

## Magneto-transport and microstructure properties of $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})/\text{Cu}$ lateral spin valves

Ikhtiar<sup>1,2</sup>, S. Kasai<sup>1</sup>, A. Itoh<sup>1,3</sup>, Y.K. Takahashi<sup>1</sup>, T. Ohkubo<sup>1,3</sup>, S. Mitani<sup>1,2</sup>, and K. Hono<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Magnetic Materials Unit, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

<sup>2</sup> Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8577, Japan

<sup>3</sup> Department of Materials Science and Technology, Tokyo University of Science, Tokyo 125-8585, Japan

As the areal density of hard disk drives (HDDs) has been expected to go beyond 2 Tbit/inch<sup>2</sup> for the next 10 years<sup>1)</sup>, very narrow read heads with reliable performance would be strongly desired. With regards to this issue, lateral spin valves (LSVs) have been proposed to be one of candidates for very narrow read head applications. Since the two ferromagnetic layers in LSVs are laterally separated, very narrow shield-to-shield spacing is expected to be realized in this structure. However, as for all-metallic LSVs with ohmic contacts, the output voltage is much smaller than that of vertical magnetoresistive devices such as current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) and magnetic tunnel junctions (MTJ). Based on one dimensional spin diffusion model<sup>2)</sup>, one of the recipes to effectively enhance the output voltage of LSVs is to utilize highly spin polarized ferromagnets. In this meeting we will present our recent effort on the development of all-metallic LSVs utilizing  $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$  (CFGG) Heusler alloy exhibiting high spin polarization.

The starting multilayer stack of MgO (001) sub./Cr (1nm)/Ag (10nm)/CFGG (20nm)/Cu (20nm)/ MgO (2nm) was prepared by ultra-high vacuum magnetron sputtering system. After the deposition of CFGG film, the whole stack was annealed at 500°C to promote the B2 ordered structure of the CFGG film. The multilayer stack was then microfabricated into LSV devices with sub-micron scale dimension of CFGG ferromagnetic wires and Cu metallic channels. The scanning transmission electron microscopy observation on a representative LSV device confirmed the clean interface of CFGG/Cu contacts. At room temperature, a very large non-local spin signal ( $\Delta R_s$ ) of 17.3 mΩ was observed for a LSV device with center-to-center CFGG wires distance of 350 nm (Fig. 1). The fitting based on one dimensional model (Fig. 2) suggests that both high spin polarizations of CFGG film ( $P_F$ ) and CFGG/Cu interfaces ( $P_J$ ) contribute to the large non-local spin signals observed in this system.

### References

- 1) “Status and Outlook”, *ASTC Fall 2013 Meeting*, Biltmore Hotel, Santa Clara, California, September 27, 2013.
- 2) S. Takahashi and S. Maekawa, *Phys. Rev.B*, 67, 052409 (2003).

### Acknowledgements

This work was partly supported by NEDO “Strategic Innovation Program for Energy Conservation Technologies” and Grant-in-Aid for Scientific Research (A) (Grant Nos. 22246091 and 25249087).

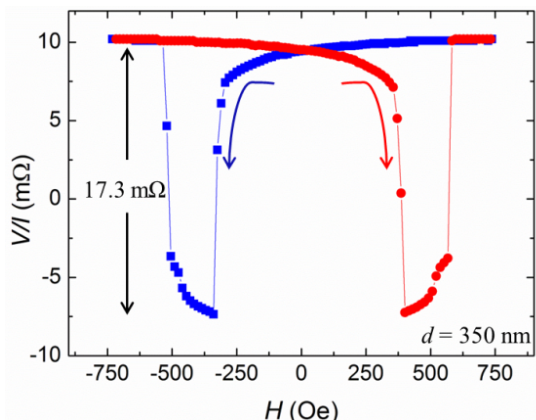


Figure 1. The non-local resistance change ( $V/I$ ) of a LSV device exhibiting spin signal of 17.3 mΩ at room temperature.

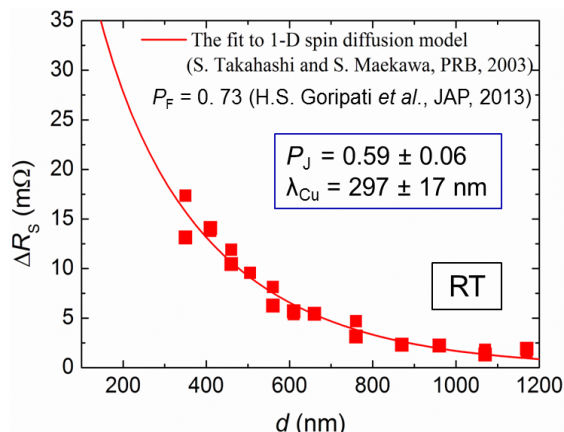


Figure 1. The non-local spin signals ( $\Delta R_s$ ) as a function of CFGG-wires distances measured at room temperature. The red line corresponds to the best fit based on one dimensional spin diffusion model.

# Co<sub>2</sub>(FeMn)Si ホイスラー合金を用いたスピン蓄積 MR センサーの高出力特性

白鳥 聡志、橋本 進、高岸 雅幸、上口 裕三、岩崎 仁志、山田 健一郎  
東芝 研究開発センター

Non-local spin-valves using Co<sub>2</sub>(FeMn)Si Heusler alloy with large output  
S. Shirotori, S. Hashimoto, M. Takagishi, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, and K. Yamada  
Corporate R&D Center, Toshiba Corporation

## 背景

再生ヘッドには TMR 効果を用いたスピバルブ型素子が用いられているが、低抵抗化に加えて、厚い反強磁性層を伴うため 20 nm 以下のシールド間隔(RG)の実現が課題である。一方、スピントロニクス分野ではピン層とフリー層を平面配置してスピン拡散を利用したスピン蓄積型 MR 素子 (non-local-spin-valves, NLSV) が注目を集めており、15 nm 以下の RG が可能である。しかし、メタル系 NLSV に関する既報告の出力は大変小さく (<20  $\mu\text{V}$ )<sup>1)</sup>、再生ヘッドへの適応は困難である。1 次元モデル<sup>2)</sup>によると NLSV の出力は微細化により急上昇する。そこで本研究では、50nm 級に微細化したホイスラー合金 NLSV 素子の出力特性を調べた。

## 実験方法

磁性層に(110)配向の多結晶 Co<sub>2</sub>(Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>)Si (以下、CFMS) を用い、400°C で 1 時間のポストアニールを行った<sup>3)</sup>。その後、ナノインプリント法と Ar イオンミリングを用いて 2 本の磁性細線(CFMS1, CFMS2)を形成し、非磁性層の Cu を成膜し、磁性細線と同様の方法で非磁性細線を形成した。2 本の磁性細線幅、磁性細線間幅、非磁性細線幅はいずれも同じ幅 (W) で、50 nm から 150 nm とした。ここで、CFMS1 細線から Cu 細線にスピン偏極電流を注入し、純スピン流が Cu 細線で拡散伝搬されることによって、CFMS2 細線との間でスピン信号が得られる。磁性細線方向に磁場を印加して、室温での非局所 MR 測定を行った (図 1)。

## 実験結果

図 2 に W と 1mA 当たりの出力  $\Delta V$  の関係を示す。W=150nm では、 $\Delta V = 15 \sim 20 \mu\text{V}$  であり、単結晶ホイスラー合金 NLSV の出力と概ね一致する<sup>1), 4)</sup>。W を 50 nm に狭めると、約 40 倍の 0.7 mV の出力が得られた。2 mA まで電流を印加することで最大 1.2 mV の出力が得られた。この実験結果は Cu のスピン拡散長( $\lambda_N$ )を 200nm とした際の一次元モデル<sup>2)</sup>と良い一致を示した。1 次元モデルから、W = 10 nm では 10 mV 級の出力が予想され、NLSV は狭 RG および狭トラック幅再生に適する。

本研究の一部は、戦略的省エネルギー技術革新プログラム (NEDO) の援助により実施した。

## 参考文献

- 1) Y. K. Takahashi, et al., Appl. Phys. Lett. **100**, 052405 (2012)
- 2) S. Takahashi et al., Phys. Rev. B **67**, 052409 (2003).
- 3) 長谷他、日本磁気学会学術講演会予稿集 3pC-1 (2013)
- 4) S. Sakuraba et al., Digests of 58th MMM, BP-13 (2013)

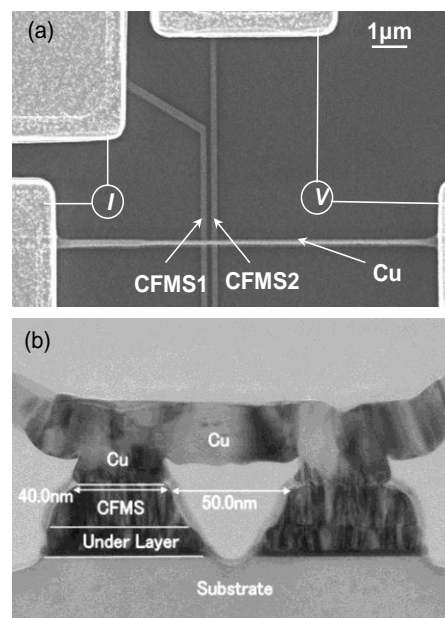


図 1 (a)NLSVs の平面像 (W = 150 nm)  
(b)NLSVs の断面 TEM 像 (W = 50 nm)

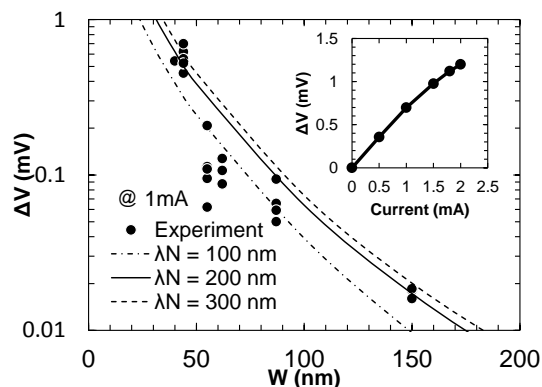


図 2 出力のデバイスサイズ W 依存性と注入電流依存性(挿入図)

# SMR-MAMR 用ヘッドの高周波記録電流への応答解析

片山拓人、金井靖、吉田和悦<sup>1</sup>、Simon J. Greaves<sup>2</sup>、村岡裕明<sup>2</sup>  
(新潟工科大、<sup>1</sup>工学院大、<sup>2</sup>東北大)

High-frequency response analysis of SMR-MAMR head  
T. Katayama, Y. Kanai, K. Yoshida<sup>1</sup>, S. J. Greaves<sup>2</sup>, H. Muraoka<sup>2</sup>  
(Niigata Inst. of Tech.,<sup>1</sup>Kogakuin Univ.,<sup>2</sup>Tohoku Univ.)

## はじめに

高周波アシスト磁気記録(MAMR)方式は、高周波発振素子(STO)から発生する高周波磁界を主磁極からの記録磁界に重畳し、高異方性媒体への記録を容易にする<sup>1)</sup>。STOには磁界強度とともに、記録ヘッドのコイル電流が反転しても安定した発振が求められる。我々は安定したSTOの発振磁界を得るために、STOを挿入する主磁極-トレーリングシールドギャップ(MP-TS gap)を垂直記録媒体に対して傾ける構造(Tilted-STO)により、STOに加わる面内磁界を小さくし、安定した発振を得ることを示した<sup>2)</sup>。本報告では、Tilted-STOで記録ヘッドのコイル電流を1-2 GHzとしてマイクロマグネティック解析を行った。その結果、記録ヘッドの寸法を小さくすることでMP-TS gap磁界のコイル電流への追従性が良くなり、2 GHzの記録電流に対しても安定したSTOの発振が得られたので報告する。

## 計算モデルと計算条件

Fig.1に示すようにSTOは、高周波発振層(FGL)とスピン注入層(RL)の二層構造からなり、垂直磁気記録媒体に対して30度傾けた。注入電流密度は、 $3.0 \times 10^8$  A/cm<sup>2</sup>としRLからFGLへ流れることを想定した。記録ヘッドコイルの起磁力を0.4 AT<sub>0p</sub>とし、ヘッドABSから11 nmの位置で磁界を観測した。また、Table1に記録ヘッドおよびSTOの諸元を示す。

## 計算結果

Fig.2にコイル電流を1GHzおよび2 GHzとしたときの記録磁界、MP-TS gap磁界およびSTOによる発振磁界の応答を示す。1 GHzではFull model、Half modelとも安定した発振が得られたが、2 GHzではFull modelはMP-TS gap磁界のコイル電流への追従性が悪く、STOの発振は不安定である。一方、Half modelはMP-TS gap磁界のコイル電流への追従性が良好であり、安定したSTOの発振を得た。さらに、Half modelでは、コイル記録電流の反転時に、STOの発振磁界が安定するまでの時間が短く、高い周波数での記録が可能と思われる。

## 参考文献

- 1) J.-G. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang: *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, no. 1, pp.125- 131 (2008).
- 2) T. Katayama, Y. Kanai, K. Yoshida, S. J. Greaves, and H. Muraoka: *INTERMAG EUROPE*, CR-19 (2014).

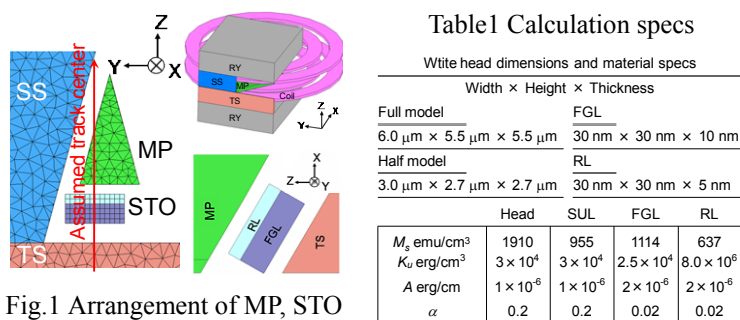


Fig.1 Arrangement of MP, STO and TS.

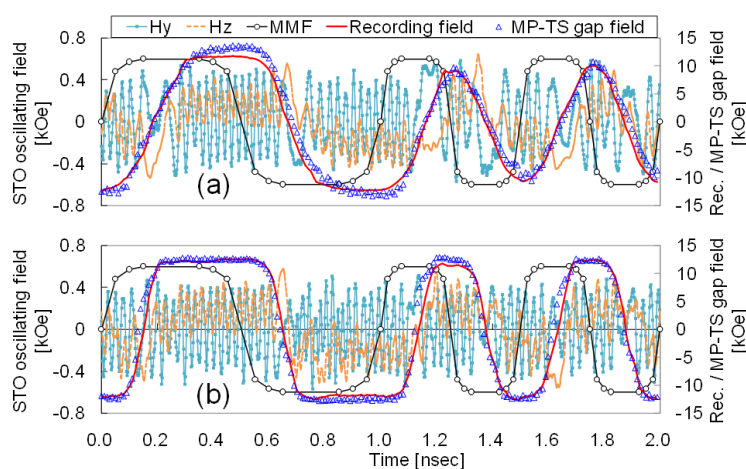


Fig.2 Head field and STO oscillation responses to switching of coil current. (a) Full model. (b) Half model. Note: Responses between -8 nsec to 0 nsec are not shown.

# TMR ヘッドから発生する磁化揺らぎノイズに関する研究

遠藤 恭, 樊 鵬, 山口正洋 (東北大工)

Study on the magnetization fluctuation noise in TMR read heads with various stripe heights

Yasushi Endo, Peng Fan, Masahiro Yamaguchi (Tohoku Univ.)

**はじめに** HDDの大容量化にともない、磁気記録媒体における記録ビットサイズの低減と、再生用磁気ヘッドの微細化が要求されている。なかでも、ヘッドの微細化を進めるうえで面積抵抗 (Resistance area product : RA) の低減が課題であり、RAの低いヘッドでは高い出力を得るために電流密度が増加する可能性がある。しかしながら、高電流密度下では、熱による磁化揺らぎノイズ (マグノイズ) に加えて、スピントルクによる不安定な磁化揺らぎが発生し、ノイズが著しく増大する恐れがある<sup>1)</sup>。

これまでに、我々は素子サイズおよびRAおよびの減少にともないマグノイズに対するスピントルクの影響が深刻な問題となりうることを報告した<sup>2)</sup>。本研究では、より小さな素子サイズかつ低RAのTMRヘッドから発生するマグノイズの電流密度依存性を詳細に検討し、ノイズがヘッドのS/N比を劣化させる臨界電流密度について検討した。

**実験方法** 試料はMgO絶縁層をもつTMRヘッドである。素子サイズに関しては、トラック幅36 nmと固定し、ストライプ高さを15~45 nmと可変させた。また、RAは $0.9 \Omega \cdot \mu\text{m}^2$ である。このヘッドには永久磁石が具備されており、そのバイアス磁界の方向は参照層の磁化方向と直交している。外部磁界はヘッドの面内ストライプ高さ方向に印加し、その強度を0~1800 Oeの範囲で変化させた。バイアス電流はヘッドの膜面直に流し、電流密度を $0 - 6.8 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ の範囲で変化させた。外部磁界を参照層の磁化方向と反平行に印加した場合を正と定義する。また、電流密度に関してはバイアス電流を自由層から参照層に流した場合を正と定義する。外部磁界の強度と極性、また電流密度の大きさと向きを変化させてヘッドから生じるノイズのスペクトルを0.1~20 GHzの周波数範囲で計測した<sup>2)</sup>。

**実験結果** 素子サイズ $36 \times 15 \text{ nm}^2$ のTMRヘッドにおいて、電流密度を $+1.3 \times 10^{11}$ および $+6.8 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ に固定し、外部磁界を変化させたときのノイズスペクトルの一例をFig. 1に示す。電流密度が $+1.3 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ の場合、外部磁界0 Oeのとき、8.2 GHz付近にピークが観測された。外部磁界を $+1800 \text{ Oe}$ まで増加させると、ピークの位置は低周波側へ移動するものの、その強度は減少した。このピークは主に自由層から発生するマグノイズによると考えられる。一方、電流密度が $+6.8 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ の場合、8.2 GHz付近で観測されたピークは外部磁界 $+800 \text{ Oe}$ 付近で急峻となり、さらに外部磁界を増加させるとその強度は減衰した。この結果は、マグノイズがスピントルクの影響により増大したものと推察される。

マグノイズのスピントルクによる影響を明確にするために、外部磁界 $+800 \text{ Oe}$ 印加したときに観測された7.2 GHz付近のピークに着目して、そのピーク強度と半値幅を電流密度の大きさと向きに対してまとめた。Fig. 2に示すように、電流密度の方向を負から正へ反転させてその大きさを増加させていくと、ピーク強度は著しく増大し、その半値幅は線形的に減少した。これらの挙動からもマグノイズがスピントルクの影響により増大したことを理解できる。また、ヘッドに流す電流密度をさらに増加させるとピークの半値幅がゼロとなり、その閾値 (臨界電流密度) を超えると自由層の磁化の定常的な歳差運動が起こり、ノイズが著しく増大することが予測できる<sup>1)</sup>。したがって、ピークの半値幅の電流密度に対する変化を利用して半値幅がゼロとなる臨界電流密度を求めたところ、約 $+1.5 \times 10^{12} \text{ A/m}^2$ であった。この値は、これまでの報告に比べて一桁高く、素子サイズの低下により形状異方性が強くなっていることによると考えられる。

以上の結果から、この臨界電流密度近傍から、マグノイズの増大がトルクの影響を受けて顕著となり、ヘッドのS/N比をより劣化させる可能性がある。

**謝辞** 本研究は情報ストレージ研究推進機構(SRC)の協力のもとで行われた。

**参考文献** 1) S. Petit *et al.*, Phys. Rev. B, **78**, 184420 (2008)., 2) Y. Endo *et al.*, IEEE Trans. Magn., **49**, 3745 (2013)他。

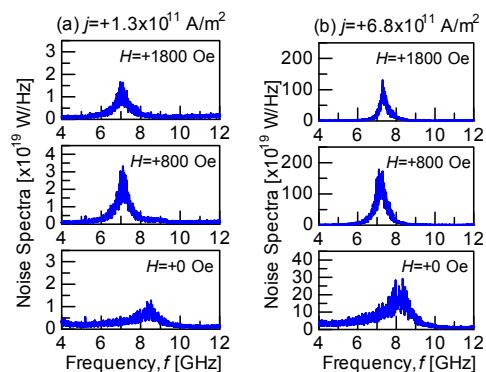


Fig. 1. Noise spectrum in the TMR head with a size of  $36 \times 15 \text{ nm}^2$  as a function of positive magnetic field with  $j = +1.32 \times 10^{11}$  [(a)] and  $+6.76 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$  [(b)].

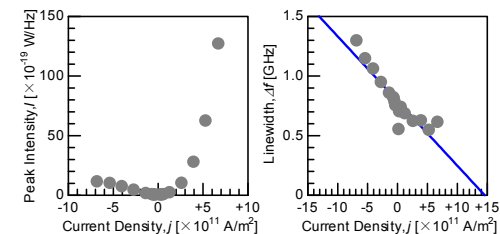


Fig. 2. Peak intensity  $I$  and line-width  $\Delta f$  of the strong noise spectral peak in the TMR head as a function of  $j$  with  $H = +800 \text{ Oe}$ . Solid line represents the linear function obtained from the least square fitting to the data of the line-width.

# 記録層磁性粒子の位置分散制御によるジッタノイズの抑圧

原彬大、村岡裕明

(東北大学電気通信研究所)

Suppression of jitter noise by controlling position distribution of magnetic grains

A. Hara, H. Muraoka

(RIEC, Tohoku Univ.)

