

FeCoNi 系単結晶薄膜における結晶磁気異方性定数 K_1 の組成依存性

○上野 智也、中野 貴文、角田 匡清、大兼 幹彦

(東北大学大学院工学研究科 〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05)

Composition dependence of magneto-crystalline anisotropy constant K_1 in FeCoNi-alloy epitaxial thin films

T. Ueno, T. Nakano, M. Tsunoda, and M. Oogane

(Graduate School of Engineering, Tohoku University)

1. はじめに 磁気トンネル接合を用いた磁気センサの感度向上のためには結晶磁気異方性定数 (K_1) が小さい軟磁性材料が求められる。しかし、 K_1 が小さい材料を実験的に探索するための指針は必ずしも明らかでない。例えば、 K_1 がともに負の Ni と Co を合金化すると $\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}$ 付近の組成において $K_1 > 0$ となり^[1]、また、 $K_1 > 0$ の NiCo 合金に $K_1 > 0$ の Fe を加えると一部組成において $K_1 < 0$ となる^[2]。これらの K_1 の符号が変わる領域で $K_1 = 0$ が実現可能と考えられるが、それがどのような理由で実現するかは必ずしも明らかでない。本研究は、MgO(001)基板上に単結晶 FeCoNi 系合金薄膜を作製し、その K_1 の組成依存性の起源を明らかにすることを目的としている。本発表では、FeCoNi 系 (NiCo 2 元、FeCoNi 3 元) 合金薄膜に着目し、 K_1 の組成依存性について調べた結果を報告する。

2. 実験方法 試料の作製には RF マグネトロンスパッタリング装置を用いた。Ni、Co、Fe およびその合金を同時スパッタすることによって 50 nm の膜厚の FeCoNi 系合金薄膜を成膜した。組成は K_1 の符号が変化する範囲を成膜した。結晶性向上のため 400 °C、1 時間の熱処理をした。その後、酸化防止膜として Cr を 1 nm 成膜した。結晶性の評価には X 線回折装置、磁気特性の評価には振動試料型磁力計を用いた。 K_1 の評価には面内強磁性共鳴 (IP-FMR) を用いた。試料面内で印加磁場を回転させ共鳴磁場の面内角度依存性を解析することによって K_1 を算出した。

3. 結果 Ni 薄膜における共鳴磁場 (H_R) の磁場印加角度 (ϕ_H) 依存性を例として図 1 に示す。立方晶の 4 回対称性を反映した結果が得られ、フィッティングにより K_1 を評価した。NiCo 合金薄膜では、先行研究と同様に $\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}$ の組成付近で K_1 が正となる振る舞いが見られた (図 2)。当日は FeCoNi 系単結晶合金薄膜の K_1 の組成依存性のほかに磁歪、格子ひずみの K_1 への影響についても発表する予定である。

謝辞 本研究は、SIP プロジェクト、SCOPE プロジェクト、X-nics プロジェクト、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター、および、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を受けて行われた。

参考文献 [1] S. J. Xu *et al.* Phys. Rev. B **100** 024403 (2019).

[2] L. W. McKeehan, Phys. Rev. **51** 136-139 (1937).

[3] 近角 聰信 著 「強磁性体の物理(下)」.

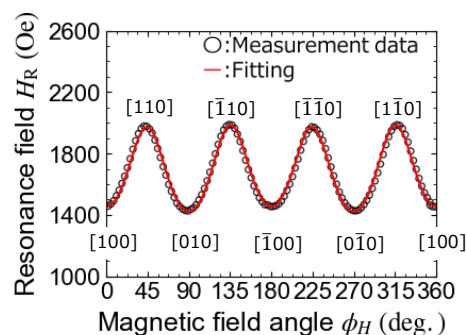


Fig1: In-plane angular dependence of H_R in Ni thin film

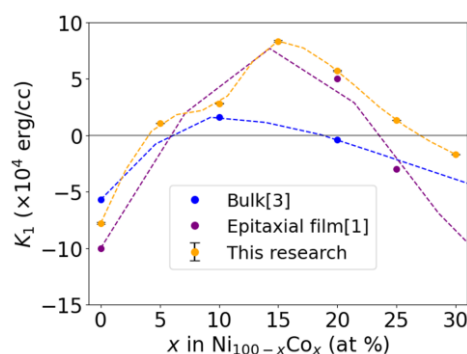


Fig2: Composition dependence of K_1 in NiCo alloy thin films

カット面の異なる LiNbO₃ 単結晶基板にスパッタ成膜した Co 薄膜の面内一軸磁気異方性の評価

鹿野早希¹, 阿部拓真¹, 小野頌太², 島村一利³, 山口明啓⁴, 嶋睦宏¹, 山田啓介¹
(岐阜大院自¹, 室蘭工大², 金沢大³, 東洋大⁴)

Evaluation of in-plane uniaxial magnetic anisotropy in Co thin films sputtered on

LiNbO₃ single crystal substrates with various cut planes

S. Shikano¹, T. Abe¹, S. Ono², K. Shimamura³, A. Yamaguchi⁴, M. Shima¹, and K. Yamada¹

(Gifu Univ.¹, Muroran Inst. Tech.², Kanazawa Univ.³, Toyo Univ.⁴)

【緒言】近年、機械的ひずみを加えることで二次元材料の特性を変化させることを誘発し、電氣的または光学的な特性の変化をもたらす「Straintronics (歪み電子工学)」の研究が盛んに行われている^[1]。磁性材料において、このような機械的ひずみによる磁気特性の変化は「磁歪」としてよく知られている。以前の報告において 128° Y-cut LiNbO₃ (LNO) 基板上に Co 薄膜をスパッタ成膜すると、強磁性薄膜の面内方向に大きな面内一軸磁気異方性 (K_u) が誘起されることが確認された^[2,3]。これは、LNO 単結晶基板のカット面が Co 薄膜内に作り出す引張応力によって、hcp-Co (112)配向することが関係している。そこで本研究では、LNO 単結晶基板のカット面に注目し、64° & 41° Y-cut LNO 基板、42° Y-cut LiTaO₃ (LTO)基板、112.2° X-cut LTO 基板上にスパッタ成膜した Co 薄膜の膜厚(t)と K_u の相関を調べることを目的とした。

【実験方法】マグネトロンスパッタリングを使用して、1 cm×1 cm のそれぞれの LNO 基板、LTO 基板、Si 基板上に、ベース真空度 4.5×10^{-4} Pa、成膜速度 2.0×10^{-1} nm/s の条件下で膜厚(t) 6.2~25 nm の Co 薄膜試料を作製した。VSM により磁気特性を調べ、XRD により結晶構造を評価した。

【結果と考察】図 1 に $t=8.5$ nm, As depo.(~30 °C) の 64° Y-cut LNO 基板/Co における磁化曲線の面内磁場の印加方向(χ)依存性を示した。64° Y-cut LNO 基板上の(01.2)が容易軸となり、Co 薄膜の面内方向に異方性が誘起されていることが確認できた。図 2 は図 1 の磁化曲線の解析結果から求めた K_u の膜厚依存性について示した結果である。膜厚が 5.0~10 nm の間で K_u が最大値をとることが確認された。図 3 に 64° Y-cut LNO 基板上の Co 薄膜($t=7.0$ nm)における XRD の測定結果を示す。hcp-Co (002)に配向した薄膜が成膜されていることが分かった。この配向は、64° Y-cut LNO 基板のカット面に依存した格子歪みが起因していると考えられる。hcp-Co (002)配向によって、大きな K_u が得られた結果を得ることができた。

参考文献

- [1] W. Hou et. al., *Nat. Nano-technol.* **14**, 668-673 (2019).
- [2] S. Shikano et. al., *Intermag 2023*, XPA-03.
- [3] 鹿野早希, 他 第 47 回 日本磁気学会学術講演会, 27pC-16 (2023).

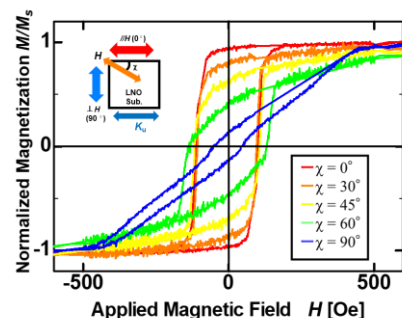


Fig. 1 Magnetic hysteresis loops of Co film with $t = 8.5$ nm on 64° Y-cut LNO substrate at various the applied magnetic field directions χ .

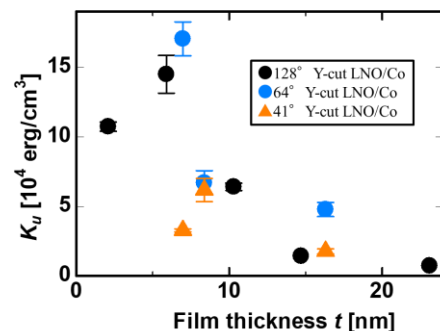


Fig. 2 K_u as a function of t at various cut planes.

