Optical：MO）イメージング[1]がある。これは，被検体表面に配置した磁性薄膜により欠陥からの漏洩磁界を光強度に変換する技術で，欠陥の可視化が可能になる。しかし，磁気光学薄膜の特性により感度が異なり，磁気飽和の大きさが測定感度とダイナミックレンジに関係するため，測定対象ごとに印加磁界の大きさを変える必要が生じることが予想される。最近，新規な磁気光学材料として磁性グラニュラー薄膜[2]が開発された。そこで本研究では，強磁性体と絶縁媒体による磁気および磁気光学特性への影響を明らかにし，MO センサへの利用に適する磁性グラニュラー薄膜の開発を目指す。

実験方法

本研究では，強磁性体金属に Co，FeCo，絶縁媒体として SiO_2，Si_3N_4 などを用い，RF マグネトロンスパッタ装置（HSR-551，島津製作所）によって，石英基板上に磁性グラニュラー薄膜を作製した。透過率を分光光度計（UV-3150, Shimadzu）で，ファラデー回転角の波長依存性を磁気光学効果測定装置（J-1700FK，日本分光）で測定した。

実験結果

基板加熱無しで作製した磁性グラニュラー薄膜の透過率を Fig. 1 に示す。実線は今回作製した Co-SiO_2 磁性グラニュラー薄膜，破線は先行研究[3]で作製した FeCo-Si_3N_4 磁性グラニュラー薄膜である。Fig. 1 より，Co-SiO_2 磁性グラニュラー薄膜（厚さ 340 nm）のほうが FeCo-Si_3N_4 磁性グラニュラー薄膜（厚さ 224 nm）より透過率が高いことが分かる。MO 効果の利用では，透過率と回転角の両方が必要であるため，この SiO_2 媒体を利用する薄膜は MO センサとして有利であると考えられる。Fig. 2 はファラデー回転角スペクトルを示し，Co-SiO_2 磁性グラニュラー薄膜では波長 900 nm 近傍で-1.6 deg/μm が得られた。これは FeCo-Si_3N_4 磁性グラニュラー薄膜の 1500 nm 近傍で得られる回転角-1.3 deg/μm より大きかった。

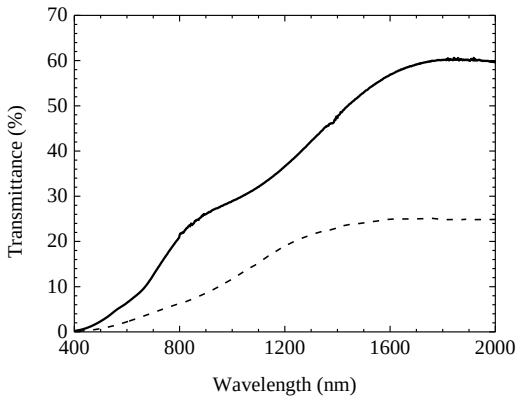


Fig. 1 Transmittance spectra for granular films. Solid curve: Co-SiO_2, dashed curve: FeCo-Si_3N_4.

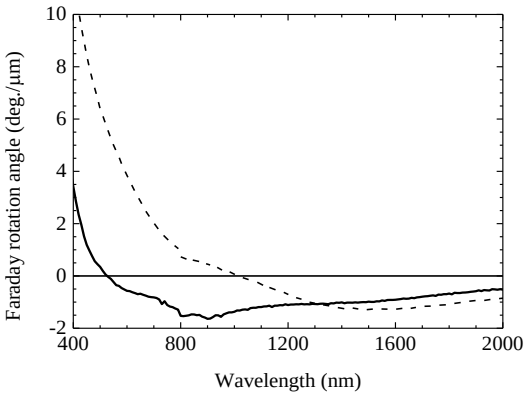


Fig. 2 Faraday rotation spectra for granular films. Solid curve: Co-SiO_2, dashed curve: FeCo-Si_3N_4.

参考文献

1) 岩崎勝博, “磁気光学素子を利用した磁気探傷技術”, 検査技術, 44-50 (2011).
2) N. Kobayashi et al., Scientific Reports 8, 4978 (2018).
3) 西本光佑 他, マグネティックス研究会資料, MAG-19-227, 35-39 (2019).

グラニュラー薄膜を用いたひずみセンサの開発

上部智也、藤原裕司、大島大輝*、加藤剛志*、神保睦子**、岩田聡*
（三重大、*名古屋大、**大同大）
Development of strain sensor with granular film
T.Uwabe, Y.Fujiwara, *D.Oshima, *T.Kato, **M.Jimbo, *S.Iwata
(Mie Univ., *Nagoya Univ., **Daido Univ.)

はじめに

近年 IoT 社会の実現に向け、多くの分野で微小ひずみの検出が求められている。また、多数の自動車、航空宇宙用途およびさらなる産業分野における機械量の測定のために小型センサが求められており、様々な原理のひずみセンサが研究されている[1)2)]。本研究では、印加磁界によって抵抗が変化するグラニュラ薄膜を FeSiBNb アモルファス薄膜(a-FeSiBNb)ヨークのギャップ中に埋め込んだ構造のひずみセンサを開発するため、それぞれの薄膜の特性を評価し、シミュレーション、試作を行い検出可能なひずみを見積もった。

実験方法

成膜は DC 電源・RF 電源を持つマグネトロンスパッタリング装置を使用した。a-FeSiBNb 薄膜は 0.5Pa、Co-AlO 薄膜は 1Pa で成膜した。膜厚はともに 300nm である。基板はマイクロカバーガラスを使用した。ひずみセンサ素子はリフトオフにより a-FeSiBNb 電極を作製し、ギャップ部に Co-AlO を成膜することで作製した。素子の設計値は、ギャップ長は 4μm、幅は 600μm である。磁気抵抗(MR)測定は直流二端子法で行った。磁気特性は VSM、トルク磁力計で評価した。

実験結果

本研究のひずみセンサ素子の概略図を Fig.1 に示す。a-FeSiBNb ヨークの磁気モーメント M を飽和させるために、外部磁界 H_{DC} を特定の方向に印加する。ひずみにより a-FeSiBNb ヨークの磁気モーメント M の方向を制御し、Co-AlO グラニュラ薄膜の抵抗を変化させる。これにより、Co-AlO グラニュラ薄膜の抵抗変化としてひずみを検出する。Fig.2(a)は簡単なモデルで行ったシミュレーション結果であり、引張ひずみに対する抵抗変化を示しており 1.0×10^{-4} 程度までのひずみを検出できることを示している。

Fig.2(b)は作製した素子に印加した引張ひずみに対する抵抗変化である。ひずみの印加方向は H⊥gap で、ひずみ印加前に外部磁界 H_{DC} を H//gap 方向に印加し、a-FeSiBNb の磁気モーメント M を H//gap 方向に揃えている。6.7×10^{-5} の引張ひずみを印加すると抵抗が減少していることがわかる。ひずみに対する抵抗変化率から求めたゲージ率(抵抗変化率/ひずみ)は約 11 で一般的な金属ひずみゲージ(ゲージ率約 2)より高感度であることがわかる。ただし、それ以上のひずみを印加すると抵抗が増加しており、これは Co-AlO グラニュラ薄膜の微粒子間隔が大きくなったことが一因と考えられる。

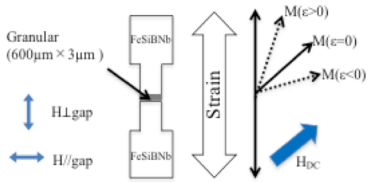
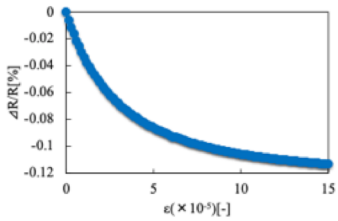
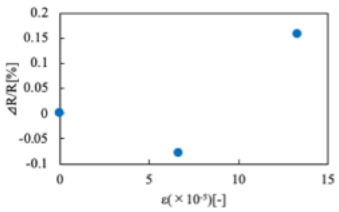


Fig.1 Schematic of strain sensor



(a)



(b)

Fig.2 Resistance change on strain.
(a)Simulation and (b)Experimental results.

参考文献

1) M.Lohndorf et al.: J. Magn. Magn. Mater. **316**, e223 (2007)
2) Y.Hashimoto et al.: J. Appl. Phys. **123**, 113903 (2018)

X/Co-Fe-B 薄膜における
飽和磁気ひずみおよびダンピング定数の膜厚による変化

田中 治憲，宮崎 孝道，杤 修一郎，遠藤 恭（東北大学）
Change in saturation magnetostriction and damping constant of X/Co-Fe-B thin films with thickness
H. Tanaka, T. Miyazaki, S. Hashi, Y. Endo (Tohoku University)

はじめに

Co-Fe-B 薄膜は高い飽和磁気ひずみ（λ_s）を有していることから，MTJ 素子を用いた高感度磁気ひずみ検知素子への応用が期待されている [1]．これまでの研究では，$(Co_{35}Fe_{65})_xB_{100-x}$ 薄膜における λ_s は，B 組成の増加にともない減少することが報告されている [2]．また，10 nm 厚の Co-Fe-B 薄膜の λ_s 値は約 31 ppm と [1]、バルク値（約 20 ppm）[3]に比べて高くなることが報告されている．しかしながら，Co-Fe-B 薄膜における λ_s の膜厚依存性や下地層効果などについては不明瞭な点が多い。これに加えて，STT-MRAM やスピントルクダイオードなどのスピントロニクス素子の創製にあたり，Co-Fe-B 膜は素子の一部を構成し，その動的磁化挙動の重要なパラメータであるダンピング定数（α）について理解する必要がある．本研究では，異なる下地層上に製膜した Co-Fe-B 薄膜における λ_s および α について系統的に理解するために，それらの膜厚依存性について詳細に検討する．

実験方法

Co-Fe-B 薄膜および下地層は RF スパッタリングおよび DC マグネトロンスパッタリングを用いて製膜した．ここで，下地層（X）には Cu，Ti および Pt を選択した．膜構成に関しては，Glass Sub./X(50 nm)/$Co_{40}Fe_{40}B_{20}$(3 – 30 nm)とした．

作製した薄膜の結晶構造および表面形状解析は，XRD および AFM を用いて行った．XRD より，Co-Fe-B 薄膜の結晶構造はアモルファスであることがわかった．磁気特性評価は，VSM，光てこ法による高感度薄膜磁気ひずみ測定装置および B-FMR 測定装置を用いて行った．

実験結果および考察

図 1 に下地層（X）の異なる Co-Fe-B 薄膜における λ_s の膜厚依存性を示す．下地層によらず，λ_s は膜厚の増加にともない増加する傾向を示した．また，いずれも λ_s 値はバルク値と比較して高く，製膜時の応力誘起によるものと考えられる．図 2 からわかるように，下地層により α の膜厚依存性は異なった．すなわち，X = Cu の場合，α は膜厚の増加にともない緩やか減少した．また，X = Ti の場合，膜厚の増加にともない減少し，その後一定となった．バルク値に対する α の増大は，異方性分散などの磁気的不均一性によるものと考えられる．X = Pt の場合，α は 7.5 nm 厚以下では約 0.03 であり，10 nm 厚以上では約 0.01 となった．他の下地層に比べて α が高く，スピンポンピングに由来するものと考えられる [4]．

以上より，λ_s は下地層による依存性はなく，いずれもバルク値に比べて高くなった．一方で，α は下地層により大きく依存することがわかった．

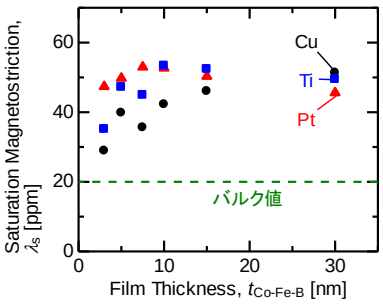


Fig. 1. Effect of underlayers on saturation magnetization.

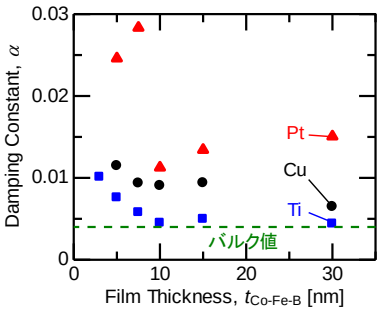


Fig. 2.α of Co-Fe-B thin films on different underlayers.

謝辞

本研究を行うにあたり，試料作製および測定の一部に関して，東北大学多元物質研究所　岡本 聡 教授，菊池 伸明 助教のご協力を得ました．ここに深謝します．本研究の一部は，東北大学先端スピントロニクス研究開発センター，東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター，東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センターの支援により行われた．また，本研究の一部は，科研費(No. 17H03226)の補助のもとで行われた．

参考文献

1) D. Wang *et al*, J. Appl. Phys., Vol.97, No.10, 10C906 (2005).　2) C. L. Platt et al, IEEE Trans. Mag., Vol. 37, No. 4 (2001)
3) R. C. O'Handley, *Modern Magnetic Materials Principles and Applications*, John Wiley & Sons, Inc., NY, USA, (1999).
4) H. Lee *et al*, J. Phys. D, Vol. 41, 215001 (2008).

