

Fe_{0.6}Al_{0.4} 単結晶薄膜の長・短範囲秩序と自発磁化

豊木研太郎^{1,2,3}、北口大悟¹、白土 優^{1,2,3}、中谷亮一^{1,2,3}

(1 大阪大学大学院工学研究科, 2 大阪大学先導的学際研究機構, 3 大阪大学 CSRN)

Spontaneous magnetization and short- and long-range order in single crystalline Fe_{0.6}Al_{0.4} film

Kentaro Toyoki^{1,2,3}, Daigo Kitaguchi¹, Yu Shiratsuchi^{1,2,3}, and Ryoichi Nakatani^{1,2,3}

(1 Grad. Sch. Eng., Osaka Univ. 2 OTRI, Osaka Univ., 3 CSRN, Osaka Univ.)

はじめに

化学規則と磁性の関係は切り離せない関係にあり、その相関に着目した研究が多くなされている。その中でも Fe-Al 系は、卑近な系であること、比較的高い磁歪を示すこともあり、古くから近年まで多くの報告がなされている。特に規則化の影響が大きくなるのは Fe-Al 系は Al 組成が 28at.% 程度以上の領域である。この領域では B2 規則相が安定となる。Fe-Al は B2 規則化に伴い、Curie 温度・自発磁化が急激に低下、さらに格子体積も収縮することが知られている。さらにボールミルや高エネルギーイオン照射と言った手段によって、逆に B2 規則度を低下させることで、自発磁化が増大することも多く報告例がある。この際の格子体積と自発磁化との相関は磁気体積効果として言及される。しかし、ここで一つの疑念点が挙げられる。すなわち、明らかに規則度と自発磁化・格子体積に相関があり、かつ自発磁化と格子体積との関係に関しては文献間に大きな差が無いにも関わらず、規則度と自発磁化との間の関係は文献によって一定しないことである^{1,2)}。したがって、その原因について結晶学的見地から考察することが求められている。そこで、本研究では Fe-Al 合金における化学秩序と磁性の相関を議論することを目的とした。このため、長範囲規則度の異なる単結晶薄膜を作製し、X 線回折を用いて短範囲規則(SRO)に関して評価した。その結果と自発磁化・格子体積との相関に関して評価を行った。

実験方法

薄膜の積層構造は Au (5 nm)/Fe_{0.6}Al_{0.4} (10 nm)/MgO (001)基板とした。規則度を変化させるため異なる製膜温度 T_d の試料作製した。格子定数および B2 長範囲規則度は X 線回折(XRD)法によって決定した。また、SRO の状態を考察するために回折ピークの半値幅、および 111 回折位置のずれを評価した。自発磁化の決定には振動試料型磁力計を用いた。測定はすべて室温で行った。

実験結果

Fig. 1 に SRO の指標の一つである、 hkl 回折ピークの逆格子空間での半値幅 w_{hkl} と T_d の関係を示す。同時に自発磁化より見積もった Fe 原子当たりの磁気モーメント μ_{Fe} を示す。基本反射に対応する w_{002} は製膜温度に対してほぼ一定であった。一方で、超格子反射に対応する w_{001} および μ_{Fe} は $T_d = 300$ から 200 °C に低下させると顕著に増大した。したがって、 μ_{Fe} は w_{001} と高い相関があると言える。 w_{001} , w_{002} の大小関係および、もう一つの SRO の指標である 111 回折位置のずれから、この高 μ_{Fe} となる $T_d \leq 200$ °C の領域は低規則度 B2 相と言うよりも B2 様 SRO を伴う A2 相と言える。したがって、B2 秩序が SRO 様となることが Fe-Al における自発磁化の増大に重要な役割を果たすことがわかった。

参考文献

- 1) A. Hernando *et al.*, Phys. Rev. B, **58**, R11864 (1998).
- 2) E. Menéndez *et al.*, New J. Phys., **10**, 103030 (2008).