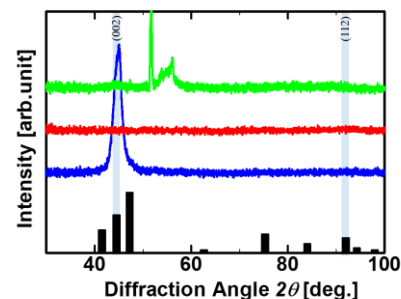


Fig. 3 XRD patterns for Co films with $t = 7.0$ nm on 64° Y-cut LNO sub. Green, red and blue lines are the results of Si substrate, LNO sub. (X-ray ⊥ OF direction), LNO sub. (X-ray // OF direction).

MgO(111)基板上にエピタキシャル成長させた ϵ -Fe₂₋₃N 単結晶薄膜の構造と磁気特性

今村光佑・大竹 充
(横浜国大)

Structural and Magnetic Properties of Single-Crystal ϵ -Fe₂₋₃N Thin Films Epitaxially Grown on MgO(111) Substrates

Kosuke Imamura and Mitsuru Ohtake
(Yokohama Nat. Univ.)

はじめに 鉄を窒化させると、窒素 (N) が鉄 (Fe) の結晶中に一定程度の秩序をもって入り、格子が膨張した侵入型化合物相を形成する。強磁性相としては、 α' -(Fe,N)、 α'' -Fe₁₆N₂、 γ' -Fe₄N、 ϵ -Fe₂₋₃N が知られており、 α'' 相では大きな飽和磁化¹⁾、 γ' 相では負に大きいスピン偏極率^{2,3)}や大きな磁歪⁴⁾、といったユニークな特性が発現する。一方、 ϵ 相に関する研究は多くないのが現状であり、把握できていない特性が存在することが考えられる。また、窒化鉄の特性は同じ結晶相でも、N の固溶量の差異により繊細に変化することが α'' や γ' 相の場合で報告されている。このような材料の基本特性を調べるためには、単結晶試料の活用が有効であるが、バルクではその形成、および、N 組成を系統的に変化させた試料の作製が容易ではない。そこで、エピタキシャル単結晶薄膜の活用が候補となる。昨年度の学術講演会では⁵⁾、反応性マグネトロン・スパッタリング法により N₂ 分圧比を変えることにより MgO(001)基板上に Fe-N 膜を形成し、N₂ 分圧比の増加に伴い、結晶相が $\alpha \rightarrow \gamma' \rightarrow \gamma''$ と変化し、 ϵ 相は形成されないことが分かった。これは、MgO(001)表面と ϵ 相の格子整合度が悪く、対称性も異なるためであった。そこで、本研究では、MgO(111)基板上に膜形成を行うことにより、 ϵ 相の形成を試みた。そして、その詳細な構造と磁気特性を調べた。

実験方法 製膜には超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いた。全圧を 0.67 Pa に調整した Ar と N₂ の混合ガスの下で N₂ 分圧比を 0~100%の間で変化させ、Fe ターゲットをスパッタすることにより、400 °C に加熱した MgO(111)基板上に、Fe-N 膜を形成した。このとき、投入電力を 62 W、スパッタ時間を 2000 s で一定とした。構造解析には RHEED、XRD、XPS、AFM、磁気特性測定には VSM、RSM を用いた。

実験結果 N₂ 分圧比 0~100%の条件下で形成した膜に対して観察した RHEED パターンを Fig. 1(a)に、また、面外および面内の XRD パターンを、Fig. 2(a)および(b)にそれぞれ示す。いずれの N₂ 分圧比で形成した膜においても、RHEED パターンにスポットおよびストリーク状の反射が認められ、エピタキシャル成長していることを確認できる。XRD パターンも合わせて解析することで、N₂ 分圧比に応じて成長した結晶と基板との方位関係を決定した。N₂ 分圧比 0%では、 α -Fe(110)結晶が、MgO(111)面に対して 3 組の Nishiyama-Wassermann (NW) および 6 組の Kurdjumov-Sachs (KS) の関係を取り複数バリエーションで成長している。2.5%では、同様の α (110) 結晶に加え、 γ' (111)結晶が γ' (111)[110] $\parallel$ MgO(111)[110] (A) と γ' (111)[$\bar{1}10$] $\parallel$ MgO(111)[$\bar{1}10$] (B) の方位関係をもつ双晶として成長している。5%まで増加すると、 γ' (111)結晶に加え、 ϵ -Fe₂₋₃N(0001)結晶も、 ϵ (0001)[110] $\parallel$ MgO(111)[110]の方位関係で、c 面配向して成長している。10~100%までの広い範囲では、単相の ϵ -Fe₂₋₃N(0001)単結晶が形成されている。また、N₂ 分圧比の増加とともに面内 XRD パターンの 3300 反射が低角側にシフトする。 ϵ 相の固溶範囲が広いことを反映して⁶⁾、面内格子定数が増大していることを示唆している。当日は、 ϵ 相の構造と磁気特性の関係についても議論する。

- 1) Y. Sugita *et al.*: *J. Appl. Phys.*, **70**, 5977 (1991).
- 2) A. Narahara *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 202502 (2009).
- 3) S. Isogami *et al.*: *Adv. Electron. Mater.*, **9**, 2200515 (2022).
- 4) Y. Maeda *et al.*: *J. Magn. Magn. Mater.*, **585**, 170942 (2023).
- 5) 今村光佑ら: 第 47 回日本磁気学会学術講演概要集, 27pC-2 (2023).
- 6) H. A. Wriedt *et al.*: *Bull. Alloy Phase Diagr.*, **8**, 355 (1987).

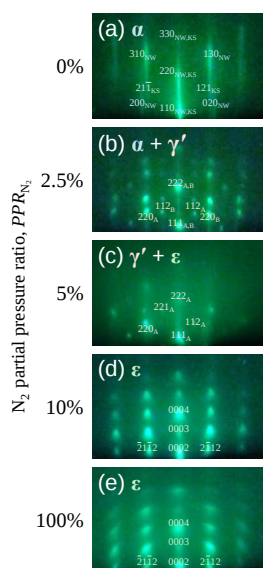


Fig. 1 RHEED patterns of Fe-N films prepared on MgO(111) substrates.

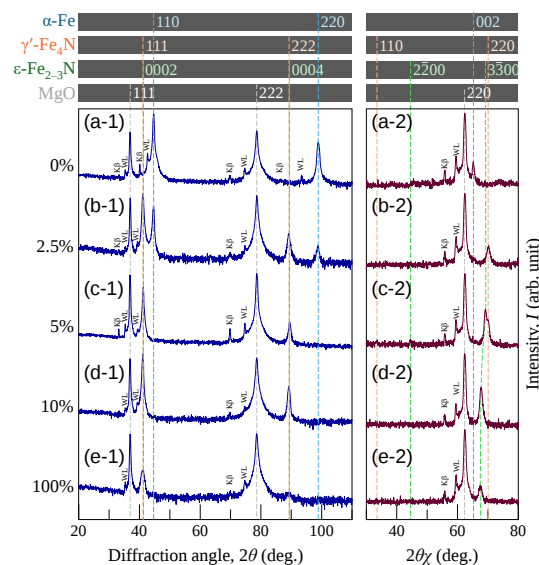


Fig. 2 (a-1)–(e-1) Out-of-plane and (a-2)–(e-2) in-plane XRD patterns measured for Fe-N films prepared on MgO(111) substrates.

Y 添加した Fe-Ga 薄膜の構造と磁気特性に関する検討

阿加 賽見¹, 西名 竜哉¹, 宮崎 孝道², 室賀 翔¹, 遠藤 恭^{1,3}

(¹ 東北大院工学研究科, ² 東北大学工学部, ³ 東北大学先端スピントロニクス研究開発センター)

Influence of Yttrium addition on structural and magnetic properties of $(\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29})_{1-x}\text{Y}_x$ thin film

Saijian Ajia¹, Ryuya Nishina¹, Takamichi Miyazaki², Sho Muroga¹, Yasushi Endo^{1,3}

(¹ Grad. Sch. Eng. Tohoku Univ., ² Sch. Eng. Tohoku Univ., ³ CSIS, Tohoku Univ.)