## 1. まえがき

現在広く使われているグラニューラ媒体を用いた高密度記録の実現ができれば大きな意味を持つ。そこで、通常位置に規則性のないグラニューラ媒体に位置に規則性を持たせた場合のジッタノイズの挙動を以前の研究で検討した[1]。本検討では、粒子位置に規則性のないグラニューラ媒体を比較対象とした場合の結果について報告する。

## 2. 計算方法とシミュレーション結果

数値計算の方法として磁性粒子のモデリングにポロノイセルを用いる。粒子の直径、粒径分散、位置分散等は母点位置によって決定される。粒子位置規則性を失わせた通常のグラニューラ媒体のモデリングには Lloyd's algorithm[2]を用いて、位置に規則性があるものはグレインピッチ(8.86 nm)となる間隔で母点を格子状に置き、そこに正規分布に従った揺らぎを母点位置に与えた。この時の揺らぎの標準偏差を位置分散(nm)とし、粒径はセルと同面積の円の直径として計算し、粒径分散は平均粒径に対する標準偏差(%)で表す。セルの作成、磁化反転方向の計算、得られる磁化の計算、再生波形の計算を、繰り返し行う事により転移ジッタを計算した。Fig.1 に作成したポロノイセル(左図)の例と、その重心位置の分布図(右図)を示す。重心位置の分布図から(a)には強い位置の規則性が、(b)には弱い位置の規則性が、(c)には位置の規則性がないことが確認された。

Fig.2 に書き込み時の電流反転位置を変化させた場合のジッタノイズを示す。粒子位置に規則性がない場合書き込み位置によりジッタノイズは変化しないが、位置に規則性がある場合、グレインピッチの中間地点でヘッドが書き込みを行った場合大きくジッタノイズを低減できる。

## 3. まとめ

磁性粒子位置の規則性を導入し、書き込み位置を同期することにより、通常のグラニューラ媒体では達成できない値までジッタノイズを低減できることを示した。

## 参考文献

- 1) A. Hara, H. Muraoka, J. Appl. Phys.115, 17, B730, 2014.
- 2) M.Yamashita. et al, IEEE Trans. Magn, 47,10 , 3558-3561, 2011.

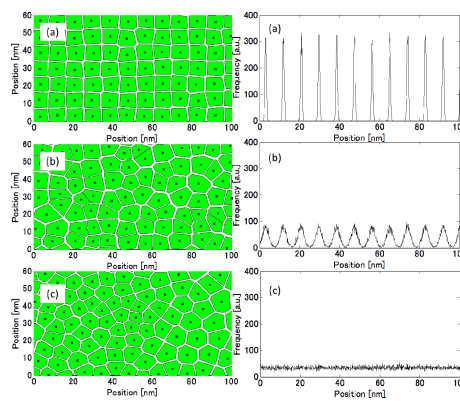


Fig.1 Modeled Voronoi cells(left) and Corresponding histogram of grain positions(right). (a) position distribution= 0.4 nm, diameter distribution 2 % (b) position distribution= 1.5 nm diameter distribution 10 % (c) diameter distribution 10 % [Lloyd's]

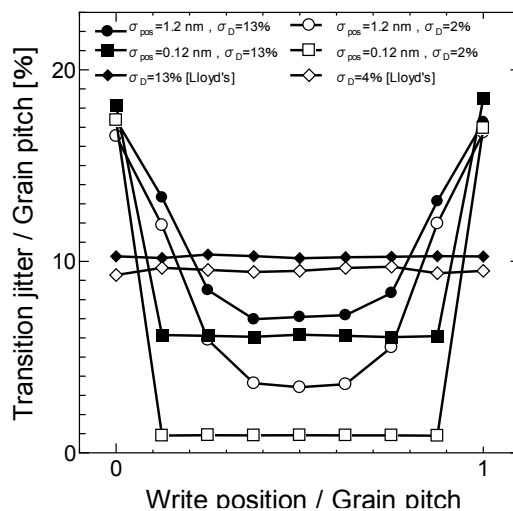


Fig.2 Transition jitter dependence on writing position

## 面内記録磁場が層厚比の異なる ハードディスクのトランジションノイズに及ぼす影響

小室彰也, 富山直樹, 江畑一輝, 杉田龍二  
(茨城大)

Influence of in-plane recording field on transition noise of hard disks with various layer thickness ratio

A. Komuro, N. Tomiyama, K. Ebata and R. Sugita  
(Ibaraki Univ.)

**はじめに** ハードディスク(HD)の高記録密度化, 大容量化のためには, トランジションノイズの低減が必要不可欠である. 記録層が Granular 層と Cap 層から成る積層媒体の消磁磁区構造は磁場印加方向に依存し, 面内磁場印加によって消磁すると, 消磁ノイズが低下する<sup>1),2)</sup>. 本研究では, Granular 層と Cap 層の層厚比が異なる積層媒体に信号を記録した場合に, 記録磁場の方向がトランジション部における漏れ磁場分布に及ぼす影響を検討した.

**実験方法** Granular 層厚 8 nm, Cap 層厚 8 nm である記録密度 120 Gb/in<sup>2</sup> の市販 HD(以後媒体 A と称する), Granular 層厚 12 nm, Cap 層厚 2 nm である記録密度 700 Gb/in<sup>2</sup> の市販 HD(媒体 B), 及び媒体 B において Cap 層を除去した Granular 層のみの媒体(媒体 C)に, 磁気転写法を用いてビット長 100 nm のライン&スペースパターンを記録した. 記録する際には上記媒体とマスター媒体を接触させ, 法線からの角度  $\theta$  が 30° 及び 90° の方向に外部磁場を印加した. 漏れ磁場分布は磁気力顕微鏡(MFM)によって観察した.

**実験結果** Fig. 1 に, 媒体 A, B 及び C に対し,  $\theta = 30^\circ$  及び  $90^\circ$  の印加磁場によって記録した場合の MFM 像を示す. MFM 像において, 暗部が初期磁化部, 明部が記録によって磁化が反転した部分である. Fig. 1 より, 層厚比の異なる媒体 A, B, C いずれにおいても,  $\theta = 30^\circ$  で記録した MFM 像に比べて  $90^\circ$  はトランジション部の漏れ磁場変動が少なくなっており, トランジションの直線性が増していることが分かる. MFM 像をクロストラック方向に 5 nm 間隔でストライプ状に分割し, それぞれのストライプにおけるトランジション位置を測定して, その位置と頻度の関係から求めたトランジション位置分散の標準偏差  $\sigma$  を Fig. 1 中の各 MFM 像の下に示してある.  $\sigma$  は媒体 A, B 及び C のいずれにおいても,  $\theta = 30^\circ$  に比べて  $90^\circ$  の方が小さくなっている. 以上より, Granular 層と Cap 層との層厚比の相違がトランジションノイズに及ぼす影響は殆ど見られず, 面内成分の多い記録磁場の方が幅の狭いトランジションを形成できると言える. Fig.1 の結果は, 記録磁場の面内成分が増えると磁区サイズが小さくなることによってトランジションノイズが低減されると解釈でき, 消磁磁場方向と消磁磁区構造との関係を反映している<sup>1)-3)</sup>.

**謝辞** 本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 C(24560394)により行われました. ここに深謝致します.

### 参考文献

- 1) S. Sato, Y. Yamaguchi, T. Komine, and R. Sugita: *IEEE Trans. Magn.*, vol. 48, p. 3181 (2012).
- 2) Y. Yamaguchi, S. Sato, T. Komine, and R. Sugita: *IEEE Trans. Magn.*, vol. 49, p. 3584 (2013).
- 3) E. Noel Abarra, Paramjit Gill, B. Ramamurthy Acharya, Jianing Zhou, Min Zheng, Gunn Choe, and Brian Demczyk: *IEEE Trans. Magn.*, vol. 41, p.3127 (2005).

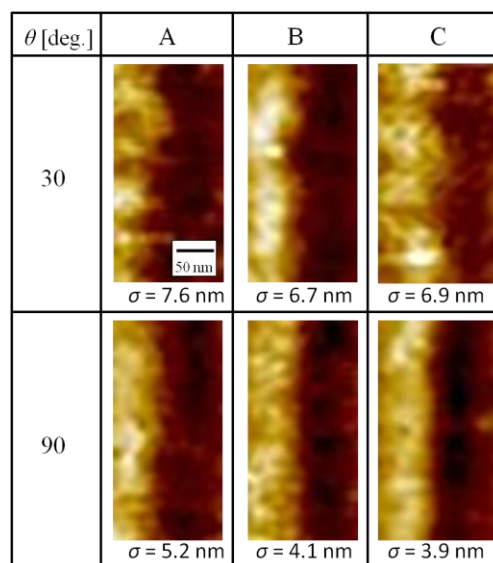


Fig.1 MFM images near transition area.

# SMR におけるヘッドスキュー角に対するビット誤り率特性

仲村 泰明, 大沢 寿, 岡本 好弘, 金井 靖\*, 村岡 裕明\*\*  
(愛媛大学, \*新潟工科大学, \*\*東北大学)

Bit Error Rate Performance for Head Skew Angle in Shingled Magnetic Recording

Y. Nakamura, H. Osawa, Y. Okamoto, Y. Kanai\*, H. Muraoka\*\*

(Ehime University, \*Niigata Institute of Technology, \*\*Tohoku University)

## はじめに

ハードディスク装置の高密度化を実現する次世代の記録方式としてシングル磁気記録(SMR : shingled magnetic recording)<sup>1)</sup>の導入が期待されている。SMR はトラック間にガードバンドが無いため、隣接トラックに与える記録滲みの影響がヘッドスキュー角に依存する可能性がある。本検討では、トラックピッチを一定とした SMR 記録・再生系モデルを用いて再生波形を取得し、ビット誤り率(BER : bit error rate)特性を求めてヘッドスキュー角依存性について評価する。

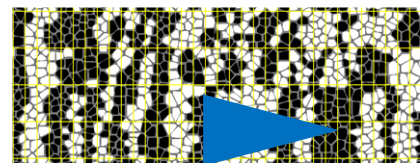
## 記録再生シミュレーション

本記録再生シミュレーションモデルでは、離散グラニューラ媒体モデル<sup>2)</sup>に、トレーリングシールドと主磁極の片側(図の上側)にサイドシールドを有する物理的な記録トラック幅が 50 nm, 主磁極の偏角が 75° の二等辺三角形の記録ヘッド<sup>3)</sup>を用いて記録し、MR 素子の周りをシールドした再生ヘッド<sup>2)</sup>で再生する。Fig. 1 に、PRBS (pseudo random binary sequence) を記録した磁化パターンを示す。但し、(a)~(c)はスキュー角がそれぞれ 0, -15, +15 deg の場合を示し、ビット長を 7.3 nm, トラックピッチを 22.1 nm としている。図中の格子状の実線はビット境界、三角は記録ヘッドの主磁極を示している。図より、(a)に対して (b), (c)の場合には記録磁化パターンがスキュー角に応じて傾斜し、(c)の+15 deg の場合にはトラックの境界が滲み、イレーズバンドが延びているのがわかる。Fig. 2 に、スキュー角に対する BER 特性を示す。但し、再生ヘッドはトラックの中央を走査し、システム雑音を加えていない。また、PR1ML 方式を適用している。図より、負の向きのスキュー角に対して BER の劣化は小であるが、正の方向に対してはイレーズバンドにより大幅に BER が劣化することがわかる。

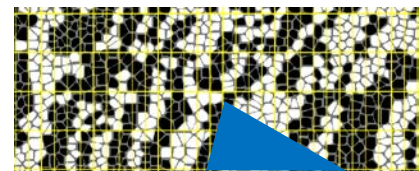
**謝辞** 本研究の一部は、情報ストレージ研究推進機構(SRC)と科学研究費補助金(若手研究(B):25820161, 基盤研究(C):26420358)の助成のもとに行われたものであることを付記し謝意を示す。

## 参考文献

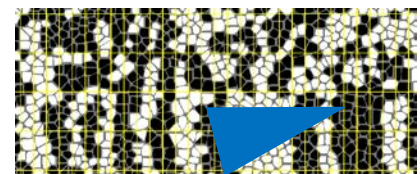
- 1) R. Wood et al., IEEE Trans. Magn., **45**, 917 (2009).
- 2) M. Yamashita et al., IEICE Trans. Electron., **E96-C**, 1504 (2013).
- 3) Y. Kanai et al., IEEE Trans. Magn., **47**, 715 (2010).



(a) Skew angle : 0 deg



(b) Skew angle : -15 deg



(c) Skew angle : +15 deg

Fig. 1 Magnetization patterns for head skew angle

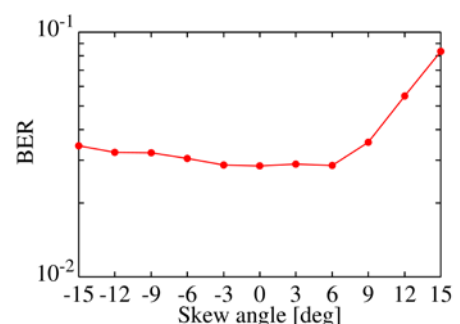


Fig. 2 BER performance for head skew angle (PR1ML system, w/o system noise)

4Tbits/inch<sup>2</sup>級のマイクロ波アシスト磁気記録シミュレーション

柏木翔太, 田中輝光, 金井靖\*, 松山公秀  
(九州大学, \*新潟工科大学)

Microwave-assisted magnetic recording simulation aiming 4 Tbits/inch<sup>2</sup>

S. Kashiwagi, T. Tanaka, Y. Kanai\* and K. Matsuyama  
(Kyushu University, \*Niigata Institute of Technology)

## はじめに

次世代 HDD 実現のための新技術としてマイクロ波アシスト磁気記録(MAMR)<sup>1)</sup>が期待されている。高 Ku 材料を用いた信号記録には MAMR と併せて交換結合複合(ECC)媒体<sup>2)</sup>の適用が効果的であることがわかっている。本研究では計算機解析により 3 層の磁性体からなる ECC 媒体を想定し、4 Tbits/inch<sup>2</sup>級の将来の超高密度記録の実現に向けて MAMR と互記録<sup>3)</sup>を併用した信号記録・再生特性について検討した。

## 計算方法

記録媒体モデルとして、Fig. 1 に示すような 3 層の磁性層を有する平均粒径 4.6 nm のボロノイ形状の磁性粒が 2 次的に配置されているものを想定した。総膜厚は 12 nm である。磁化挙動計算は LLG 方程式を用いて行った。記録ヘッドには Fig. 1 に示すトレーリングシールドを有する互記録用単磁極ヘッドと軟磁性裏打ち層の組み合わせを想定し、有限要素法計算により磁界分布を求めた。マイクロ波磁界発生源としてスピントルクオシレータ<sup>4)</sup>を想定し、10×20×20 nm<sup>3</sup>サイズの磁界発生源層(FGL)が主磁極・トレーリングシールド間に配置されているものとした。記録媒体の磁気特性は熱安定性指標を 60 (@ 350 K)保持できる程度とした。

## 計算結果

本モデルにおいては 15~25 GHz でマイクロ波アシストの効果が発現しており、単トラック記録における再生信号の SNR は 20 dB 程度である。Fig. 2 にトラックピッチ(TP) 20 nm の場合の記録ビットパターンを示す。同図から明瞭なビットパターンが記録されていることがわかる。Fig. 3 に SNR のトラックピッチ依存性を示す。なお、本データは Fig. 2 に示す 200 kbps の信号の SNR である。TP が減少するに従って残留トラックが狭小化するため SNR が低下することがわかる。しかしながら本モデルにおいては、TP=20 nm において、19 dB の SNR を保持しており、最大トラック密度 1.27 Mtpi が実現可能であると推測される。また、1600 kbps の記録信号出力は 200 kbps の信号出力の 35%程度得られており、本モデルにおいては 4 Tbits/inch<sup>2</sup>相当の記録性能が期待できる。

## 参考文献

- 1) J. G. Zhu et al., *IEEE Trans. Magn.*, **44**, pp. 125-131 (2008).
- 2) R. H. Victora, *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 537(2005).
- 3) S. Greaves et al., *IEEE Trans. Magn.*, **45**, 3823-3829 (2009)
- 4) X. Zhu et al., *IEEE Trans. Magn.*, **42**, pp. 2670-2672 (2006).

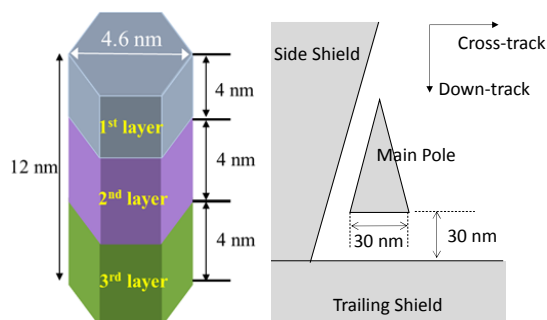


Fig. 1 Simulation models.

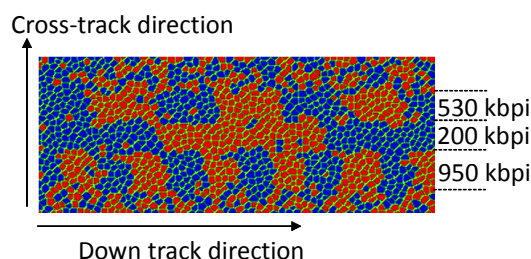


Fig. 2 Recorded bit patterns.

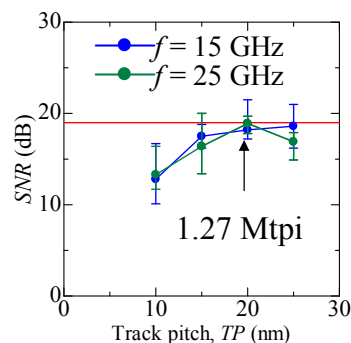


Fig. 3 SNR as a function of track pitch.



# Fe と CoPt 合金の磁性二層膜を被覆した磁気力顕微鏡探針の空間分解能と反転磁界

永津良・大竹充・二本正昭・桐野文良\*・稲葉信幸\*\*  
(中央大, \*東京藝大, \*\*山形大)

Spatial Resolution and Switching Field of Magnetic Force Microscope Tip  
Coated with Magnetic Bi-Layer Film Consisting of Fe and CoPt-Alloy

Ryo Nagatsu, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino\*, and Nobuyuki Inaba\*\*  
(Chuo Univ., \*Tokyo Univ. Arts, \*\*Yamagata Univ.)

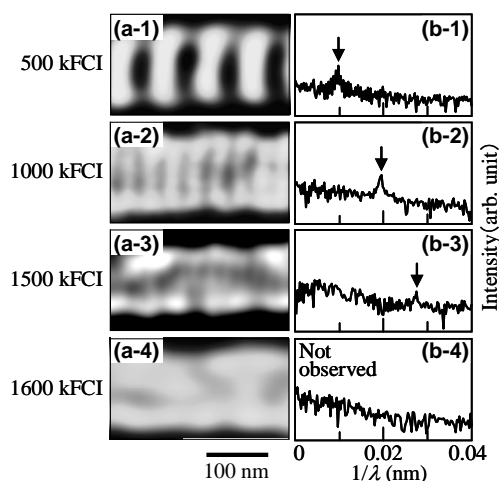
はじめに 磁気力顕微鏡 (MFM) は観察試料から漏洩する磁場勾配を検出し、磁化状態を観察する顕微鏡である。次世代高  $K_1$  磁気記録媒体や永久磁石材料の観察には、漏洩磁場による探針磁化反転を防ぐために、高分解能に加え、高い反転磁界 ( $H_{sw}$ ) を持つ探針が必要になる。これまで、 $L1_0$  型構造を持つ FePt や CoPt, FePd 膜を被覆した高  $H_{sw}$  探針の作製が試みられている<sup>1-3)</sup>。我々は、比較的低い熱処理温度で高い  $K_u$  を持つ準安定  $L1_1$  構造が実現できる CoPt 合金膜に着目し、この磁性材料を被覆して作製した高  $H_{sw}$  探針を検討している<sup>4)</sup>。本研究では、MFM 信号の高感度検出が可能な高  $M_s$ -Fe と高  $H_{sw}$  が期待される  $L1_1$ -CoPt 合金を組み合わせた磁性二層膜被覆 MFM 探針を作製し、高分解能で高  $H_{sw}$  の実現可能性を検討した。

**実験方法** 膜被覆には、超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いた。ベース探針として、市販の先端半径 4 nm の Si 探針を使用した。300 °C で加熱したベース探針上に、Fe( $x$  nm)/CoPt(20- $x$  nm)/Ru(5 nm)、もしくは、CoPt(20- $x$  nm)/Fe( $x$  nm)/Ru(5 nm)膜を形成した。Ru 層は磁性二層膜の配向制御層として導入した。 $x$  を 0 から 20 とし、各磁性層厚比を変化させた。

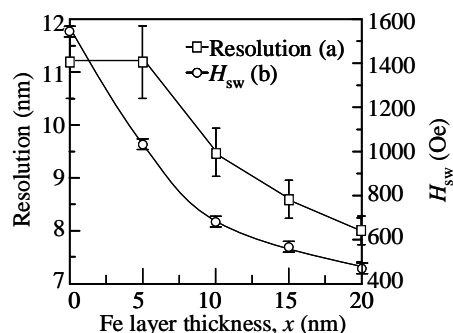
**実験結果** Fig. 1 に Fe(20 nm)/Ru 膜被覆探針を用いて観察を行った垂直磁気記録媒体の MFM 像とその像から得られたパワースペクトルを示す。1500 kFCI (ビット長: 17.1 nm) までは、パワースペクトルにおいてピークが認められる。一方、1600 kFCI (ビット長: 15.9 nm) では記録周期に対応するピークが現れていない。したがって、分解能は  $17.1/2 = 8.5$  nm と  $15.9/2 = 7.9$  nm との間の  $8.2 \pm 0.3$  nm であると判断できる。同様な評価を Fe( $x$  nm)/CoPt(20- $x$  nm)/Ru 膜被覆探針に対して行った結果を Fig. 2(a) にまとめる。Fe 層の増加に伴い、MFM 信号検出感度が高くなり、分解能が向上していることが分かる。次に、 $H_{sw}$  評価のために、MFM 探針着磁方向と逆方向に外部磁界を印加し、HDD 媒体 (163 Gb/in<sup>2</sup>) の MFM 観察を行った。磁界強度を 50 Oe 間隔で上昇させ、印加毎に媒体の同一箇所観察を行い、コントラストが反転した際の磁界を  $H_{sw}$  とした。Fig. 3 に Fe(20 nm)/Ru 膜被覆探針の測定結果を示す。印加磁界が 450 Oe までは初期状態と同じコントラストで観察されている (Fig. 3(a), (b))。500 Oe まで上昇させると、コントラスト反転が認められる (Fig. 3(c))。したがって、 $H_{sw}$  は  $475 \pm 25$  Oe となる。同様な  $H_{sw}$  評価を Fe( $x$  nm)/CoPt(20- $x$  nm)/Ru 膜被覆探針に対して行った結果を Fig. 2(b) に示す。Fe 層の増加に伴い、分解能は向上するが、CoPt 層の減少により、 $H_{sw}$  は低い値となることが分かる。当日は、CoPt(20- $x$  nm)/Fe( $x$  nm)/Ru 膜被覆探針についても報告する。

## 参考文献

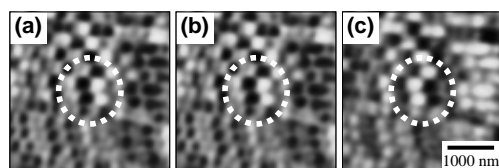
- 1) Y. Rheem *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **41**, 3793 (2005).
- 2) L. Gao *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **40**, 2194 (2004).
- 3) S. Ishihara *et al.*: *J. Mang. Soc. Jpn.*, **37**, 55 (2013).
- 4) S. Ishihara *et al.*: *J. Mang. Soc. Jpn.*, **37**, 255 (2013).