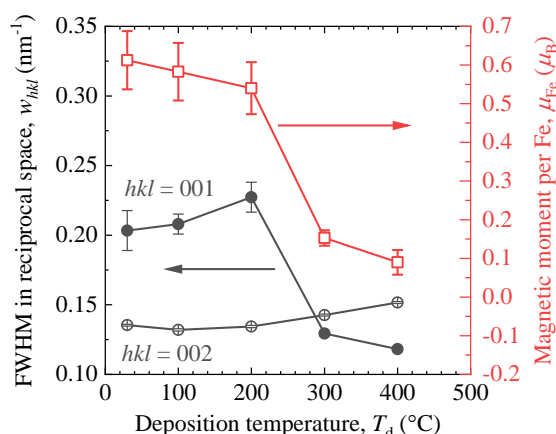


Fig. 1. Deposition temperature dependence of full width half maximum (FWHM) of 001 (closed circle) and 002 (open circle) diffraction peaks (left axis), and magnetic moment per Fe (red open square, right axis).

人工スピナイスにおける磁気結合

久保田均¹、常木澄人¹、薬師寺啓¹、谷口知大¹、田丸慎吾¹、山本竜也¹、杉原敦¹、
松浦稜²、野村光^{2,3,4}、鈴木義茂^{1,2,3}

(¹産総研、²阪大院基礎工、³阪大 CSRN、⁴東北大 SRIS)

Magnetic coupling in artificial spin ice

H. Kubota¹, S. Tsunegi¹, K. Yakushiji¹, T. Taniguchi¹, S. Tamaru¹, T. Yamamoto¹, A.
Sugihara¹, R. Matsuura², H. Nomura^{2,3,4}, Y. Suzuki^{1,2,3}

(AIST¹, Osaka Univ.², CSRN-Osaka³, Tohoku Univ. SRIS⁴)

はじめに

人工スピナイス(ASI)では、一軸磁気異方性を有する強磁性体セルが正方格子やハニカム格子などの2次元配列を作り、セル間隔が小さいため磁氣的相互作用が働く。そのためモノポール励起、相転移など集団的な磁氣的性質を示す^{1,2)}。近年このような性質がマグノニクスや物理レザバー計算の分野で注目され、デバイス応用が検討されている³⁻⁵⁾。デバイス応用のためには、セルの磁気特性、磁気結合について定量的に理解することが重要である。従来、ASIは主に軟磁性パーマロイ薄膜を微細加工によりサブミクロンサイズのパターンに形成して作製され、MFM¹⁾、PEEM⁶⁾などの顕微鏡的手法を用いてその磁化過程が調べられてきた。しかし、このような手法では、セル間の磁気結合の大きさを定量的に評価することは難しい。また、強磁性共鳴スペクトルは結合磁界を含む有効磁界の変化に敏感であるが、磁気結合の定量的評価は十分検討されていない⁷⁾。本研究では、強磁性トンネル接合を用いてASIを作製し、トンネル磁気抵抗効果を用いて各セルの磁化状態を検出しセル間に働く磁気結合を定量的に評価した。

実験方法

下地層/Pt-Mn/Co-Fe/Ru/Co-Fe-B 基合金/MgO/FeB(15 nm)/保護層からなる積層膜をスパッタ成膜し、真空中熱処理(350°C, 1 T)を行った。微細加工プロセスを用いてFeB層までエッチングし、Fig. 1(a-c)に示すようなハニカム格子状のAISを作製し、72セルのうち62セルに上部電極を個別に取り付けた。熱処理中磁界およびトンネル磁気抵抗効果曲線測定磁界は図中水色線で囲むセルの長軸方向に平行に印加した。

実験結果

Fig. 1(a, b)中の水色線で囲んだセルのトンネル磁気抵抗効果をFig. 1(d)に示す。青線(赤線)は周囲の4つのセルの磁化をFig. 1(b)の青矢印(赤矢印)の様に配列させた後に測定した結果である。それぞれ10回掃引した。青線と赤線のスイッチング磁界は平均で27 Oeシフトしている。これは周囲のセルが測定セルに及ぼす漏れ磁界に起因すると考えられる。この結果から隣接する2つのセル間の結合磁界の大きさは、約3.5 Oeと見積られ、セル間に働く磁気結合を定量的に評価することができた。