はじめに Fe-Ga 合金は巨大な磁歪と比較的高い飽和磁化を有し、Fe-Ga バルク合金は磁歪アクチュエータや変換機器への応用として盛んに行われてきた。一方、Fe-Ga 薄膜合金の磁歪特性と高周波磁気特性の関係から、高速・エネルギー高効率な高周波磁気デバイスへの応用が期待されている¹⁾。これまでに我々のグループを含め、Fe-Ga 薄膜に関する知見が報告され²⁻⁴⁾、高周波磁気デバイスへ応用するには、Fe-Ga 薄膜の軟磁性化とダンピング定数の改善が必要であることが示された。そこで、我々は第三元素として B を添加することによって、保磁力とダンピング定数をともに減少させることに成功した⁵⁾。一方、第 3 元素として希土類元素を添加した $(\text{Fe}_{75}\text{Ga}_{25})_{1-x}\text{La}_x$ 薄膜の動的磁気特性が、La 添加によって改善傾向を示した⁶⁾。本研究では、新たに希土類元素である Y を添加した $(\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29})_{1-x}\text{Y}_x$ 薄膜の構造と磁気特性について検討し、異なる希土類元素の添加効果について議論する。

実験方法 50 nm 厚の $(\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29})_{1-x}\text{Y}_x$ ($x = 1.5-10.5$) 薄膜をガラス基板上に DC マグネトロンスパッタリング法を用いて製膜した。各薄膜の Y 組成分析は EDX を用いた。作製した薄膜における結晶構造は XRD を、静的磁気特性は VSM と光てこ法を、また高周波磁気特性はブロードバンド FMR(B-FMR)測定法を用いて評価した。

結果および考察 Fig. 1 は $(\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29})_{1-x}\text{Y}_x$ 薄膜における静的磁気特性を表す保磁力 H_c と動的磁気特性を表すダンピング定数 α の Y 組成依存性である。Y 添加前 ($x = 0$ at.%) の $\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29}$ 多結晶薄膜は $H_c = 59.3$ Oe ($H_{ex}(0^\circ)$), $\alpha = 0.0228$ であった。膜面に対する印加した外部磁場の方向に依存せず、 H_c は Y 添加量にしたがって、 $x = 9.9$ at.% において最小値の 17.3 Oe ($H_{ex}(0^\circ)$) になり、その後再び増加した。一方、ダンピング定数 α は Y 組成の増加とともに増加し、 $x = 9.9$ at.% に最大となり、その後は減少した。 H_c 低減の原因は、飽和磁歪が Y 添加量増加によって減少したことに加え、磁氣的構造の変化と結晶化度合に起因しているものと考えられる。一方、 α に関しては、Y 添加量増加によって磁氣的な不均一性が生じたことが α に影響を与えていると推察できる。この結果から Y 添加は $\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29}$ 合金薄膜の軟磁気特性を改善できることを表している。一方で、高周波磁気特性の改善は見られないことがわかった。なお、当日は先行研究である La を添加した $(\text{Fe}_{75}\text{Ga}_{25})_{1-x}\text{La}_x$ 薄膜の特性と比較し、希土類元素の添加効果について議論する。

謝辞 本研究の一部は文部科学省次世代 X-nics 半導体創生拠点形成事業 JP011438 の助成を受けた。また、本研究の一部は、東北大学 CSIS、東北大学 CSRN、東北大学 CIES および ASRC の支援のもとに行われた。

参考文献 1) B. K. Kuanr et al., J. Appl. Phys., **115**, 17C112 (2014). 2) W. Jahjah, et al., Phys. Rev. Appl., **12**, 024020 (2019). 3) Y. Kawabe, et al., T. Magn. Soc. Jpn., (Special Issues) **3**, 34 (2019). 4) Y. Endo, et al., Materia Japan, **59**, 26 (2020) (in Japanese). 5) S. Muramatsu, et al., AIP Advances, **11**, 025114 (2021). 6) R. Nishina, et al., T. Magn. Soc. Jpn., (Special Issues) **8**, 10 (2024).

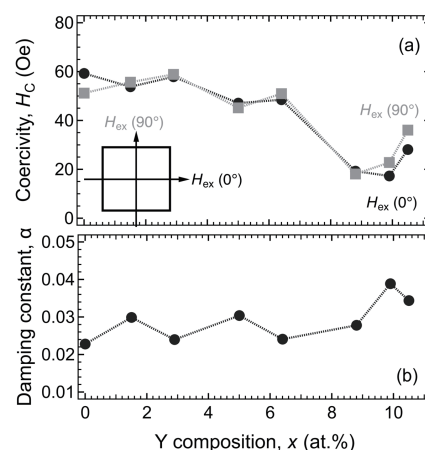


Fig. 1(a) the coercivity H_c in two directions of external filed H_{ex} applied parallel to the film plane, and (b) the damping constant, depending on the Y composition of the 50 nm- $(\text{Fe}_{71}\text{Ga}_{29})_{1-x}\text{Y}_x$ thin films.

鉄酸フッ化ビスマス単結晶薄膜の作製と 室温マルチフェロイック特性

近松彰、上垣外明子、佐野瑞歩、¹重松圭、²出村郷志、³片山 司、⁴廣瀬靖
(お茶大理、¹東工大フロンティア研、²日大理工、³北大電子研、⁴都立大理)

Preparation of bismuth oxyfluoride single crystal thin films and their room temperature multiferroic properties

A. Chikamatsu, A. Kamigaito, M. Sano, ¹K. Shigematsu, ²S. Demura, ³T. Katayama, ⁴Y. Hirose
(Ochanomizu Univ., ¹MSL, Tokyo Tech., ²CST, Nihon Univ., ³Hokkaido Univ., ⁴Tokyo Metropolitan Univ.)

はじめに

近年、極性正方晶歪み構造を持つ鉄酸フッ化物の多結晶体が合成され、酸素の一部をフッ素に置換した酸フッ化物でもマルチフェロイック特性を示す可能性が示唆された[1,2]。酸フッ化物は、酸素とフッ素2種類のアニオンがカチオンに配位するため、酸化物単体と比べて局所的な対称性が低下する。すなわち、強誘電性に必要な極性構造を取りやすくなる。また、フッ化により電子状態が変化し、相転移温度やバンドギャップも変化する。このように、酸フッ化物は室温マルチフェロイック特性のポテンシャルを秘めているが、誘電特性の測定に耐えうるリークのない酸フッ化物の単結晶あるいは単結晶薄膜が得られていなかったため、実証には至っていなかった。本研究では、トポケミカルフッ化反応により $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.9-x}\text{F}_y$ 単結晶薄膜を作製し、作製した単結晶薄膜の室温マルチフェロイック特性の検証を行った。

実験方法

$\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.9-x}\text{F}_y$ 単結晶薄膜は、まず前駆体である $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.9}$ 単結晶薄膜を Nb0.5% ドープ SrTiO_3 (100) 基板上にパルスレーザー堆積法で作製し、これをポリフッ化ビニリデンとともに Ar 雰囲気の下 200 °C および 350 °C、12 時間トポケミカル反応させて作製した。作製した薄膜の結晶構造は X 線回折(XRD)、化学組成は X 線光電子分光(XPS)、エネルギー分散型 X 線分析(EDS)、強誘電性は強誘電テスター、磁気特性は超伝導量子干渉磁束計によりそれぞれ測定した。

結果と考察

XRD 測定から、 $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.9}$ 薄膜を 200 °C でフッ化した薄膜はペロブスカイト構造を保ったまま c 軸長が伸長すること、350 °C では c 軸長が大きく伸長し蛍石構造になることが明らかになった。XPS および EDS の結果から、200 °C でフッ化した薄膜の化学組成は $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.8}\text{F}_{0.2}$ 、350 °C でフッ化した薄膜は $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{1.6}\text{F}_{2.1}$ と同定された。

図 1 に 20 kHz、300 K で測定した $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.8}\text{F}_{0.2}$ 薄膜の分極-電場($P-E$)曲線および電流-電場($I-E$)曲線を示す。薄膜が室温で残留分極 $\sim 9 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ の強誘電性を示すことが明らかになった。さらに、300 K での磁化率測定において強磁性を示すヒステリシスが観測された。これらの結果から、 $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.8}\text{F}_{0.2}$ が室温マルチフェロイック特性をもつことが示された。

参考文献

- 1) O. Clemens *et al.*, Inorg. Chem. **53**, 12572 (2014).
- 2) S. Rahimi *et al.*, Phys. Rev. B **106**, 115205 (2022).

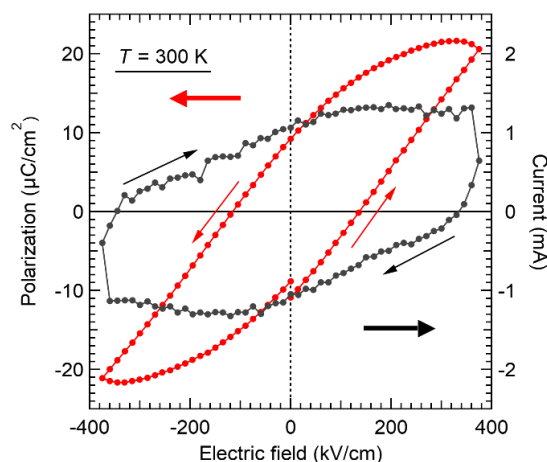


Fig. 1. $P-E$ and $I-E$ curves for the $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_{2.8}\text{F}_{0.2}$ film acquired at 20 kHz and 300 K.