**Fig. 1** (a) MFM images of a perpendicular medium recorded at (a-1) 500, (a-2) 1000, (a-3) 1500, and (a-4) 1600 kFCI observed by using an MFM tip coated with Fe(20 nm)/Ru(5 nm) film. (b-1)–(b-4) Power spectra analyzed for the magnetic bit images of (a-1)–(a-4), respectively.



**Fig. 2** (a) Resolutions and (b)  $H_{sw}$  values of MFM tips coated with Fe( $x$  nm)/CoPt(20- $x$  nm)/Ru(5 nm) films.



**Fig. 3** MFM images of a same area of HDD perpendicular medium observed by using an MFM tip coated with Fe(20 nm)/Ru(5 nm) film (a) before and [(b), (c)] after applying magnetic fields of (b) 450 and (c) 500 Oe.

## Co/Pt 多層膜を被覆した磁気力顕微鏡探針の反転磁界

鈴木遼・大竹充・二本正昭・桐野文良\*・稲葉信幸\*\*

(中央大, \*東京藝大, \*\*山形大)

Switching Field of Magnetic Force Microscope Tip Coated with Co/Pt Multilayer Film

Ryo Suzuki, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino\*, and Nobuyuki Inaba\*\*

(Chuo Univ., \*Tokyo Univ. Arts, \*\*Yamagata Univ.)

**はじめに** 磁気力顕微鏡 (MFM) は、磁性膜被覆探針を用いることにより試料からの漏洩磁場勾配を検出し、磁化状態を観察する顕微鏡である。高  $K_u$  記録媒体や永久磁石を観察する場合、漏洩磁場による探針磁化反転を防ぐため、高分解能に加えて高い反転磁界 ( $H_{sw}$ ) を持つ探針が必要となる。これまで、CoPt や FePt, FePd 合金膜を被覆した高  $H_{sw}$  探針の作製が試みられている<sup>1-3)</sup>。しかしながら、これらの材料を規則化させるためには高温処理が必要となる。磁性多層膜を被覆膜として適応することができれば、高  $H_{sw}$  探針の室温形成が可能となり、被覆膜の表面平坦性も保たれることが考えられる。最近、我々は Co/Pt 多層膜被覆探針を作製し、層厚比および総膜厚が分解能と  $H_{sw}$  に及ぼす影響を調べてきた<sup>4)</sup>。Co/Pt 多層膜の磁気異方性は結晶配向により変化することが知られている<sup>5)</sup>。本研究では、探針に被覆した Co/Pt 多層膜の結晶配向が  $H_{sw}$  に及ぼす影響について検討を行った。

**実験方法** 超高真空 RF マグネトロンスパッタリング装置を用い、市販の先端半径 4 nm の Si 探針に室温で膜被覆を行った。磁性膜被覆探針の構成は [Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub>/Si 探針、もしくは、[Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub>/X(20 nm)/Si 探針とした。下地層 X は、(111)配向用に hcp-Ru, fcc-Pt, Pd, その他配向用に bcc-Cr などを設けることにより配向を変化させた探針も作製した。分解能および  $H_{sw}$  の評価には、真空排気型 MFM を用いた。探針形状観察には SEM を用いた。被覆膜の構造および磁気特性評価には、MFM 探針作製時に同時に Si 基板上に形成した平坦膜を使用し、AFM, XRD, VSM 測定を行った。

**実験結果** Fig. 1 に Si 探針および [Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub>/Si 探針の SEM 像を示す。Si 探針に膜が均一に被覆されていることが分かる。また、AFM により評価した膜の表面粗さ ( $R_a$ ) は 0.2 nm であった。以上のことから、Si 探針に多層膜が被覆されていることが分かる。Fig. 2 に Si 基板上に形成した多層膜の面外 XRD パターンを示す。Co および Pt 層からの反射がそれぞれ観察されており、いずれの層も最密充填配向となっていることが分かる。次に MFM 探針の性能評価を行った。[Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub> 膜被覆探針の分解能は  $8.8 \pm 0.3$  nm であった<sup>4)</sup>。探針初期磁化方向と逆方向の磁界を印加し、磁界強度を 50 Oe ステップで増大させた。磁界印加処理した探針で垂直媒体試料の同一個所 MFM 像観察を行い、像コントラストが反転した処理磁界とその直前磁界の中間値を  $H_{sw}$  として求めた。Fig. 3 に [Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub> 膜被覆探針の評価結果を示す。印加磁界が 1050 から 1100 Oe へ増加するとコントラスト反転が認められる。したがって、 $H_{sw}$  は  $1075 \pm 25$  Oe であることが分かる。当日は下地層 X を用いることにより、多層膜の配向制御を行った結果についても議論する。

**参考文献** 1) L. Gao *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **40**, 2194 (2004). 2) S. Ishihara *et al.*: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **37**, 55 (2013). 3) M. Futamoto *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **49**, 2748 (2013). 4) R. Suzuki *et al.*: *Dig. Annual Conf. Magn. Jpn.*; *Magnetic Society of Japan*, 3pF-13 (2013). 5) S. Shiomi *et al.*: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 1357 (1999).

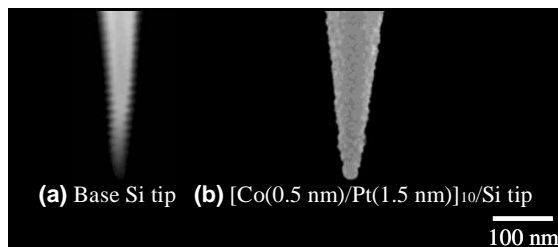


Fig. 1 SEM images observed for (a) a Si tip and (b) an MFM tip coated with [Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub> multilayer film.

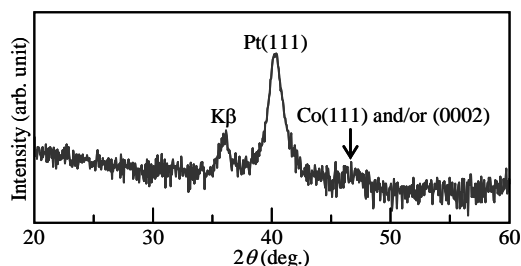


Fig. 2 XRD pattern of a [Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub> multilayer film deposited on flat Si substrate.

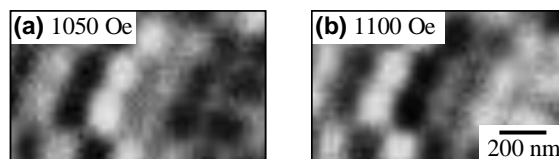


Fig. 3 MFM images of a same area of HDD perpendicular medium observed by using a tip coated with [Co(0.5 nm)/Pt(1.5 nm)]<sub>10</sub> multilayer film after applying magnetic fields of (a) 1050 and (b) 1100 Oe. The contrast is reversed for (b).

# 磁気記録ヘッドの強い交流磁場観察に適した高保磁力・磁気力 顕微鏡探針の開発とパルス磁場を用いた探針保磁力評価

鄭 富、江川元太、吉村 哲、鄭 仰東、木下幸則、齊藤 準  
(秋田大学)

Fabrication of high-coercivity FePt-based MFM tips for magnetic imaging of strong AC magnetic field of for AC magnetic imaging of magnetic writing head and direct measurement of tip-coercivity by pulse magnetic field

F. Zheng, G. Egawa, S. Yoshimura, Y. Zheng, Y. Kinoshita, H. Saito  
(Akita University)

**はじめに** 我々は以前、試料表面近傍での磁場計測を可能にする交番磁気力顕微鏡 (A-MFM) を開発した<sup>1),2)</sup>。磁気記録ヘッド等の交流磁場計測には、交流磁場の印加により磁化状態が変化しないハード磁性探針を用い、探針にその共振周波数と異なる正弦波磁場を印加する事により発生する、正弦波磁場を変調源とした周波数変調 (FM) を利用する。しかしながら、現在開発が進められている強磁場を発生する磁気記録ヘッドの交流磁場観察を行うためには、これまで用いていた FePt ハード磁性探針の保磁力は 10 kOe 程度であるので、ハード磁性探針の高保磁力化が必要不可欠である。一方、高保磁力探針の開発においては、探針に成膜する薄膜試料の磁気特性評価に加え、Si 探針母材への成膜後の磁性探針自身の保磁力評価も重要となる。本研究では、FePt 探針の高保磁力化を目的として、1) FePt 合金の MgO 添加によるグラニューラー構造化、2) FePt 結晶粒の膜面内容易軸化のための低昇温速度・長時間熱処理、3) 規則化促進のための薄膜成膜中の VHF プラズマ照射<sup>3)</sup>、を検討した。また、探針の保磁力を MFM 信号のパルス磁場応答性から求める方法を提案し、作製した FePt 系探針の保磁力を評価した。

**方法** 各種の FePt 系合金の薄膜 (膜厚 40 nm)、およびそれらを成膜した探針を、マグネトロンスパッタリング法を用いて、前者は熱酸化膜付き Si 基板上に、後者は Si 探針母材上に、それぞれ室温で作製した。MgO 添加量は 0~35 vol.%, VHF プラズマ照射電力は 5~15 W の条件下で変化させて成膜した。規則化のための熱処理は、750 °C までの昇温速度を 0.1 °C/秒もしくは 5 °C/秒、750 °C の保持時間を 10 分もしくは 120 分、とした。薄膜の磁気特性評価には振動試料型磁束計 (VSM) と超伝導量子干渉素子 (SQUID) を用いた。探針の保磁力評価には、30 kOe のパルス磁場を印加できるコイルを組み込んだ大気雰囲気型走査型プローブ顕微鏡 (SPM) を用いた。

**結果** Table.1 に、MgO 添加量、熱処理条件、VHF プラズマ照射電力、を変化させた FePt 系薄膜の保磁力を示す。最大 22.3 kOe (Table.1(E)) の保磁力が、MgO 添加量 35 vol.%, 熱処理時の遅い昇温速度と長い高温保持時間、VHF プラズマ照射電力 15 W の条件で得られた。保磁力向上の原因は、FePt 結晶粒の磁氣的孤立化・膜面内配向化・高  $L_{10}$  規則化によるものと考えられる。Fig.1 に、探針に印加したパルス磁場、及びパルス磁場印加時の探針振動の位相の時間変化を示す。磁性探針は、着磁をパルス磁場を用いて探針長手方向に行った後に逆方向にパルス磁場を印加して位相変化を測定した。位相の符号が負 (斥力) から正 (引力) に変わる時の磁場が探針保磁力 (磁場方向の探針磁化成分がゼロになる磁場) に対応する。Table.2 に、薄膜の磁化測定による保磁力と、探針のパルス磁場を用いた評価法による保磁力を示す。薄膜と探針の保磁力には強い相関が見られ、保磁力が 20 kOe 以上の探針の作製に成功した事が判る。

**参考文献** 1) H. Saito et al., *J. Appl. Phys.*, 107, 09D309 (2010). 2) S. Yasui et al., Annual Conference of ICAUMS2012, 4pPS-118 3) S. Yoshimura et al., *J. Appl. Phys.*, 109, 07B751 (2011).

Table. 1 Fabricated condition of FePt-based films and coercivity of the films.

Sample	MgO addition	Annealing condition	VHF power	In-plane coercivity of FePt-based films
A	0	5 °C/sec, 10 min	0	14.4 kOe
B	12 vol.%	5 °C/sec, 10 min	0	14.9 kOe
C	35 vol.%	5 °C/sec, 10 min	0	15.4 kOe
D	35 vol.%	0.1 °C/sec, 120 min	0	19.0 kOe
E	35 vol.%	0.1 °C/sec, 120 min	5 W	19.3 kOe
F	35 vol.%	0.1 °C/sec, 120 min	10 W	21.0 kOe
G	35 vol.%	0.1 °C/sec, 120 min	15 W	22.3 kOe

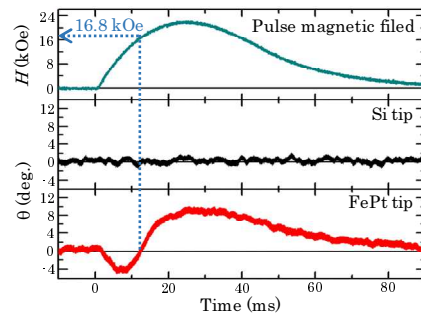


Fig. 1 Pulse magnetic field and phase change of different kinds of tips dependence on time.

Table. 2 Coercivity of films and tips.

Sample	In-plane coercivity of FePt-	Coercivity of tips
A	14.4 kOe	16.8 kOe
C	15.4 kOe	18.2 kOe
D	19.0 kOe	19.4 kOe
G	22.3 kOe	20.3 kOe

# 交番力顕微鏡を用いた $(\text{Bi}_{0.6}\text{Ba}_{0.4})\text{FeO}_3$ マルチフェロイック 薄膜の電場・磁場の同時イメージング

芦 佳, 江川 元太, 木下 幸則, 吉村 哲, 齊藤 準  
(秋田大学)

Simultaneous imaging of electric and magnetic field on  $(\text{Bi}_{0.6}\text{Ba}_{0.4})\text{FeO}_3$  multiferroic films by  
alternating force microscopy

J. Lu, G. Egawa, Y. Kinoshita, S. Yoshimura and H. Saito  
(Akita Univ.)

**はじめに** 我々は、これまで遠距離力である電場と磁場を、試料表面近傍において高い空間分解能で極性を含めて検出できる特長を有する、交番電気力顕微鏡 (A-EFM) ならびに交番磁気力顕微鏡 (A-MFM) を開発してきた<sup>1)2)</sup>。A-EFM は、励振された導電性探針に、探針の共振周波数と異なる非共振の交流電場を印加して非共振の交番電気力を発生させ、A-MFM は、励振されたソフト磁性探針に、非共振の交流磁場を印加して非共振の交番磁気力を発生させ、これら非共振交番力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用して、観察試料から発生する静電場ならびに静磁場を、周波数復調後にロックイン検出する。本研究では、静電場と静磁場の同時画像化を目的として、探針に導電性のソフト磁性探針を用い、異なる周波数の交流電場と交流磁場を印加して、静電場と静磁場を発生する $(\text{Bi}_{0.6}\text{Ba}_{0.4})\text{FeO}_3$  強誘電・強磁性マルチフェロイック薄膜を観察した結果を紹介する。

**実験方法** 計測システムは、汎用の走査型プローブ顕微鏡 (日本電子製 JSPM-5400) に、2 出力の信号発生器、周波数復調器 (PLL 回路) 及び 2 台のロックインアンプを付加して構成した。探針には、自作した導電性を有する CoZrNb ソフト磁性探針 (Si 探針に磁性膜を 30 nm 成膜) を用い、周波数の異なる交流電場および交流磁場を印加して、自作した(111) 配向  $(\text{Bi}_{0.6}\text{Ba}_{0.4})\text{FeO}_3$  薄膜 (表面酸化 Si 基板上的 Ta/Pt 下地層に 100 nm 成膜) の試料面に垂直方向の静電場および静磁場を観察した (Fig.1)。交流電場は探針と Ta/Pt 下地層間に交流電圧を印加して発生させた。

**実験結果** 観察に先立ち、強誘電性分域構造を探針と Ta/Pt 下地層間に直流電圧を印加して形成した。その際、 $3\ \mu\text{m}$  角の領域に 12 V 印加した後に、その中央の  $1\ \mu\text{m}$  角の領域に -12 V 印加した。Fig.2 (a),(b),(e),(f) に静電場の強度像と位相像および対応する線プロファイルを示す。探針には 0.2 V, 300 Hz の交流電圧および 200 Oe, 78 Hz の交流磁場を印加した。静電場像では強誘電性分域構造が明瞭に観察され、分域境界では、垂直電場の絶対値が極小値をとり、位相は境界を隔てて  $180^\circ$  異なっており、垂直電場の方向が反転している。静磁場像においても、強誘電性分域構造と同じ場所に強磁性磁区構造が観察され、磁区境界で垂直磁場の絶対値が極小値をとり、位相は境界を隔てて  $180^\circ$  異なっており、垂直磁場の方向が反転している。以上よりこの強誘電・強磁性薄膜では、電気分極  $P$  と磁気モーメント  $M$  との間でお互いを平行に保つ強い相互作用があることがわかる。本計測手法は、強誘電・強磁性薄膜等の機能性薄膜の局所物性解析に有効と考えられる。

## 参考文献

1) H. Saito, et al., *J. Appl. Phys.*, **109**, 07E330 (2011), 2) J. Lu et al., *J. Appl. Phys.*, **112**, 124110 (2012)

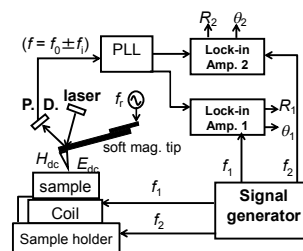


Fig.1 Measuring system

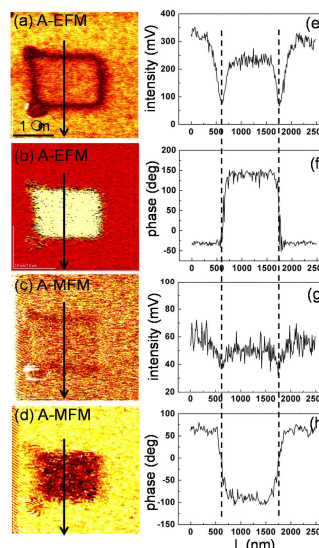


Fig. 2 Electric and magnetic field images of  $(\text{Bi}_{0.6}\text{Ba}_{0.4})\text{FeO}_3$  multiferroic film.

# 交番磁気力顕微鏡におけるソフト磁性探針の性能評価と 磁気記録媒体の高分解能直流磁場観察

岡安慎介, F. Zheng, H. Qi, K. Srinivasa Rao, 江川元太, 木下幸則, 吉村哲, 齊藤準  
(秋田大学)

Alternating magnetic force microscopy: Performance evaluation of soft magnetic tips and high-resolution DC magnetic field imaging of magnetic recording media

S. Okayasu, F. Zheng, H. Qi, K. Srinivasa Rao, G. Egawa, Y. Kinoshita, S. Yoshimura, and H. Saito  
(Akita University)

**はじめに** 近年、磁気記録媒体の高密度化に伴い、MFMの高分解能化が強く求められている。我々は試料表面近傍の磁場計測が可能な交番磁気力顕微鏡(Alternating magnetic force microscope: A-MFM)を開発し、媒体の直流磁場の高分解能観察を検討している<sup>1),2)</sup>。A-MFMを用いた直流磁場の計測では、加振させたソフト磁性探針に探針の共振周波数と異なる周波数の交流磁場を印加して探針試料間に発生させた非共振の交番磁気力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用する。これまで我々は高飽和磁化 Fe-Co 探針を用いて空間分解能 6 nm 程度を得た<sup>3)</sup>。さらなる高分解能化のためにはソフト磁性探針の性能向上が重要となる。本研究では、最近開発したソフト磁性探針の交流磁場応答性を利用した探針性能評価法<sup>4)</sup>を用いて、新たに作製した種々のソフト磁性探針を評価し、従来の Fe-Co 探針より優れた性能を示したソフト磁性探針を用いて垂直磁気記録媒体の高分解能観察を試みた結果を報告する。

**方法** 種々のソフト磁性探針を市販の Si 探針に、Fe<sub>60</sub>Co<sub>25</sub>B<sub>15</sub>、Fe<sub>56</sub>Co<sub>24</sub>B<sub>20</sub>、Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub>、Co<sub>80</sub>Zr<sub>5</sub>Nb<sub>15</sub>、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> 合金をそれぞれスパッタリング法で 30 nm 成膜して作製した。探針の性能評価は市販の走査型プローブ顕微鏡(L-Trace II, 日立ハイテクサイエンス製)に、交流磁場源として電磁石を加えて、磁性探針に交流磁場を印加することで生じる探針振動の周波数変調スペクトルの 2 次側帯波の強度  $I(2\omega_m)$  をスペクトラムアナライザーで測定することで行った。交流磁場の振幅は 30 - 1200 Oe, 周波数は 89 Hz とした。記録媒体の磁区観察は、CoCrPt-SiO<sub>2</sub> 垂直磁気記録媒体を用い、探針試料間距離約 2-3 nm としてタッピングリフトモードで行った。交流磁場の振幅は 50-300 Oe, 周波数は 89 Hz である。

**結果** Fig. 1 に、作製した種々のソフト磁性探針に対する探針振動の周波数変調スペクトルの 2 次側帯波強度  $I(2\omega_m)$  の交流磁場振幅  $H_0^{ac}$  依存性を示す。2 次側帯波は、交流磁場に追従して変化する探針磁化と交流磁場との相互作用により生じる。 $I(2\omega_m)$  は  $H_0^{ac}$  の増加に伴い、その 2 乗に比例して増加後、1 乗に比例して変化する。 $H_0^{ac}$  依存性が変化する磁場は、探針の飽和磁場を意味し、そのときの信号強度が探針の最大感度に対応する。図より、Fe<sub>60</sub>Co<sub>25</sub>B<sub>15</sub> 探針は Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> 探針よりも小さい交流磁場で飽和に達し、Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> 探針と同程度の高い検出感度を示すことから優れた探針性能を有することがわかる。尚、各種ソフト磁性探針の飽和磁場及び最大検出感度は、各種磁性薄膜の飽和磁場及び飽和磁化とよい相関が得られている。Fig.2 (I) に、この Fe<sub>60</sub>Co<sub>25</sub>B<sub>15</sub> 探針を用いて A-MFM 観察した垂直磁気記録媒体 (記録密度: 500 kfc/i) の記録ビットの空間スペクトル強度の  $H_0^{ac}$  依存性を示す。記録ビットのスペクトル強度は磁気像の記録ビット部のラインプロファイルの空間スペクトルから図中に示したように求めた。尚、(II) には比較のため Fig. 1 の Fe<sub>60</sub>Co<sub>25</sub>B<sub>15</sub> 探針の  $I(2\omega_m)$  評価結果も示した。図に見るように、記録ビット強度は  $H_0^{ac}$  の増加に伴い、比例して増加し、後に飽和して一定値となる。ここで飽和に達する  $H_0^{ac}$  値は、 $I(2\omega_m)$  の依存性が変化する  $H_0^{ac}$  値より大きくなるが、この結果はシミュレーション結果と一致した。以上より、 $I(2\omega_m)$  を用いた探針性能評価法は、探針の開発に有用である。講演では、分解能向上を図るため、磁性膜厚をさらに薄くした Fe<sub>60</sub>Co<sub>25</sub>B<sub>15</sub> 探針を用いた記録媒体の観察結果についても発表する。

**参考文献** 1) H. Saito et al., *J. Appl. Phys.*, **109**, 07E330 (2011). 2) 伊藤 他, 第 35 回日本磁気学会学術講演概要集, 27pD-2. 3) S. Okayasu et al., 2<sup>nd</sup> ICAUMS, 2pPS-109 (2012). 4) H. Qi et al., 第 38 回日本磁気学会学術講演会 講演予定.