謝辞 本研究は科研費JP20H05655, 文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」事業JPMXP1222AT0119, JPMXP1223AT0091の支援を受けた。

参考文献

1) R. F. Wang, et al., Nature 439, 303 (2006). 2) S. H. Skjærvø, et al., Nat. Rev. Phys. 2, 13 (2020). 3) Y.-L. Wang, et al., Science 352, 962 (2016). 4) J. H. Jensen, et al., Proc. The 2018 Conf. Artificial Life, 15 (2018). 5) K. Hon, et al., APEX 14, 033001 (2021). 6) J. C. Gartside, et al., Nat Nanotechnol 17, 460 (2022). 7) A. Farhan, et al., Nat. Phys. 9, 375 (2013). 8) S. Gliga, et al., PRL 110, 11725 (2013).

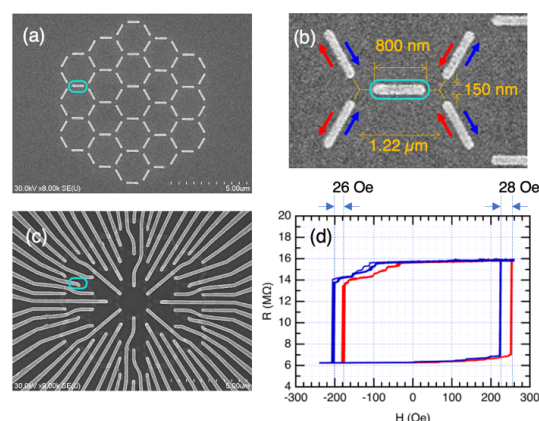


Fig. 1 試料構造およびトンネル磁気抵抗効果曲線. (a)セルのSEM像(ハニカム格子全体)、(b)SEM拡大図および磁化配置模式図、(c)上部電極形状SEM像、(d)水色セルの磁気抵抗効果曲線。

Investigation of structural and magnetic properties of electrodeposited CoPt alloy nanowires for 3D magnetic memory application

Md. Mahmudul Hasan,¹ Tongshuang Huang,² Mikiko Saito,¹ Yota Takamura,² Takayuki Homma^{1,3}

¹Research Organization for Nano and Life Innovation, Waseda University, Shinjuku, Tokyo 162-0041, Japan

²Dept. of Electrical and Electronic Eng., Tokyo Institute of Technology 2-12-1 Ookayama, Meguro-ku, Tokyo, 152-8552 Japan

³Dept. of Applied Chemistry, Waseda University 3-4-1 Okubo, Shinjuku-ku, Tokyo, 169-8555 Japan

Introduction

Three-dimensional (3D) high-density storage memory, like racetrack memory, stores digital bits in a domain wall (DW) series and transfers them through nanowires via current-induced DW motion [1]. High anisotropy material like CoPt alloy is suitable for application in recording media. In this study high aspect ratio, CoPt alloy nanowires were synthesized by the electrodeposition process. Single-layered Co-rich alloy (Co₈₀Pt₂₀) nanowires and multilayered CoPt alloy [(Co₈₀Pt₂₀/Co₃₀Pt₇₀)_n] nanowires had prepared to investigate for the 3D magnetic memory application.