$(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$ 膜における構造と磁気特性の B 組成依存性

遠藤恭，川辺泰之，村松省吾，宮崎孝道（東北大学）

Dependence of Structure and Magnetic Properties on the B Composition for $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$ Films

Y. Endo, Y. Kawabe, S. Muramatsu, T. Miyazaki (Tohoku Univ.)

はじめに

情報通信技術に関連する高速・小型・エネルギー高効率なデバイスの創製に向けて，強大な磁気ひずみを有する Fe-Ga 膜がその材料候補として期待されている [1]．我々はこれまでに Ga 組成の異なる Fe-Ga 多結晶膜の構造と磁気特性に関して詳細に検討し，Ga 組成の増加ともに飽和磁気ひずみが増加するものの，FMR 線幅が広がり面内有効ダンピング定数が高くなることを明らかにした [2, 3]．これらの結果は，Fe-Ga 多結晶膜を情報通信技術に関連する新規デバイスへ応用するためにはそれらの軟磁気・高周波磁気特性を改善する必要があることを意味している．本研究では，Fe-Ga 膜における磁気特性の改善のために半金属元素の添加による効果を検討した．すなわち，半金属元素として B を選択して，B 添加した Fe-Ga 膜の構造と磁気特性の B 組成依存性について検討した．

実験方法

50 nm 厚の $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$（Fe-Ga-B）（$0 \le x \le 14.9$）膜を石英基板上に DC マグネトロンスパッタ装置を用いて作製した．作製した Fe-Ga-B 膜の構造および組成は，XRD, TEM および EDX を，また磁気特性は，VSM，光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪装置およびブロードバンド FMR 測定法を用いた評価した．

結果および考察

B 組成の異なる Fe-Ga-B 膜の X 線回折パターンを図 1 に示す．いずれの B 組成においても回折角 44°付近に弱いピークが観測された．これらの結果は，Fe-Ga-B 膜の結晶構造が B 組成によらず主に(110)配向した bcc 構造であることを示唆している．このような結晶構造を有する Fe-Ga-B 膜における磁気特性を詳細に検討した．図 2(a)に示すように，飽和磁気ひずみ（λ_s）は B 組成を増価させると若干減少し，8.2at.%以上の B 組成範囲では増加する傾向が見られた．λ_s 値は 9.4 at.%以上の B 組成範囲では Fe-Ga 多結晶膜 [2, 3]よりも高くなった．この原因は bcc 格子中の格子間位置に B 原子が存在することによるものと考えられる．また，図 2(b)からわかるように，面内有効ダンピング定数（$\alpha_{//}$）は，B 組成 4.7 at.%を除いて B 組成の増加にともに減少した．$\alpha_{//}$ 値はいずれの場合も B を添加しない $Fe_{0.75}Ga_{0.25}$ 膜に比べて低く，とりわけ B 組成 13.6 at.%以上では Co-Fe-B 膜やゼロ磁歪組成の Ni-Fe 膜とほぼ同等となった．以上の結果から，Fe-Ga 膜は 10 at.%以上の B を添加することにより磁気特性を改善させることができることがわかった．

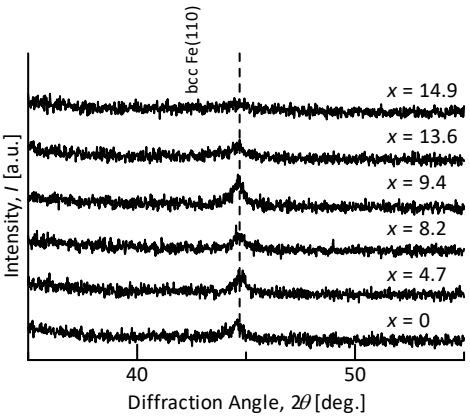


Fig. 1. X-ray diffraction (XRD) patterns of 50-nm thick $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$ films with various B compositions.

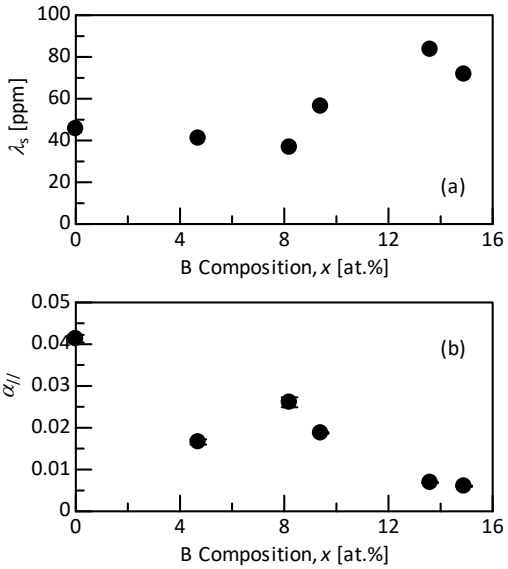


Fig. 2. Change in (a) saturation magnetostriction (λ_s) and (b) in-plane effective damping constant ($\alpha_{//}$) of 50-nm thick $(Fe_{0.75}Ga_{0.25})_{100-x}B_x$ films with B composition (x).

謝辞

本研究の一部は，科研費基盤研究（B）（No. 17H03226）の補助と，東北大学 CSRN，東北大学 CSIS，東北大学 CIES および ASRC の支援のものと行われた．

参考文献　1) B. K. Kuanr et al., JAP, **115**, 17C112 (2014)., 2) YE et al., JMMM, **487**, 165323 (2019)., 3) Y. Kawabe et al., JMSJ **3**, 34 (2019) (Japanese).

Ga組成の異なるFe-Ga-B薄膜における構造と静的・動的磁気特性に関する研究

村松省吾、宮崎孝道、遠藤恭
（東北大学）

Study on the structure and static and dynamic magnetic properties of Fe-Ga-B thin films with various Ga composition

Shogo Muramatsu, Takamichi Miyazaki, Yasushi Endo
(Tohoku Univ.)

はじめに

巨大な飽和磁歪を有するFe-Ga合金薄膜は高速かつ小型な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている。我々はこれまでにFe-Ga多結晶薄膜における静的・動的磁気特性のGa組成による変化を検討し，それらの保磁力とダンピング定数が高くなることを報告した[(1)]。この結果はFe-Ga多結晶薄膜を高周波磁気デバイスへ応用するためには、それらの磁気特性を改善する必要があることを示している。そこで本研究では、Fe-Ga膜の軟磁性化および高周波磁気特性の改善を目指して、Bを添加したFe-Ga-B薄膜を作製し、Ga組成の異なるFe-Ga-B薄膜の構造と静的・動的磁気特性について検討・議論する。

実験方法

10 nm厚の$Fe_{85.1-x}Ga_xB_{14.9}$(x=17.8 – 27.7)をガラス基板上にDCマグネトロンスパッタリングを用いて製膜した。作製した試料の組成に関してはEDXおよび飽和磁化値から算定した。表面形状についてはAFMを、結晶構造についてはXRDおよびTEMを用いて評価した。また、静的・動的磁気特性についてはVSM、光てこ法を用いた高感度薄膜磁歪測定装置およびブロードバンドFMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

実験結果

Fe-Ga-B薄膜における容易軸方向の保磁力(H_c)およびダンピング定数(α)のGa組成依存性を図1示す。H_cに関してはGa組成に依存せずほぼ一定となり10 Oe程度であった。これらの値は先行研究のアモルファスFe-Ga-B膜(1 Oe)[(2)]に比べて高く、その原因は製膜法の違いによるものと考えられる。また、これらの値はFe-Ga多結晶膜(50 Oe)[(1)]に比べて非常に低い値となった。αに関してはGa組成の増加に対して21.8 at.%まではほぼ一定であり、24.5 at.%で極小を取り、さらにGa組成を増加させると増加した。これらの値は0.006 – 0.010であり、Fe-Ga多結晶膜(0.04)に比べて一桁ほど低くなった[(3)]。

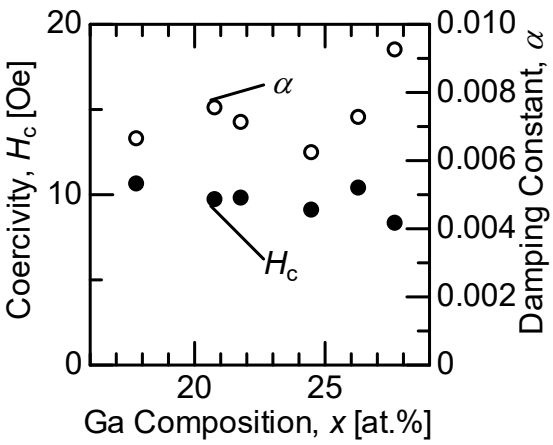


Fig.1 Dependence of coercivity and damping constant on Ga composition

以上の結果はFe-Ga合金へのBの添加がFe-Ga多結晶膜の軟磁性化および高周波磁気特性を改善させることができることを表している。

謝辞　本研究の一部は，JSPS科研費 JP17H03226の助成と，東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター（CIES），東北大学先端スピントロニクス研究開発センター（CSIS），東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター（CSRN）および情報ストレージ研究推進機構（ASRC）の支援のもとで行われました.

参考文献　(1) 川辺泰之ら, T. Magn. Soc. Jpn, (Special Issues), **3**, 34-38 (2019). (2) J. Lou et al, Appl. Phys. Lett. **91**, 182504(2007). (3) Daniel B. Gopman et al., IEEE TRANSACTIONS, VOL. 53, NO.11, (2017).

アモルファス Fe-B 軟磁性微粒子の高周波磁気特性

村田 啓太、宮崎 孝道、増本 博、遠藤 恭
（東北大学）

Study of magnetic properties of amorphous Fe-B soft magnetic particles

Keita Murata, Takamichi Miyazaki, Hiroshi Masumoto, Yasushi Endo
（Tohoku Univ.）

はじめに

電子機器の高周波化が進むにつれて、GHz 帯における電磁ノイズ抑制体（NSS）の需要が高まっている。一般的な NSS は、フェライトや磁性粉を樹脂に含んだシート状の構造となっているが、抵抗率が低く、渦電流損失によって GHz 帯において NSS 特性が低下する問題が指摘されている。我々のグループでは、これまでに水溶液還元反応法を改良した合成法で作製した Fe-B-P や Co-Fe-B などのアモルファス軟磁性合金微粒子の構造・磁気特性を検討し[1]、高抵抗率かつ良好な軟磁気特性が得られることを報告してきた。

本研究では、新たに高い飽和磁束密度（B_s）の高い Fe-B アモルファス合金を選択し、アモルファス Fe-B 軟磁性微粒子の合成法とそれらの構造・磁気特性について検討した。

実験方法

アモルファス Fe-B 微粒子の合成法は、水溶液還元反応法を改良した方法であり、鉄塩を含む水溶液中に還元剤となる $NaBH_4$ を攪拌しながら滴下することで微粒子を得ることができる。

合成した微粒子の形状観察および構造解析に関しては、SEM および TEM を用いた。また、それらの磁気特性に関しては、微粒子とバインダーに用いた絶縁体の樹脂との Vol.%を 50 %：50 %としてコンポジット材を作製し、それらを用いて VSM および複素透磁率測定装置により評価した。

実験結果

図 1 は合成した Fe-B 微粒子における SEM 像の一例である。形状は分散した粒径で、平均粒径 D_{50} はとなった。合成法を調整することにより、所望の D_{50} を有する Fe-B 微粒子の合成が可能であることを確認した。また、合成した微粒子における TEM 像においてハローパターンが観測されたことから、これらの結晶構造はアモルファス状態であることがわかった。

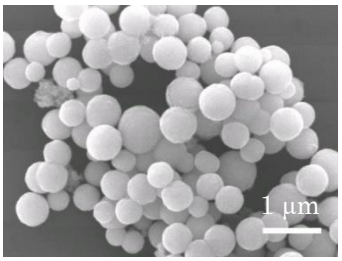


Fig. 1. SEM image of amorphous Fe-B particles

また、合成した微粒子における磁気特性に関して、飽和磁化（σs）は D_{50} に関係なくほぼ一定で、それらの値は 130~150 emu/g となった。保磁力（H_c）は平均粒径 D_{50} の増加にともないおおむね D^{-1} に沿って減少した。図 2 は複素透磁率の虚部をフィッティングおよび解析して導出した D_{50} による Fe-B 微粒子における共鳴ピーク周波数（f_{FMR}）と線幅（Δf_{FMR}）の変化である。f_{FMR} は D_{50} の増加にともない 2.5 GHz から 1.7 GHz へ減少した。これらはいずれも L~S バンド内に存在した。また、Δf_{FMR} は 5G に利用される 3~6 GHz を包含していた。以上より、合成したアモルファス Fe-B 軟磁性微粒子は GHz 帯における NSS への応用が期待できることと考えられる。

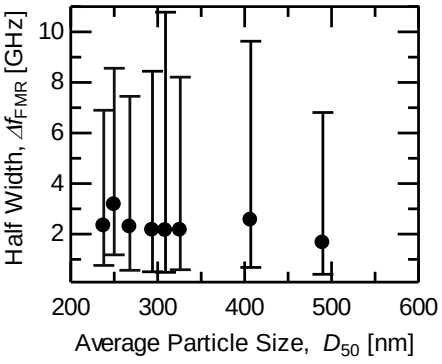


Fig. 2. Size dependence of Half-Width of FMR frequency, Δf_{FMR}

謝辞

本研究の一部は, JSPS 科研費 JP19K21952 の助成と，東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター(CIES), 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)および東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS)の支援のもとで行われました.

