

Si₃N₄ 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 Si₃N₄-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、さらに棒状または扁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 Si₃N₄ 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-Si₃N₄ 薄膜は Si₃N₄ 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 °C 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。これらから高压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 °C 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、高压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)

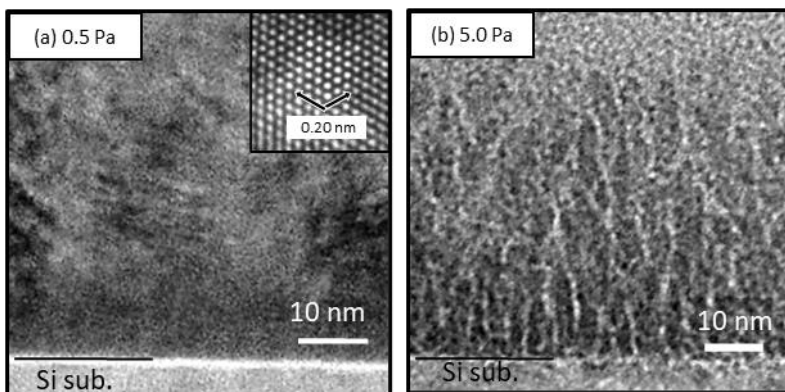


Fig. 1 Cross-sectional TEM images of Fe-Si₃N₄/ Si film deposited at different Ar gas pressures (a) 0.5 Pa and (b) 5.0 Pa. Inset: HR lattice image of Fe (111)

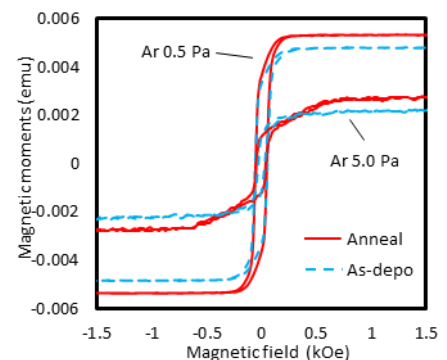


Fig. 2 In-plane M-H loops of Fe-Si₃N₄/ Si film.

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¹¹ 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. Onoda¹, K. Amemiya², and H. Yanagihara¹¹ 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) 基板の上に垂直磁化膜として (Co,Fe)₃O₄ (CFO) を 50 nm, その上に面内磁化膜として γ -Fe₂O₃ (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).

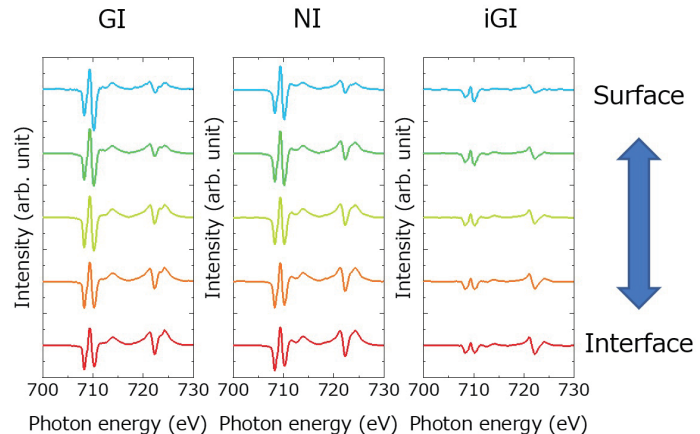


Fig. 1 Fe 2p \rightarrow 3d XMCD spectra for Fe in remanent at the GI, NI, and iGI configurations.

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、*大工大)

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一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 + H₂ 混合ガス中で行い、処理温度の条件を 400°C から 900°C 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。

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 + H₂ 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 sp³ と C-OH、O=C-OH のピークが存在している。熱処理後は、sp³ のピークが sp² 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 + H₂ 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、H₂ 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。

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.

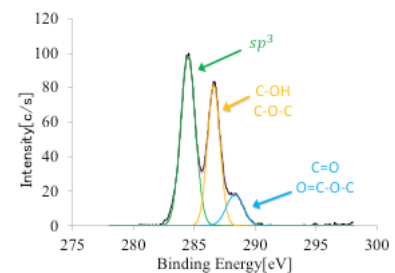


Fig.1 XPS spectrum of GO

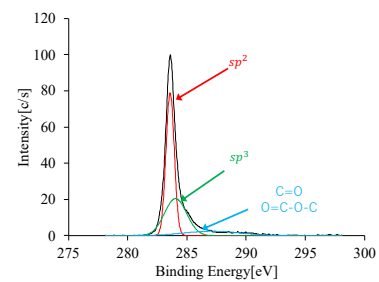


Fig.3 XPS spectrum of reduced GO

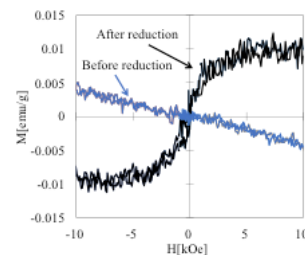


Fig.3 Typical hysteresis loops.