トンネル型スピフィルター素子に向けた Pt 層上の バリウムフェライト垂直磁化薄膜の作製

田中 雅章, 足立 亮太, 小見山 遥*, 小野 輝男*, 日原 岳彦, 壬生 攻
(名工大工, *京大化研)

Preparation of perpendicularly magnetized barium ferrite films on Pt layers for spin-filtering junctions
Masaaki A. Tanaka, Ryota Adachi, Haruka Komiyama*, Teruo Ono*, Takehiko Hihara, and Ko Mibu
(Nagoya Inst. Tech., *Kyoto Univ.)

はじめに

マグネトプランバイト型構造のバリウムフェライト(BaM)はキュリー温度が高い強磁性絶縁体として知られている。BaM は c 軸方向に大きな結晶磁気異方性をもつため、c 軸配向させた BaM 薄膜は高い垂直磁気異方性を示すことが期待される¹⁾。一方、薄い強磁性絶縁体薄膜をトンネル伝導する電子には、電子のスピンの依存した障壁の高さを反映した透過率の差が生じる。この現象はトンネル型スピフィルター効果と呼ばれ、強磁性金属とは異なるスピン偏極電子源として利用できる²⁾。本研究では、BaM 垂直磁化薄膜を用いたトンネル型スピフィルター効果の観測のために Pt 層上への薄い BaM 垂直磁化薄膜の作製と、トンネルバリア特性の評価を行った。

実験方法

α - Al_2O_3 (0001)基板上に膜厚 20 nm の Pt を成膜した後に、YAG 2 倍波レーザーを用いたパルスレーザー堆積法でシャドウマスクを用いて基板温度を 300°C としてアルゴン雰囲気中で膜厚 7 nm の BaM 薄膜を作製した。作製した薄膜は真空中で赤外線ランプを用いて 900°C で $t_a=3\sim 180$ 分間のアニール処理を行った。X 線回折装置で結晶構造と格子歪みの評価、原子間力顕微鏡観察で表面平坦性の評価、SQUID 磁束計を用いて磁化測定を行った。また、BaM (7 nm)を絶縁層とする Pt/BaM/MgO 構造の多層膜を作製して、フォトリソグラフィと Ar イオンミリングを用いて直径が数 μm の接合素子を作製した。接合素子に対して電流電圧測定を行い、バリア特性を評価した。

実験結果

X 線回折から Pt 層上の BaM 薄膜はアニール処理を行うことで(0001)方向にエピタキシャル成長することがわかった。図 1 に $t_a=10$ min. 及び 90 min. の試料の膜面垂直方向の磁化測定の結果を示す。アニール時間が長くなることで飽和磁化が大きくなり、 $t_a=90$ min. の試料では飽和磁化が 500 kA/m になることがわかった。一方でアニール処理時間を長くすると表面平坦性が悪くなり、 $t_a>120$ min. の試料では Pt 原子の移動によると考えられる非常に荒れた表面になることがわかった。 $t_a=90$ min. のアニール処理を行った接合素子の多層膜は平均表面粗さが 0.5 nm と良いため、この条件の接合素子の電流電圧特性を評価した。発表では接合素子のトンネル伝導の結果についても議論する。

本研究は公益財団法人天野工業技術研究所の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) A. Morisako *et al.*, J. Magn. Soc. Jpn. **23**, 1217 (1999).
- 2) J. S. Moodera *et al.*, Phys. Rev. Lett. **61**, 637 (1988).

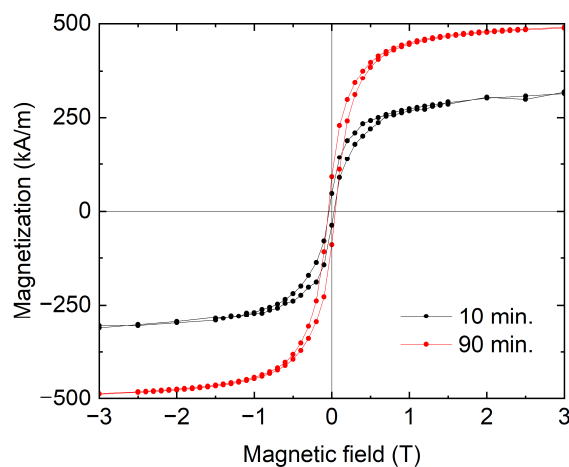


Fig. 1 Out of plane hysteresis loops of BaM films ($t_a=10$ min. and 90 min.) at 300 K

基板の構造相転移により誘起される $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ 薄膜の新たな強磁性相

荒川 椋大朗、小野木 拓麻、小森 祥央、谷山 智康
(名古屋大学)

Unusual ferromagnetic phase induced by structural phase transition of substrate in epitaxial $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ thin films

R. Arakawa, T. Onogi, S. Komori, T. Taniyama
(Nagoya University)

はじめに

マンガン磁性酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) のエピタキシャル薄膜は超巨大磁気抵抗効果 (CMR)、ハーフメタリック伝導、金属-絶縁体転移等の多彩な物性を示し、これらの物性は強い電子相関のためにキャリア密度や格子歪みに大きく依存する。最近、我々は LSMO/BaTiO₃ (100) ヘテロ構造において強誘電体 BaTiO₃ 基板の構造相転移に伴う磁気弾性効果が、強磁性-反強磁性領域境界に当たる $x = 0.5$ の組成において顕著に増大することを示した¹⁾。今回、強誘電体ではない Nb ドープ及びノンドープの SrTiO₃ (100) 基板の構造相転移においても顕著な磁気弾性効果を見出したのでこれを報告する。

実験方法

Nb (0.5 wt%) ドープされた SrTiO₃ (100) 基板上に、膜厚の異なる複数の $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ エピタキシャル薄膜を Nd:YAG レーザーを用いたパルスレーザー堆積 (PLD) 法により成膜した。これらの試料に対して、500 Oe の磁場下、2-350 K の温度範囲で磁化の温度依存性を測定した。また、コプレーナ導波路とネットワークアナライザーを用いて、0-12 kOe の静磁場下、0-44 GHz のマイクロ波印加下で、2-300 K の温度範囲における強磁性共鳴を測定した。

実験結果

Fig. 1 に Nb:SrTiO₃ 基板上に成膜した膜厚 d の $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ 薄膜の磁化の温度依存性を示す。全ての試料に対して温度の低下に伴って磁化が増大し、 $d = 28, 38, 70$ nm の試料では 118 K より低温において磁化のさらなる増大が見られる。この現象は膜厚の増大とともに顕在化することがわかる。また、ドープされていない SrTiO₃ 基板上の $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ 薄膜においても、約 105 K 以下において同様の磁化の増大が確認された。この磁化が増大する温度は基板の構造相転移温度とほぼ一致している²⁾。Fig. 2 に $d = 38$ nm の薄膜に対する強磁性共鳴吸収の温度依存性を示す。125 K 以下において、125 K 以上の温度での吸収に加えて低磁場側に小さなディップが確認されることから、基板の構造相転移により新たな強磁性相が発現し、これが磁化の増大に寄与していると推測される。講演では、詳細な物理起源について議論する。

本研究の一部は、JST CREST JPMJCR18J1, JST FOREST JPMJFR212V, JSPS 科研費 JP24H00380, JP23KK0086, JP21H04614 の支援を受けたものである。

参考文献

- 1) K. Imura et al., Appl. Phys. Lett. **122**, 202402 (2023).
- 2) Z. Zhang et al., Sci. Rep. **12**, 2499 (2022).

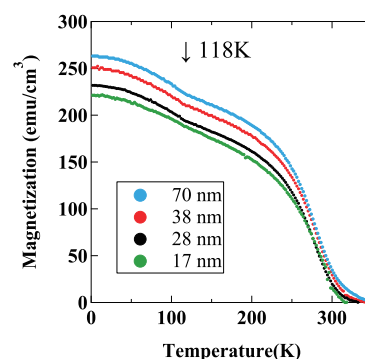


Fig. 1 Temperature dependence of magnetization of $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3/\text{Nb:STO}$.

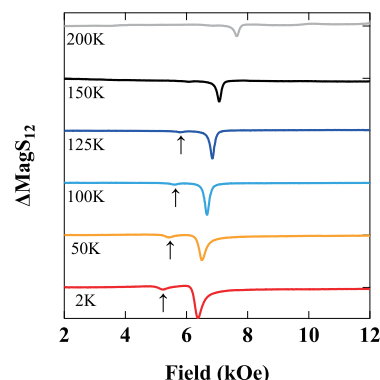


Fig. 2 Temperature dependence of FMR spectra of $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3/\text{Nb:STO}$ ($d = 38$ nm) at 30 GHz.