参考文献

1) Y. Shimada, Y. Endo, M. Yamaguchi, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Imano, H. Matsumoto, and S. Yoshida, IEEE Trans. Magn., 45 (2009) 4298–4301.

急冷凝固法により作製したMnPt合金の構造

江良 尚哉、佐藤 史和、佐々木 巌、飯久保 智、徳永 辰也、小川 俊文*
（九州工業大学、*福岡県工業技術センター）

Structure of MnPt alloy produced by the quench solidification method

N. Era, H. Sato, I. Sasaki, S. Iikubo, T. Tokunaga, T. Ogawa*
(Kyushu Institute of Technology, *Fukuoka Industrial Technology Center)

背景・目的

MnPt系合金は組成や温度領域により複雑な磁気構造を有する材料である。MnがリッチなMn_3Ptは反強磁性を示し、MnPtでは常磁性の不規則相とネール温度約1000 Kの反強磁性の規則相を有する[1)]。また、Ptがリッチな$MnPt_3$では強磁性を示す合金系として知られている[2)]。一方、ナノスケール化することにより、そのバルク特性とは異なる独特の物理的および化学的特性を示す。小野らは、反強磁性体であるMnPtを化学的手法で作製し、MnPtがナノ粒子になることで強磁性を発現することを報告している[3)]。しかしその発現メカニズムは解明されていない。さらに、Leeらは同様に化学的手法によりMnPtナノ粒子の作製を試みたが、$L1_0$型のMnPtは得られず$MnPt_3$が得られており、これが強磁性の要因であるとしている[4)]。このように化学的手法で作製したMnPtナノ粒子の磁性は不明な点が多い。そこでナノ構造MnPtの磁気特性を調査するために金属的手法に着目した。本研究では、単ロール式液体急冷凝固装置を用いてMnPtおよびBの添加をしたMnPtBの急冷薄帯を作製し、構造等の調査を行った。

実験方法

高純度Mn, Pt, B始発原料から真空アーク溶解炉(協立電機製作所)を用いてMnPt母合金およびMnPtB母合金を作製した。この母合金を単ロール式液体急冷凝固装置(日新技研NEV-A05)にて急冷処理した。冷却速度は直径200 mmの銅ロールの周速度を変化させることによった。構造解析には全自動水平型多目的X線回折装置(リガクSmartLab)、表面の解析には走査型電子顕微鏡(日本電子JSM-6010Plus/LA)を使用した。

結果

図1にMnPt母合金および急冷薄帯のXRD測定結果を示す。この結果より母合金はMnPt単相であることが確認できた。急冷薄帯のピークの半値幅は母合金と比較し広がりを示しており、急冷することによる結晶粒径の微小化が確認された。また、シェラー式により導出した急冷薄帯結晶粒径は20～30 nmであり先行研究[3)]より大きい。本講演ではMnPtBの評価も併せて発表を行う予定である。

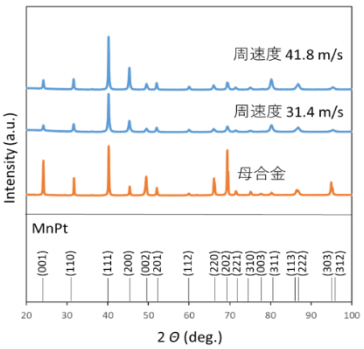


図1 MnPt母合金、急冷薄帯のXRD

参考文献

1) 梅津 理恵、深道 和明、佐久間 昭正、まてりあ、2004年 **43** 巻 10 号 pp. 831-839
2) 加藤 剛志、岩田 聡、網島 滋、内山 晋、日本応用磁気学会誌、1995年 **19** 巻 2 号 pp. 205-208
3) K. Ono, R. Okuda, Y. Ishii, S. Kamimura, and M. Oshima, J. Phys. Chem. B, 2003, **107**, pp. 1941-1942
4) D. C. Lee, A. Ghezelbash, C. A. Stowell, and B. A. Korgel, J. Phys. Chem. B, 2006, **110**, pp. 20906-20911

M元素置換型ゲーサイトを出発原料とした還元窒化プロセスによる α”-(Fe, M)$_{16}$N$_2$ ナノ粒子 (M= Co, Al) の作製

◦飛世 正博，　斉藤 伸（東北大学）

Synthesis of α”-(Fe, M)$_{16}$N$_2$ nanoparticles obtained by hydrogen reduction and subsequent nitrogenation starting from α-(Fe, M)OOH (M= Al, Co)

Masahiro Tobise, Shin Saito (Tohoku University)

はじめに　α”-Fe$_{16}$N$_2$ は高い飽和磁化 1680 emu/cm^3 と一軸結晶磁気異方性エネルギー 9.6 ×10^6 erg/cm^3 を示すことから希土類フリーギャップ磁石材料としての可能性を有している [1]．講演者らは水酸化鉄等を出発原料として還元窒化を行うことによりα”-Fe$_{16}$N$_2$ 粒子を合成するプロセスにおいて，α”-Fe$_{16}$N$_2$ 相の生成率を高めることにより，より高い結晶磁気異方性の発現を目指して原料組成やプロセス条件を変え，α”-Fe$_{16}$N$_2$ 粒子およびその集合体の形態と磁気特性との関係について一連の研究を行っている [2), 3)]．今回は Fe の一部を Co と Al で複合置換した α”-(Fe, Co, Al)$_{16}$N$_2$ ナノ粒子の合成を検討した．

実験方法　出発原料には単独置換した α-(Fe$_{1-x}$M$_x$)OOH ナノ粒子 (M=Co, Al, x= 0, 0.02, 0.05) および複合置換した α-(Fe$_{0.95}$Co$_{0.02}$Al$_{0.03}$)OOH ナノ粒子を用いた．これらを 300～500 ℃ で 4 h 水素中還元し，引き続き 150～180 ℃ で 5 h アンモニア中窒化を行った．生成相は X 線回折，磁気特性は VSM (最大印加磁場：15 kOe) で評価した．

実験結果　Fig. 1 に α-FeOOH, α-(Fe$_{0.98}$Co$_{0.02}$)OOH, α-(Fe$_{0.95}$Al$_{0.05}$)OOH, α-(Fe$_{0.95}$Co$_{0.02}$ Al$_{0.03}$)OOH を出発原料として還元窒化処理を行った後のナノ粒子集合体の磁化 M_{15k}，保磁力 H_c を，還元温度 T_r. および窒化温度 T_n. に対してプロットした．また α”-(Fe, M)$_{16}$N$_2$ 相が生成した領域を示した．Co: 0.02 置換の場合，α” 相が生成したのは T_r.：340 ℃, T_n.：170 ℃ のときのみであった．このとき磁化 M_{15k} は 184 emu/g で置換なしの場合と同等であったが H_c は低下した．Co 量を増加し 0.05 とした場合，α” 相は生成しなかった．一方 Al: 0.05 の場合は T_r.：400～500 ℃, T_n.：150～170 ℃ の広い範囲にわたって α” 相が生成した。このときの M_{15k} は 137～173 emu/g, H_c は 1180～1480 Oe を示した．Co 置換系は高い磁化が得られるものの生成条件は限られている．Al 置換系は生成条件の範囲が広く高い H_c が得られるが磁化が低い．そこで Co: 0.02 と Al: 0.03 の複合置換系を検討した．この系では T_r.：400～500 ℃, T_n.：160～170 ℃ の範囲にわたって α” 相が生成し M_{15k} は 150～175 emu/g, H_c は 1410～1850 Oe を示した．Table 1 に M_{15k} と H_c の代表的な値をまとめた．Co と Al の複合置換によりα” 相が生成する還元，窒化条件の範囲が広くなるとともに，H_c は Co と Al それぞれの単独置換よりも高い値が得られ，磁化は Al 単独置換よりも高くすることができた．講演では TEM 法による組織観察および回転ヒステリシス損失法による異方性磁界評価に基づき，α”-(Fe, M)$_{16}$N$_2$ ナノ粒子集合体の構造と磁気特性との相関について報告する．

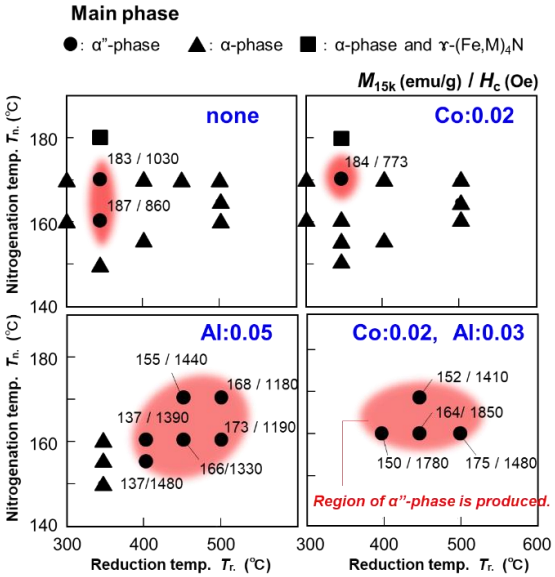


Fig. 1　Plots of M_{15k} /H_c of nanoparticles as a function of reduction temp. and nitrogenation temp. for several starting materials.

Table 1 M_{15k} and H_c of nanoparticles after reduction and nitrogenation for several starting materials.

Starting material	M_{15k} (emu/g)	H_c (Oe)
FeOOH	183	1026
(Fe$_{0.95}$Co$_{0.02}$)OOH	184	773
(Fe$_{0.95}$Al$_{0.05}$)OOH	137	1480
(Fe$_{0.95}$Co$_{0.02}$Al$_{0.03}$)OOH	164	1850

参考文献 1) R. Skomski et al., *Scripta Mater.*, **112**, 3 (2016). 2) M. Tobise et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **41**, 58 (2017). 3) M. Tobise et al., AIP Adv., **JMI2019**, 035233 (2019).

異なる粒径を有する鉄および酸化鉄ナノ粒子共凝集体の作製と磁気特性

小川智之，°小坂奈月，山口恭周，斉藤伸
（東北大院工）

Synthesis of Fe-Fe_3O_4 coagulated nanoparticle assembly with different nanoparticle diameter

T. Ogawa,° N. Kosaka, Y. Yamaguchi, S. Saito
(Eng. Tohoku Univ.)

はじめに

単磁区強磁性ナノ粒子の集合体では，粒子間に働く磁気双極子相互作用が顕著になり，スーパースピングラスや超強磁性などのバルク体とは大きく異なる磁気特性が発現することが報告されている．これまで，鉄ナノ粒子と非磁性である金ナノ粒子の共凝集体において，粒子濃度を制御した場合における静的・動的磁気特性を詳細に調べ，磁気相図を得てきた[1,2]．本研究では，相互作用の変調を促進することを目的に，飽和磁化の異なる鉄（Fe）ナノ粒子と酸化鉄（Fe_3O_4）ナノ粒子について，Fe ナノ粒子に対して粒径が小さい Fe_3O_4 ナノ粒子を合成し，それらの共凝集体の作製，ならびにそれらの磁気特性の評価を行った．

実験方法

Fe ナノ粒子の合成は，加熱したドデカン溶媒中に $Fe(CO)_5$ とオレイルアミンの反応前駆体を投入し撹拌を行った．一定時間反応させたのち反応溶液を冷却し，アセトンで洗浄し真空乾燥によって粉末を得た．一方，Fe_3O_4 ナノ粒子の合成は，オレイルアミン溶媒中に $Fe(CO)_5$ とオレイン酸を投入し，一定温度下で一定時間反応させ，冷却後アセトンで洗浄して粉末を得た．また，総重量に占める Fe ナノ粒子の割合を 0%から 100%まで変化させた Fe-Fe_3O_4 ナノ粒子の複合粉末を作製し，トルエン中に再分散させエタノールを用いて分離し共凝集体を得た．作製したサンプルについて，透過型電子顕微鏡（TEM）を用いた構造評価および，振動試料型磁力計（PPMS-VersaLab）を用いた磁化曲線ならびに交流磁化率測定装置（SQUID,PPMS-ACMS）を用いた複素磁化率の評価を行った．

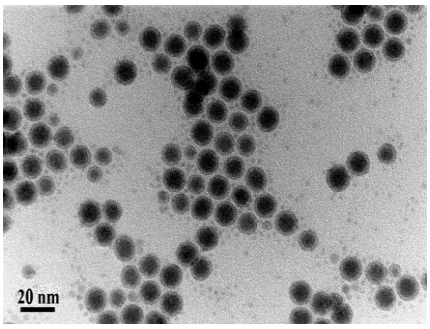


Fig. 1　TEM image of Fe NPs.