Experimental Procedure

CoPt nanowires were synthesized by potential controlled electrodeposition process using the polycarbonate membrane template (PT). The PT had an average of 100 nm diameter pores with 1% porosity. Using spurring process, one side of the PT was covered with Cu thin layer (400 nm) for the electric connection. The electrodeposition solution contained 0.5 M H₃BO₃, 0.1 M CoSO₄·7H₂O, and 0.0001 M Pt (NH₃)₂(NO₂)₂. The solution pH was adjusted to 5.2 with a rotation of 200 rpm at 40 °C. Three electrode deposition technique was applied using Hokuto Denko electrochemical measurement equipment. Single-layered Co-rich alloy (Co₈₀Pt₂₀) nanowires were prepared by applying -1000 mV vs Ag/AgCl (sat. KCl) as reference electrode with Pt mesh counter electrode. Multilayered nanowires with alternative Co-rich (Co₈₀Pt₂₀) and Pt-rich (Co₃₀Pt₇₀) alloys were prepared by applying -1000 mV and -100 mV vs Ag/AgCl (sat. KCl), respectively.

Result and Discussion

The single-layered Co₈₀Pt₂₀ nanowires with approximately 27 μm in length and 100 nm in diameter are shown in the field emission scanning electron microscopy (FE-SEM) image (Fig. 1a). The multilayered nanowires with dark (Co₈₀Pt₂₀) and bright layers (Co₃₀Pt₇₀) proved the successful formation of the alternative composition of CoPt alloy (Fig. 2b). Each layer's thickness is approximately 100 nm. Both types of nanowires were formed without any void which is essential for the storage application. The magnetization (M) versus field (H) curves measured with a vibrating sample magnetometer (VSM) was used to check the magnetic anisotropy. The easy axis for both samples was perpendicular to the nanowires, which was opposite to the shape anisotropy, implying that large magnetocrystalline anisotropy exists. However, in CoPt multilayered nanowires (Fig. 2d), the easy axis nearly becomes parallel to the nanowires and coercivity is higher than the single-layered nanowires (Fig. 2c). CoPt multilayered nanowires had magnetic saturation of 1320 emu cm⁻³. Magnetic properties improvement in multilayered CoPt alloy nanowires creates new prospects for memory applications.

Acknowledgement: This work was supported by JST, CREST (Grant Number JPMJCR21C1), Japan.

Reference

(1) Y. M. Hung, T. Li, R. Hisatomi, Y. Shiota, T. Moriyama, and T. Ono, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **45**, 6-11 (2021).

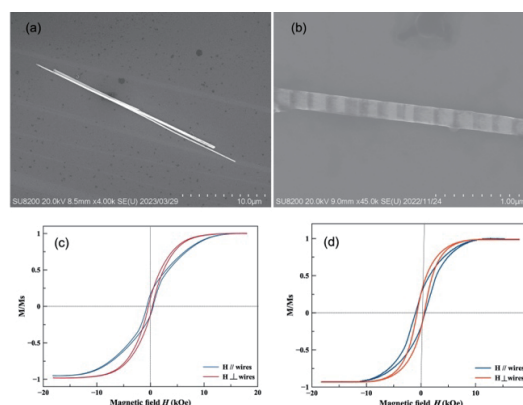


Fig. 1. FE-SEM of (a) Co-rich alloy and (b) CoPt multilayered alloy nanowires. M-H curves for (c) Co-rich alloy and (d) CoPt multilayered alloy nanowires.

電着によって細孔テンプレート中に作製された $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ 合金 ナノ細線の構造と磁気特性の相関説明

大口奈都子¹, 斎藤美紀子², 本間敬之^{2,3}, 小野輝男⁴, 嶋睦宏¹, 山田啓介¹

(¹岐阜大院自,²早大 ナノ・ライフ,³早大 先進理工,⁴京大化研)

Elucidation of correlation between structure and magnetic properties in $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ alloy nanowires
in nanoporous template fabricated by electrodeposition

Natsuko Oguchi¹, Mikiko Saito³, Takayuki Homma^{3,4},
Teruo Ono⁵, Mutsuhiro Shima¹, and Keisuke Yamada¹

(¹Gifu Univ., ²Res. Org. for Nano and Life Innovation, Waseda Univ., ³Dept. of Applied Chemistry,
Waseda Univ., ⁴ICR Kyoto Univ.)