Co/Ru/Co/PMN-PT 構造の磁化過程における電界変調

久田優一*, 小森祥央*, 井村敬一郎**, 谷山智康*

(*名大理, **名大教養)

Electric-field modulation of magnetization process in Co/Ru/Co/PMN-PT heterostructures

*Y. Hisada, *S. Komori, **K. Imura, *T. Taniyama

(* Dept. Phys., Nagoya Univ., ** ILAS, Nagoya Univ.)

はじめに

最近、反強磁性層間結合を示す強磁性体/非磁性体/強磁性体ヘテロ構造 (人工反強磁性体 (SAF)) において、電界により誘起されるイオン伝導効果を利用した磁化配向の 180° スwitchングが実証され注目を集めている¹⁾。一方、我々はこれまでに、Co/Ru/Co SAF と強誘電体 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 (PMN-PT) からなるヘテロ構造において、PMN-PT の逆圧電歪みに起因する SAF の層間磁気結合の電界変調について報告してきた²⁾。本講演では、実験と micromagnetic simulation の双方から、層間磁気結合の電界変調のメカニズムを精査した結果について報告する。

実験結果

分子線エピタキシー法により、Ru (3 nm) /Co (4 nm) /Ru ($t_{\text{Ru}} = 1.2\text{-}1.4$ nm) /Co (3 nm) /Ru (20 nm) を強誘電体 PMN-PT(011)上に作製した。ここで t_{Ru} は、反強磁性結合から強磁性結合に切り替わる境界近傍の膜厚を選んでいる。作製したすべての試料において、磁場とともに磁化が急激に増大するメタ磁性転移挙動が確認された。これらの試料に対して minor loop 測定を行うと、図 1 (a)に示すように二つのスウィッチング磁場 H_{c1} および H_{c3} が得られ、すべての試料において $(H_{c1} + H_{c3})/2$ が電界により変調されることが確認された。Kopplak らの研究によると³⁾、 $(H_{c1} + H_{c3})/2$ と層間磁気結合定数 J (erg/cm²) とは比例関係にあり、今回実験で見出された $(H_{c1} + H_{c3})/2$ の電界変調は、層間磁気結合定数の電界効果によるものと理解される。

次に、micromagnetic simulation により得られた異なる J に対する minor loop を図 1 (b) に示す。層間磁気結合を増加させることで、 H_{c1} と H_{c3} がともに高磁場側へシフトしており、 $(H_{c1} + H_{c3})/2$ が層間磁気結合の指標であるとする Kopplak らの報告と定性的に一致している。一方、 J の値を変化させた際の H_{c1} と H_{c3} の変化量は図 1 (b)のようにそれぞれで異なり、図 1 (c)-(d)に示す実験結果をよく再現している。以上の結果は、実験で見出された Co/Ru/Co/PMN-PT 構造の磁化過程における電界効果が、層間磁気結合の電界変調に起因することを裏付けていると言える。講演では、Co/Ru/Co/PMN-PT ヘテロ構造における層間磁気結合の電界効果を、micromagnetic simulation と実験の両面から詳細に議論する。

本研究の一部は、JST CREST JPMJCR18J1, JST FOREST JPMJFR212V, JSPS 科研費 JP24H00380, JP23KK0086, JP21H04614, JP24KJ1306 の支援を受けたものです。

参考文献

- 1) A. E. Kossak *et al.*, Sci. Adv. **9**, eadd0548 (2023).
- 2) 第 47 回日本磁気学会学術講演会, 27aC-12.
- 3) O. Kopplak, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **433**, 91 (2017).

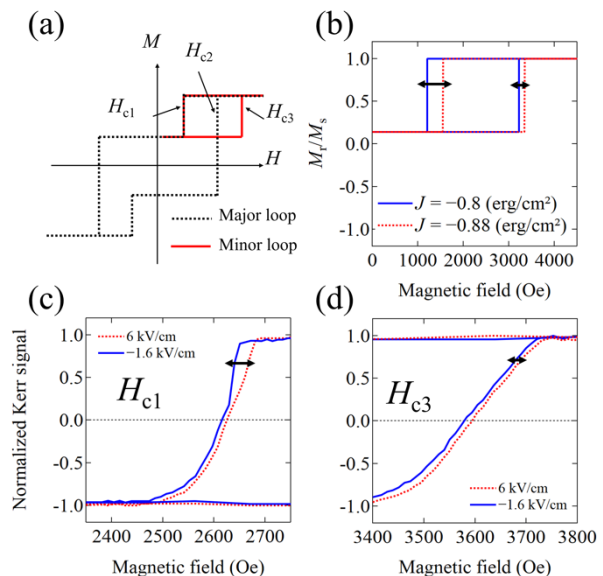


Fig. 1 (a) Schematic illustration of major and minor hysteresis loops in SAFs with a metamagnetic transition. (b) Minor hysteresis loops for different J values obtained from micromagnetic simulation. (c)-(d) Experimental results of the minor hysteresis loops of Co/Ru/Co/PMN-PT with $t_{\text{Ru}} = 1.2$ nm near H_{c1} and H_{c3} under electric fields of 6 kV/cm and -1.6 kV/cm.

窒素サーファクタントエピタキシーにより作製した FeCo 規則合金薄膜界面の構造安定性

宮町俊生^{1,2}, 梅田佳孝¹, 小野広喜¹, 山本航平³, 石山修³, 岩山洋士³, 中村永研³,
横山利彦³, 水口将輝^{1,2}

(¹ 名大院工, ² 名大未来研, ³ 分子研)

Interfacial stability in FeCo ordered alloy thin films fabricated by nitrogen surfactant epitaxy

T. Miyamachi^{1,2}, Y. Umeda¹, H. Ono¹, K. Yamamoto³, O. Ishiyama³, H. Iwayama, E. Nakamura³,
T. Yokoyama³, and M. Mizuguchi^{1,2}

(¹Sch. Eng. Nagoya Univ., ²IMaSS. Nagoya Univ., ³IMS)

はじめに

二種類の原子層が交互に積層し、L1₀ 型の結晶構造を持つ規則合金薄膜は高い垂直結晶磁気異方性を示すことが理論的に予測されており、次世代磁気材料として期待されている。中でも、L1₀-FeNi 規則合金薄膜や L1₀-FeCo 規則合金薄膜はレアアースフリーの高機能新規磁性材料として、近年、材料分野を中心に精力的に研究が行われている [1]。しかし、L1₀-FeCo は非平衡構造なため接合界面における原子レベルでの構造乱れに起因して規則度が低く、面直磁化はこれまでに実現されていない。この規則度低下の問題を解決するため、近年我々は窒化物単原子層の窒素サーファクタント効果を利用した L1₀ 型規則合金薄膜の高品質化に取り組み (窒素サーファクタントエピタキシー)、FeNi 規則合金薄膜においては世界で初めて垂直磁化を実現する等、原子レベルで高品質な界面を作製することの重要性を明らかにしてきた [2]。この手法では窒化物単原子層の高い表面格子安定性および接合異種界面における相互拡散を効果的に抑制する窒素サーファクタントにより原子レベルで平坦で均一な界面をもつ L1₀ 型規則合金薄膜の作製が期待できる。そこで、本研究では窒素サーファクタントエピタキシーを用いて FeCo 合金超薄膜を作製し、走査トンネル顕微鏡 (STM) 観察および X 線吸収分光/X 線磁気円二色性 (XAS/XMCD) 測定により Fe/Co 界面の構造安定性と磁気特性の相関を原子レベルで明らかにすることを目的とした。

実験方法

本研究では窒素サーファクタントエピタキシーを用いた高品質な FeCo 合金薄膜作製の初期成長段階である、Cu(001)表面上の Fe₄N の組成を持つ窒化鉄原子層に Co 約 1 原子層を約 150 K で低温成長した系を作製した。そして、その Fe/Co 界面の構造と電子・磁気状態の加熱温度依存性を STM 観察 (測定温度: 80 K) および XAS/XMCD 測定により調べた [3]。XAS/XMCD 測定は分子科学研究所 UVSOR BL4B にて行った (測定温度: 6.6 K、印加磁場: 0-5 T)。

実験結果

STM による原子分解能構造観察の結果、窒素サーファクタント効果によって系の構造が変化して最表面には CoN が現れ、さらに、470 K までの試料加熱では界面相互拡散を抑えながら CoN の規則度が向上することがわかった。低速電子線回折 (LEED) によるマクロ構造評価も行い、試料加熱に伴い CoN 由来の c(2×2) LEED スポットがシャープになったことから大面積で Fe/Co 界面の高品質化が促進されていることを確認した。XAS/XMCD 測定の結果、窒化鉄原子層は強い面内磁気異方性を示したが、Co 積層およびその後の加熱処理により面直磁化が増大することがわかった。窒素サーファクタント効果によって Fe/Co 接合界面における相互拡散が効果的に抑制されて原子レベルで平坦な表面・界面が形成され、L1₀-FeCo の本質的な磁気特性 (面直磁気異方性) が現れたと解釈できる。

[1] T. Kojima *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **26**, 064207 (2014).