磁気光学イメージングに適するグラニュー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 magneto-optical 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ーラー薄膜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ー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 SiO₂, Si₃N₄ 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ー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ーラー薄膜の透過率を Fig. 1 に示す。実線は今回作製した Co-SiO₂ 磁性グラニューラー薄膜、破線は先行研究³⁾で作製した FeCo-Si₃N₄ 磁性グラニューラー薄膜である。Fig. 1 より、Co-SiO₂ 磁性グラニューラー薄膜 (厚さ 340 nm) のほうが FeCo-Si₃N₄ 磁性グラニューラー薄膜 (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 SiO₂ 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-SiO₂ 磁性グラニューラー薄膜では波長 900 nm 近傍で -1.6 deg/μm が得られた。これは FeCo-Si₃N₄ 磁性グラニューラー薄膜の 1500 nm 近傍で得られる回転角 -1.3 deg/μm より大きかった。

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, マグネティクス研究会資料, MAG-19-227, 35-39 (2019).

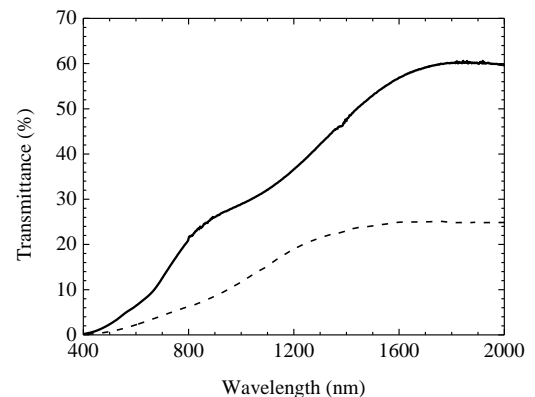


Fig. 1 Transmittance spectra for granular films. Solid curve: Co-SiO₂, dashed curve: FeCo-Si₃N₄.

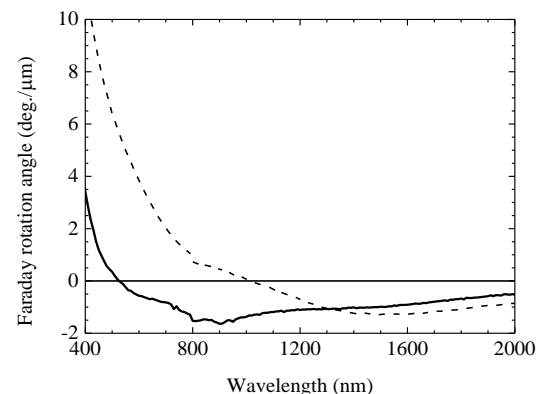


Fig. 2 Faraday rotation spectra for granular films. Solid curve: Co-SiO₂, dashed curve: FeCo-Si₃N₄.

グラニューラ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ーラ薄膜を 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 4 μm 、幅は 600 μm 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 グラニューラ薄膜の抵抗を変化させる。これにより、Co-AlO グラニュー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 $H \perp \text{gap}$ で、ひずみ印加前に外部磁界 H_{DC} を $H // \text{gap}$ 方向に印加し、a-FeSiBNb の磁気モーメント M を $H // \text{gap}$ 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 グラニュー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。

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)

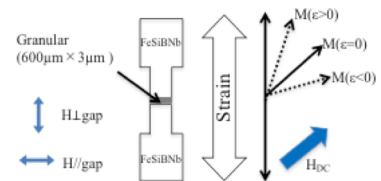
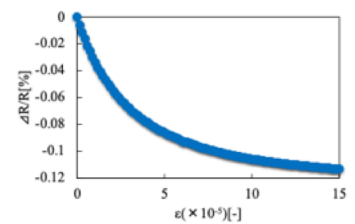
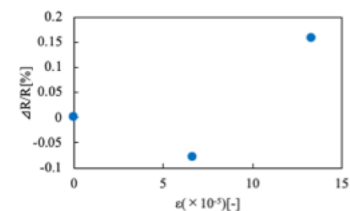


Fig. 1 Schematic of strain sensor



(a)



(b)

Fig.2 Resistance change on strain.

(a)Simulation and (b)Experimental results.