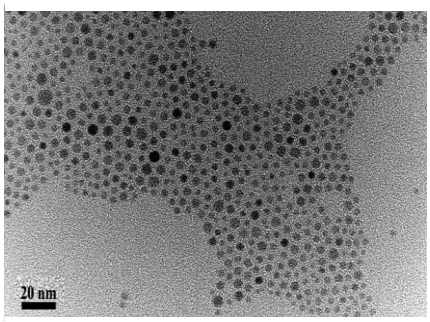


Fig. 2　TEM image of Fe_3O_4 NPs.

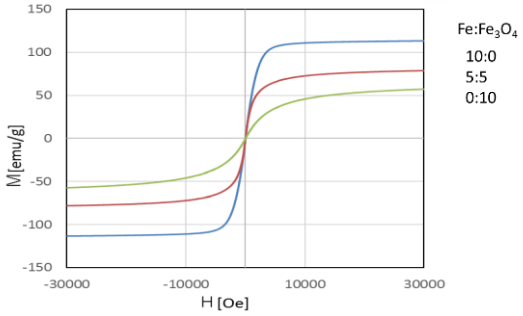


Fig. 3　Magnetization curves of Fe-Fe_3O_4 NPs.

実験結果

Fe および Fe_3O_4 ナノ粒子の TEM 像をそれぞれ Fig.1,2 に示す．これより，Fe および Fe_3O_4 ナノ粒子の平均粒径はそれぞれ 12.5 nm および，3.4 nm となった．Fe，Fe_3O_4，共凝集体について磁化曲線を測定した結果を Fig.3 に示す. Fe および Fe_3O_4 ナノ粒子の飽和磁化はそれぞれ 113.1 emu/g，56.1 emu/g となった．また，共凝集体の飽和磁化は Fe および Fe_3O_4 ナノ粒子複合比によって，系統的に変化することが分かった．当日は，複素磁化率の温度依存性と磁気相図との関係について議論を行う．

参考文献

1)　K.Hiroi *et al.*, *J. Phys: Cond. Mat.* **26**, 176001 (2014).
2)　蔵裕彰 等, *日本磁気学会誌* **35**, 203-210 (2011)

針状 $Fe_3O_4/MnFe_2O_4/CoFe_2O_4$ ナノ粒子の合成と磁気特性

山田壮太、岸本幹雄、柳原英人
（筑波大学）

Synthesis and magnetic properties of needle shaped $Fe_3O_4/MnFe_2O_4/CoFe_2O_4$ nanoparticles

S.Yamada, M. Kishimoto, and H. Yanagihara
(Univ. of Tsukuba)

はじめに

コアシェル構造を持たせた磁性粒子は、膨大なコア・シェル材料の組み合わせやシェル厚さの制御に加えて、異なる材料界面の相互作用により、新たな機能性を持つ材料設計を可能とする[1]。薄膜を用いた我々の先行研究では、Co フェライト薄膜に MgO 基板との格子不整合による歪みを導入することで、大きな一軸磁気異方性を発現することを確認している[2]。しかし、磁石材料としてバルク化が困難であることから、この格子不整合によって誘導される大きな磁気異方性を微粒子試料において発現させることを目指している。そこで、磁気記録材料として広く生産されている針状 Co エピタキシャル酸化鉄に注目し、この Co フェライトとマグネタイトとの間に大きな格子定数を持つ Mn フェライトを挟むことで、Co フェライトにエピタキシャル歪みを導入させることを最終目標としている。今回の研究では、針状 $Fe_3O_4/MnFe_2O_4/CoFe_2O_4$ ナノ粒子の合成方法の確立と、結晶構造および磁気特性について検討した。

実験方法

コアとなる出発原料には、前駆体α-FeOOH を水素還元して作った針状 Fe_3O_4 を用いた。第一段階として、針状 Fe_3O_4 および Fe^{2+}、Mn^{2+}イオンを含む水溶液に NaOH 水溶液を混合することで共沈させ、これをオートクレーブ内にて高温高圧下で反応させた。沈殿物を数回水洗し中性にした後、乾燥させて粉末状の試料とした。ここで、生成する $MnFe_2O_4$ が針状 Fe_3O_4 に対し、質量比率 5～30 %の範囲となるよう調製した。第二段階として、その生成物と Fe^{2+}、Co^{2+}イオンを含む水溶液で、同様に水熱合成を行った。ここで、$CoFe_2O_4$ が前段階の生成物に対し、質量比率 30 %となるようにした。作製した試料の評価として、透過型電子顕微鏡(TEM)での粒子形状観察、X 線回折(XRD)による結晶構造解析、振動試料型磁束計(VSM)による磁化測定を行った。

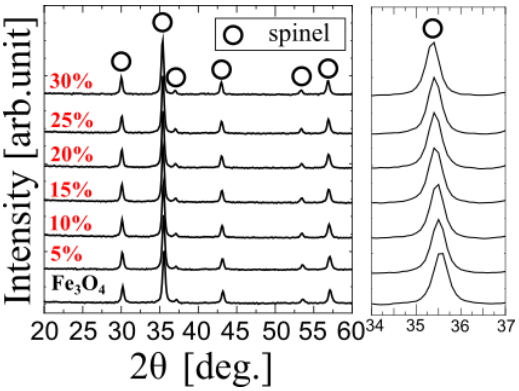


Fig. 1 XRD patterns of needle shaped Fe_3O_4 and samples ranging from 5 to 30 % in the mass ratio.

実験結果

Fig.1 に針状 Fe_3O_4 および第一段階で作製した各試料の XRD パターンを示す。いずれの XRD パターンでも立方晶スピネル構造の回折線が観測された。格子定数は針状 Fe_3O_4 で 8.393 Å、Mn^{2+}イオンを含む水溶液で合成した試料では質量比率が増加するほど大きくなり、質量比率 30 %の試料で 8.408 Åである。Fig.2 に第二段階で作製した各試料の磁化曲線を示す。飽和磁化、保磁力ともに質量比率 10 %で最大値を示し、それぞれ M_s = 83.4 emu/g、H_c = 1100 Oe であった。講演では、合成条件や結晶構造、表面状態の観察について詳細な実験結果を報告する。

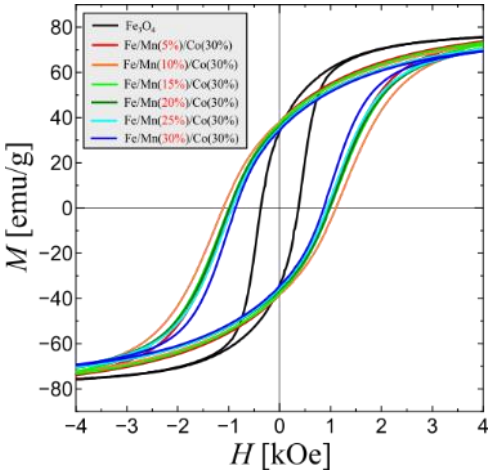


Fig. 2 Magnetic hysteresis loops for each sample prepared in the second stage.

参考文献

[1] Q. Song, Z.J. Zhang, J. Am. Chem. Soc. **134**, 10182-10190 (2012)

[2] T. Niizeki *et al*., Appl. Phys. Lett, **103** 162407 (2013)

置換反応による針状$CoFe_2O_4$および針状$MnFe_2O_4$ナノ粒子の合成と磁気特性評価

廣瀬大地、山田壮太、岸本幹雄、柳原英人 (筑波大学)

Synthesis and measurements of magnetic properties of needle-shaped nanoparticles of $CoFe_2O_4$ and $MnFe_2O_4$ by substitution reaction

D.Hirose, S.Yamada, M.Kishimoto, H.Yanagihara (Univ. of Tsukuba)

はじめに

針状の酸化鉄ナノ粒子は、その形状磁気異方性による高い保磁力を持つことから磁気記録材料として広く生産されている[1]。なかでも$CoFe_2O_4$は、大きな磁気弾性効果を示すことで知られており、先行研究では$MgO\ (001)$ 基板上で$CoFe_2O_4$薄膜をエピタキシャル成長させると、基板と薄膜戸の格子不整合によって歪が生じ、大きな磁気異方性が発現することが報告されている[2]。そこでバルク材料への展開が可能な微粒子形態で適用を考え、格子不整合に伴う格子歪を導入させる材料として、針状の酸化鉄ナノ粒子に注目した。このナノ粒子の格子定数が調節可能となれば格子不整合を引き起こす材料の幅が広がる。そこで針状Fe_3O_4を出発原料として針状$CoFe_2O_4$、針状$MnFe_2O_4$を作製することを目指し、本研究では置換反応による針状$CoFe_2O_4$、針状$MnFe_2O_4$ナノ粒子の合成条件、結晶構造、磁気特性について検討した。

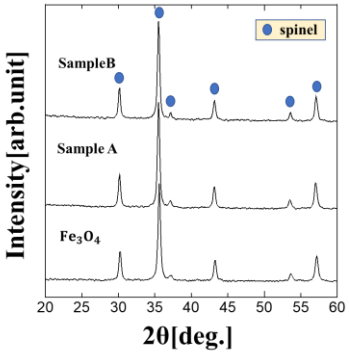


Fig.1 XRD patterns of needle-shaped Fe_3O_4, sample A, and sample B

実験方法

出発原料として保磁力 370Oe、 飽和磁化 78emu/gの針状Fe_3O_4を用いた。まず針状Fe_2O_4、Co^{2+}もしくはMn^{2+}を含む水溶液とポリエチレングリコールを混合した。次に二種類の手法で微粒子を合成した。一つ目の手法では、混合溶液を高温下で一定時間撹拌し反応させた。二つ目の手法では、混合溶液をオートクレーブ中に入れ高温高圧下で反応させた。いずれの手法で反応させた試料も沈殿させ水洗することで余分なイオンや溶液を取り除き、60℃で乾燥させることで完成する。ここで反応時間、温度、金属イオンの仕込み量を変化させて合成条件の最適化を行った。完成した試料の評価方法として結晶構造解析に XRD、磁気特性評価に VSM を使用した。

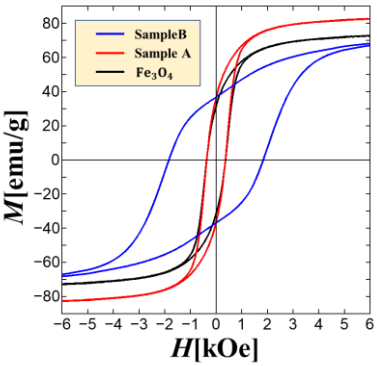


Fig.2 Magnetic hysteresis loops of needle-shaped Fe_3O_4, sample A, and sample B

実験結果

Fig.1 に針状Fe_3O_4、Co と Fe の物質量比 55:45 で作製した試料 A、Mn と Fe の物質量比 59:41 で作製した試料 B の X 線回折パターンを示す。試料 A、試料 B ともに立方晶スピネル構造を示す回折線が観測された。また、針状Fe_3O_4、試料 B の格子定数はそれぞれ 8.382Å、8.403Å となっており Mn を導入することで格子定数が 0.25%増加している。続いて Fig.2 に針状Fe_3O_4、試料 A、試料 B の磁化曲線を示す。それぞれの試料の保磁力は 370Oe、1840Oe、360Oe となった。講演では、各試料の合成条件、表面状態の観察、結晶構造や磁気特性に関する詳細な実験結果を報告する。

参考文献

[1]A.H.Morrish and L.A.K.Watt, *J.Appl.Phys.*, 29, 1029 (1958)　[2] T.Niizeki et al., *Appl. Phys. Lett.*, 103, 162407 (2013)

偏極中性子小角散乱による中空 Fe_3O_4 粒子の磁化解析

野村英志，松尾咲琴，小林悟，J. Manjanna[1]，河村幸彦[2]，鈴木淳市[2]，大石一城[2]，廣井孝介[3]
(岩手大理工，[1]Rani Channamma Univ.，[2]CROSS，[3]JAEA)

Magnetization analysis of hollow Fe_3O_4 particles by polarized small angle neutron scattering

E. Nomura, S. Matsuo, S. Kobayashi, J. Manjanna[1], Y. Kawamura[2], J. Suzuki[2], K. Ohishi[2], K. Hiroi[3]
(Iwate Univ. [1]Rani Channamma Univ., [2]CROSS, [3]JAEA)

はじめに

近年，磁気ハイパーサーミアの新たな応用可能性として，ナノ・サブミクロン強磁性粒子が示すスピン・ボルテックス構造(SV)が注目されている[1]．我々は，中空 Fe_3O_4 サブミクロン粒子の磁気一次反転曲線(FORC)測定を行い，SV がゼロ磁場近傍で形成し，T = 10～300 K の広温度範囲で安定的に存在することを見出した[2]．本研究では，最近の中性子小角散乱実験結果[3]を踏まえ，偏極中性子を用いて中空 Fe_3O_4 粒子の SV 形成過程を再調査したので報告する．

実験方法

中空 Fe_3O_4 サブミクロン粒子(平均粒径: 417 nm，平均孔径: 211 nm)について，大強度陽子加速器施設(J-Parc)の中性子小角・広角散乱装置を用いて，温度T = 10，300 K，印加磁場 B = 1 T～-1 T の条件で偏極中性子小角散乱実験を行った．中性子の入射方向に対して垂直方向に磁場を印加し，磁場に対して垂直方向の磁気散乱強度$I(q)_{\mathrm{V,mag}}$と平行方向の磁気散乱強度$I(q)_{\mathrm{H,mag}}$を観測した．