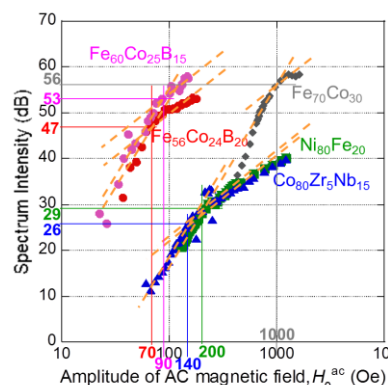


Fig.1 Dependence of AC magnetic field amplitude on the intensity of second harmonics of tip's frequency

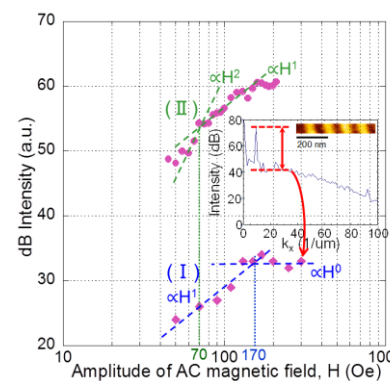


Fig.2 Dependence of AC-magnetic field amplitude on the intensity of spatial spectrum intensity of recording bits (I) and the second harmonics intensity of tip's frequency modulated oscillation (II) for Fe<sub>60</sub>Co<sub>25</sub>B<sub>15</sub> tip.

# 交番磁気力顕微鏡を用いた強い直流磁場計測に向けた 高磁化率 Fe 基常磁性および Ag-Co 超常磁性探針の開発

吉村 哲、番匠 春嵐、郑 富、江川 元太、木下 幸則、齊藤 準

(秋田大)

Development of high-susceptibility Fe-based paramagnetic and Ag-Co superparamagnetic tips  
for magnetic imaging of strong DC magnetic field by alternating magnetic force microscopy

S. Yoshimura, S. Bansho, F. Zheng, G. Egawa, Y. Kinoshita, and H. Saito

(Akita Univ.)

**はじめに** 我々は、試料表面近傍での静磁場計測を可能にする高空間分解能な交番磁気力顕微鏡 (A-MFM) を開発した<sup>1),2)</sup>。本手法では、ハード磁性試料の直流磁場計測に対しては、ソフト磁性探針に交流磁場を印加し、探針磁化を周期的に反転させて探針試料間に交番磁気力を発生させ、この交番磁気力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用する。しかしながら、永久磁石等の極めて強い磁場を発生する試料の評価においては、1) ソフト磁性探針が試料表面に磁気吸着してしまう、2) ソフト磁性探針の磁化が試料からの直流磁場で飽和してしまい周波数変調現象が生じない、などの問題が発生する。これに対し、磁気モーメントがソフト磁性材料よりも小さく、磁化が飽和しない、高い磁化率を有する、などの特徴を有する常磁性および超常磁性材料を用いた探針が、強磁場画像化に有望であると考えられる。また、磁化が磁場に比例しかつ残留磁化がゼロであるこれら探針は、直流磁場印加機構と組み合わせることで、試料直流磁場の絶対値計測<sup>3)</sup>に用いることもできる。本研究では、常磁性および超常磁性薄膜において磁化率を増大させるための材料探索並びに作製プロセスの検討を行い、上記の用途に適した高感度探針を開発することを目的とした。

**方法** 各種常磁性および超常磁性薄膜 (膜厚 100 nm)、そしてそれらを成膜した常磁性および超常磁性探針を、マグネトロンスパッタリング法を用いて、前者は熱酸化膜付き Si 基板上に、後者は Si 探針母材上に、それぞれ室温で作製した。常磁性薄膜は強磁性ターゲット上に非磁性シートを貼り付けた複合ターゲットを用い、超常磁性薄膜は強磁性ターゲットと非磁性ターゲットを用いた2元同時スパッタリングにより、それぞれ成膜した。各薄膜の磁気測定は、試料振動型磁力計 (VSM) により、各磁性探針の感度は、永久磁石の磁気力顕微鏡 (MFM) 測定における探針振動の位相変化を測定することにより、それぞれ行った。

**結果** Table.1 に、作製した常磁性薄膜および超常磁性薄膜の室温での磁化率、およびそれらの薄膜を成膜した探針の最大位相変化 (検出感度)、をそれぞれ示す。Ni-Cr, Fe-Cr, Fe-Mn は結晶質で常磁性、Fe-Mo-B は非晶質で常磁性、Ag-Co はグラニューラー構造の超常磁性、の薄膜である。ここで、いずれの常磁性薄膜においても、室温での磁化率が最大になる (キュリー温度が室温になる) 組成に調整されている。結晶質の常磁性材料においては、強磁性元素の磁気モーメントの増大に伴い、また非磁性元素の添加量低減に伴い、磁化率が増大する傾向を示した。また、Mo, B を添加して非晶質化することで磁化率が更に増大した。この増大は、少ない非磁性元素の添加でキュリー温度を低下できたことによる。さらに、後述のように作製条件を最適化した超常磁性薄膜において、非常に高い磁化率が得られた。そして、薄膜の磁化率と探針の位相変化は、良い相関を示した。尚、いずれの探針においても、試料への磁気吸着は生じなかった。Fig.1 に、その Ag-Co 超常磁性薄膜の作製条件に対する磁化率の変化を示す。ここで、成膜速度の増大は、Ag マトリックス中の Co 粒子サイズの微細化に寄与するものと考えている。図中の点線は、超常磁性単相と超常磁性と強磁性の混相の境界であり、この判断は、図中の磁化曲線の例に示すように、ヒステリシスの有無から行った。成膜速度を増大させることにより、超常磁性単相を形成できる Co 含有量が増加し、作製条件を最適化することにより超常磁性薄膜の磁化率を非常に大きくすることができることが判る。

**参考文献** 1) H. Saito et al., J. Appl. Phys., 109, 07E330 (2011).

2) 伊藤, 他. 第35回日本磁気学会学術講演概要集, 27pD-2. 3) 木下, 他. 第37回日本磁気学会学術講演概要集, 3pF-10.

Table.1 Susceptibility of films and sensitivity of tips with the films.

Film material	Thickness X (H/m)	Thickness (nm)			
		100	50	20	10
Pd	$7.6 \times 10^{-9}$				
Ni <sub>83</sub> Cr <sub>7</sub>	$4.7 \times 10^{-8}$	4.5°			
Fe <sub>58</sub> Cr <sub>41</sub>	$6.0 \times 10^{-8}$				
Fe <sub>67</sub> Mn <sub>33</sub>	$1.2 \times 10^{-7}$	21.2°	9.4°	8.8°	
Fe <sub>88</sub> Mo <sub>7.5</sub> B <sub>6.5</sub>	$1.4 \times 10^{-7}$	26.1°	16.5°	7.4°	3.3°
Ag <sub>79</sub> Co <sub>21</sub>	$7.5 \times 10^{-7}$				

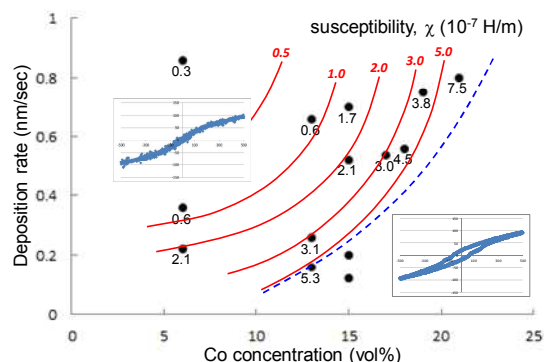


Fig.1 Dependence of susceptibility of Ag-Co granular films on fabrication conditions.

# 針状磁気プローブによる低透磁率材料の微小残留磁気の測定

南谷 保, 若浦 大, 山田 外史  
(金沢大学)

Measurement of minute remnant magnetization by Needle Type Magnetic Probe  
Tamotsu Minamitani, Dai Wakaura, Sotoshi Yamada  
(Kanazawa University)

## はじめに

地磁気レベル以下の微小な残留磁気( $10^{-8}$ ~ $10^{-6}$ T)を簡易な測定器にて測定することは、古代の地磁気、雷電流の挙動の解明などに大きく貢献することが期待されている。しかし、これまで微小な残留磁化の測定には磁気シールド、高感度の磁気センサが必要であり大規模な測定システムとなっていた。そこで、磁気シールドなしで汎用の磁気センサ(たとえばMI,GMRセンサ)を用いて、2次元成分の残留磁気を簡易に測定できることを報告した<sup>1)</sup>。課題は3次元成分の測定であり、そのためには穴径を小さくすることが必要であった。そこで、GMRセンサを付けた針状磁気プローブを用い、直交する小さな2個の穴にて3方向成分を測定することを行ったので報告する。

## 測定原理

立方体形状の円筒穴中では磁束密度ベクトルがほぼ均一であることを利用して、Fig.1の測定システムを考案した。センサは試料の円筒穴中央分に配置し、センシング方向を穴に対し垂直方向(x軸方向)とする。この装置ではセンサを固定し、試料を回転させる構造となっている。磁気センサからみて、地磁場は均一成分であり直流成分、試料の磁化成分は円筒穴の磁束密度は回転させることで交流成分として検出される。磁気センサの直流成分をカット、交流成分を取り出すことで、穴と直交する円筒穴内の磁束密度の振幅とx軸に対する磁化方向が推定できる。

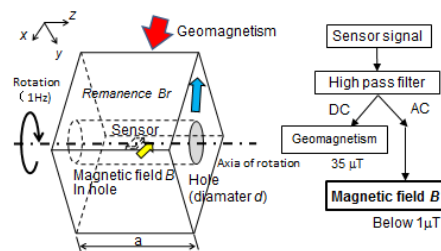


Fig. 1 Detection system of remnant magnetization.

## 試料サイズと磁束密度の関係

針状磁気プローブの針形状の寸法は $0.4 \times 0.4$  mm, 長さ30 mmであり, MI<sup>2</sup>センサ(11×2 mm)より円筒穴径を小さくできる。これにより, 試料のサイズはこれまでの試料( $a=35$ ,  $d=13$  mm)より大幅に小型化が可能となる。かつ, 試料寸法比 $a/d$ (試料長/穴直径)と穴内の磁束密度の大きさはFig.2の関係があり, 小型化により円筒穴内の磁束密度が数%大きくなる。

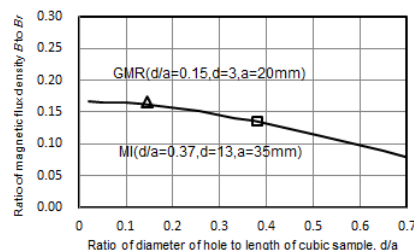


Fig. 2 Ratio of  $B$  in the center of hole to remanence  $B_r$ .

## 実験結果と考察

測定試料( $a=20$ ,  $d=3$  mm)は, マグネタイトの微粒子をエポキシ系樹脂に重量濃度1.0%で混ぜ固めて作成した。針状磁気プローブを用いて試料の円筒穴内の磁束密度を測定した結果をFig.3に示す。この信号をロックインアンプにて処理することにより,  $10^{-6}$  Tレベルの磁束密度, 信号の位相から磁化方向が測定できることが確認できた。

以上から, 径の小さな針状GMR磁気プローブを用いることで, 小さな試料サイズで方向の異なる2穴を開け, 2穴内の磁気計測を行うことで3方向成分の測定が可能となる。

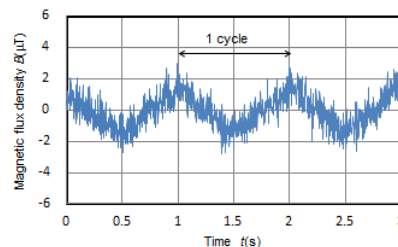


Fig. 3 Measured signal by GMR probe.

## 参考文献

- 1) T.Minamitani, D.Wakaura, S.Yamada, *Digest of 2014 JIEE Annual Conference*, 2-127, 2014.
- 2) Nanotesla sensor, Aichi Micro Intelligent Co.: [http://www.aichi-mi.com/magnetometer/type-dh\\_en.htm](http://www.aichi-mi.com/magnetometer/type-dh_en.htm).

## 耐酸化保護層を形成した磁性膜被覆磁気力顕微鏡探針

加藤慶一・大竹充・二本正昭・稲葉信幸\*・桐野文良\*\*

(中央大, \*山形大, \*\*東京藝大)

Magnetic Force Microscope Tip Prepared by Coating with Magnetic Film and Oxidation Protection Layer

Keiichi Kato, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Nobuyuki Inaba\*, and Fumiyoshi Kirino\*\*

(Chuo Univ., \*Yamagata Univ., \*\*Tokyo Univ. Arts)

**はじめに** 磁気力顕微鏡 (MFM) は磁気記録媒体などの磁化状態解析に幅広く用いられている。MFM探針は、一般的に、Siなどの非磁性探針に磁性膜を被覆することにより作製され、観察試料から漏洩する磁場勾配を探針で検出し、磁化状態を観察する。そのため、探針形状に加えて、磁性探針の先端半径や磁性膜の酸化状況などが観察分解能に大きな影響を及ぼす。しかしながら、被覆膜の酸化が探針性能に及ぼす影響について検討した報告は殆どない。本研究では、耐酸化保護層を形成することにより、酸化耐性に優れたMFM探針の作製を試みた。

**実験方法** 膜被覆には、超真空スパッタリング装置を用いた。市販の先端半径 4 nmのSi探針に 20 nm厚の磁性膜および 2 nm厚の保護層を被覆することによりMFM探針を作製した。磁性膜材料としてFeを、保護層材料としてC, B, Siなどを用いた。また、比較のため、保護層無しのMFM探針も作製した。恒温恒湿槽を使用して磁性探針の酸化を行い、保存日数が分解能に及ぼす影響を調べた。磁気力顕微鏡の分解能評価では、真空排気型MFMを用いた。また、構造および磁気特性の評価には、膜被覆時に同時にSi基板上に形成した磁性膜を使用した。

**実験結果** Fig. 1にSi基板上に形成したC保護層有りおよび無しのFe膜の飽和磁化 ( $M_s$ ) の酸化試験経過日数依存性を示す。保護層無しの膜では、1日経過で $M_s$ が急激に減少し、日数の増大に対応して継続的に減少する傾向が確認される。一方、保護層有りの膜の $M_s$ は、ほぼ一定値を保っていることが分かる。次に、分解能評価を行うために、500~1800 kFCIで記録された試作垂直媒体のMFM観察を行った。Fig. 2(a)に酸化試験前の保護層無しのMFM探針を用いて観察を行った結果を示す。また、Fig. 2(b)には、記録ビット像のパワースペクトルを示す。1700 kFCI (ビット長: 14.9 nm) までは、ビット像およびパワースペクトルにおけるピークを確認することが出来る (Fig. 2(a-4), (b-4))。しかしながら、1800 kFCI (ビット長: 14.1 nm) で記録されたビットを識別することはできない (Fig. 2(a-5), (b-5))。したがって、分解能は  $14.9/2=7.5$  nm と  $14.1/2=7.1$  nmの間の  $7.3\pm 0.2$  nmと評価できる。Fig. 3にC保護層有りおよび無しのMFM探針の分解能の酸化試験経過日数依存性を示す。保護層無しの場合、被覆磁性膜の酸化に伴い、分解能が低下していることが分かる。一方、C保護層を用いることで、酸化耐性が向上し、恒温恒湿槽に保管を継続しても、分解能がほぼ一定に保たれていることが分かる。当日は、保護層の種類が分解能の酸化耐性に及ぼす影響についても報告する。

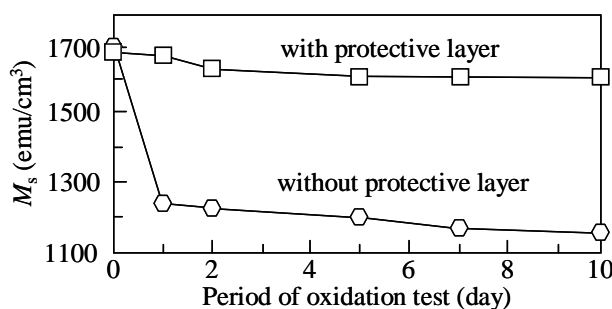


Fig. 1 Saturation magnetization values of Fe films without and with C protective layer deposited on flat Si substrates.

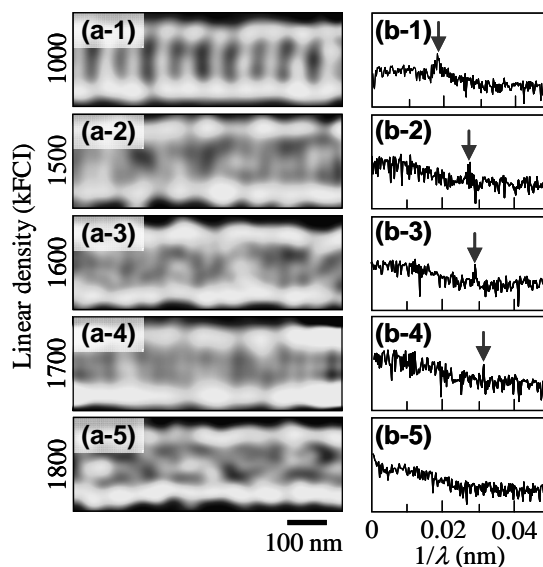


Fig. 2 (a) MFM images of a perpendicular recording medium observed by using an MFM tip coated with Fe film without C protective layer. (b) Power spectra analyzed for the magnetic bit images in (a).

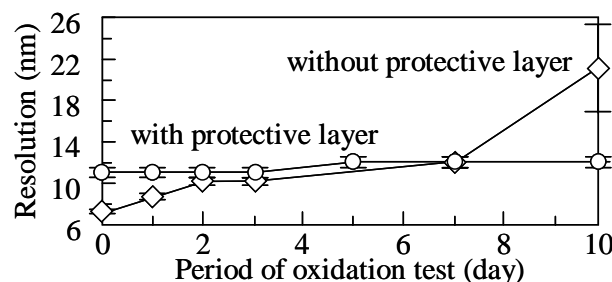


Fig. 3 Resolutions of MFM tips coated with Fe films without and with C protective layer.