[2] K. Kawaguchi *et al.*, Phys. Rev. Mater. **4**, 1054403 (2020)., Jpn. J. Appl. Phys. **61**, SL1001 (2022).

[3] Y. Umeda *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **63**, 04SP80 (2024).

Fe-Co-V-N 薄膜の一軸磁気異方性に対する 正方晶化と N 添加の寄与

村上知優(院生), 長谷川崇
(秋田大理工)

Role of tetragonal distortion and N addition on Fe-Co-V-N films with high uniaxial magnetic anisotropy.

C. Murakami, T. Hasegawa
(Akita Univ.)

はじめに

Fe-Co は、高い飽和磁化を有しており、正方晶 (bct) 化による一軸磁気異方性 (K_u) の向上が報告されている[1]。また Fe-Co に対して V-N を複合添加すると、結晶構造が bct 化して高 K_u 化することが報告されている[2]。さて、ここで V-N 添加で発現した K_u には、bct 化の寄与分と N 添加の寄与分が存在すると考えられる。しかしこの観点からの研究報告はまだない。そこで本研究では、bct 化していて N 未添加の試料 (Rh/Fe-Co-V)、bct 化していない N 添加の試料 (Rh/Fe-Co-N)、bct 化かつ N 添加した試料 (Rh/Fe-Co-V-N) の 3 種を作製し、発現した K_u に対する bct 化と N 添加のそれぞれの寄与分を考察した。

実験方法

成膜には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度 $\sim 10^{-7}$ Pa)を用いた。MgO (100) 基板上に基板加熱温度 300°C で下地層 Rh、次いで基板加熱温度 200°C で磁性層 Fe-Co-V-N、最後に室温で酸化防止層 SiO₂ を成膜した。ここで磁性層の組成は、 $((\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{1-y}\text{V}_y)_{100-x}\text{N}_x$ ($x=0$) (bct 化:○, N 添加:×)、 $((\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{100-x}\text{N}_x)$ (bct 化:×, N 添加:○)、 $((\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{0.8}\text{V}_{0.2})_{100-x}\text{N}_x$ (bct 化:○, N 添加:○) とした。V 添加量 (y) は投入電力で、N 添加量 (x) は、Ar と N₂ の全ガス圧を 0.3 Pa とし、N₂ のガス圧を 0—0.05 Pa と変化させて制御した。組成分析には EPMA および XPS、結晶構造解析には In-plane XRD および Out of plane XRD、磁気特性評価には VSM を用いた。

実験結果

Fig. 1 は、bct 化のみによって発現する K_u を調べた結果である。V 添加量 $y = 0.2$ (かつ N 添加量 $x = 0$) において、軸比 (c/a) は 1.25 であり、bct 化の寄与のみで $K_u = 0.61 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ が発現している。Fig. 2 は、N 添加のみで発現する K_u と、bct 化と N 添加の両方の寄与によって発現する K_u を調べた結果である。 $(x, y) = (5.8, 0)$ の試料では、 $c/a = 1.02$ であり、立方晶であるにもかかわらず、N 添加の寄与のみで $K_u = 0.52 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ が発現している。次に $(x, y) = (5.7, 0.2)$ の試料では、 $c/a = 1.25$ であり、bct 化と N 添加の両方の寄与で $1.29 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ の K_u が発現している。この K_u 値は、先述の bct 化のみの寄与分 ($0.61 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$) と N 添加のみの寄与分 ($0.52 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$) の合算値 ($1.13 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$) とほぼ一致する。以上より、Fe-Co に対する V-N 複合添加で発現する K_u には、bct 化の寄与分と N 添加の寄与分が個々に存在することが分かった。

参考文献 [1] T. Burkert *et al.*, Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 027203.

[2] T. Hasegawa *et al.*, Sci. Rep. 9 (2019) 5248.

この研究は科研費基盤 B (JP20H02832) の支援を受けた。

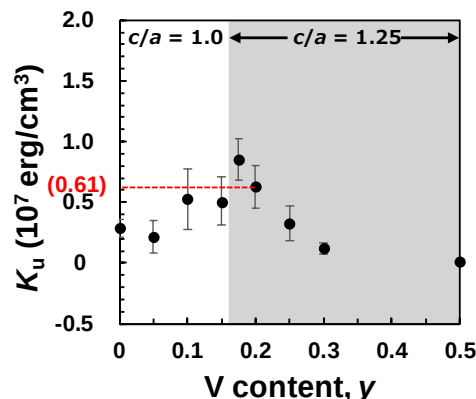


Figure 1. V content (y)-dependence of K_u of the MgO sub./Rh ($t = 20 \text{ nm}$)/ $((\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{1-y}\text{V}_y)_{100-x}\text{N}_x$ ($x = 0$) ($t = 20 \text{ nm}$)/SiO₂ ($t = 5 \text{ nm}$) films.

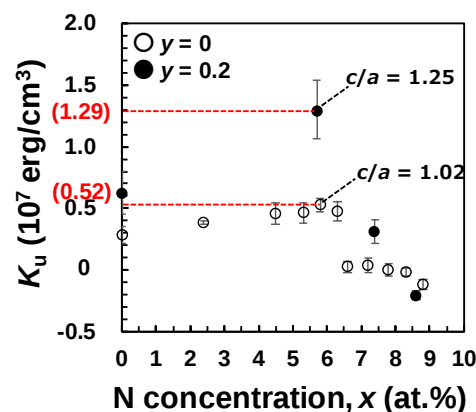


Figure 2. N concentration (x)-dependence of K_u of the MgO sub./Rh ($t = 20 \text{ nm}$)/ $((\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{1-y}\text{V}_y)_{100-x}\text{N}_x$ ($t = 20 \text{ nm}$)/SiO₂ ($t = 5 \text{ nm}$) films.

FeCo 薄膜への置換型元素 X と侵入型元素 N の 複合添加による bct 構造の安定化

佐藤翼 (院生), 長谷川崇
(秋田大理工)

bct structure and uniaxial magnetic anisotropy of Fe-Co-X-N films

T. Sato, T. Hasegawa
(Akita Univ.)

はじめに

一般的に FeCo は、遷移金属合金の中で最も高い飽和磁化 (M_s) をもつが、結晶構造が bcc 構造であるため一軸磁気異方性 (K_u) が極めて小さい。そのような中で先行研究において、FeCo に対して置換型元素 V と侵入型元素 N の複合添加により、bct 構造に変態して高 K_u 化する事が報告されている[1]。そこで本研究では、理論計算を用いて bct 構造を安定化する添加元素 X を探索し、実験結果との比較を行った。

実験方法

成膜には超高真空多元マグネトロンスパッタ装置を用いた。まず MgO(100)基板上に基板加熱温度 300°C で Rh ($t = 20$ nm) を成膜し、次に基板加熱温度 200°C で $(\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_{100-x}\text{N}_x$, $(\text{Fe}_{0.4}\text{Co}_{0.4}\text{V}_{0.2})_{100-x}\text{N}_x$, $(\text{Fe}_{0.35}\text{Co}_{0.35}\text{V}_{0.2}\text{Zr}_{0.1})_{100-x}\text{N}_x$, $(\text{Fe}_{0.35}\text{Co}_{0.35}\text{V}_{0.2}\text{Ta}_{0.1})_{100-x}\text{N}_x$ ($t = 20$ nm) を成膜し、キャップ層として SiO_2 ($t = 5$ nm) を室温で成膜した。ここでは Ar と N_2 の混合ガス圧を 0.3 Pa とし、 N_2 のガス圧を 0 - 0.051 Pa で変化させた。試料の組成分析には EPMA、結晶構造解析には In-plane XRD および Out of plane XRD を用いた。理論計算には Advance 社のバンド計算ソフト PHASE を用いた。

実験結果

Fig.1 は、理論計算の結果である。横軸に添加元素 X の原子番号、縦軸に Fe-Co-X の bcc 構造と fcc 構造の形成エネルギーの差 ($\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$) をプロットしたものである。解釈としては、 $\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$ が小さいほど、bcc と fcc のエネルギーが拮抗する、すなわち軸比 c/a が変化しやすいと推測される。グラフ中で $\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$ が最大なのは FeCo であり、FeCo に対して X ($X = \text{V}$, V-Zr, V-Ta) を複合添加したものは全て $\Delta E_{\text{fcc-bcc}}$ が減少している。

Fig.2 は、N 添加された Fe-Co と Fe-Co-X ($X = \text{V}$, V-Zr, V-Ta) 薄膜の c/a の N_2 添加量依存性である。N 添加された Fe-Co では、 $c/a = 1.0$ (bcc) または 1.4 (fcc) のどちらかが安定に存在し、中間の軸比は存在していない。それに対し、Fe-Co に X ($X = \text{V}$, V-Zr, V-Ta) を添加した試料では、bcc と fcc の中間の軸比 ($1.0 < c/a < 1.4$) を有する bct 構造が形成しており、この傾向は理論計算の結果 ($\Delta E(\text{Fe-Co}) > \Delta E(\text{Fe-Co-X})$) と定性的に一致する。

参考文献

[1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248.