【緒言】 現在、高速動作・高密度・低価格を実現する新しい三次元磁気メモリデバイスの開発が期待されている^[1]。提案されている素子構造は、磁性ナノ細線型で磁壁ピン層と磁区層から形成されており、細線中の磁壁を電流に駆動させることで記録を行う構想である。磁性ナノ細線の材料として適している物質に Co-Pt 合金が挙げられている。Co-Pt 合金は、組成に依存して結晶構造が異なり、それに伴い磁気特性が変化する物質である^[2]。組成を変えた Co-Pt 合金の磁気特性の一つとして、磁気異方性(K_u)が変化する^[3,4]。三次元磁気メモリの磁壁ピン層と磁区層には、Co-Pt 合金の組成に依存した層(小さいまたは大きい K_u 層)を組み合わせることでメモリデバイスが実現できることが計算よりわかっている^[1]。本研究では、三次元磁気メモリを構成する磁性ナノ細線の作製を目指して、初めに、単層構造の Co-Pt 合金ナノ細線を作製し、そのナノ細線の結晶構造、磁気特性、組成比、伝導特性の相関を説明することを目的とした。

【実験方法】 Co-Pt 合金ナノ細線試料は、ポリカーボネート製のテンプレートの細孔に電着法を用いて作製した。各試料の作製条件として電着溶液濃度比と電着電位を変化させた。ナノ細線の結晶構造及び磁気特性を XRD 及び VSM を用いて測定した。単線のナノ細線は、テンプレートをジクロロメタンによって溶解させ、Si 基板上に分散させることで取り出した。試料の微細構造及び組成比は SEM 及び EDX を用いて測定した。

【結果と考察】 Fig. 1(a)には、作製した $\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}$ ナノ細線の SEM 画像を示す。長さが $10.2 \mu\text{m}$ の細線が作製できた。Fig. 1(b)に示す各電着電位による結晶構造の解析結果から、電着電位が -1000 と -900 mV [vs. Ag/AgCl] で作製した細線において、fcc (111) CoPt が高配向した結晶構造が得られた。電着溶液濃度比(Co:Pt=25:2, 25:4 [mM])と電着電位(-1000 mV~ -700 mV [vs. Ag/AgCl])を変化させることで、Fig. 1(c)に示すように組成比の異なる Co-Pt ナノ細線を作製することができた。VSM の結果から高配向結晶が形成されたナノ細線は細線長手方向に容易軸をもつ結果が得られ、結晶構造と磁気特性に相関があることが示された。

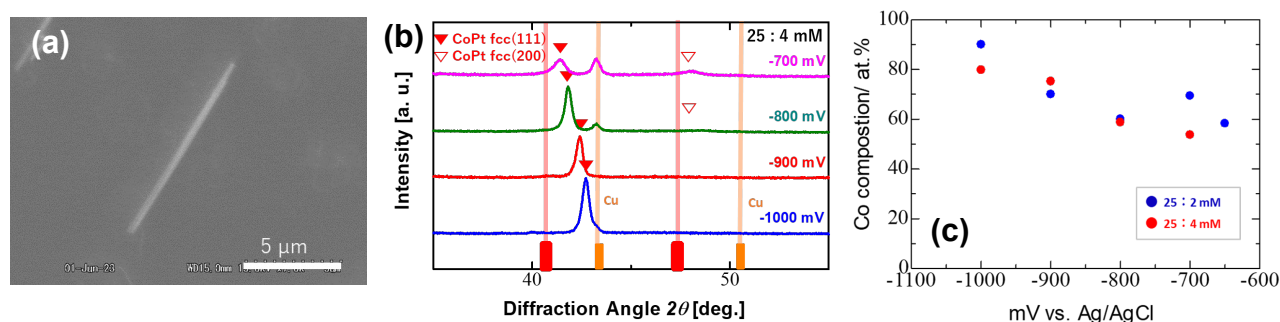


Fig.1 (a) SEM image of $\text{Co}_{75}\text{Pt}_{25}$ nanowire. (b) XRD patterns of Co-Pt alloy nanowires at various the deposition potential. (c) Variation of Co composition as a function of the deposition potential.