実験結果

Fig.1(a)，(b)に T = 10 K における$I(q)_{\mathrm{V,mag}}$，$I(q)_{\mathrm{H,mag}}$の磁場依存性をそれぞれ示す．飽和状態の B = 1 T から磁場を減少すると，SV の形成開始磁場(B～0.03T)で$I(q)_{\mathrm{V,mag}}$が急激に減少し始め，保磁力近傍の B = -0.03 T で最小を示すことが分かった．一方，$I(q)_{\mathrm{H,mag}}$は磁場の減少とともに増加し，SV の形成磁場近傍で、$I(q)_{\mathrm{V,mag}}$と同程度以上の散乱強度を示すことが分かった.この結果は，中空粒子内において，磁場方向に垂直な強磁性的な磁気モーメント成分の増大を示唆しており，SV 形成を示唆する FORC 測定結果と矛盾しない．

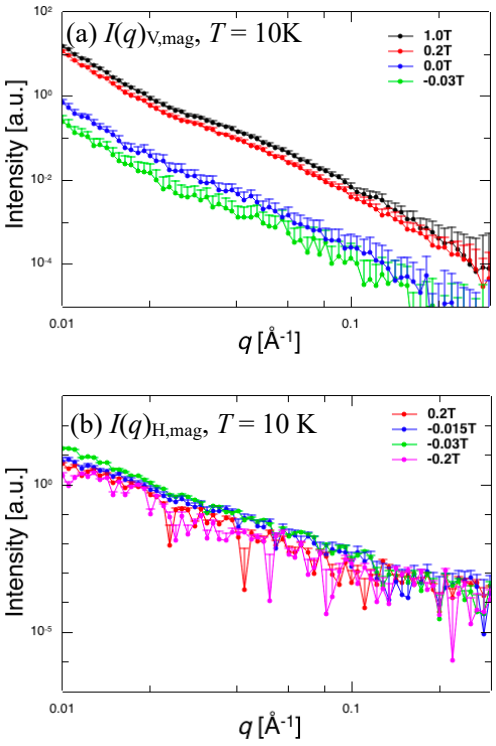


Fig.1 Magnetic field dependence of magnetic scattering Intensity in the (a) vertical and (b) horizontal directions at T = 10 K.

謝辞

本中性子散乱実験はユーザープログラム（課題番号 2020A0014）のもと，J-PARC 物質・生命科学実験施設で実施した．

参考文献

1) N.A. Usov *et al.*, Scientific Reports, vol.**8**, 1224 (2018).
2) M. Chiba *et al.*, J. Mag. Mag. Mater., **512**, 167012 (2020)
3) M. Chiba *et al.*, 27aD-4,第 43 回日本磁気学会学術講演会概要集

種々の融点を有する粒界材により2相析出させた FePt グラニュラ薄膜の構造と磁気特性 (1)

○齊藤 節[1], タム キム コング[2], 櫛引 了輔[2], 小川 智之[1], 斉藤 伸[1]
(1. 東北大学,　2. 田中貴金属)

Structure and magnetic properties of FePt granular film precipitated in two phases by grain boundary materials with various melting points (1)

○Takashi Saito[1], Kim Kong Tham[2], Ryosuke Kushibiki[2], Tomoyuki Ogawa[1], and Shin Saito[1]
(1. Tohoku Univ., 2. TANAKA KIKINZOKU KOGYO K. K.)

はじめに　垂直磁気記録媒体のグラニュラ記録層では、室温で高い結晶磁気異方性エネルギーを有する磁性結晶粒の *c* 軸配向化、柱状組織化、ならびに磁気的孤立化が求められている。これらの要求を満たすため従来の媒体では、磁性層中の粒界材 (Grain boundary material: GBM) は重要な役割を担ってきた。現状実用されている CoPt-酸化物グラニュラ薄膜においては、CoPt 磁性結晶粒の粒界に非磁性酸化物が析出する。このグラニュラ層では、磁性結晶粒内に導入される積層欠陥、さらには磁性結晶粒の飽和磁化や結晶磁気異方性エネルギーが粒界材融点に強く依存することが明らかとなっている[1]。一方、次世代の熱アシスト磁気記録用の媒体では、$L1_0$ 型 FePt グラニュラ薄膜が有力な候補材料である。この FePt グラニュラ薄膜に関する先行研究では、粒界材の電気陰性度[2]、表面エネルギー[3]、凝集エネルギー[4]と、グラニュラ組織ならびに磁気特性との相関が報じられているが、粒界材の融点に着目して特性を整理している報告は見当たらない。そこで、今回我々は融点が異なる様々な GBM を有する FePt-GBM グラニュラ薄膜の構造および磁気特性を評価し、粒界材融点との相関を議論したので報告する。

実験結果　試料の層構成は FePt-30vol.%GBM (5 nm)/ MgO(5 nm)/ a–$Co_{60}W_{40}$(80 nm)/ Sub.とした。GBM は B_2O_3 (T_m: 450 °C)、 MoO_3 (795 °C)、SnO (1080 °C)、GeO_2 (1115 °C)、WO_3 (1473 °C)、Nb_2O_5 (1512 °C)、SiO_2 (1723 °C)、TiO_2 (1857 °C)、MnO (1945 °C)、Y_2O_3 (2425 °C)、ZrO_2 (2715 °C)、BN (2973 °C)、C (3500 °C)である。磁性層は FePt 相の規則化のため、基板温度を 550 °C として成膜した。XRD 測定により試料中には *c* 軸配向した FePt 結晶粒が存在していることがわかった。Fig. 1 に (a) FePt-B_2O_3、(b) SnO、(c) TiO_2、(d) C (カーボン) グラニュラ薄膜の磁化曲線を示す。なお、FePt グラニュラ薄膜の磁化は FePt 結晶粒と粒界材との体積平均値である。非磁性の粒界材と FePt の体積割合は一定にもかかわらず、飽和磁化 (M_s) や保磁力 (H_c) は試料間で大きく異なる。Fig. 2 には M_s の粒界材融点依存性を示した。粒界材融点が 450 から 3500 °C に増加すると、M_s は 795 から 497 emu/cm^3 へと単調に減少した。FePt グラニュラ薄膜においても M_s は粒界材の融点に強く依存することがわかった。これは粒界材の融点が低いほど、FePt 結晶粒と粒界材との 2 相析出が良好となるためと考えられる。講演では、保磁力、FePt 結晶粒の粒径および規則度と、粒界材融点との相関についても議論する。

参考文献　1) R. Kushibiki et al., *IEEE Trans. Magn.*, **53**, 3200604 (2017).　2) T. Ono et al., *The 13th Joint MMM-Intermag Conference*, CV-08, San Diego (2016).　3) S. D. Granz et al., *Eur. Phys. J. B*, **86**, 81 (2013).　4) T. Shiroyama et al., *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 3616 (2013).

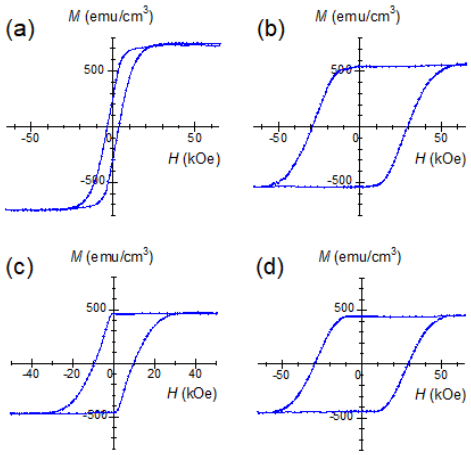


Fig. 1　Typical M–H loops for $L1_0$ type FePt granular films with GBMs of (a) B_2O_3, (b) SnO, (c) TiO_2, and (d) C.

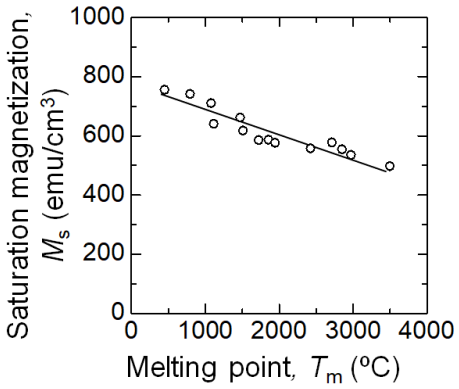


Fig. 2　M_s for FePt granular films as a function of the T_m of the GBMs.

種々の融点を有する粒界材により2相析出させた FePt グラニュラ薄膜の構造と磁気特性 (2)

○齊藤 節[1], タム キム コング[2], 櫛引 了輔[2], 小川 智之[1], 斉藤 伸[1]
(1. 東北大学,　2. 田中貴金属)

Structure and magnetic properties of FePt granular film precipitated in two phases by grain boundary materials with various melting points (2)

○Takashi Saito[1], Kim Kong Tham[2], Ryosuke Kushibiki[2], Tomoyuki Ogawa[1], and Shin Saito[1]
(1. Tohoku Univ., 2. TANAKA KIKINZOKU KOGYO K. K.)

はじめに　次世代の熱アシスト磁気記録用の媒体では、室温で高い一軸結晶磁気異方性を有する $L1_0$ 型 FePt 結晶粒を非磁性粒界材 (Grain boundary material: GBM) で孤立化させたグラニュラ薄膜が有力な候補材料である[1]。この FePt グラニュラ薄膜の GBM の材料開発に関する先行研究では、GBM として C, GeO_2, SiO_2, TiO_2, C-Ag のうち何種かを用いた試料の特性評価の報告はあるが[2, 3]、材料種が少なく GBM がもたらすグラニュラ薄膜の構造と磁気特性について系統的にはまとめられていない。そこで、今回我々は FePt 相と粒界相との2相析出の指標である粒界材の融点[4, 5]に着目し、450 °C の B_2O_3 から 3500 °C の C (カーボン) まで 12 種の融点の異なる GBM を用いて FePt-GBM グラニュラ薄膜を作製し、垂直磁気異方性 ($K_{u\perp}^{exp}$) と粒界材融点との相関を議論したので報告する。

実験結果　試料の層構成は FePt-30vol.%GBM (5 nm)/ MgO(5 nm)/ a–$Co_{60}W_{40}$(80 nm)/ Sub.とした。GBM は B_2O_3、SnO、GeO_2、WO_3、Nb_2O_5、SiO_2、TiO_2、MnO、Y_2O_3、ZrO_2、BN、C である。磁性層は FePt 相の規則化のため、基板温度を 550 °C として成膜した。XRD 測定により GBM によっては面直、面内に *c* 軸配向した結晶粒が混在していることがわかった。Fig. 1 に一例として、(a) FePt-B_2O_3, (b) -SnO, (c) -C グラニュラ薄膜の垂直磁気トルク曲線を示す。なお、θ は基板法線方向からの磁化のなす角度である。Fe-Pt の組成や、FePt 相と非磁性粒界材との体積割合が一定であるにもかかわらず、トルク曲線の振幅は GBM に依存して変化することがわかった。また、FePt-B_2O_3, SnO グラニュラ薄膜では、トルク曲線中のθ= 0, 180, 360 (deg)でうねりが観測された。これは *c* 軸面内配向結晶粒に起因する 90 (deg) 位相がずれたトルク曲線が重畳したためと考えられる。Fig. 2 には $K_{u\perp}^{exp}$ を粒界材融点に対してプロットした。$K_{u\perp}^{exp}$ は 5.8×10^6 から 2.2×10^7 erg/cm^3 まで様々な値をとるが、その分布には傾向が認められず、$K_{u\perp}^{exp}$ は粒界材融点に依存しないことがわかった。Fig. 3 には $K_{u\perp}^{exp}$ と FePt 結晶粒の規則度 (S_{in})との相関を示した。ここで、S_{in} は in-plane XRD の FePt 相(110)、(220)面からの回折線の積分強度を用いて算出した[5]。$K_{u\perp}^{exp}$ は GBM に依存せず、S_{in} と正の相関があることがわかった。このことから、$K_{u\perp}^{exp}$ は FePt 相と粒界相との 2 相析出ではなく、FePt 結晶粒の規則化と強い相関があることがわかった。

参考文献　1) D. Weller et al., *Phys. Status Solidi A*, **210**, 1245 (2013).　2) T. Ono et al., *Appl. Phys. Lett.*, **110**, 022402 (2017).　3) L. Zhang et al., *J. Magn. Magn. Mater*., **322**, 2658 (2010).　4) R. Kushibiki et al., *IEEE Trans. Magn*., **53**, 3200404 (2017).　5) T. Saito et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **59**, 045501 (2020).

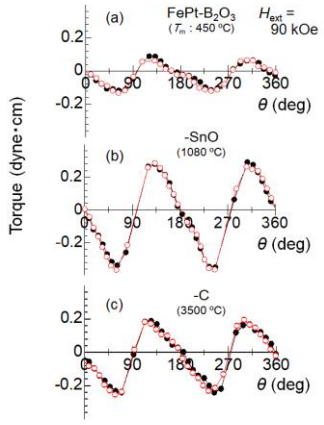


Fig. 1　Typical torque curves for FePt granular films with (a) B_2O_3, (b) SnO, and (c) C GBMs.