この研究は科研費 (JP20H02832) の支援を受けた。

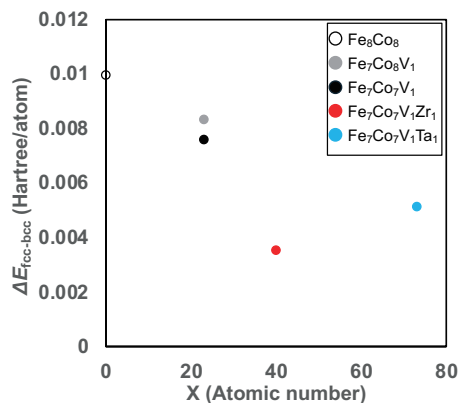


Figure 1. Calculated formation energies of Fe-Co-X. Difference (ΔE) between the bcc and fcc structures were calculated.

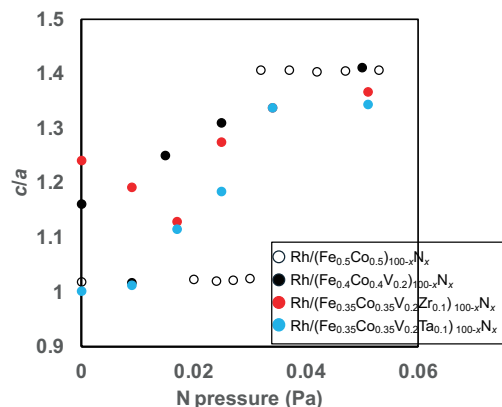


Figure 2. Experimental results. N pressure dependences of c/a .

Fe-Co-V 薄膜への酸素 O 添加による正方晶化と 一軸磁気異方性の発現

竹村拓巳(院生)、長谷川崇
(秋田大理工)

Tetragonal crystal structure and uniaxial magnetic anisotropy on Fe-Co-V-O films

T. Takemura, T. Hasegawa
(Akita Univ.)

はじめに

現在実用化されている高性能磁石のほとんどは希土類元素を含むが、正方晶(bct)の FeCo はそれを含まない。また、FeCo 薄膜に対して置換型元素 V と侵入型元素 N を複合添加すると bct 構造が安定化し、磁気異方性が向上することが分かっている[1]。本研究では、添加元素 V, N を特徴の近い元素と入れ替えることで、さらに優れた特性をもつ組み合わせが得られるのではないかと考え、N を O に変えた際の結晶構造と磁気特性について調べた。

実験方法

成膜には超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置(到達真空度 $\sim 10^{-7}$ Pa)を用いた。まず STO(100)基板上に基板加熱温度 200°C で $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})\text{-O}$ ($0 \leq P_{\text{O}_2} \leq 0.04$ Pa) ($t = 20$ nm) を成膜し、次に室温でキャップ層 SiO_2 ($t = 5$ nm) を成膜した。V 組成は 20 at.% とし、O 添加量を変化させた。ここでは Ar と O_2 の混合ガス圧を 0.3 Pa とし、 O_2 のガス分圧(P_{O_2})を 0–0.04 Pa で変化させた。Fe-Co-V の組成分析には EPMA、磁気特性評価には VSM、結晶構造解析には In-plane XRD および Out-of-plane XRD を用いた。

実験結果

Fig.1 は、FeCo に対して V を 20 at.% 添加した試料を酸素分圧 $0 \leq P_{\text{O}_2} \leq 0.01$ Pa で成膜した STO sub./ $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})\text{-O}$ 薄膜の XRD パターンである。少量の酸素を添加した際に、 a 軸は縮み、 c 軸は伸びて、軸比は $c/a = 1.00$ から 1.04 まで増加している。Fig.2 は、(a) $P_{\text{O}_2} = 0$ Pa、(b) $P_{\text{O}_2} = 0.005$ Pa の試料の M - H 曲線である。磁気異方性 K_u は $P_{\text{O}_2} = 0$ Pa で ~ 0 erg/cm³、 $P_{\text{O}_2} = 0.005$ Pa で 3.4×10^5 erg/cm³ となり、酸素添加により軸比 c/a が増加するとともに K_u も増加している。

以上より、N 以外の侵入型元素の添加でも、V との複合添加によって FeCo を bct 化する効果があることが分かった。

参考文献

[1] T. Hasegawa et al., Sci. Rep. 9 (2019) 5248.

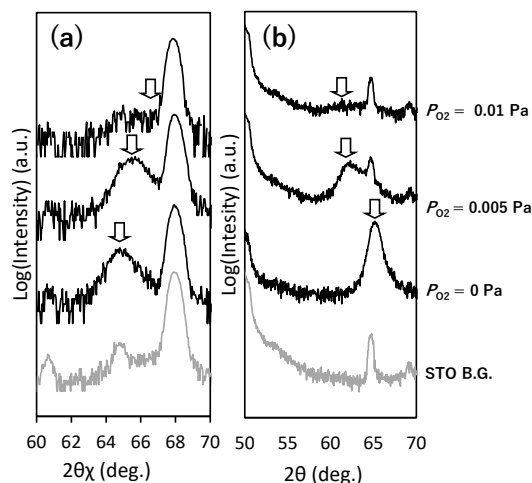


Fig.1 (a) In-plane XRD and (b) out-of-plane XRD patterns for STO sub./ $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})\text{-O}$ (P_{O_2}) ($t = 20$ nm)/ SiO_2 ($t = 5$ nm) continuous films.

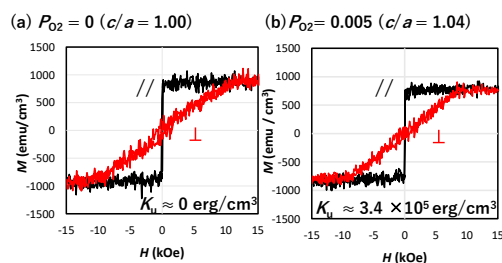


Fig.2 Magnetization curves of STO sub./ $(\text{Fe}_{40}\text{Co}_{40}\text{V}_{20})\text{-O}$ (P_{O_2}) ($t = 20$ nm)/ SiO_2 ($t = 5$ nm) continuous films: (a) $P_{\text{O}_2} = 0$ Pa, (b) $P_{\text{O}_2} = 0.005$ Pa.

基板加熱温度を変えて成膜した正方晶 Fe-Co 薄膜への V-Al-N 添加効果

佐山康輔(院生), 長谷川崇
(秋田大理工)

Effect of V-Al-N addition to bct Fe-Co films deposited at different substrate temperatures

K. Sayama, T. Hasegawa
(Akita Univ.)

はじめに

永久磁石の高性能化のためには、高い飽和磁化 (M_s) と一軸磁気異方性 (K_u) が必要である。一般的な Fe-Co は、bcc 構造をとり、遷移金属合金中で最大の M_s を有するが、 K_u が極めて低い。そのような中で本研究室ではこれまでに、Fe-Co への V, N 複合添加によって、軸比 (c/a) が約 1.2 の bct 構造をとること、それに伴い K_u が上昇すること、加えて Al 添加と熱処理によって Fe-Co の規則化が促進され、それに伴い M_s と K_u が増加することを報告している[1]。そこで本研究では、bct 化と規則化の同時促進を狙い、Fe-Co 薄膜に対する V, Al, N の複合添加を行った。

実験方法

成膜には超高真空多元マグネトロンスパッタリング装置(達真空度 $\sim 10^{-7}$ Pa)を用いた。まず STO 基板を基板加熱温度 (T_{sub}) 400°C で予備加熱し、次に $T_{\text{sub}} = 25 \sim 600^\circ\text{C}$ で変化させて $(\text{Fe}_{0.4}\text{Co}_{0.4}\text{V}_{0.2})_{93.3}\text{N}_{6.7}$ 及び $(\text{Fe}_{0.35}\text{Co}_{0.35}\text{V}_{0.2}\text{Al}_{0.1})_{93.8}\text{N}_{6.2}$ ($t = 20$ nm) を成膜し、最後に室温でキャップ層 SiO_2 ($t = 5$ nm) を成膜した。ここで、V と Al の添加量は先行研究を元に各々 20 at.%, 10 at.% とした。また、N 添加量は成膜時の Ar と N_2 ガスの分圧で制御した。結晶構造解析には XRD、磁気特性評価には VSM を用いた。