参考文献 [1] Y. M. Hung, et. al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **45**, 6–11 (2021). [2] C. Leroux, et. al., *J. Phys. F: Met. Phys.* **18**, 2033–2051 (1998). [3] J. Mallet, et. al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, 909–914 (2005). [4] L. Liu, et. al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42**, 205002 (2009).

【謝辞】 本研究は、CREST「3次元磁気メモリの開発」の助成を受けて行われた。

Bi₃Fe₅O₁₂ 下地層の導入による Nd_{0.5}Bi_{2.5}Fe₅O₁₂ 薄膜の磁気光学特性の向上

張 健¹, Fatima Zahra Chafi¹, 西川 雅美¹, 河原 正美², 石橋 隆幸¹
(長岡技術科学大学¹, 高純度化学研究所²)

Improvement of magneto-optical properties of Nd_{0.5}Bi_{2.5}Fe₅O₁₂ thin films by adding Bi₃Fe₅O₁₂ underlayer

J. Zhang¹, F. Z. Chafi¹, M. Nishikawa¹, M. Kawahara², T. Ishibashi¹
(Nagaoka Univ. Tech.¹, Kojundo chem. lab.²)

はじめに

Bi 置換希土類鉄ガーネット (RE_{3-x}Bi_xFe₅O₁₂, RE:希土類元素) は、可視光領域で優れた磁気光学特性を示す材料であるため、光アイソレーターや磁気光学イメージングの磁気転写材料などに用いられている。Bi の組成比が高い試料では磁気光学効果が増大する一方で、Bi の置換量の増加と共に結晶性が低下することが問題となっている。本研究では、希土類サイトを Bi で全置換した Bi₃Fe₅O₁₂ (BIG) 薄膜を下地層として用いる方法を提案し、Nd_{0.5}Bi_{2.5}Fe₅O₁₂ (Bi2.5:NIG) 薄膜の高品質化を試みた。

実験方法

BIG/Bi2.5:NIG 薄膜は有機金属分解(MOD)法を用いて作製した。実験には高純度化学研究所製の MOD 溶液を使用した。MOD 法のプロセスと薄膜の構造を Fig.1 に示す。

高濃度 Bi 置換磁性ガーネット薄膜のエピタキシャル成長のため、MOD 法を用いてガラス基板に Nd₂Bi₁Fe₄Ga₁O₁₂ (buffer)層を作製した。次に、塗布、乾燥、仮焼成までのプロセスを繰り返し、BIG 層と Bi2.5:NIG 層を続けて積層した。そして、最後に結晶化のための熱処理を行った。比較のために、同じ条件で Bi2.5:NIG のみの薄膜も作製した。溶液の塗布 1 回によって得られる薄膜の厚さは約 25 nm である。試料の評価には XRD 測定、Faraday スペクトル測定および分析透過電子顕微鏡(TEM-EDS)観察を行った。さらに、反射膜として約 120 nm 厚の銀膜を表面に蒸着した BIG/Bi2.5:NIG 薄膜の Kerr 回転角スペクトルについて、測定結果と仮想光学定数法による計算結果を比較した。

実験結果

Fig.2 に BIG/Bi2.5:NIG と Bi2.5:NIG の試料の XRD パターンを示す。いずれの場合も、多結晶のガーネット構造を有する事が確認された。これら二つの試料を比較すると、BIG/Bi2.5:NIG の方は半値幅が狭く、結晶性が良いことがわかる。Fig.3 に、これらの試料の Faraday 回転角スペクトルを示す。いずれも Bi 置換磁性ガーネット特有のスペクトル形状を示し、520 nm 付近において、それぞれ、-5.6 度と -3.6 度の Faraday 回転角が得られた。以上の結果から、下地層として BIG を挿入することにより、磁気光学効果が大幅に改善されることがわかった。仮想光学定数法による Kerr スペクトルの解析から、この磁気光学効果の増大現象は、Bi2.5:NIG 薄膜の複素屈折率の増大が原因であると考えられる。