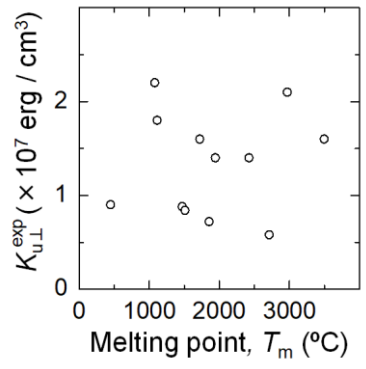


Fig. 2　$K_{u\perp}^{exp}$ for FePt granular films as a function of T_m for the various GBMs.

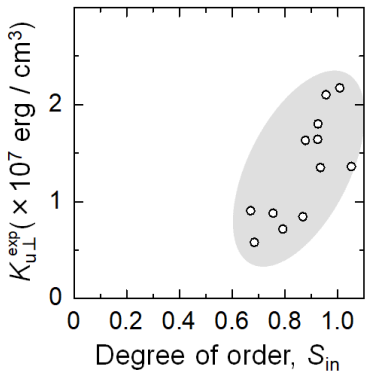


Fig. 3　$K_{u\perp}^{exp}$ as a function of S_{in} for $L1_0$ typed FePt granular films.

$L1_0$- FePt 作製プロセスにおける実効的組成比変動現象の起源および抑制検討

小松田恭祐[1]，塚本新[2]
([1]日本大学大学院理工学研究科，[2]日本大学理工学部)

Investigation of origin and suppression to variation of composition ratio in $L1_0$- FePt fabrication process

K. Komatsuda[1], A. Tsukamoto[2]
([1]Graduate School of Nihon Univ, [2]College of Science and Technology, Nihon Univ.)

はじめに　超高密度磁気記録媒体の作製を目的として，Fe/ Pt 二層膜に対して急速昇温熱処理(RTA : Rapid Thermal Annealing)および急速降温熱処理(RCP : Rapid Cooling Process)を施すことで，$L1_0$ 規則合金化した FePt 孤立微粒子群が生成可能であることを報告している[1]．そのプロセス途中で $L1_0$- FePt 以外の，Fe を含む相が出現することが確認されているが，これらの詳細な生成段階は不明確であった．本研究では，主に磁気特性の観点から $L1_0$- FePt 以外の異種 Fe 系相の存在を明らかにする．

実験方法

①[ナノ微粒子形成の基板依存性]　(i) 熱酸化 Si 基板および (ii) 熱酸化 Si 基板上に SiN(20nm)を積層した基板の各々に対して，初期積層厚 1.88 nm 一定，種々の組成比 Fe_xPt_{100-x} (x = 50～63.7 at.%)で Fe/ Pt 二層膜を成膜した．これらの試料に対して到達真空度< 1.0×10^{-3} Pa の雰囲気下で赤外線ランプ光照射による昇温速度約 180 ℃/sec.，目標最高到達温度 700 ℃の急速昇温を行い，その後，窒素導入により降温速度約-120 ℃/sec.で急速降温処理を行った．

②[3 条件での Fe 薄膜形成]　(a) 熱酸化 Si 基板上に sub./ Fe(t_{Fe} nm)/ SiN(3 nm) (t_{Fe} = 1.88, 3.26, 5.26)の膜構成で成膜した．(b) 熱酸化 Si 基板上に sub./ SiN(20 nm)/ Fe(1.88 nm)/ SiN(3 nm)の膜構成で成膜した．(c) 熱酸化 Si 基板上に真空下にてプラズマアッシングを施し，真空下で連続して (a) と同条件で成膜した．

Fe，Pt の成膜は DC マグネトロンスパッタ法，SiN の成膜は RF マグネトロンスパッタ法にて行った．作製した試料の磁気特性評価には超伝導量子干渉素子式振動試料型磁力計(SQUID- VSM)を用い，磁化曲線測定を行った．

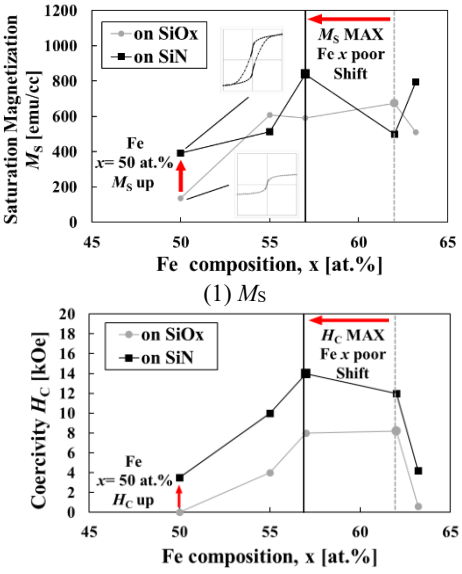


Fig.1 (1) Saturation magnetization M_S and (2) Coercivity H_C of FePt sample (i) (ii)

実験結果　Fig.1 に，基板(i) (ii)上で作製した FePt ナノ微粒子試料(粒形～16 nm)の磁気特性から算出した，飽和磁化 M_S，保持力 H_C の Fe 組成比依存性を示す．最表面が SiO_x である基板(i)に対し SiN である基板(ii)を用いた場合，組成比 x= 50 at.%における M_S，H_C が共に増大，M_S，H_C が最大となる Fe 組成比が 50:50 側にシフトする，等の効果が確認できる．この結果は，高い保磁力を示す成膜組成比がストイキオメトリより Fe 過多側となる原因が，成膜段階での SiO_x/ Fe 界面における Fe 化合物生成にあるとの仮定を支持するものである．また，詳細検討を行った Fig.2 の結果より，(a) SiO_x 上の Fe 薄膜では一定量の Fe 磁気モーメント量の消失が見られるが，(b) SiN 上の Fe 薄膜では，その現象が大幅に改善した．さらに (c) の結果から，消失の要因が界面原子種のみならず，大気暴露による効果が主要な要因であることが明らかとなった．

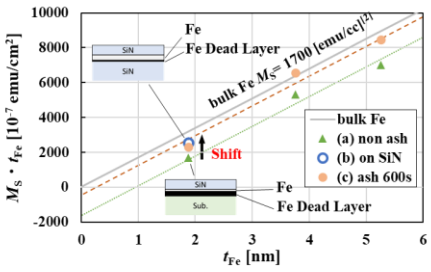


Fig.2 Magnetic moment of interface modified Fe thin film samples (a) – (c)

以上より基板最表面の窒化 Si 化による有効性，プラズマアッシングによる低減効果の可能性が示された．

謝辞　本研究の一部は，情報ストレージ研究推進機構の助成により行った．

参考文献

1)　Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: Jpn. J. Appl. Phys., 43, 12, 8040(2004)
2)　Y. Utsushikawa, K. Niizuma: Journal of Alloys and Compounds 222 (1995) 188-192

FePt グラニュラー薄膜の微細組織に及ぼす格子不整合の影響

鈴木一平、高橋有紀子、宝野和博（物質・材料研究機構）
Lattice mismatch effect on the microstructure of FePt based granular films
I. Suzuki, YK. Takahashi, and K. Hono (NIMS)

はじめに

熱アシスト磁気記録(HAMR)は、記録密度 4 Tbit/in^2 を超える超高密度磁気記録が可能であるとされ、その開発が急がれている。そのような超高密度記録を実現する HAMR 媒体には、柱状構造を有する FePt 粒子の平均粒子サイズ(D)が 4.3 nm、粒子密度(GD)が 3.8×10^{12}/cm^2 以上にまで微細化された FePt グラニュラー膜の開発が必要不可欠である[1]。そのために、非磁性マトリックスの材料探索や成膜プロセスの最適化[2]を中心とした手法によって、媒体開発が進められてきた。一方で、薄膜の微細組織制御には下地層も重要な役割を果たす。エピタキシャル薄膜においては、とりわけ成長初期では格子ミスマッチと薄膜の粒子サイズに相関があることが知られている[3]。そこで本研究では、FePt-C グラニュラー膜の粒子密度改善を目的とし、格子ミスマッチ変調に伴う FePt グラニュラー薄膜の微細組織変化を詳細に調べた。

実験方法

マグネトロンスパッタ法を用いて、異なる格子ミスマッチを有する基板上に FeP 及び FePt-C グラニュラー薄膜を作製した。基板は $SrTiO_3$(STO), $MgAl_2O_4$(MAO), MgO, TiO_2 基板を用いることで、格子ミスマッチを約 1%~16%の間で変調した。微細組織は TEM を、磁気特性は SQUID-VSM を用いてそれぞれ評価した。

結果

膜成長初期の粒子サイズや密度を調べるため、膜厚 1.0 nm の FePt 薄膜を基板温度 600 °C で堆積した。Fig.1 (a)及び(b)に、格子ミスマッチが 1.3%と 8.3%である STO 及び MgO 基板上の FePt 膜の平面 TEM 像を示す。これらの像から STO/FePt では D が 6.3 nm であるのに対し MgO では D 4.7 nm と、格子ミスマッチの増大に伴い D が縮小することが分かった。Fig.1 (c)にミスマッチに対する D 及び GD をプロットしている。D はミスマッチの増大に伴い減少し、16%ではその変化が飽和しつつある。それに伴い GD もミスマッチの増大とともに増大し、徐々に飽和していくことが分かった。これらの結果より、格子ミスマッチ制御が粒子サイズや粒子密度の改善に大きく寄与することが分かった。当日は FePt-C についての結果と合わせて議論する。

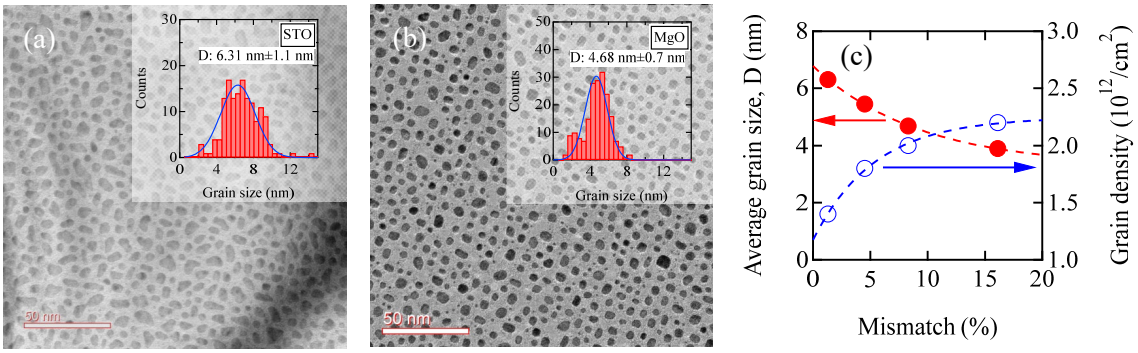


Fig.1 Plan-view TEM images of 1.0-nm-thick FePt grown on (a) STO and (b) MgO.
(c) Average grain size and grain density as a function of lattice mismatch.

参考文献

1) D. Weller *et. al.*, IEEE. Trans. Magn. **50**, 3100108 (2014).
2) I. Suzuki *et. al.*, J. Magn. Magn. Mater. **500**, 166418 (2020).
3) Y. Chen *et. al.,* Phys. Rev. Lett. **77**, 4046 (1996).