実験結果

Fig. 1(a) は、Fe-Co-V-N に Al 添加していない試料と添加した試料の、軸比 c/a の T_{sub} 依存性である。両試料ともに、 T_{sub} の上昇に伴い c/a が 1.4 (fcc) から 1.0 (bcc) に変化している。これは加熱による膜中の N の脱離が原因と考えられる。Fig. 1(b) は、Fe-Co-V-N に Al 添加していない試料と添加した試料の、 M_s の T_{sub} 依存性である。両試料ともに T_{sub} の上昇に伴って M_s が最大で 300 emu/cm^3 程度増加している。これは、 T_{sub} 上昇による規則化の進行に伴う M_s の上昇が要因と考えられる。一般的に Fe-Co は、規則化すると磁気モーメントが 3% 程度増加することが知られる[2]。ここで、非磁性元素の含有量に注目すると、Fe-Co-V-Al-N では非磁性 V-Al-N の合計は 30 at.% であり、これは Al 未添加の Fe-Co-V-N よりも 10 at.% 多い。それにもかかわらず、 M_s を比較すると、両者の値は同等である。これは、Al 添加による規則化と M_s 上昇の効果に起因すると考えられる。Fig. 1(c) は、 K_u の T_{sub} 依存性である。 $T_{\text{sub}} = 200 \sim 400^\circ\text{C}$ のときに、両者ともに $10^7 \text{ erg}/\text{cm}^3$ オーダーの高い K_u が得られている。

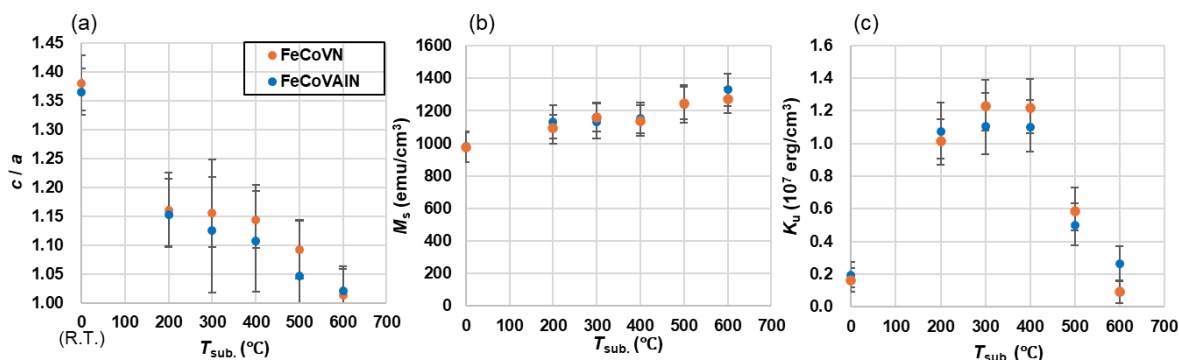


Figure 1. T_{sub} -dependences of (a) c/a , (b) M_s , and (c) K_u of $(\text{Fe}_{0.4}\text{Co}_{0.4}\text{V}_{0.2})_{93.3}\text{N}_{6.7}$ and $(\text{Fe}_{0.35}\text{Co}_{0.35}\text{V}_{0.2}\text{Al}_{0.1})_{93.8}\text{N}_{6.2}$ ($t = 20$ nm).

参考文献 [1] 武政友佑他 日本磁気学会論文特集号 4 (2020) 9-13. [2] 志賀正幸 日本金属学会会報 17 (1978) 582-588.

正方晶 FeCo 薄膜への Al 添加による規則化と ナノスケール微細加工による保磁力変化

小野寺瞭(院生), 長谷川崇
(秋田大理工)

Coercivity of microfabricated bct Fe-Co-Al films with ordered structure

R. Onodera, T. Hasegawa
(Akita Univ.)

はじめに

永久磁石の高性能化には、高い飽和磁化 (M_s)、一軸磁気異方性 (K_u)、保磁力 (H_c) が必要とされる。一般的な Fe-Co は、bcc 構造をとり、全遷移金属合金中で最大の M_s を有するが、 K_u が極めて低いため、 H_c はほぼ 0 となる。そのような中で本研究ではこれまでに、Rh 下地と Fe-Co の格子不整合を利用して軸比 (c/a) を 1.2 付近にすることで、 K_u が向上することを報告している[1]。また、Al を添加し熱処理することで、原子配列の規則化に伴う K_u の向上が期待される[1,2]。ここで、一般的に磁性体の H_c にはサイズ効果がみられ、連続膜状態では H_c が極めて低い、微細加工すると高 H_c 化するケースが多々報告されている[1]。そこで本研究では、FeCo 薄膜に対する Al 添加とナノスケール微細加工が、 H_c に与える影響について調べた。

実験方法

成膜には超高真空多元マグネトロンスパッタリング装置 (到達真空度 $\sim 10^{-7}$ Pa) を用いた。MgO(100)基板上に成膜された Rh 下地上に、Fe₅₀Co₅₀ (1 nm) ($T_{\text{sub.}} = 200^\circ\text{C}$)、Fe₄₅Co₄₅Al₁₀ (1 nm) ($T_{\text{sub.}} = 200^\circ\text{C}$)、Fe₃₅Co₃₅Al₃₀ (1.5 nm) ($T_{\text{sub.}} = 400^\circ\text{C}$) を成膜した。その後、電子ビーム描画装置と Ar イオンミリング装置を用いて、ドット径 (D) = 300, 100, 80, 60, 50, 30 nm に微細加工した。磁気特性評価には極カー効果顕微鏡を用いた。

実験結果

Fig. 1 は、(a) Fe₅₀Co₅₀、(b) Fe₄₅Co₄₅Al₁₀ のドット径 $D = 100$ nm の磁化曲線である。Al 添加無しの試料(a)の H_c は約 1.5 kOe、Al 添加した試料(b)の H_c は約 2.6 kOe であり、Al 添加によって微細加工後の H_c が増加している。Fig. 1(c)は、Al 添加量が 0, 10, 30 at.% の 3 種類の試料の H_c の D 依存性である。全ての試料において、 D の減少に従い H_c が向上している。

Fig. 1(d)は、連続膜で評価した K_u 値と、 $D = 100$ nm の H_c の相関図である。 K_u の増加に伴い H_c は増加している。ここで、Al 添加量が 0 と 10 at.% の試料 (連続膜) の規則度 (S) は、それぞれ 0.17 と 0.21 であった。これらの試料の K_u はほぼ同程度である。 H_c に注目すると、Al 添加量が 0 at.% の試料では 1.5 kOe、10 at.% の試料では 2.6 kOe であり、 K_u 値がほぼ同等であるにもかかわらず、Al 添加によって H_c は約 1.7 倍向上している。このことから、Al 添加の効果は、規則化促進の効果 (すなわち規則化した試料はミリング耐性が高い可能性)、あるいは Al₂O₃ 等の不働態膜形成による酸化防止効果を有する可能性が考えられる。

参考文献 [1] T. Hasegawa *et al.*, Sci. Rep. 7 (2017) 13215. [2] Y. Kota and A. Sakuma, Appl. Phys. Exp. 5 (2012) 113002. この研究は科研費(JP20H02832)の支援を受けた。

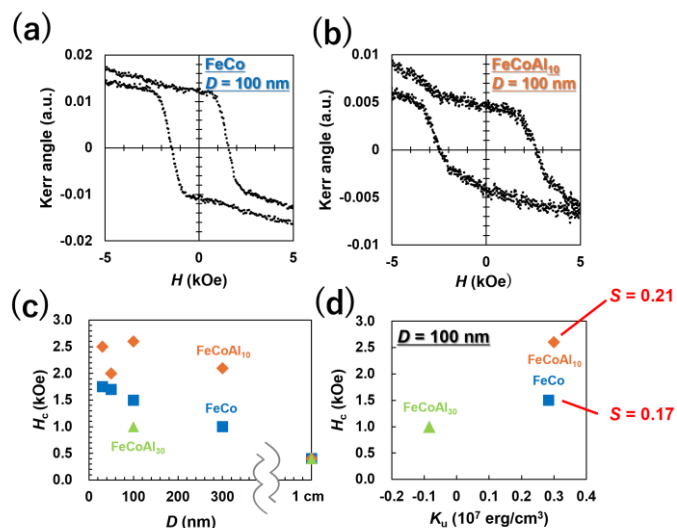


Figure 1. Perpendicular magnetization curves for the nanodots ($D = 100$ nm) of (a) Rh/Fe₅₀Co₅₀ (1 nm) and (b) Rh/Fe₄₅Co₄₅Al₁₀ (1 nm). (c) D dependences of perpendicular H_c . (d) Perpendicular H_c ($D = 100$ nm) as a function of K_u .