謝辞

TEM-EDS の測定は、山口大学総合科学実験センター常盤分室の協力により行った。

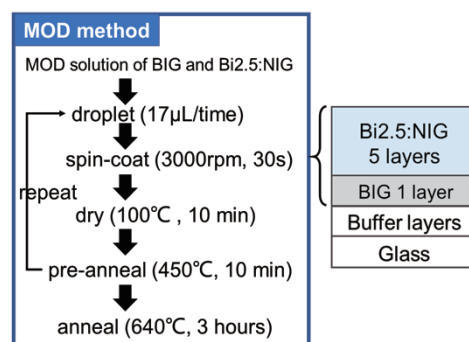


Fig.1 Schematic of MOD method and BIG/Bi2.5:NIG structure on a glass substrate.

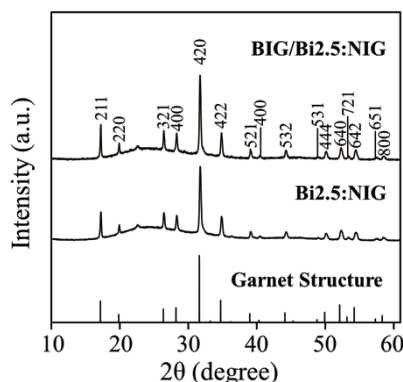


Fig.2 XRD patterns of BIG/Bi2.5:NIG and Bi2.5:NIG films.

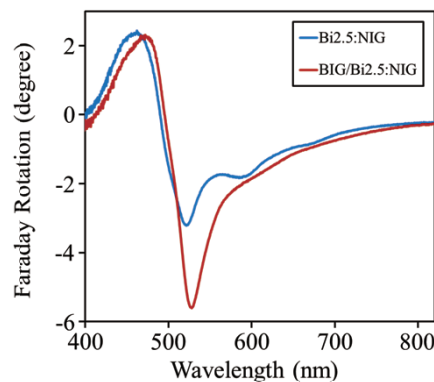


Fig.3 Faraday spectra of BIG/Bi2.5:NIG and Bi2.5:NIG films.

MgO 薄膜の RF 高速スパッタリングのための ヒータ援用加熱カソードの開発

○山田 航太^{a)}, 宮崎 大輝^{a)}, 加藤 絢^{b)}, 廣川 祐生^{a)}, Seong-Jae Jeon^{a)}, 清水 章弘^{a)},
鈴木 浩明^{c)}, 大泉 武司^{c)}, 田河 育也^{b)}, 日向 慎太郎^{a)}, 小川 智之^{a)}, 斉藤 伸^{a)}
(^{a)}東北大学, ^{b)}東北工業大学, ^{c)}アリオス)

Development of heater-assisted hot cathode for RF high-speed sputtering of MgO thin films
○Kota Yamada^{a)}, Daiki Miyazaki^{a)}, Aya Kato^{b)}, Yuki Hirokawa^{a)}, Seong-Jae Jeon^{a)},
Akihiro Shimizu^{a)}, Hiroaki Suzuki^{c)}, Takeshi Ohizumi^{c)}, Ikuya Tagawa^{b)}, Shintaro Hinata^{a)},
Tomoyuki Ogawa^{a)}, and Shin Saito^{a)}
(^{a)}Tohoku Univ. , ^{b)}Tohoku Institute of Technology Univ. , ^{c)}Arios Inc.)