強磁性粒界材を含有するキャップ層による フルグラニュラ積層型垂直磁気記録媒体の反転磁界分布および表面粗さの低減

◦タム キム コング[a)], 櫛引 了輔[a)], 鎌田 知成[a)], 斉藤 伸[b)]
([a)]田中貴金属工業株式会社, [b)]東北大学)

Reduction of switching field distribution and surface roughness for full granular stacked perpendicular recording media by utilizing cap layer consisting of ferromagnetic grain boundary

◦Kim Kong Tham [a)], Ryosuke Kushibiki [a)], Tomonari Kamada [a)], and Shin Saito [b)]
([a)] TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K., [b)] Tohoku University)

はじめに　現在市販されている垂直磁気記録媒体はグラニュラ層（GRL）とキャップ層（CL）の積層構造からなっている．GRL は CoPt 合金結晶粒と非磁性粒界酸化物で構成されている．GRL の粒界材としては，B_2O_3 が高結晶磁気異方性エネルギー（K_u）を持つコラム状成長磁性結晶粒との二相析出を促進する効果的な材料であることが報告された [1)]．CL は積層媒体の粒間交換結合 [2)] と反転磁界分布 [3)] を制御するために用いられている．CL 材料の一つとして，強い粒界交換結合を有する CoPtCrB の連続膜が提案されている [4)]．この材料の課題は GRL の金属−酸化物の相分離構造上に積層した場合に金属結晶粒上に CL 金属が核発生しやすいため CL の厚み方向に構造が不均一になることである．このことにより精密な粒間交換結合の制御が困難となり，媒体の反転磁界分布が増大してしまう [5)]．この問題を解決するために，我々は高 K_u CoPt 結晶粒と強磁性粒界酸化物からなるグラニュラ型 CL を用いた積層型媒体を提案した [6)]．本講演では CL の粒間交換結合を変化させるため，CL の強磁性酸化物の含有量を変化させた検討を行い，その反転磁界分布と微細構造を調べたので報告する．

実験結果　媒体は室温で作製し，層構成を Sub/ Ta (5 nm)/ $Ni_{90}W_{10}$ (6 nm)/ Ru (0.6 Pa, 10 nm)/ Ru (8 Pa, 10 nm)/ $Ru_{50}Co_{25}Cr_{25}$-30vol%TiO_2 (1 nm)/ $Co_{80}Pt_{20}$–30vol%B_2O_3 (16 nm)/ $Co_{80}Pt_{20}$–(5〜30) vol%Gd_2O_3 (0〜9 nm)/ C (7 nm) とした．

Fig. 1 には，様々な Gd_2O_3 含有量の CoPt–Gd_2O_3 グラニュラ CL を用いた積層媒体の反転磁界分布の CL 厚さへの依存性を示している．比較のため，CoPtCrB 連続 CL を用いた媒体の反転磁界分布もプロットされている．ここで，反転磁界分布は ΔH_c と H_c の比率から評価される [7)]．ΔH_c は挿入図に示すように，規格化された M_s の半分でのマイナーとメジャーヒステリシスループとの差として定義される．CoPt–Gd_2O_3 CL を用いた積層媒体の場合，CL の厚さが増加すると，$\Delta H_c/H_c$ は減少する傾向を示す．CL の厚さ 4 nm に注目すると，Gd_2O_3 の含有量が 30 から 5vol%に減少すると，$\Delta H_c/H_c$ は 0.15 から 0.06 に大幅に減少する．これは，CL の Gd_2O_3 の含有量を減らすことで反転磁界分布が減少することを示している．さらに，積層媒体の $\Delta H_c/H_c$ を CoPt–Gd_2O_3 グラニュラ CL と CoPtCrB 連続 CL で比較すると，Gd_2O_3 が 30vol%未満に減少すると，より小さな $\Delta H_c/H_c$ が得られ，CoPt–Gd_2O_3 グラニュラ CL は CoPtCrB 連続 CL を用いた媒体よりも反転磁界分布が小さくなっていることを示している．

Fig. 2 には，(a) CoPt–15vol%Gd_2O_3, (b) CoPt–30vol%Gd_2O_3 および (c) CoPtCrB CL を用いた媒体の断面 TEM 写真を示している．CoPt–Gd_2O_3 CL を用いた媒体に注目すると，Gd_2O_3 の含有量を 30 から 15vol%に低減しても，媒体の表面は CoPtCrB CL を用いた媒体に比べて平坦である．EDX 元素分析によると，磁性結晶粒の均一な構造と GRL から CL までの粒界を観察することができる．これらの結果は，CoPt–Gd_2O_3 CL を用いることで，現在の CL に比べて表面が平坦で反転磁界分布が狭い媒体を実現できることを示している．

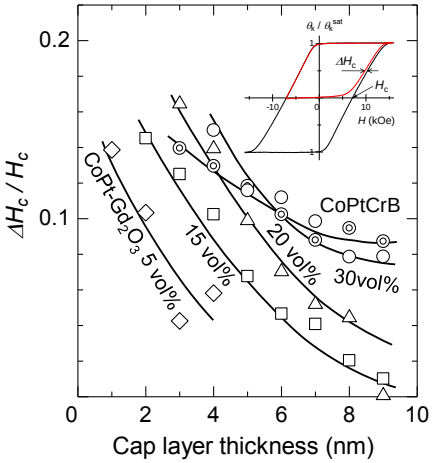


Fig. 1　Dependence of switching field distribution for stacked media with CoPt–Gd_2O_3 granular CL of various content of Gd_2O_3 on CL thickness (solid lines). For a comparison, switching field distribution of the medium with CoPtCrB continuous CL is also plotted (dotted line).

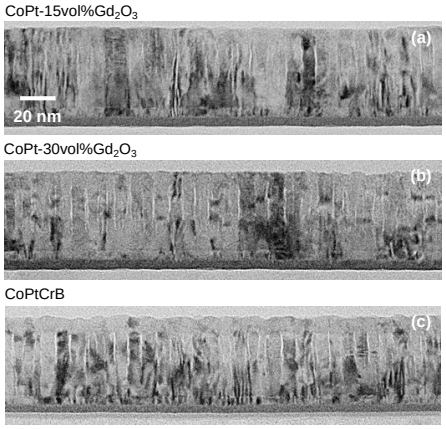


Fig. 2　Cross section TEM images of media with (a) CoPt−15vol%Gd_2O_3, (b) CoPt−30vol%Gd_2O_3, and (c) CoPtCrB CLs.

参考文献　1) K. K. Tham et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **55**, 07MC06 (2016).　2) Y. Sonobe et al., *J. Appl. Phys.*, **91**, 8055 (2002).　3) Y. Sonobe et al., *J. Magn. Magn. Mater.*, **303**, 292 (2006).　4) G. A. Bertero et al., *IEEE Trans. Magn.*, **38**, 1627 (2002).　5) K. K. Tham et al., *J. Appl. Phys.*, **112**, 093917 (2012).　6) K. K. Tham et al., *IEEE Trans. Magn.*, **55**, 3200305 (2019).　7) I. Tagawa et al., *IEEE Trans. Magn.*, **27,** 4975 (1991).

HDMRにおいて高記録密度達成のためのドットのばらつきの条件

Dot dispersion Conditions for Achieving High Recording Density in HDMR

松島　直史　　赤城文子
Naofumi　Matsushima, Fumiko Akagi
工学院大学大学院工学研究科電気・電子工学専攻
Graduate School of Electrical Engineering and Electronics, Kogakuin University

1. はじめに

磁気ディスク装置 (hard disk drive : HDD)において，テラビット級の高記録密度化を阻む問題が媒体雑音，熱安定性，ヘッド磁界強度不足のトリレンマ問題である．これを解決する方法として，熱アシスト磁気記録(heat assisted magnetic recording : HAMR)とビットパターン媒体(bit patterned media : BPM)を組み合わせた記録方式(heated dot magnetic recording : HDMR)が提案されている[1]．BPM は，ドット径及びドット間空隙を狭小化することで記録密度を向上することができる．しかし，実際の BPM は磁性ドットの大きさ，位置，キュリー温度 T_c がばらついていており，これらのばらつきをすべて考慮して計算する必要がある[2]．先行研究では熱揺らぎによるエラーをなくすため，媒体の異方性磁界(異方性定数)H_k を増加させてドットのばらつきの許容条件を検討した．その結果，径と位置のばらつきはそれぞれ 6%と 5%まで広げられることを確認した[2]．本検討では，ドットの大きさ，位置，キュリー温度 T_c がすべてばらついてるときのビットエラーレート(*BER*)を検討した．

2. 計算方法

HDMR 方式の記録過程の計算には，(1)式に示す Landau-Lifshitz-Bloch (LLB)方程式を用いた．

$$\frac{\partial \vec{m}}{\partial t} = -\gamma\left[\vec{m}\times\vec{H}_{eff}\right] + \gamma\alpha_{\parallel}\frac{(\vec{m}\cdot\vec{H}_{eff})\vec{m}}{|\vec{m}|^2} - \gamma\alpha_{\perp}\frac{\{\vec{m}\times(\vec{m}\times\vec{H}_{eff})\}}{|\vec{m}|^2} \quad (1)$$

ここで，$\vec{m}$は磁化，tは時間，γはジャイロ磁気定数，αはダンピング定数，M_sは飽和磁化，$\vec{H}_{eff}$は実効磁界である．媒体は，材料に FePt を用いたビットパターン媒体を仮定した．キュリー温度 T_c は 600 K，室温（298 K）でM_sは 1.16 T，異方性磁界H_kは 4000 kA/m，熱揺らぎ安定性の指標 K_uV/k_BT は 226 とした．磁性粒子(ドット)は円柱としダウントラック方向に 1536 個，クロストラック方向に 8 個を仮定した．ドットの膜厚は 8 nm，ドット径は 8 nm とした．ドットピッチはダウントラック方向，クロストラック方向ともに 12 nm とした．このとき面記録密度は 4.48T bit/inch^2 となる．ドット径，位置の分布は正規分布に従うものとし，標準偏差/平均（変動係数）を変化させた．熱分布は 3 次元ガウス分布を仮定し，最大上昇温度は 250 K，半値幅は 20 nm とした．ドットに印加される膜厚中心のヘッド磁界強度は 1228 kA/m とした．ドットの初期磁化は＋DC 方向，ヘッド・媒体間の相対速度は 10 m/sec とした．*BER* は記録トラックのエラーレートを評価した．定義は，(エラードット数 / 記録トラックドット数)×100 % とし，BER の許容範囲を 0.1%以下と定義した．

3. 計算結果と考察

図 1 に BER が 許容範囲を満たす各ドットのばらつきを示す．図は T_c のばらつきの関数としてドット径のばらつきとドット位置のばらつきを変えた結果である．塗りつぶしの記号は BER が許容範囲内であり，白抜きの記号は許容範囲を超える条件である．図より、σT_c が 2%であると BER は 0.1%を超えるという厳しい結果となった．位置のばらつきと径のばらつきを比較すると位置のばらつきの方が強い律速条件となることがわかった．しかし，T_c がばらつくことによって位置のばらつきよりも径のばらつきの許容条件の減少率が大きいといえる．これは，表 1 に示すように両要因に共通する熱揺らぎが原因と考えられる．

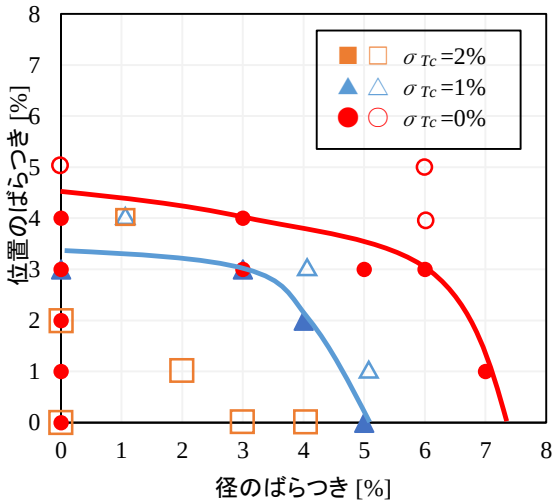


図 1　BER が 許容範囲を満たす各ドットのばらつき

表 1　各ドットのばらつきにおける BER 増加の原因

要因	径	位置	T_c
エラーの原因	熱揺らぎ	記録時間の不足	熱揺らぎ (低 T_c)
			H_kの減少不足 (高 T_c)

4. まとめ

ドットの大きさ，位置，キュリー温度 T_c がすべてばらついてるときの BER が許容範囲となる条件を検討した結果，T_c のばらつきが最も厳しい律速条件となることがわかった．発表では，COMSOL Multiphysics[3]を用いて HDMR の記録計算を行った結果についても報告する．

謝辞

本研究で用いたプログラムは(株)日立製作所から貸与されているものです．

参考文献

[1] F. Akagi, M. Mukoh, M. Mochizuki, J. Ushiyama, *J. Magn. Magn. Mater.* **324**, pp. 309-313, 2012.
[2] 松島直史, 赤城文子, 信学会, C-7-2, 2020.
[3] COMSOL Multiphysics, https://www.comsol.jp

HAMRを用いた2つの記録層をもつビットパターンドメディアの検討
Heat-Assisted Magnetic Recording on Dual Structure Bit Patterned Media

山根輝、Simon John Greaves、田中陽一郎
東北大学電気通信研究所

Hikaru Yamane, Simon John Greaves and Yoichiro Tanaka
RIEC, Tohoku University

はじめに

磁気記録の更なる記録密度の向上のため、熱アシスト磁気記録 (HAMR) 技術が期待されている。本研究では、高い記録密度の実現のため、キュリー温度 (T_C) の異なる2つの記録層をもったビットパターンドメディア (BPM) を想定して、2つの記録層に選択的に記録を行うシミュレーションを行い、最適な T_C の組み合わせを調査した。また、その組み合わせで得られる記録密度を計算した。

シミュレーションモデル

直径 6nm のシリンダー型ドットが Down-track 上に 10nm 間隔で並べられた BPM を想定し、メディアの磁化をマイクロ磁気モデルを用いて Landau-Lifshitz-Bloch(LLB) 方程式に基づいて計算した。モデルの構成は、下層から軟磁性層/非磁性層 (5nm)/記録層 1(5nm)/非磁性層 (2nm)/記録層 2(5nm)/空気 (3nm)/書き込みヘッドで、各記録層は異なる T_C(T_{C1},T_{C2}) を持っている。T_C 以外の磁性パラメータは等しい。ここで、T_{C1}=460K, T_{C2}=550K の場合について、保磁力の温度変化を調べた結果を図1に示した。低い T_C(この場合 T_{C1}) 付近における二層の保磁力の差を利用して、片方一層へ選択的に記録する。