## Co フェライトを用いた磁気力顕微鏡用プローブの作成とその特性

深谷周作 高橋尚孝 劉小晰  
(信州大学)

Preparation and properties of magnetic force microscope probes using Co-Ferrite

Syusaku Fukaya Naotaka Takahashi Xiaoxi Liu  
(Shinshu University)

## はじめに

Nd-Fe-B のように強力な薄膜磁石の表面の磁区構造の観察を行う際、商用の MFM プローブの保磁力が小さく計測試料の漏洩磁界の影響によりプローブの磁化の方向が反転してしまい正確な観察が行えない。そのため高い保磁力を持つ MFM プローブの製作が必要になる。

本研究では、Si 製の AFM プローブ上に磁性薄膜を成膜することにより高い保磁力を持つ MFM プローブ製作を目的としている。本研究における磁性材料として Co フェライトを選択した。Co フェライトは安価であり、酸化による影響が少ないと考えられるのでプローブの寿命が長くなると考えられる。

## 実験方法

成膜方法には対向ターゲット式スパッタリング装置(FTS)を用いる。今回 FTS を用いたのはプラズマによる基板へのダメージが DC マグネトロン式スパッタリング装置と比べ少なく、これまでの研究からカンチレバー上に成膜した場合 FTS のほうがより先鋭的になることが確認されているからである。<sup>1)</sup>

チャンパー内の到達圧力は  $5.0 \times 10^{-4}$  Pa 以下とし、Ar ガスを導入してスパッタガス圧を  $4.0 \times 10^{-4}$  Pa、基板加熱温度を 150 °C から 400 °C まで変化させ成膜を行った。また、それらの試料に対して大気中での熱処理を行った。次に室温においてガス圧を 0.5 Pa から 0.1 Pa まで変化させ成膜した。試料振動型磁力計(VSM)を用いて磁気特性を、X 線回折(XRD)を用いて結晶構造を評価し、さらに最適な条件を確認後 MFM プローブの作製を行う。

## 実験結果

Fig. 1 に各基板加熱温度における熱処理前と熱処理後の保磁力について示す。全体において熱処理を行うことによって保磁力の増加が確認された。最大の保磁力は、基板加熱 350°C、ポストアニール 400°C 5 時間行うことで垂直方向において約 6.8 kOe、面内方向において 6.1 kOe の保磁力が確認された。同条件において MFM プローブ上に成膜を行い、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>B 薄膜の観察を行った。Fig. 2 が得られた MFM 画像である。しかし、同プローブのアルミ製反射膜に剥離が認められた。

この問題の解決のために室温において高い保磁力を得るためにガス圧を変化させてスパッタを行った。Fig. 3 に各ガス圧に対する保磁力を示す。この図が示すように保磁力は 0.1 Pa の時に最も大きく垂直方向で約 4.9 kOe、面内方向に約 3.5 kOe となりガス圧の上昇とともに減少が見られた。このように室温においても熱処理を行った場合に近い保磁力を得ることに成功した。

各試料の結晶構造、室温で作製したプローブでの観察結果等のデータについては学会時に報告する。

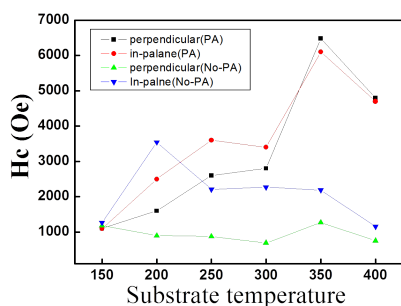


Fig.1 Coercivity of each substrate heating temperature

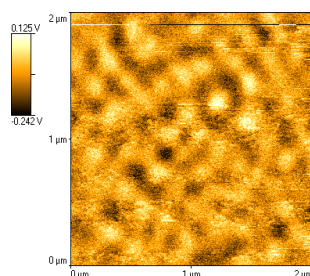


Fig.2 MFM image

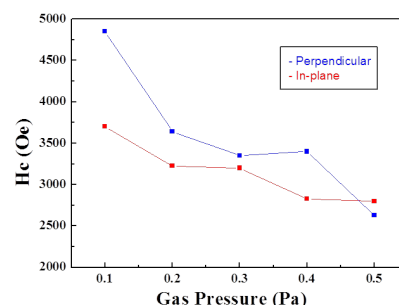


Fig.3 Coercivity of each gas pressure

## 参考文献

- 1) X. liu, S. Isomura, A. Morisako, IEEE Trans. MAG, 48(11), 3673-3676, (2012)

# 交番磁気力顕微鏡を用いた高磁化率 Ag-Co 超常磁性探針による FePt 永久磁石厚膜の表面近傍磁場イメージング

中山翔太、岩井 航、江川元太、木下幸則、吉村 哲、齊藤 準  
(秋田大学)

Near-contact magnetic field imaging on FePt hard magnet films by alternating magnetic force microscopy with a high-susceptibility superparamagnetic Ag-Co tip  
S. Nakayama, W. Iwai, G. Egawa, Y. Kinoshita, S. Yoshimura and H. Saito  
(Akita University)

**はじめに** 我々は、試料表面近傍での磁場計測を可能にする交番磁気力顕微鏡 (A-MFM) を開発し、高密度磁気記録媒体に対してソフト磁性探針を用いて、直流磁場の高空間分解能観察に成功している<sup>1),2)</sup>。ここでは、励振している探針に探針の共振周波数と異なる交流磁場を印加して探針磁化を周期的に反転させて探針試料間に非共振の交番磁気力を発生させ、この交番磁気力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用して、試料からの直流磁場を計測している。しかしながら、永久磁石等の極めて強い直流磁場を発生する試料の観察時には、ソフト磁性探針の、1) 試料表面への磁気吸着、2) 探針磁化が試料からの直流磁場により飽和し、周波数変調現象が生じない、等の問題があり、解決策として、探針磁化が磁場に比例し飽和せず、磁化値を磁場で制御できる新たな探針が必要になる。本研究では、我々が最近開発した高い磁化率を有するグラニューラー構造の Ag-Co 超常磁性探針<sup>3)</sup>を用いて、永久磁石薄膜の磁区観察を試みた結果を報告する。

**方法** 上記の A-MFM において、探針に超常磁性探針を用いた場合には、探針の交流磁化は、試料からの直流磁場による探針の直流磁化とは独立に、交流磁場方向のみに磁場に比例して発生することから、探針試料間の磁気力勾配は次式となる。 $(\partial F_z / \partial z) = (M_z^{dc} + M_z^{ac} \cos(\omega_m t)) (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2 + \partial^2 H_z^{ac} \cos(\omega_m t) / \partial z^2)$  (1) ここで探針に空間的に均一な交流磁場を印加する場合、 $(\partial^2 H_z^{ac} / \partial z^2) \ll 1$  より(1)式の  $\omega_m$  成分は以下となる。 $(\partial F_z / \partial z)(\omega_m t) \cong M_z^{ac} (\partial^2 H_z^{dc} / \partial z^2) \cos(\omega_m t)$  (2) したがって、(2)式により誘起される周波数変調の  $\omega_m$  成分を、探針振動波形を周波数復調後にロックイン検出することで、交流磁場方向に平行な直流磁場の勾配を計測することができる。自作した FePt 磁石厚膜 (膜厚 300 nm) の観察は、市販の走査型プローブ顕微鏡 (L-Trace II, 日立ハイテクサイエンス製) に、探針に交流磁場を印加するための電磁石を試料側に付加して A-MFM 装置系を構成し、大気中で行った。探針は、磁化率  $4.5 \times 10^{-7}$  H/m の Ag-Co 薄膜 (100 nm) を成膜した超常磁性探針を用いた。

**結果** Fig.1 に、膜面垂直方向に直流消磁した FePt 磁石厚膜の表面像(a)、磁場強度 (振幅) 像(b)、磁場極性 (位相) 像(c)、をそれぞれ示す。磁場強度像において得られた明部分の形状やサイズが、通常の MFM 測定で観察された磁区の形状や大きさとほぼ同じであること、また磁場極性像において得られた明および暗の部分の面積比が、ほぼ 1 : 1 であることから、本 A-MFM で得られた像が、FePt 磁石厚膜の消磁状態を反映した明瞭な垂直方向の磁場像で有ると言える。Fig.2 の(d) および(e) に、Fig.1 の(b) 磁場強度像および(c) 磁場極性像におけるラインプロファイルを示す。垂直磁場の強度がゼロとなる場所を境として磁場極性の反転 (位相差は  $180^\circ$  変化) が明瞭に観察されており、かつ磁場極性像のラインプロファイルでは、位相が一定値を示しているプラトーな部分においてノイズが非常に小さい傾向もみられた。このことは、本超常磁性探針の磁化が、印加した交流磁場 (FePt 厚膜面垂直) 方向のみに成分をもって時間変化し、磁化曲線にヒステリシスがないことを示唆する。

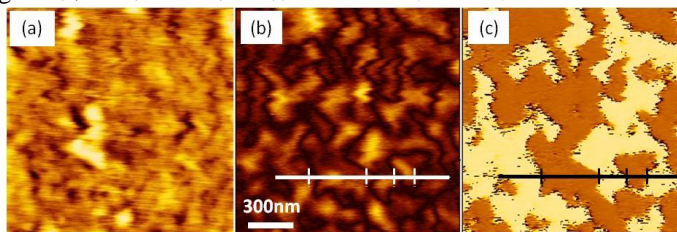


Fig.1 (a) Topographic image, (b) Amplitude image, and (c) phase image of FePt thick film.

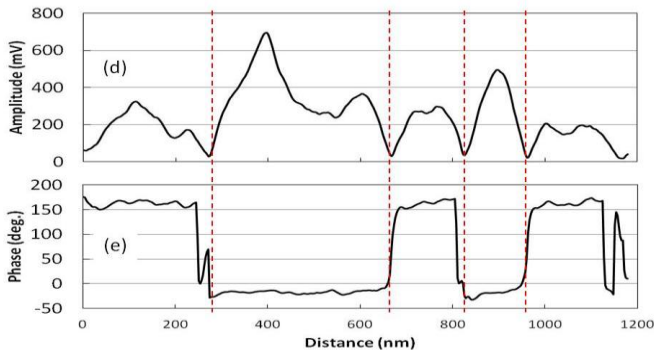


Fig.2 Line profiles of (d) Amplitude image and (e) phase image of FePt thick film.

**参考文献** 1) H. Saito et al., *J. Appl. Phys.*, 109, 07E330 (2011). 2) 伊藤 他, 第 35 回日本磁気学会学術講演概要集, 27pD-2. 3) 吉村 他, 第 38 回日本磁気学会学術講演会 発表予定

## ソフト磁性探針を用いた交番磁気力顕微鏡による 磁気記録ヘッドの交流磁場イメージング

伊集院寛仁、滝口史典、江川元太、木下幸則、吉村 哲、齊藤 準  
(秋田大学)

AC magnetic field imaging of magnetic writing heads by alternating magnetic force microscopy  
using a soft magnetic tip

Hirohito Ijuin, F. Takiguchi, G. Egawa, Y. Kinoshita, S. Yoshimura and H. Saito  
(Akita University)

**はじめに** 磁気記録ヘッドの性能評価には、発生する交流磁場を高い周波数まで画像化することが有用である。我々は先に開発した交番磁気力顕微鏡 (A-MFM) および 10 kOe 以上の保磁力を有する FePt ハード磁性探針を用いることで、磁気記録ヘッドの垂直磁場のヘッド表面近傍での高分解能観察 (空間分解能 10 nm 以下) に成功している [1]。本研究では、さらに高い周波数の磁場を計測するために、高周波磁場応答に有利であり、より大きな飽和磁化を有するソフト磁性探針に着目し、A-MFM の磁気記録ヘッド検査装置への展開を視野に入れて、MHz 帯までの磁場観察を目的として、垂直磁気記録ヘッドを FeCo ソフト磁性探針により観察した。

**実験方法** A-MFM は探針の共振周波数と異なる非共振の磁気力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用している。ここでソフト磁性探針が交流磁場  $H_0^{ac} \cos(\omega_m t)$  により同期して磁化される場合、磁気力による探針の実効的なバネ定数の変化は以下となる。

$$\left(\frac{\partial F_m}{\partial z}\right) = \Delta k_{eff} = \left(M_0^{ac} \cos(\omega_m t)\right) \left(\frac{\partial^2 H_0^{ac} \cos(\omega_m t)}{\partial z^2}\right) \cong (q_{ip}/2) \left(\frac{\partial H_0^{ac}}{\partial z}\right) (1 + \cos(2\omega_m t)) \quad (1)$$

本研究では、探針を 2 次共振周波数 (周波数  $f_{r2} = \omega_{r2}/(2\pi)$ ) で機械励振し、磁気記録ヘッドの非共振交流磁場 (周波数  $f_m$ ) を、探針の 1 次共振周波数 (周波数  $f_{r1}$ ) との関係において、 $f_{r2} - 2f_m = f_{r1}$  を満たすように調整することで、磁気記録ヘッドの交流磁場により探針の 1 次共振周波数の振動を誘起し、その振動強度をロックインアンプで計測した。ここで、 $f_{r2} = 408.5$  Hz,  $f_{r1} = 69.1$  Hz,  $f_m = 169.7$  Hz であった。実験には市販の走査型プローブ顕微鏡 (JEOL・JSPM-5400) を使い、大気雰囲気中で行った。用いた FeCo ソフト磁性探針は Si 探針に FeCo 薄膜を 30 nm 成膜して自作した。ヘッド電流は 40 mA<sub>p-p</sub> とし、リフト高さは約 10 nm とした。

**実験結果** Fig.1 (a), (b) に観察した交流磁場の振幅像とそのラインプロファイルを示す。図より明瞭な交流磁場像が観察されていることがわかる。ソフト磁性探針を用いた場合、探針磁化が交流磁場に同期して変化していると考えられるが、(1) 式の探針磁化と磁場勾配の積は、発生磁場の方向で最大となり、そのときの強度がロックイン検出されるので、磁場方向によらずに磁場の大きさが計測されることになる。図に見るように、強い磁場は主磁極内部で発生していることがわかる。このことは、主磁極内部で強い垂直磁場が発生していることによるものと推察される。一方、ヘッドギャップにおいては、強度はゼロにならないが、これは面内磁場を主に計測しているものと推察される。本手法では、試料表面近傍での磁場計測が可能であるので、講演では磁場強度の探針-試料間距離の距離依存性の結果を報告する。あわせて、(1) 式の実効バネ定数の直流変化項による探針振動の位相変化を用いた従来手法 [2] や、ハード磁性探針を用いた A-MFM との比較を行い、本手法の特徴を明らかにする。

### 参考文献

[1] H. Saito, W. Lu, K. Hatakeyama, G. Egawa and S. Yoshimura, J. Appl. Phys. 107, 09D309(2010)

[2] 張 開鋒 他, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集, 30a-A8-5 (2013 春)

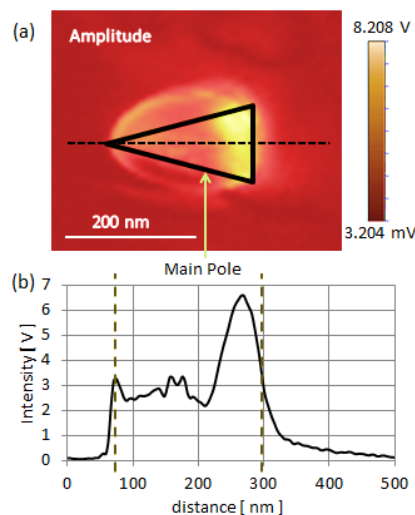


Fig.1 Amplitude image of AC magnetic field [(a)] and its line-profile [(b)] for a perpendicular magnetic writing head.

# 磁気力顕微鏡におけるソフト磁性探針の交流磁場応答を用いた性能評価方法の提案

H. Qi<sup>2</sup>, 岡安慎介<sup>1</sup>, F. Zheng<sup>2</sup>, 江川元太<sup>1</sup>, 木下幸則<sup>2</sup>, 吉村哲<sup>1</sup>, 齊藤準<sup>1</sup>

<sup>1</sup>秋田大学, <sup>2</sup>秋田大学ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー

Proposal of evaluation method of soft magnetic MFM tip's performance by AC magnetic field response

H. Qi<sup>2</sup>, S. Okayasu<sup>1</sup>, F. Zheng<sup>2</sup>, G. Egawa<sup>1</sup>, Y. Kinoshita<sup>2</sup>, S. Yoshimura<sup>1</sup>, and H. Saito<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Engineering and Resource Science, Akita University

<sup>2</sup>Venture Business Laboratory, Akita University

**はじめに** 磁気力顕微鏡(MFM)は、磁性体試料と磁性探針の相互作用を利用して磁場を画像化するので、探針の磁気特性の把握は重要である。磁気力顕微鏡探針としては、ハード磁性探針が主に用いられているが、近年ではソフト磁性探針もその磁場応答性を利用した用途で使用されてきている<sup>1, 2)</sup>。したがってソフト磁性探針の磁場応答性の評価は重要である。本研究ではソフト磁性探針の交流磁場応答性から探針性能である飽和磁場、計測感度を評価する方法を提案する。

**方法** 磁性探針に交流磁場を印加したときの磁気力の勾配は、探針の振動方向を  $z$  方向とし、この方向に交流磁場  $H_z^{ac} \cos(\omega_m t)$  を印加した場合に次式で与えられる。 $(\partial F_z / \partial z) = (M_z^{dc} + M_z^{ac}(t)) (\partial^2 H_z^{ac} \cos(\omega_m t) / \partial z^2)$  (1) ここで、 $M_z^{dc}$  は時間変化しない探針磁化成分、 $M_z^{ac}(t)$  は時間変化する探針磁化成分である。理想的なハード磁性探針の場合  $M_z^{ac}(t) = 0$  であり、理想的なソフト磁性探針の場合  $M_z^{dc} = 0$  である。 $M_z^{ac}(t)$  が交流磁場に比例して変化する場合 ( $M_z^{ac}(t) = M_z^{ac} \cos(\omega_m t)$ )、(1)式は以下となる。

$$(\partial F_z / \partial z) = (M_z^{ac} / 2) (\partial^2 H_z^{ac} / \partial z^2) + M_z^{dc} (\partial^2 H_z^{ac} / \partial z^2) \cos(\omega_m t) + (M_z^{ac} / 2) (\partial^2 H_z^{ac} / \partial z^2) \cos(2\omega_m t) \quad (2)$$

ここで、交流磁場の周波数  $\omega_m$  が探針の共振周波数  $\omega_0$  と異なる場合、(2)式の磁気力の周期的変化により、探針振動に周波数変調が発生する<sup>3)</sup>。したがって、周波数変調による探針振動の側帯波成分 ( $\omega_0 \pm n\omega_m$ ;  $n$  は周波数変調の次数) の強度を測定することにより、探針磁化の磁場応答性の評価が可能になる。そこで、本研究では市販の走査型プローブ顕微鏡(L-Trace II, 日立ハイテクサイエンス製)に、探針に交流磁場を印加するための電磁石を付加して、磁性探針に 89 Hz の交流磁場を印加し、その振動スペクトルをスキャナラライザ<sup>®</sup>で測定した。

**結果** Fig.1 に Ni-Fe 探針における探針振動スペクトルの一例と 2 次の周波数変調の側帯波成分の強度  $I(2\omega_m)$  の交流磁場振幅  $H_{ac}$  依存性を示す。 $I(2\omega_m)$  は  $H_{ac}$  の増加に伴い、その 2 乗に比例して増加した後 1 乗に比例して変化する。この現象を理解するために、 $(\partial F_z / \partial z) = M_z(t) (\partial^2 H_z(t) / \partial z^2) \propto M_z(t) H_z(t)$  の関係を用い、Fig.2(a) のように探針磁化が磁場に比例して増加した後飽和する磁化曲線を仮定し、探針に交流磁場を印加した際の  $M_z(t) H_z(t)$  の時間変化波形の一例として交流磁場振幅が探針の飽和磁場  $H_s$  の 2 倍の場合のものを Fig.2(b) に、Fig.2(c) に  $M_z(t) H_z(t)$  の  $2\omega_m$  のフーリエ級数成分  $I(2\omega_m)$  の  $H_{ac}$  依存性の計算結果を示す。Fig.2(c) のように、 $I(2\omega_m)$  は  $H_{ac}$  の増加に伴い、実験結果と同様に、その 2 乗で  $H_s$  まで増加した後 1 乗に比例して変化する。したがって、本手法により、ソフト磁性探針の飽和磁場を求めることが可能になることがわかる。さらに、 $H_s$  での  $I(2\omega_m)$  の値を様々な探針について比較することで、探針の計測感度の評価が可能となる。講演では、実験で観測される高次の探針振動スペクトルについても計算結果と比較検討した結果および評価した探針により観察される MFM 像との相関についても述べる。

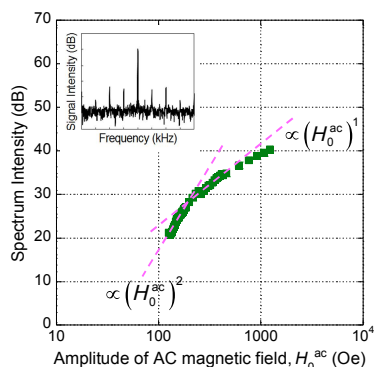


Fig.1 Dependence of AC magnetic field amplitude on the intensity of second harmonics of tip's frequency modulated oscillation for Ni-Fe MFM tip.

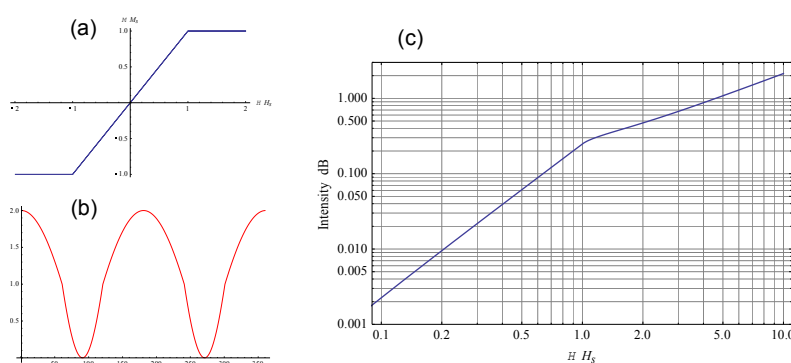


Fig.2 (a) Model of MFM tip's  $M$ - $H$  curve, (b), waveform of  $M_z(t)H_z(t)$ , (c) Dependence of AC magnetic field amplitude on the intensity of calculated second harmonics of tip's frequency modulated oscillation for MFM tip.

**参考文献** 1) 伊藤 他, 第 35 回日本磁気学会学術講演会概要集, 27pD-2. 2) S. Okayasu et al., 2nd ICAUMS, 2pPS-109 (2012). 3) H. Saito et al., *J. Appl. Phys.*, **109**, 07E330 (2011).

# The progress of Energy Magnetics to improve Motor Energy efficiency

Y. Honkura

(Magnedesign Corporation)

The energy supply problem becomes very serious day by day due to background that the world economy is getting huge by shifting from the developed nations economy of 700 million people to the global economy with 7 billion people. The manufacture of automobiles, home appliances and information devices is exploding twice after 20 years. In order to solve energy supply problem, new research into electric vehicles, energy efficient appliances, renewable energy, and the smart grid has been progressing rapidly. In automotive field, a lot of applications of motors expand by replacing from the engine, the hydraulic machines and small devices operation of which three categories on motors applications are shown in Fig.1.