はじめに 酸化物や窒化物絶縁体薄膜の形成は、半導体メモリ、磁気記録・スピントロニクスデバイス等の先端電子デバイスを実現する上で必須な基盤技術である。特に高い耐熱性、熱伝導特性、電気絶縁性、2次電子放出能を有する MgO はその特長を活かして様々なデバイスで重要な機能を担っている。MgO の成膜技術としては、高密度・高密着性の観点から RF マグネトロンスパッタリング法が好適であり、成膜速度を一般の金属材料程度まで高速化することが実用上期待されている。MgO 薄膜の高速成膜方法としては、カソード水冷による冷却を抑制してターゲット素材を高温化するホットカソード法¹⁾が知られている。この手法は RF 電源からの投入電力の増加による Ar⁺イオン衝撃の増加によりターゲット素材を昇温させるものであるが、投入電力の増加には機構上の限界がある。そこで今回我々は、従来冷却する仕様となっているターゲット素材を RF 放電に依らずに高温化できる新たなカソードを開発したので報告する。

実験結果 まず従来のホットカソードスパッタ法の概要を説明する。Fig. 1 に MgO ターゲットを RF 放電させた際の投入電力のタイムチャートを示す。タイムチャートの上側にはプラズマの発光状態、下側にはその投入電力でプラズマ放電を停止した直後のターゲット表面の赤熱状態を付した。ターゲットの赤熱強度は投入電力増大にともなって強くなっている。プラズマ発光は、投入電力増大にともない Ar に起因する薄い赤紫色から Mg に起因する緑色へと変化している。すなわち MgO ターゲット素材の高温化により成膜速度が著しく向上していることが伺える。高温化効果をさらに向上させるために、我々はカソード内にヒータを導入しターゲット素材を加熱することを考案した。技術的な課題はカソード部材の高温耐性向上ならびに RF 放電とヒータ加熱との両立である。Fig. 2 に実際に設計したヒータ援用加熱カソードの模式図を示す。耐熱性の向上には低熱膨張材を使用することが有効であり、導電性の要否を勘案してカーボンや石英、窒化ホウ素製の部材を採用した。RF 放電とヒータ加熱との両立のためにはヒータ回路への RF 重畳の抑制が肝要であり、ヒータ給電線に 13.56 MHz の電圧入力を 29 dB 減衰させる低域通過型フィルタを設置した。その他セルフバイアスによりもたらされる電極極性を安定化させるためカソード金属表面の絶縁被覆や dc 負バイアス印加等を実施し、最終的に開発したカソードにて 130 mm^φMgO ターゲットの平均表面温度 550 °C (ヒータ電流: 20 A)を実現した。さらにそのターゲットに RF 電力を 1000 W 投入し基板ターゲット間距離を 35 mm とした際に、中心部 80 mm^φの平均成膜速度 1.54 nm/s を達成した。

参考文献 1) M. Terauchi et al., *J. SID*, 16/12, 1995, (2008).

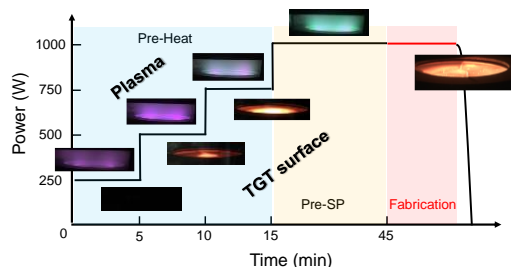


Fig. 1 Process flow of hot cathode RF sputtering. Photos are plasma discharge and red heat on the target surface.

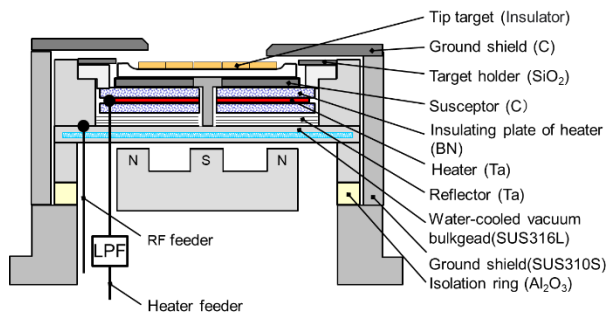


Fig. 2 Schematic of heater-assisted hot cathode.