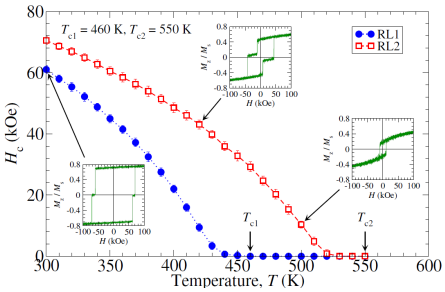


図1　(460K,550K) の場合における保磁力の温度依存性

メディア表面上のヒートスポットの強度はガウス分布をもち、その半値全幅は 20nm とした。記録する際は、最大温度 (T_{max}) がターゲット層の T_C より 10K 高くなるように設定し、両層間の垂直方向の温度勾配はないものとした。T_{max} が high-T_C より高くなるようにして両層反転させる high モードと、T_{max} が low-T_C より高く high-T_C より低くなるようにして T_C が低い層のみ反転させる low モードの、2つのモードによって選択的記録を実現させる。

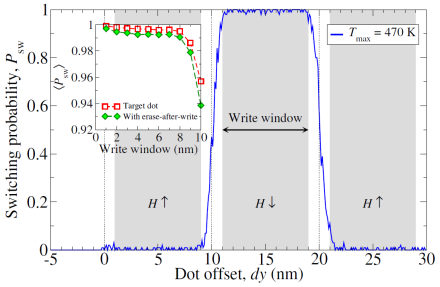


図2　T_{C1}=460K, T_{max}=470K のときの、Down-track 上での記録層1の反転確率

ヘッドは 10m/s でメディア表面上を動き、3ビット分磁界を印加した。ターゲット層の磁化について、100回のシミュレーションでの反転回数から反転した確率を算出した。この操作を、Down-track 方向にドットを 0.1nm ずつ動かしながら行った (図2参照)。ここで Down-track 上で 8nm 幅の記録窓を定義し、記録窓の平均確率が最大となるとき、その平均値を反転確率とした。この際、high モードではターゲット層 (高い T_C 層) のみを計算したが、low モードではターゲット層 (低い T_C 層) から非ターゲット層 (高い T_C 層) の値を、各点において差し引いて計算した。さらに両モードで得られた確率を乗算して、その結果をその T_C の組み合わせにおける最終的な反転確率として評価した。

結果

T_{C1},T_{C2} をそれぞれ 450K～600K,450K～750K の範囲で 10K ずつ変化させた結果、(T_{C1},T_{C2})=(460K,550K), (530K,460K) 周辺で反転確率が高くなった。記録窓の後方 (Down-track 負方向) で磁化が上書きされてしまう現象 (erase-after-write) が見られたので、その分を差し引いた反転確率はそれぞれ 0.9883, 0.9816 となった。

ドットの数を増やして周囲のドットから受ける静磁界の影響を考慮した結果、それぞれ 0.9867, 0.9800 となった。

Cross-track 方向にドットを動かしてヘッド磁界の影響受ける距離を調べた結果、最小のトラックピッチ (TP) は 11.2nm, 10.9nm であった。ドットが標準偏差 1.2nm の位置分散を持つことを仮定すると最小の TP は 14.8nm, 14.5nm となった。ドットピッチ 10nm で面記録密度を計算し、シャノンの式 [1] からユーザー面記録密度を求めた結果、(460K,550K)、(530K,460K) の条件でそれぞれ 7.82Tbit/in^2, 7.64Tbit/in^2 の高い記録密度が得られた。

メディアの製造や読み取り技術など取り組むべき課題はまだ多く残っているが、本研究は未来の高密度記録システムの実現に有益な示唆を与えるものである。

参考文献

[1]C. E. Shannon, The bell System Technical Journal,vol.27, pp. 623-656, Oct. 1948

磁場印加角度のマイクロ波アシスト磁化反転への影響

菊池伸明，岡本聡
（東北大）

Field angle effect on microwave assisted magnetization switching

N. Kikuchi, S. Okamoto
(Tohoku Univ.)

はじめに

マイクロ波アシスト磁気記録（Microwave Assisted Magnetic Recording:MAMR）の発展のためには，マイクロ波磁場下での反転挙動の理解が重要である．我々のグループではこれまでに，Co/Pt 多層膜ドット[1]やCoCrPt グラニュラー薄膜[2]を用いてマイクロ波アシスト磁化反転実験を行い，その挙動を明らかにしてきた．実験では，マイクロ波磁場の印加に基板上に作製したコプレナー線路を用いているため，試料位置でのマイクロ波磁場の印加方向は膜面内に限られる．その一方，MAMR においては記録ヘッドにスピントルク発振器を組み込んでマイクロ波磁場を発生させるため，書き込み磁場とマイクロ波磁場の印加方向は時間と場所で様々に変化する．本研究では，Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式に基づいた数値計算を行い，反転磁場にマイクロ波磁場の印加方向が及ぼす影響について調べた．

計算方法および結果

計算は一軸性の磁気異方性を持つマクロスピンを仮定して行った．磁化容易軸方向は z 軸に平行とし，異方性磁界 H_k の大きさは 20kOe，温度 T = 0 K とした．直流およびマイクロ波磁場の印加方向は図 1 に示す配置とした．-z 方向に飽和させた磁化 **M** に対し，x-z 平面内で x 軸と角度 θ_{dc} をなす直流磁場 $\mathbf{H}_{dc}$，z 軸と角度 θ_{rf}，方位角 φ_{rf} であるベクトル $\mathbf{n}_{rf}$ の周りを周波数 f_{rf} で回転する大きさ 1kOe のマイクロ波磁場 $\mathbf{H}_{rf}$ を印加した．印加する直流磁場の大きさを 2kOe/ns で変化させ，反転に必要な直流磁場の大きさ H_{sw} を求めた．なお，計算はフリーの GPGPU ソフトウェアである Mumax3[3]を用いた．

図２に，反転磁場 H_{sw} の直流磁場の θ_{dc} 依存性を，周波数 f_{rf} = 16-40 GHz について示す．破線はマイクロ波磁場がない場合の反転磁場である．マイクロ波磁場の印加角度は θ_{rf} = φ_{rf} =0 とした．θ_{dc}=0 では，f_{rf}=16Ghz 以上の周波数ではアシスト効果が消失しており，解析計算から得られる臨界周波数(16.6 GHz)の結果ともよく一致する．一方で，θ_{dc}=10° 程度のわずかな直流磁場の傾きにより臨界周波数以上でもアシスト効果が発現し，また，得られるアシスト効果は周波数に伴って大きくなることが分かった．この結果は，マイクロ波アシスト効果の最適化には磁場の印加角度の制御が重要であることを示唆するものである．

参考文献

1)　S. Okamoto *et al*, Phys. Rev. Lett. **109**, 237209 (2012).　2)　N. Kikuchi *et al*, J. Appl. Phys. **126**, 83908 (2019).
3)　A. Vansteenkiste *et al*, AIP advances **4**, 107133 (2014).

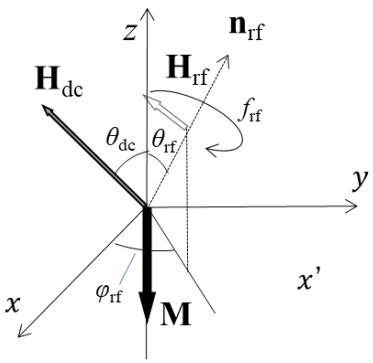


図１　計算に用いた座標系

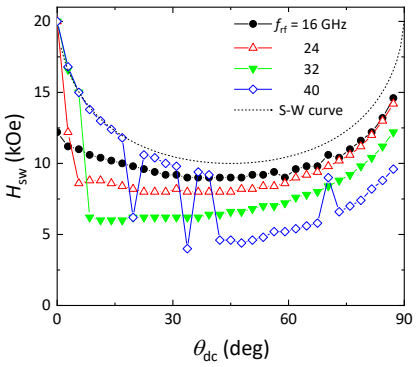


図２反転磁場の θ_{dc} 依存性

講 演 取 消

ナノビーム XMCD を用いた HDD 書き込みヘッドの磁化ダイナミクス観察

首藤 浩文[1]、喜々津 哲[1]、小谷 佳範[2]、前田 知幸[1]、豊木 研太郎[2]、
大沢 仁志[2]、菊池 伸明[3,4]、岡本 聡[3,4]、中村 哲也[2]
([1]東芝研究開発センター、[2]JASRI、[3]東北大多元研、[4]東北大 CSRN)

Nano-beam XMCD study on magnetization dynamics of an HDD write head

H. Suto[1], A. Kikitsu[1], Y. Kotani[2], T. Maeda[1], K. Toyoki[2],
H. Osawa[2], N. Kikuchi[3,4], S. Okamoto[3,4], and T. Nakamura[2]
([1]Corporate R&D Center, Toshiba Corp., [2]JASRI, [3]IMRAM, Tohoku Univ., [4]CSRN, Tohoku Univ.)

はじめに

HDD の年間総出荷記録容量は、現在およそ 1 ゼタ(10^{21})バイトに達しており、HDD は主要なストレージデバイスとしてデジタル技術を支えている。年々増大する情報量に対応するため、さらなる HDD の高記録容量が求められている。HDD の開発においては、書き込みヘッドの磁化ダイナミクスの解明が重要であるが、書き込みヘッドの微細な構造・高速な動作のため、磁化ダイナミクスの直接的な観察はこれまで困難であった。本研究では、ナノメートルオーダーの空間分解能、サブナノ秒オーダーの時間分解能で磁化を観察可能という特徴を持つナノビーム XMCD を用いて、HDD 書き込みヘッドの磁化ダイナミクスの観察を行った。[1)]

実験方法

記録密度 200 Gbit/inch^2、書き込み速度 700 Mbit/s に対応した垂直記録用書き込みヘッドを用い、SPring-8 BL25SU ビームラインにおいて XMCD 測定を行った。X 線のパルスの 5 倍の周波数に同期した 211.9 MHz の記録電流を記録ヘッドに印可することで、記録ヘッドの磁化を 2.36 ns ごとに反転させ、記録電流と X 線パルスのディレイ時間を変化させることで、記録ヘッドの空気支持(ABS)面の磁化のスナップショット観察を行った。

実験結果

Fig. 1(a)に書き込みヘッドの ABS 面の SEM 像を示す。書き込みヘッドは、先端のサイズが 250 nm(down-track)×120 (cross-track) nm 程度である主磁極と、数 μm(down-track)×数 10 μm (cross-track)のシールドから構成されている。Fig. 1(b)に示す記録電流を記録ヘッドに印可し、ディレイを磁化反転の 1 周期分(2.36 ns)変化させて測定した XMCD 像を Fig. 1(c)に示す。カラースケールは磁化の面直方向成分に対応している。0 ns においては主磁極の磁化は−z 方向を向いているが、0.78～1.58 ns にかけて磁化が+z 方向へと変化し、1 ns 以下の時間で主磁極が反転する様子が観察された。また、シールド部分には磁化の空間パターンが変化する様子が観察された。

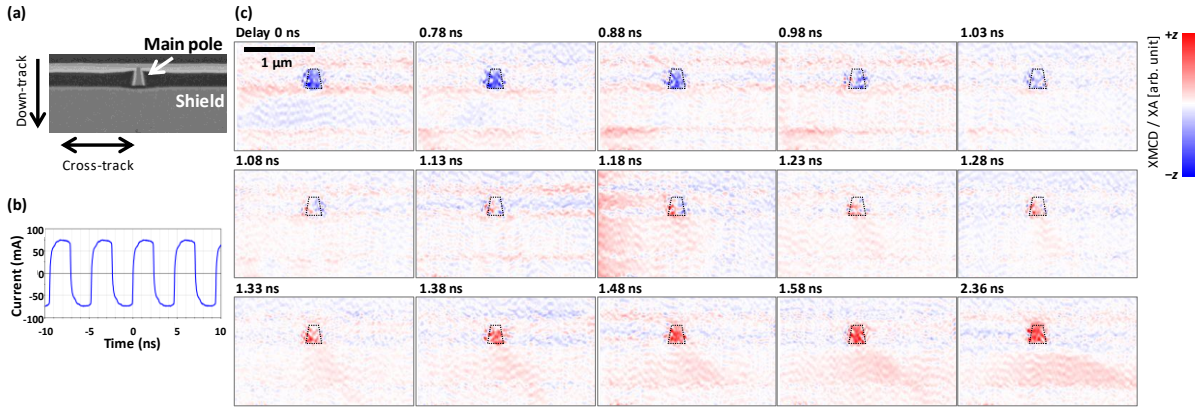


FIG. 1.　(a)記録ヘッド ABS 面の SEM 像。(b)記録電流波形。(c)ディレイを変化させながら測定した XMCD 像。破線の台形は主磁極の位置。
※ディレイ時間は相対値であり、(b)に示す記録電流の横軸の時間とは対応していいない。

XMCD 測定は SPring-8 BL25SU(課題番号 2018A1109、2019B1683、2019B2093)において行われた。

[1)] H. Suto et al., Time-resolved imaging of an operating hard-disk-drive write head using nano-beam X-ray magnetic circular dichroism, (accepted to JAP).