MSJ held the first Energy Magnetics Symposium in 2013 at Sapporo to discuss on the challenges of magnetics technology to solve the energy supply problem and established the study group working on the Energy Magnetics (EMSG) in the beginning of this year. The EMSG held the first meeting and plans to organize the second EM symposium focusing on how to improve the efficiency of PM motor by the means of high rotation motor design

Energy Magnetics on PM motor consists of the reactor to increase the electric voltage, the motor to transfer the electric energy to kinetics energy through the magnetic energy and magnetic transmission to use magnetic gear and bearing. These systems in Fig.2 request high performance magnets and magnetic materials. The most important target must be how to improve the energy efficiency of EV motor system from the loss of 30% at present to the loss of 5% in future.

Nowadays The EV traction motors have been developed to make various designs using the suitable magnets shown in Fig. 3. The kinds of IPM motor designs have been proposed to have one layer, two layer and 4 layers of magnet as well as SPM motor design, spoke type motor and axial motor design. These developments have been challenged by some kinds of magnets which are Nd sintered magnet, Nd anisotropic bonded magnet and ferrite magnet.

The rotation speed of the EV motors increased from 6000rpm to 12000rpm to achieve the improvement in the efficiency and the motor weight. However the more increase of the speed must meet the heating up problems for Power control unit caused by silicon on-resistance, the heating up of Nd sintered magnet caused by eddy current and transmission caused by frictional heat. Power control unit will be solved by the development of SiC IGBT instead of Si and the frictional heat of transmission will be solved by the development of magnetic gear.

The heat up of Nd sintered magnet under IPM motor operation is caused by vibrating magnetic field with the frequency of 200Hz by rotation speed of 200Hz, of 1200Hz, 2400Hz, 3600Hz, 4800Hz by slot harmonics and of 5400Hz, 10800Hz by carrier harmonics shown in Fig.4. The magnet is damaged to fall into demagnetizing. Next generation type IPM motor must be operated under more high speed of 30Krpm controlled by more high carrier frequency of 20KHz. The heating up problem of Nd sintered magnet must become serious to be impossible to use.

EMSG makes first challenge to solve this magnet problem by the development of Nd anisotropic bonded magnet free from heating up problem caused by eddy current, by the development on the measuring equipment to examine the magnetic fatigue coecivity against the vibrating magnetic field and by establishment of the database on the magnetic fatigue coecivity of various magnets and by the research on how to make nucleation of reverse magnetic domain and its expansion using micro magnetics analysis technique. And Final target must be to develop the computer simulation technique to make design on high speed motor.

EMSG holds the second Energy Magnetics Symposium in the annual congress of MSJ and will invite 14 experts to introduce the basic research progress on the magnetic fatigue coecivity caused by vibrating magnetic field and the development on the bonded magnet and the status of EV motor development.

In this symposium, I hope that the magnetics researchers will have interest in the challenges of Energy Magnetics to solve the energy supply problem and join to EMSG project.

## Reference

- 1) Magnetics Society of Japan, 2<sup>nd</sup> Iwasaki Conference Materials, 2013/5/13-14
- 2) Fujisaki et. , 2015 IEE International Magnetics Conference, FQ-12, 2014/5/4-8

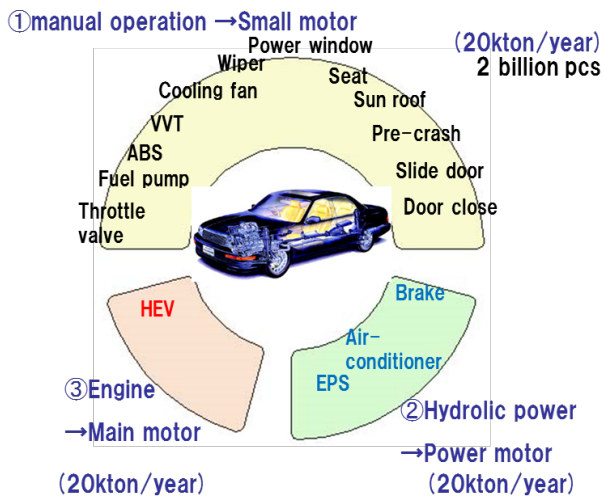


Fig.1 automotive use motors replacing from Engine, hydraulic system and manual operation.

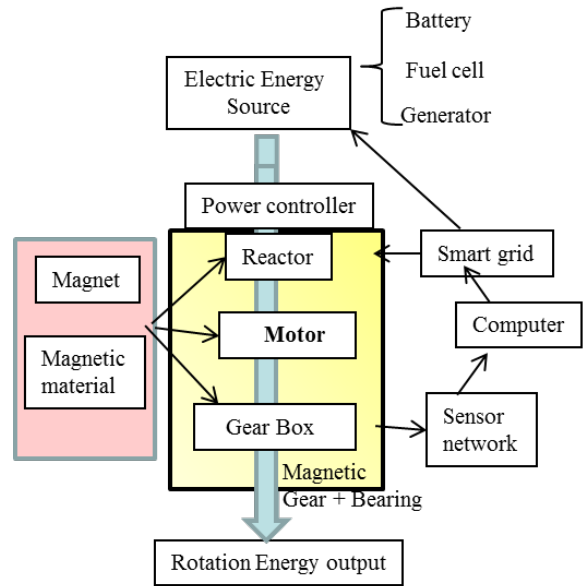


Fig.2 Energy Magnetics challenges to improve Efficiency by Advanced Magnet and Magnetic Materials

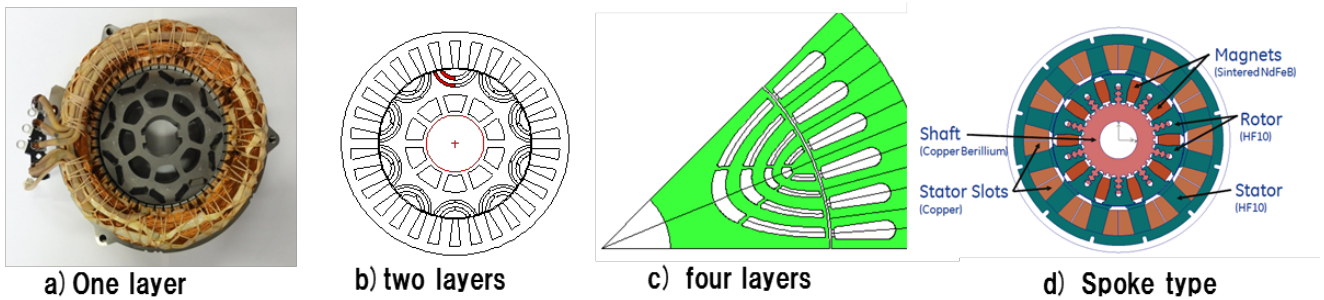


Fig.3 some IPM motor designs for EV traction motors.

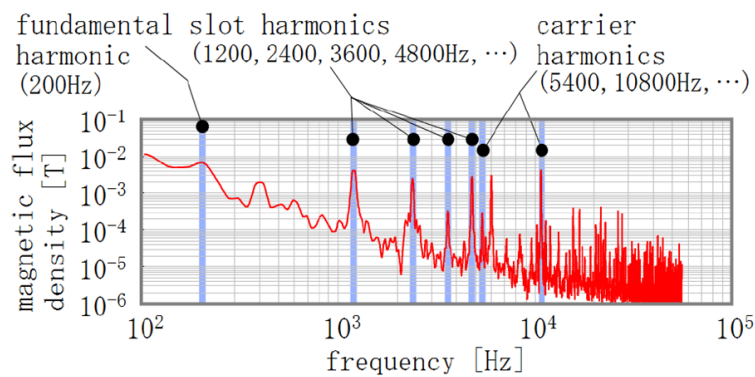


Fig.4. Result of frequency analysis

# Advanced Magnetic Material Requirement for Higher Efficient Electrical Motor Design

Keisuke Fujisaki  
(Toyota Technological Institute)

In order to realize the energy saving society, higher efficient electrical apparatus is required. Magnetic material is used in it to obtain higher magnetic flux density <sup>1)</sup>.

3 kinds of electromagnetic theory are used in the electromagnetic apparatus <sup>2)</sup>. The one is Faraday's law as shown in the next equation. A transformer is considered to be its application.

$$\text{rot}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}$$

The next is Maxwell stress as shown in the next equation. An electrical motor or generator is considered to be its application.

$$\vec{F} = \iint_{\text{ThinSteelPlate}} [\vec{T}_m] \cdot \vec{n} dS, \text{ here } [\vec{T}_m] = \frac{1}{\mu_0} \begin{bmatrix} \frac{1}{2}(B_x^2 - B_y^2 - B_z^2) & B_x B_y & B_x B_z \\ B_y B_x & \frac{1}{2}(B_y^2 - B_z^2 - B_x^2) & B_y B_z \\ B_z B_x & B_z B_y & \frac{1}{2}(B_z^2 - B_x^2 - B_y^2) \end{bmatrix}$$

The last is magnetic energy as shown in the next equation. A reactor in an electrical circuit is considered to be its application.

$$E = \int \vec{B} \bullet d\vec{H}$$

High magnetic flux density is usually obtained by the magnetization as shown in Fig. 1. The magnetization is derived by external magnetic field, and it is derived from a current which flows in magnetic coil within the electrical apparatus. The current is derived from a voltage in electrical circuit. The variable voltage and variable frequency are used in the electrical motor or smart grid, which are expected to be a future technology, and are realized by power electronics technology.

Usually, magnetic properties of magnetic material are measured by linear amplifier excitation with no harmonics components as shown in Fig.1. It is decided by JIS or IEC <sup>3,4)</sup>. However, an electrical circuit based on power electronics is applied to the electrical apparatus to realize the variable voltage and variable frequency. So the different magnetic properties from linear amplifier excitation are required for the 3 kinds of electromagnetic apparatus.

The electrical motor is usually excited by PWM inverter to obtain the variable velocity drive system. So the magnetic properties of magnetic material are shown in Fig.3. A lot of minor loops, which are derived from the carrier frequency of PWM inverter excitation, are observed in the major loop of the fundamental frequency. Iron loss becomes about 30 - 50% large <sup>5)</sup>.

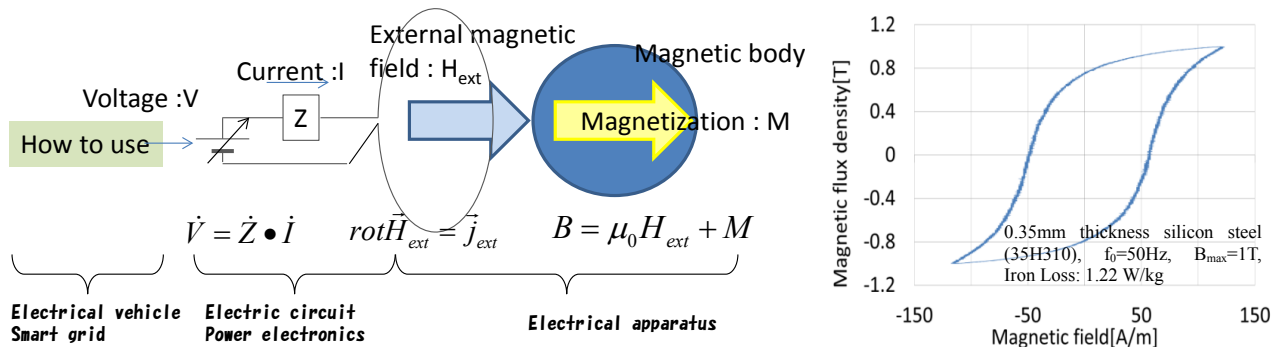


Fig. 1 Magnetic material application for electrical apparatus. Fig.2 Magnetic hysteresis curve excited by linear amplifier.

The reactor is often used in the chopper circuit, where electrical energy from power source storages in some period of chopping carrier frequency. So the magnetic properties required for the reactor are only a small minor loop within the major loop.

Future transformer is expected to be operated in high frequency, which is possible to be realized by power electronics technology, in order to become small to be a one-100th or so<sup>6)</sup>. So the required magnetic properties for the high frequency transformer are shown in Fig. 5. High frequency as well as high magnetic flux density is required.

Permanent magnet is also required for the dynamics magnetic properties in being applied to PM motor<sup>7)</sup>. Because of space harmonics components and time harmonics ones, which are derived from the slot shape of stator core and the PWM inverter excitation, harmonics components of magnetic fields are supplied to the permanent magnet. They increase the loss of the electrical motor.

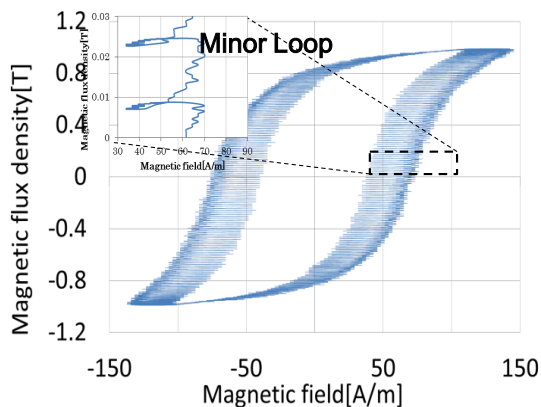


Fig. 3. Required magnetic hysteresis curve excited by PWM inverter (35H310, PWM inverter excitation ( $m = 0.8$ ), Iron Loss: 1.65 W/kg)

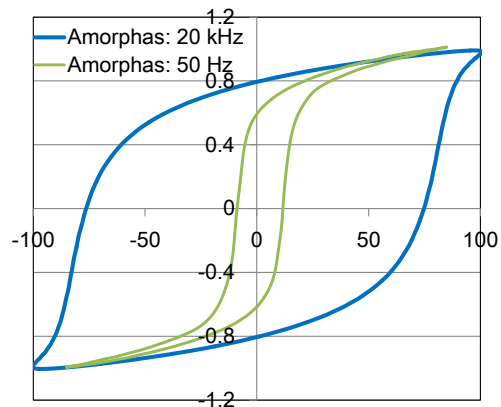


Fig. 5. Required magnetic hysteresis curve applied to high frequency transformer. (Amorphous, 2605HB1, Thickness: 23 $\mu$ m,  $B_{max}=1.0$  %,  $f_0=50$  Hz, 20 kHz)

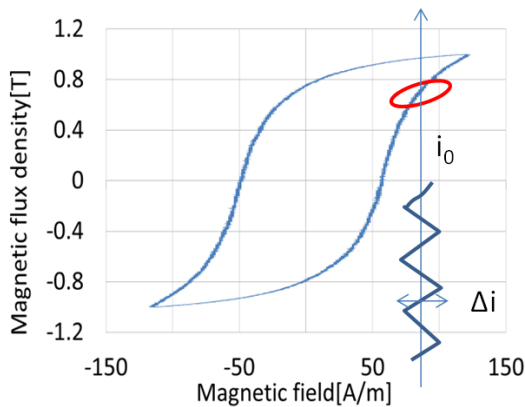


Fig. 4 Required magnetic hysteresis curve applied to reactor in chopper circuit.

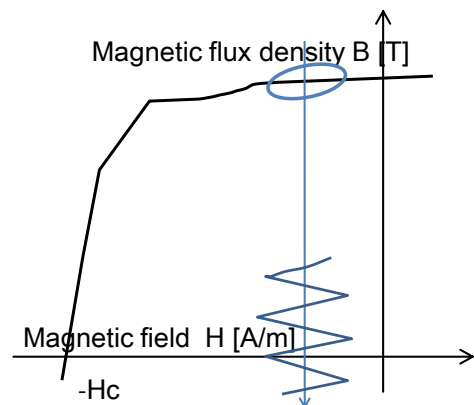


Fig. 6 Dynamic magnetic hysteresis curve of permanent magnet used in IPM motor

## Reference

- 1) K. Fujisaki, "Electrical Energy and Magnetics," The 37th Annual Conference on MAGNETICS in Japan, Symposium "Challenge of Magnetics to Improve Energy Efficiency", 6pB-2, 2013.
- 2) K. Fujisaki, "Magnetic property of magnetic body necessary for power electronics development," MAG-13-149, The papers of Technical Meeting of Magnetics, IEE Japan, 2013. (in Japanese)
- 3) Japanese Industrial Standards : "JIS C 2550", (1996).
- 4) International Electrotechnical Commission : "IEC 60404", Second edition, (1992).
- 5) K. Fujisaki, R. Yamada, T. Kusakabe, "Difference in Iron Loss and Magnetic Characteristics for Magnetic Excitation by PWM Inverter and Linear Amplifier," IEEJ Transactions on Industry Applications 133(1), 69-76, 2013. (in Japanese)
- 6) R. Ortiz, M. Leibl, J. W. Kolar, O. Apeldoorn, "Medium frequency transformers for solid-state-transformer applications – Design and experimental verification," IEEE 10<sup>th</sup> Int. Conf. Power Electronics Drive System (PEDS), C2L-A, 2013.
- 7) A. Watarai, K. Fujisaki, S. Odawara, K. Fujitani, "Dynamic Magnetic Property of Permanent Magnet for High Efficiency PM Motor". IEEE International Magnetics Conference (INTERMAG2014Dresden), FQ-12, p.2343-2345, 2014.5.



## Measurement of magnetic flux density on permanent magnet surfaces for IPM motor

T. Hosoi<sup>1</sup>, R. Okamoto<sup>1</sup>, H. Matsui<sup>1</sup>, D. Miyata<sup>1</sup>, Y. Haseo<sup>1</sup>, N. Tanaka<sup>2</sup>, M. Inaba<sup>2</sup>, Y. Kamiya<sup>2</sup>

<sup>1</sup> NIPPON SOKEN, INC., Nishio 445-0012, Japan

<sup>2</sup> DENSO CORP., Kariya 448-8661, Japan

### 1. Introduction

The purpose of this study is to establish a technique on measuring magnetic flux density when an Interior Permanent Magnet (IPM) motor operates and to clarify higher-harmonic wave component causing a factor of generating an eddy current loss of permanent magnet.

The eddy current is generated inside of a permanent magnet by variable magnetic flux when the motor operates. This heating loss caused by the eddy current may become factors of degradation of conversion efficiency and thermal demagnetization.

### 2. Measuring technique

Fig.1 shows the structure of the measuring technique. It is constructed such that a signal amplification circuit is installed on the rotor, extracting amplified signals from a magnetic flux density sensor to the fixed side by a slip ring. The sensor is mounted on a magnet surface. The sensor measures AC component of magnetic flux density generating eddy current loss. Further, the magnet surface temperature is measured simultaneously using a thin film temperature sensor.

Fig.2 shows the construction of the mounted magnetic flux density sensor. For the search coil layer, patterning is conducted on the upper and lower surfaces of a flexible sheet of polyimide and the layer is electrically connected with a through hole. Both surfaces are covered with insulating layers, and the total thickness of the sensor is 74  $\mu\text{m}$ .

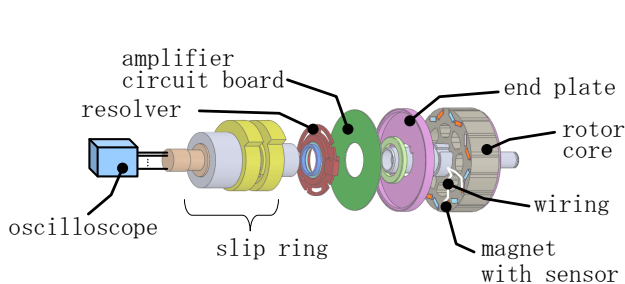


Fig. 1. Measurement setup

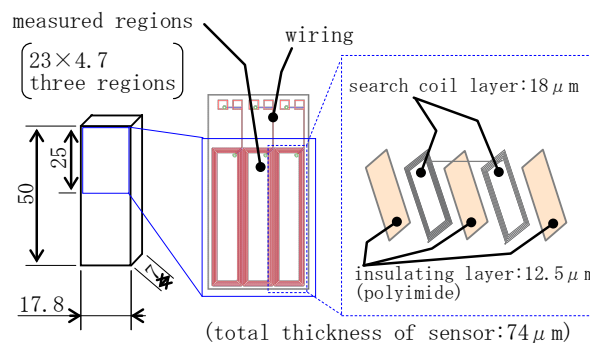


Fig. 2. Magnetic flux density sensor

### 3. Measurement result

Table.1 shows measuring conditions. The measurement of magnetic flux density of the magnet surface is conducted under PWM control by a general purpose inverter intended for the IPM motor with 4 pole pairs and 48 slots.

Fig 3 shows a time waveform for the measured magnetic flux density, and Fig 4 shows the frequency analysis results. Each component of the fundamental harmonics, slot harmonics and carrier harmonics of the magnetic flux density has been quantified. Assuming that the eddy current loss for the permanent magnet is proportional to the square of the magnetic flux density and the square of the frequency, it is estimated that the eddy current loss by the carrier second harmonic components (10800 Hz) accounts for an overwhelming 67% of the total.

Table.1. Measurement conditions

rotation speed [rpm]	3000
torque [N·m]	40
carrier frequency [kHz]	5.4
inverter input voltage [V]	650
magnet temperature [°C]	39

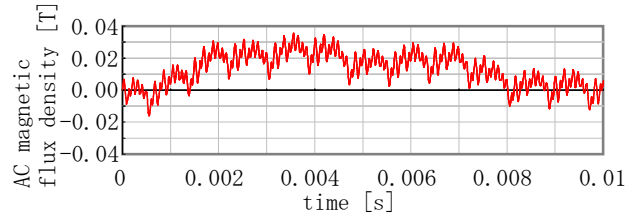


Fig.3. Waveform of AC magnetic flux density

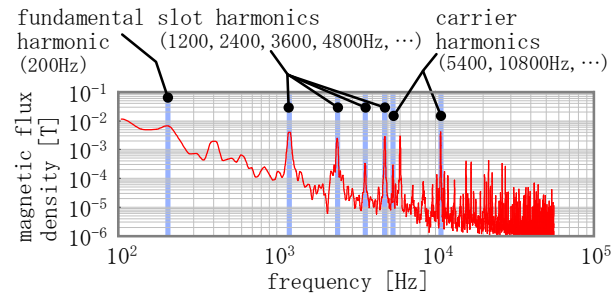


Fig.4. Result of frequency analysis

#### 4. Summary

We have established the technique for measuring magnetic flux density on magnet surfaces by using a magnetic flux density sensor when the motor operating. This technique enables us clarify higher-harmonic wave components of magnetic flux density as a factor in the generation of eddy current loss in permanent magnets.

## Behavior of a permanent magnet used for a high efficiency motor under a high frequency magnetic field

C. Mishima<sup>1</sup>, T. Ariizumi<sup>2</sup>, Y. Kaneko<sup>3</sup>, Y. Honkura<sup>4</sup>

(1 Aichi Steel. Corp. 2 TOEI INDUSTRY CO.LTD, 3 TOYOTA CENTRAL R&D LABS.,INC,  
4 Magnedesign Corp.)

The development of high efficiency motors is accelerating as energy problems become more serious. Many magnetic materials are used in high efficiency motors, and the demands on the properties of the magnetic materials are changing greatly by the use of power electronics<sup>1)</sup>.

For example, in soft magnetic materials such as electrical steel, increases in iron losses of 20% to 60% caused by the inverter excitation have been reported<sup>1)</sup>.

On the other hand, hard magnet such as permanent magnets, as the electric resistivity of rare earth sintered magnets is very low in comparison with ferrite sintered magnets, the eddy current loss on the surface of the magnet can not neglect. As a result, the measurement and numerical analysis of losses under AC magnetic fields based on NdFeB sintered magnets has been studied<sup>2), 3)</sup>.

With recent high speed motors, larger magnetic fields are applied to the magnet and the frequencies of those fields are higher, and as a result the problem of magnet losses will become more important.

However, up to now the studies of these problems were restricted to estimates of magnet losses, while studies of their magnetic phenomena or the behavior of the magnets have not been carried out. In order to study the magnetic behavior of magnets under high frequency fields, we have started up the Energy Magnetics Special Meeting, and intend to study the issues in depth.

Among these issues, a method for magnetic measurement under the high frequency magnetic field will be a problem.

For understanding the magnetic behavior of magnets, the DC BH tracer has been the main tool to date. Therefore, we plan to develop an experimental device and to measure magnetic behavior using this device under a high frequency magnetic field. Fig.1 is a conception of the device being planned now. It is planned to produce a frequency of 10kHz and magnetic field of 330Oe by using a pulse electric current in a multilayered winding solenoid coil. In this presentation, we report the outline, performance, and problems of the high frequency magnetic field emitting device, and actual measurement results to clarify the types of issues facing this development.

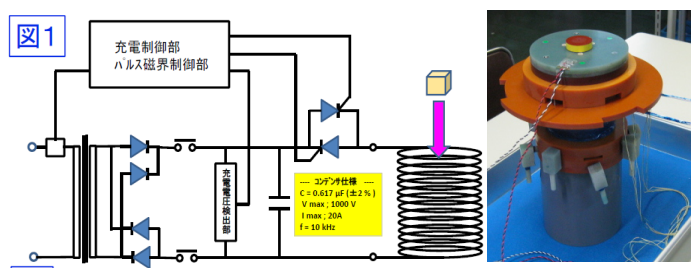


Fig.1 The concept of high frequency magnetic field device.

### Reference

- 1) K.Fujisaki : IEE Japan, MAG-13-149
- 2) K.Itoh, Y.Hashiba, K.Sakai, T.Yagisawa : T.IEE Japan, Vol.118-A (1998) p.182
- 3) K.Yamazaki, A.Abe: T.IEE Japan, Vo.127-D (2007) p.87

## FEM Analysis of Hysteresis Using a Thermodynamic Model

Fumiaki Ikeda  
(Photon Co., Ltd.)

Thanks to great advances in computation technologies and computer performance, today FEM analysis can handle models that fairly closely approximate actual magnetic fields. However, modeling of magnetic materials is almost always carried out by considering only isotropic nonlinear characteristics; no general method has been established that addresses anisotropic nonlinearity and hysteresis. Highly accurate analysis of magnetic fields requires faithful reproduction of magnetic materials' magnetization characteristics. Since needs for highly accurate analysis of magnetic fields are expected to increase in the future, faithful modeling of such characteristics is an urgent matter.

The magnetic characteristics of magnetic steel sheets can be measured highly accurate with the aid of today's technologies. Given this fact, we examined anisotropic nonlinear magnetic characteristics in detail. Our results suggest that the magnetic characteristics of magnetic steel sheets can be formulated from a thermodynamic perspective. On the basis of this suggestion, we successfully reproduced the magnetic characteristics using the free energy of magnetic materials. However, free energy, which is a state quantity determined from physical quantities (e.g., magnetic flux density and temperature), seems difficult to use to address history-dependent characteristics such as hysteresis.

By contrast, the spontaneous magnetization of ferromagnetic materials can be formulated thermodynamically on the premise that a magnetic material has multiple possible local minimum values of free energy.

Since spontaneous magnetization is thought to contribute substantially to the occurrence of hysteresis, it seems history-dependent characteristics can be formulated on the assumption that when in thermal equilibrium, magnetic materials are not in a state having the minimum value of free energy but rather in a state having one of the local minimum values. However, formulation of hysteresis of actual magnetic materials requires the existence of free energy having a considerably complex form; such a complex free energy form is inappropriate for numerical modeling. Therefore, we take the following two-step approach to hysteresis analysis.

First, free energy is smoothed by removing local stabilization points; after smoothing, the equilibrium state of magnetic materials can be determined from the minimum value of free energy.

Next, an irreversible process as seen in frictional phenomena is introduced in order to take the influence of local minimization into consideration; consequently, magnetization characteristics can be treated as a history-dependent process. The effect compared to friction can be formulated by introducing a quantity called the hysteretic magnetic field, which corresponds to frictional force.

The free energy in question is a function of magnetic flux density and temperature. Accordingly, variable transformation from magnetic flux density to magnetic field intensity allows us to introduce a thermodynamic potential similar to the Gibbs free energy. In a state with a fixed magnetic field at a fixed temperature, the magnetic materials' thermodynamic potential takes its minimum value.

This approach enables us to formulate finite elements for numerical analysis by applying the variational method to the thermodynamic potential.

Compared to conventional FEM, which is based on the weighted residual method, this FEM, which is based on the variational method, offers substantial advantages in that it allows us to address spontaneous magnetization and hysteresis in a simpler manner.

# Magnet Behavior in High Frequency Field Using Micromagnetic Simulator

F. Akagi<sup>1</sup>, and Y. Honkura<sup>2</sup>,

<sup>1</sup>Kogakuin University, Shinjyuku 163-8677, Japan

<sup>2</sup>Aichi Steel Corporation, Tokai 476-8666, Japan

## 1. Introduction

Bonded Magnet is one of the most important and useful permanent magnets industrially. It enables to achieve complex shapes and is superior in strength to other kinds of magnets. Above all, NdFeB anisotropic bonded magnet is used for motors of automobiles and magnetic hard disk drives and sensors utilized in a wide variety of products<sup>1)</sup>. It will be expected for motors of hybrid vehicles (HV) and electric vehicles (EV) to realize smaller size and higher rotational speed. However, we have to pay attention to ‘magnetic fatigue’ of the magnet itself. Motors will be applied high frequency field with a maximum frequency of 10 kHz and average amplitude of 40 kA/m (0.5 kOe) at high temperature in near future. It will also be applied a static field of approximately 240 kA/m (3 kOe). As a result, high frequency field and thermal stress might demagnetize NdFeB anisotropic bonded magnetization. It is called ‘magnetic fatigue’.

In this study, magnet behavior in high frequency field and high temperature was simulated using micromagnetics simulator. A simple grain model and basic magnetic characteristics were assumed, and behaviour of magnetic fatigue was simulated.

## 2. Micromagnetics simulator

It is important to make sure magnet behaviour in high frequency field in order to calculate a dynamic magnetic reversal process. The simulator is based on Landau-Lifshitz-Gilbert equation as follows;

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) + \frac{\alpha}{M_s} \left( \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right). \quad (1)$$

$\mathbf{M}$  is the magnetization and  $\mathbf{H}_{eff}$  is the effective field which is the sum of external fields, static field, anisotropy field and exchange field. A stochastic thermal field was, however, not considered since grains could be regarded as thermally stable because of large volumes and high anisotropy.  $\gamma$  is the gyromagnetic ratio, and  $\alpha$  is the damping factor.

Magnetic characteristics at room temperature are shown in Table 1. Intergrain exchange energy was assumed as 0, because non-magnetic grain boundary isolates grains perfectly. The saturation magnetization ( $M_s$ ) was assumed to decrease according to the Brillouin function, and the anisotropy constant ( $K_u$ ) was  $k \times M_s$  ( $k$ : coefficient depends on temperature) to fit an experimental data.

Fig. 1 shows a grain model. Each grain is a hexagonal prism with a grain size of 200 nm, and it is not divided into small cells since the grain diameter is smaller than the critical diameter in between single domain and multidomain, and then grains were assumed to reverse according to the Stoner-Wohlfath model.

## 3. Results and discussions

In studying magnetization behaviour in the high frequency, damping factor  $\alpha$  is one of the indispensable parameters. When the frequency is high, precession of the magnetization depends on  $\alpha$  and effects on magnetization reversal. Therefore, we looked through the damping constant  $\alpha$  dependence of magnetization behavior,

M-H loops with different temperatures are shown in Fig. 2 (a). While the temperature increases the magnetization decreases, but the shapes of the M-H loops were not changed. M-H loops with different damping factor  $\alpha$  at 400 K are shown in Fig. 2 (b). M-H loops are almost equivalent between both damping factors. Fig. 3 shows the cycle of the frequency dependence of magnetization behaviour applying a high frequency field. Damping factor  $\alpha$  was changed from 0.01 to 1. X-axis is the cycle of the frequency, namely elapsed time. An external field ( $H_{ext}$ ) was  $-0.33 \times H_k$ , where  $H_k$  is an anisotropy field. The frequency was 10 kHz with the amplitude of 40 kA/m and the standard deviation of C-axis

orientation distribution ( $\sigma_{C\text{-axis}}$ ) was 5 degree. The temperature was 400 K. From this graph, though the high frequency field keeps oscillating the magnet, magnetization seems to be stable at first sight, but magnetization oscillates slightly as shown in Fig. 3 (b) and (c). The cycle of oscillation is equal to that of the high frequency field. It was also found that magnetization decreased with decreasing  $\alpha$ . Therefore, If  $\alpha$  is small, the external field causes to demagnetize the magnet.

Table 1 Magnetic characteristics at 293 K

$M_s$ (T)	$K_u$ (MJ/m <sup>3</sup> )	$\sigma_{K_u}/\langle K_u \rangle$ (%)	$\langle H_k \rangle$ (kA/m)	Intergrain Exchange (J/m <sup>2</sup> )
1.61	4.9	0	6077	0.0

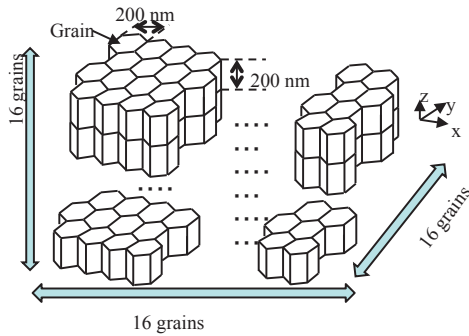


Fig. 1 Grains are hexagonal prism with grain size of 200 nm

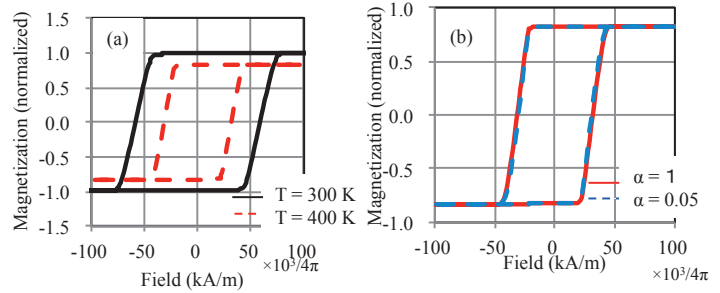


Fig. 2 (a) Temperature dependence of M-H loop at  $\alpha$  of 1 and (b)  $\alpha$  dependence of M-H loop at T of 400 K.

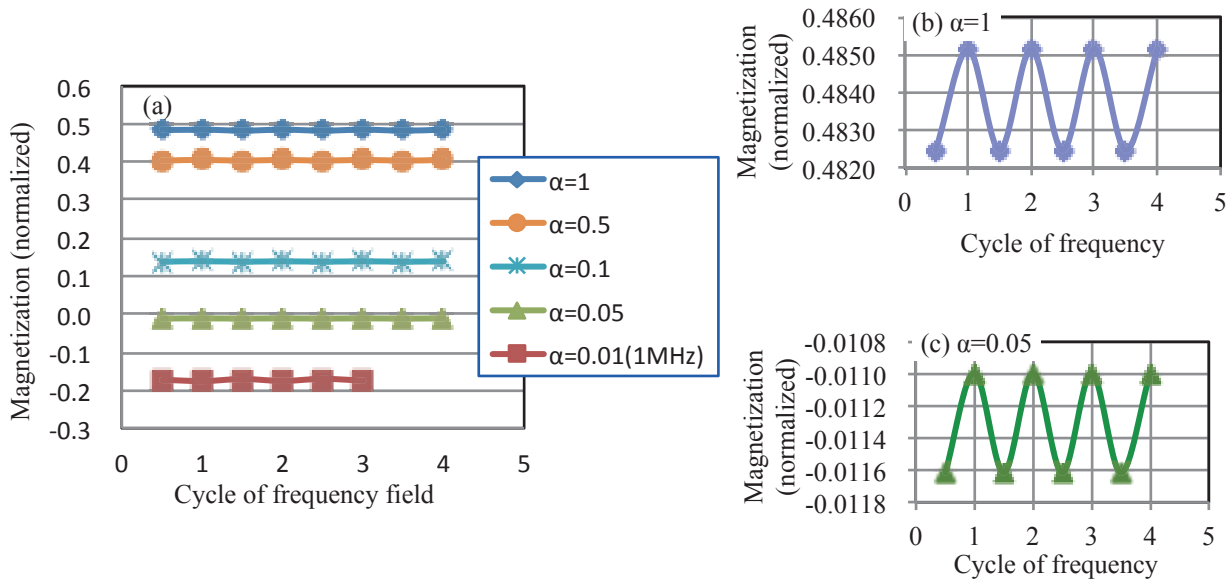


Fig. 3 Damping factor  $\alpha$  dependence of magnetization behavior at high frequency field (a)  $\alpha = 0.01 - 1$ , (b) enlarged graph at  $\alpha$  of 1, and (c) enlarged graph at  $\alpha$  of 0.05

## References

- 1) Y. Honkura, Proceeding of 19<sup>th</sup> International Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Their Application, Beijing, CHINA 2006, p.231.

# Development of Dy free NdFeB anisotropic bonded magnet with high performance

K.Noguchi, C.Mishima, M.Shintaku, Y.Kawasugi, M.Yamazaki, M.Matsuoka, and H.Mitarai  
(Aichi Steel Corporation)

## 1. Introduction

The need for lighter motors in increasing automobile fuel efficiency is high and NdFeB anisotropic bonded magnets with high magnetic performance and freedom of design are effective in realizing motor size and weight reductions. The magnetic powder used in NdFeB anisotropic bonded magnets is manufactured by the d-HDDR process utilizing the high temperature reaction between NdFeB and hydrogen<sup>1)</sup>. This bonded magnet has five times higher magnetic force than standard ferrite one and its near-net-shape characteristic enable easy application to motors. The anisotropic bonded magnet has been used for downsized / lightweight seat motors. The coercive force was improved by grain boundary diffusion treatment of Nd-Cu-Al alloy into NdFeB magnetic powders after d-HDDR treatment<sup>2)</sup> instead of Dy addition. This alloy forms Nd-rich grain boundaries and isolates the crystal grains after diffusion process. As a result, it intercepts the magnetic interaction between the crystal grains and leads to increase of the coercive force up to 20kOe. Currently, this anisotropic magnetic powder was molded to bonded magnet with high performance by compression molding and injection molding magnet with mixture of several resins.

## 2. Compression molding magnet

The magnetic properties of NdFeB bonded magnet was easily decreased due to oxidation under using atmosphere. We successfully developed a magnet powder coating technology leading to improved reliability of the bonded MAGFINE magnets towards an automotive specification level of flux loss below 5% after 1000h exposure at 150deg.C. This coating layer was created on the magnetic powder surface with thickness of approximately 200nm (Fig.1). This powder has good stability under the oxidation atmosphere compared to conventional MAGFINE powders without coating.

During the compression molding, the NdFeB magnetic powders were pressed under high pressure of 9ton/cm<sup>2</sup> and induced the damage of powder cracking. This leads to degradation in magnetic performance, in particular the squareness ratio. A compound made of d-HDDR magnet powder coated with resin, fine SmFeN powder and lubricant can produce molded blocks with a high density of 6.0 g/cm<sup>3</sup> at a low molding pressure of 1 ton/cm<sup>2</sup>. In addition, by enabling molding at a low pressure, the loss of squareness of the magnet powder was reduced to 0.5%. From the above, through kneading and the addition of fine powder and lubricant, the surface treatment of d-HDDR magnet powder achieved high density magnets at a low molding pressure and a compound capable of controlling the reduction in loss of squareness(Fig.2).

## 3. Injection molding magnet

Two type resins of Polyamide 12 (PA12) and Poly Phenyl Sulphide (PPS) are used for anisotropic injection-molding magnet of MAGFINE. The PA12 type injection-molding magnet has good remanence Br up to 8.7 kG, however, low reliability under high temperature over 120deg.C. On the other hand, the PPS-type magnet has low Br up to 7.4 kG, however, high reliability under high temperature and some solvents. This difference is caused from physical characteristics of binder resin such as resin polarity, melting viscosity, and so on. The authors selected the polar-type polymer with higher melting point compared with polyamide 12 and similar viscosity as polyamide 12 in order to develop the injection-molding magnet with both high performance and high reliability at high temperature. The alignment ratio of magnetic powder in magnet was increased under the increase of resin polarity. During magnetic powder alignment, the melted resin was expanded to magnetic powder homogeneously due to high affinity with magnetic powder surface. It decreased the powder surface friction with magnetic powders and led to high alignment ratio. From this, we successfully developed injection-molding magnet with Br=8.3kG by using selected polymer binder (Fig. 3).

Reference

- 1) Y.Honkura, Proceeding of 19th International Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Their Application, Beijing, CHINA 2006, pp. 231-239.
- 2) C.Mishima,K.Noguchi, et.al. Proceeding of 21st Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and their Applications, Bled Slovenia 2010, pp 253.

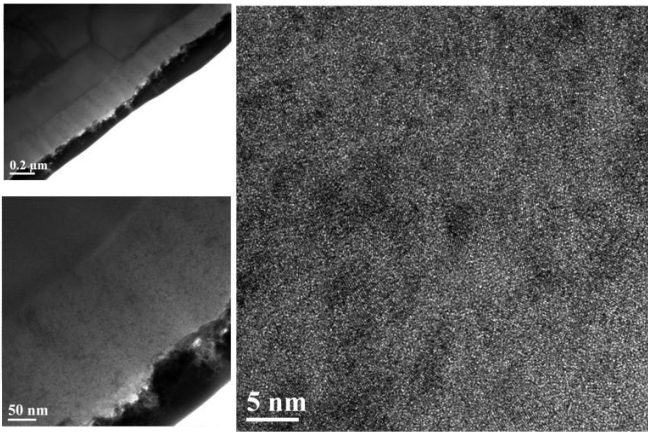


Fig.1. TEM observation results of magnetic powder surface with surface coating.

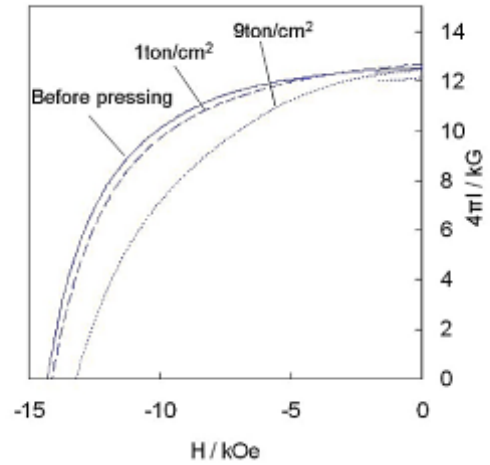


Fig.2. Demagnetization curves before and after molding.

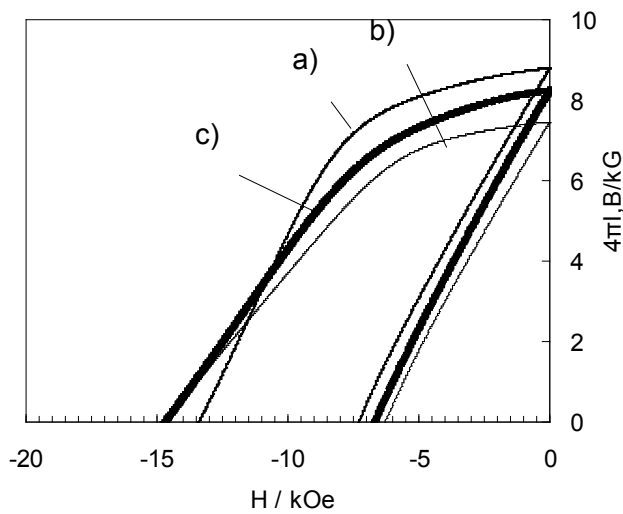


Fig.3. Demagnetization curves of injection molding magnets with a) PA12 binder, b) PPS binder, and c) selected-polymer binder.



## Recent Progress in Fe-based nanocrystalline soft magnetic alloys and their applications

D. Azuma<sup>1</sup>, M. Ohta<sup>1,2</sup>, H. Yamamoto<sup>3</sup> and Y. Yoshizawa<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Soft Magnetic Material Business Unit, Hitachi Metals Ltd., Tokyo 105-8614, Japan

<sup>2</sup> Metglas, Inc. Conway, SC 29526, USA

<sup>3</sup> Yamazaki Manufacturing Dept., Hitachi Metals Ltd., Osaka 618-0013, Japan

<sup>4</sup> Metallurgical Research Laboratory, Hitachi Metals Ltd., Shimane 692-8601, Japan

More than 25 years have passed since Fe-Cu-Nb-Si-B nanocrystalline alloys which are typical alloys of FINEMET<sup>®</sup> had been discovered<sup>1)</sup>. Fe-Cu-Nb-Si-B nanocrystalline alloys are formed to cores and the cores are used in current transformer for ground fault interrupters, common mode chokes (CMC) in EMI filter and high frequency transformers. This is because high permeability from low frequency up to 100 kHz, a high operating magnetic flux density  $B_m$  owing to relatively higher saturation magnetic flux density  $B_s \approx 1.2$  T than that of competitors and low core losses for example core loss at 0.2 T at 100 kHz,  $P_{2/100k} = 48$  W/kg.<sup>1)</sup> For CMC core, there are requirements of downsizing of core as well as improvement of frequency dependence of impedance. Since amount of heat limits the  $B_m$ , and less core loss makes less heat especially in the high frequency transformers, further reduction of core loss enables to use in higher  $B_m$ , resulting in downsizing of core.

In electrical distribution transformers (50Hz / 60 Hz), also energy efficiency has to be improved considering increase of recent energy cost and requirement of CO<sub>2</sub> emission reduction. Fe-based amorphous alloy based transformers show much higher energy efficiency than that based on conventional grain-oriented silicon steel. However, because of low  $B_s \approx 1.6$  T, this is about 80% of grain-oriented silicon steel, physical size of Fe-based amorphous alloy based cores tends to be larger than that based on grain-oriented silicon steel when the same output of transformers was designed.<sup>2,3)</sup> The reason is as follow;  $B_m$  in transformer cores is determined by core loss, noise, frequency and voltage fluctuation in transformers etc. Practically  $B_m$  is about 80 – 85% of  $B_s$ , thus  $B_m$  of grain-oriented silicon steel and Fe-based amorphous alloys based cores is limited around 1.6 - 1.7T and 1.3 - 1.45 T, respectively.

In this presentation, we would like to introduce our research and development to increase  $B_m$  of cores for both high and low frequency applications and new products based Fe-Cu-Nb-Si-B nanocrystalline.

Combination of thinner ribbon thickness (18  $\mu\text{m}$   $\rightarrow$  13  $\mu\text{m}$ ) and magnetic field annealing for Fe-Cu-Nb-Si-B nanocrystalline alloy improved frequency dependence of impedance and decrease core loss, and succeeded in developing new CMC cores (FT-3K50T) and high frequency transformer cores (FT-3TL)<sup>4,5)</sup>.

For low frequency applications, we aimed to create an alloy with nanocrystalline phase with high Fe content. The concept of material design was to realize high  $B_s$  with high Fe content, bcc-Fe phase and excellent soft magnetic properties by randomness of nanocrystalline structure. By adding 1.5 at.% of Cu in basic Fe-B amorphous alloy system, precipitation of primary crystals at as-melt-spun state was confirmed. A nanocrystalline phase of average grain size of about 20 nm was obtained after annealing this ribbon at 390°C for 3.6 ks.<sup>6)</sup>

The mixing heat of Fe and Cu is positive, and hence it suggests that in the quenching process, over saturation of Cu occurs in the supercooled glassy state and that results in the aggregation of Cu clusters. The Cu clusters help to nucleation of primary crystals and crystallization arose from primary crystals, and increase content of B in amorphous matrix lead to nanocrystalline structure resulting excellent soft magnetic properties without adding Nb. After the discovery of this material, further improvement of soft magnetic properties was made for Fe<sub>bal</sub>Cu<sub>1.4</sub>Si<sub>5</sub>B<sub>13</sub> nanocrystalline alloy of which single strip ribbon exhibits core loss at 1.5 T at 50 Hz,  $P_{15/50}$  of 0.29 W/kg, that is about one half of grain-oriented silicon steels, with  $B_s$  of 1.8 T, that is about 10% higher than that of Fe-based amorphous alloys.<sup>6)</sup> However, due to primary crystals in as-melt-spun state, the ribbon is brittle and difficult to handle. To solve this issue, the perspiration of primary crystals at as-melt-spun state has to be avoided what is similar to conventional Fe-Cu-Nb-Si B alloys and/or Fe-M-B (M = transition metals) alloys.<sup>1,7)</sup> These alloys exhibit amorphous phase in as-melt-spun state and become nanocrystalline phase by annealing.<sup>1,7)</sup> Conventional Fe-based nanocrystalline alloys contain at least 2 at.% of a heavy non-magnetic element such as Nb, since decrease of them results in deterioration of

soft magnetic properties when applying normal annealing, for example heating rate of 5 °C/min. Therefore their  $B_s$  is 1.2~1.7 T.<sup>1,7)</sup> It is necessary to reduce the amount of Nb to increase  $B_s$  maintaining nanocrystalline structure. On the other hand, it is known that higher heating rate in annealing process brings about finer nanocrystalline structure.<sup>8)</sup> With combining concepts of less Nb to achieve higher  $B_s$  and high heating rate annealing to achieve excellent soft magnetic properties, Fe<sub>bal</sub>Nb<sub>1</sub>Cu<sub>1</sub>Si<sub>4</sub>B<sub>12</sub> alloy ribbon was developed. Single sheet of this alloy annealed with heating rate of more than 3°C/s up to 450°C exhibits  $B_s$  of 1.78 T and  $P_{15/50}$  of 0.20 W/kg.<sup>9)</sup> The cores made by this material has a high potential to become a next generation high  $B_m$  magnetic core not only for transformers but also for reactors and motors.

#### References

- 1) Y. Yoshizawa et al. *J Appl. Phys.* **64** (1988) 6044.
- 2) G. Y. Chin, and J. H. Wernick: *Ferromagnetic Materials*, ed. E. P. Wohlfarth (North-Holland Physics, Amsterdam, 1980) Vol. 2, p. 55.
- 3) Y. Ogawa, et al.: *J. Magn. Magn. Mater.*, **304** (2006) e675.
- 4) New Product Release FINEMET® Nanocrystalline component, HL-FM30 (2014) 4.
- 5) New Product Release FINEMET® Nanocrystalline component, HL-FM30 (2014) 8.
- 6) M. Ohta, and Y. Yoshizawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (2007) L477.
- 7) K. Suzuki, et al. *Mater. Trans. JIM.* **32** (1990) 743.
- 8) Z. Wang, et al.: *J. Magn. Magn. Mater.*, **171** (1997) 300.
- 9) M. Ohta, and Y. Yoshizawa, *J. Magn. Magn. Mater.*, **321** (2009) 2220.

## RECENT DEVELOPMENTS OF NON-ORIENTED ELECTRICAL STEEL SHEET FOR AUTOMOBILE ELECTRICAL DEVICES

Y. Oda<sup>1</sup>, T. Hiratani<sup>1</sup>, S. Kasai<sup>2</sup>, T. Okubo<sup>1</sup> and H. Toda<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Steel Research Laboratory, JFE steel, Okayama712-8511, Japan

<sup>2</sup> East Japan Works, JFE steel, Kanagawa 210-0855, Japan

In recent years, there has been a strong demand for improving the fuel economy of automobiles in an effort to protect the global environment. To improve the fuel economy, hydraulic drive parts in automobiles have begun to be replaced with electrical drive devices, such as electric power steering (EPS) and electric brake systems. Moreover, a hybrid electric vehicle (HEV) has been developed, and the market is being expanded. In an HEV, some high-frequency electrical devices such as traction motors, generators, air conditioner motors and reactors are used. Therefore, the amount of both motor and actuator use increases, and they are playing an important role in automobiles. Non-oriented electrical steel sheets are used as the core material for such electrical devices, and they are contributing to the improvement in the efficiency of the apparatus.

In this paper, recent developments of non-oriented electrical steel sheet for automobile electrical devices, such as HEV traction motors, EPS motors and high-frequency reactors, are reviewed and discussed.

In HEV traction motors, high torque, high efficiency and small size are demanded. In order to satisfy such demands, the internal permanent magnet (IPM) type motor is mainly used in Japan. Non-oriented electrical steel sheets for HEV traction motors should have high magnetic flux density for high torque, low iron loss for high efficiency and high strength for reliability. JFE Steel has developed electrical steel sheets for energy efficient motors<sup>1)</sup>, and it is suitable for HEV traction motors. The developed material achieved low iron loss and high magnetic flux density by high purification and texture control. Moreover, JFE Steel has developed thin-gauge electrical steel sheets for high frequency motors. This material shows lower iron loss than that of conventional products in high-frequency range (Fig.1).

Some of the HEVs are equipped with a converter/inverter for power conversion. The properties of low iron loss in the high frequency range for compactness, together with low noise for quietness are required in the core material for this application. JFE Steel developed a 6.5% Si steel sheet, which shows low iron loss and low noise in the 400Hz to 10kHz so it is the optimum material for high frequency reactors (Table 1).

### References

- 1) Y. Oda, M. Kohno, A. Honda, Journal of Magn. Magn Mater. 2430-2435 (2008) 320

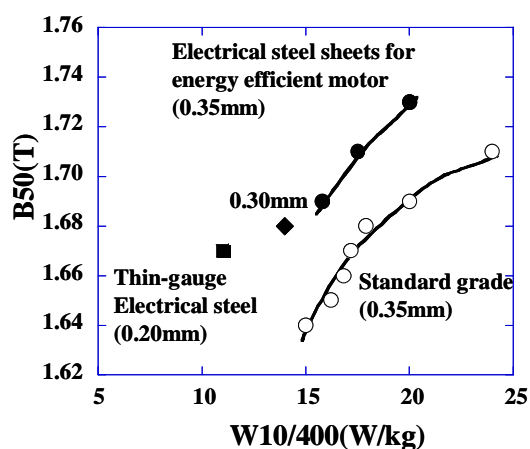


Fig.1 Magnetic properties of thin-gauge electrical steel sheet

Table 1 Magnetic properties of 6.5% Si steel sheet

Materials	Thickness (mm)	Saturation magnetization (T)	Iron loss W <sub>10/400</sub> (W/kg)	Magnetostriction λ <sub>10/400</sub> (×10 <sup>-6</sup> )
6.5%Si steel	0.10	1.80	5.7	0.1
Grain oriented electrical steel sheet (Si:3wt%)	0.10	2.00	7.2	-0.8
	0.23	2.00	7.8	
Non-oriented electrical steel sheet (Si:3wt%)	0.20	2.00	10.4	7.8
	0.35	2.00	14.4	
Fe-based amorphous	0.025	1.50	1.5	27

## Research and Development of Next Generation Motors and Its Future Issues

Satoshi Ogasawara and Masatsugu Takemoto  
(Hokkaido University, Sapporo 060-0814, Japan)

This paper introduces research and development of next generation motors for electric vehicles (EVs) and hybrid electric vehicles (HEVs) in Hokkaido University, including a traction motor for HEV and an in-wheel axial-gap motor for electric city commuters. Some design points of the motors and its future issues are described, associated with characteristics of magnetic materials.

Fig. 1 shows proposed structure of a traction motor for hybrid electric vehicles without rare earth materials. Using ferrite magnets, axial gap structure and segment rotor structure are adopted to obtain high performance comparable to the traction motor with rare earth magnets for HEVs. The stator core having 24 tooth is made of SMC core and a 3-phase 10-pole concentrated winding is wound around the stator core. In order to generate reluctance torque, the rotor is structured by building the ferrite PMs and the SMC cores into the rotor support component. In spite of the rare-earth-free motor using the ferrite PM that the energy product is about 1/10 of the rare earth PM, the maximum torque reaches 75.3% of the high-performance PMSM using the rare earth PM in the same volume. The ratio of the reluctance torque is very big of 49.2%, when the maximum torque is generated. The prototype can fulfill an equal output power of 50 kW at the same volume as the high-performance radial gap type PMSM of the second-generation Toyota Prius.

Fig.2 shows proposed structure of a ferrite PM in-wheel motors with axial-gap structure for electric city commuters. The motor is characterized by the sophisticated structure incorporating a reduction gearbox into the inner side of the stator to generate large output torque. In the other side of the stator, a resolver as a position sensor is installed for closed control of the motor. The ferrite PM is used instead of rare earth PM and the coreless structure is adopted to minimize demagnetization of the permanent magnets and to eliminate the rotor iron loss. Three prototypes are constructed and evaluated. Some experimental results will be shown in the presentation.

### Reference

- 1) T. Miura, S. Chino, M. Takemoto, S. Ogasawara, A. Chiba, N. Hoshi: "A ferrite permanent magnet axial gap motor with segmented rotor structure for the next generation hybrid vehicle", International Conference Electrical Machines (ICEM), 2010.
- 2) Masatsugu Takemoto: "Developments of Ferrite PM In-Wheel Motors with Axial-Gap Structure for Electric City Commuters", EVTeC & APE Japan 2014, Pacifico Yokohama, Yokohama, JAPAN, May 22-24, 2014.

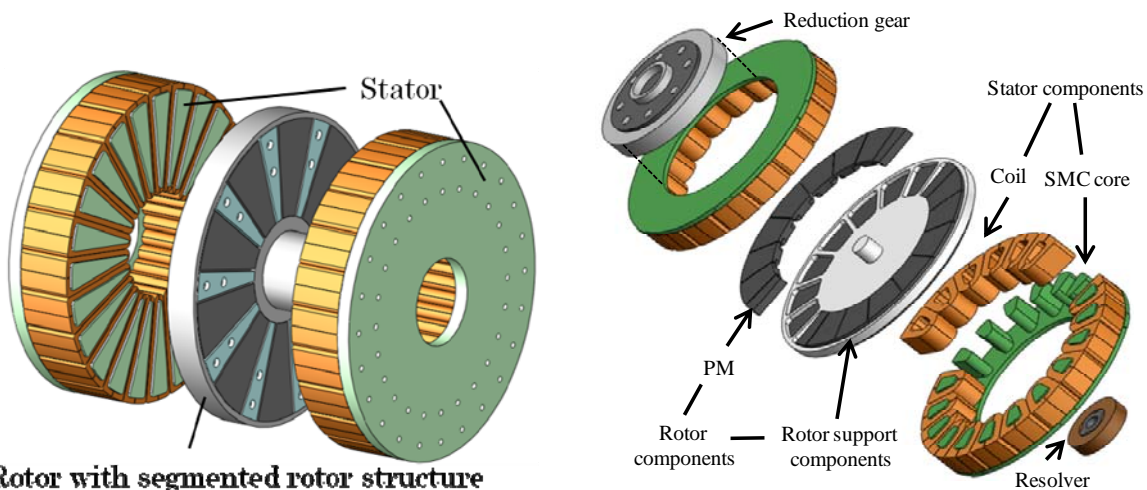


Fig.1 Traction motor for HEVs without rare earth materials. Fig.2 In-wheel axial-gap motor for city commuters.

# Movement of Traction Drive Motor for EV/HEV

## - High Performance Design-concept and Issues of Permanent Magnet Motor for Toyota Prius -

Ryoji Mizutani

Hybrid Vehicle Advanced Technology Engineering DIV., TOYOTA MOTOR CORPORATION

Permanent magnet motors were improved remarkably, after Nd-Fe-B magnets were invented in the first half of the 1980's, and high power semi-conductor has made progress. Since then permanent magnet motors for EV/HEV traction drive have been developed rapidly with high performance of output. The reason is because it is attempting the optimization of the system-wide driving force which included the final gear ratio of running drive of cars such as engine and reduction gear in addition to motor design technique as electrical appliance. Figure 1 shows the cut model photograph of the trans-axle which introduced into Toyota Prius from the 1st generation to the 3rd generation, and the concept of the motor downsizing. The motor size is 38 % smaller in the 2nd generation and moreover 74 % smaller in the 3rd generation than that in the 1st generation. We have make progress in downsizing with the three concepts as follows. The first is Nd-Fe-B magnets with high performance, the second is higher system voltage, the third is higher rotation speed. In the motor specification of the 3rd generation Prius, the system voltage is 650V and the maximum rotation speed is 13500rpm.

The issues for realizing the three concepts are as follows;

- (1) Insulation technology for higher system voltage: That keeps distance among coils or between coil and stator.
- (2) Design to downsize high speed reduction gears, to strengthen rotor against centrifugal force at the highest speed and to reduce losses of motors for higher rotation speed: The improved design of machine elements is shown in Fig.1. And the improved design of motor is shown in Fig.2.
- (3) Cooling technology: Traction motor is cooled by ATF (Automatic Transmission Fluid) because the motor and reduction gears are in the same trans-axle case. The cooling system using ATF is shown in Fig.3.

It is composed of differential gear which is slinging ATF, catch tank, oil pump which deliver ATF to the heating site and water jacket

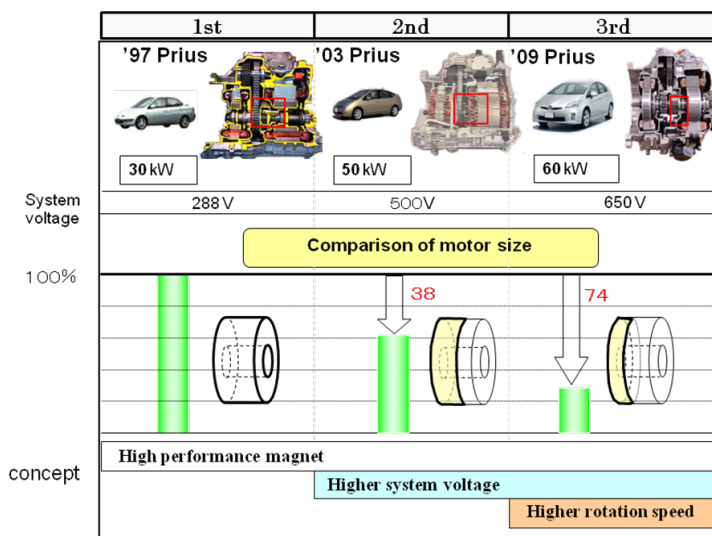
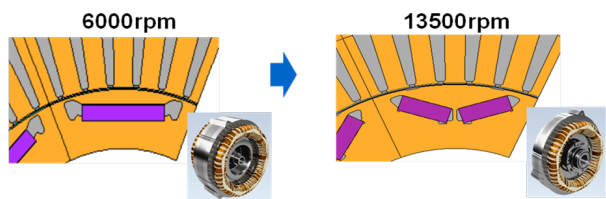


Fig. 1 Concept and Characteristics of Trans-axle Unit for 1st-3rd Prius



(1) 2nd Prius (2) 3rd Prius (V-Shape)

Fig. 2 Arrangement of Rotor Magnets for 2nd and 3rd Prius

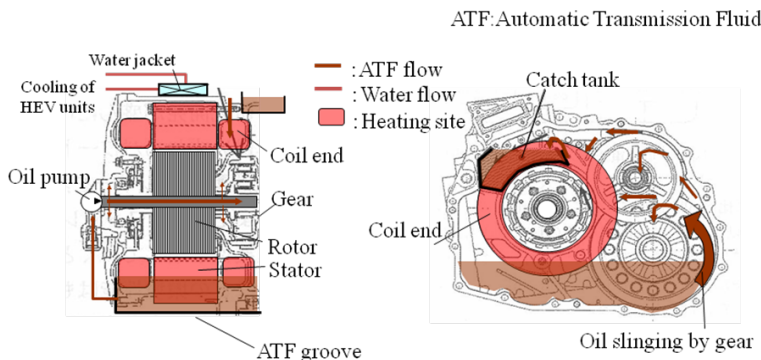


Fig. 3 Cooling system using ATF

## Development of Axial Flux Permanent Motors with Amorphous Cores

Z. Wang<sup>1</sup>, Y. Enomoto<sup>1</sup> and K. Souma<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Hitachi Research Laboratory, Hitachi, Ltd., Hitachi 319-1292, Japan

<sup>2</sup>Hitachi Industrial Equipment Systems Co., Ltd. AKS Bldg., Tokyo 101-0022, Japan

In electrical machines, the use of rare-earth magnets enables smaller motors to perform with higher power and efficiency. Over the past 30 years, electrical machines equipped with rare earth magnets have been used in a wide variety of industries such as automotives, home appliances, electronics, and power plants. With increasing demand for green energy products, rare earth magnets have become virtually indispensable in the industrial market. However, the limited supply of rare earth elements such as neodymium and dysprosium has made the development of alternative technologies for high efficiency motors a top priority. This research aims at increasing motor efficiency without relying on rare earth metals by using a novel motor design to decrease losses within the motor.

Non-rare earth magnets, such as ferrite or ceramic permanent magnets are typically 50% to 70% weaker than rare earth magnets. Increasing the output of a motor using these weaker magnets is extremely difficult with conventional radial-flux permanent-magnet (RFPM) motor. In this research, the axial-flux permanent-magnet (AFPM) motor with double-rotor and single-stator is proposed to obtain larger output torque. Fig.1 shows the structure of a RFPM motor and Fig. 2 shows the structure of an AFPM motor with double-rotor and single-stator. Furthermore, amorphous magnetic materials (AMMs) have features of extremely low iron losses, and high magnetic permeability, which can improve motor performance when combined with low energy magnets [1] and [2]. However, commercial amorphous metal is typically processed as 0.025mm thick tape. Amorphous tape is very hard and brittle, which makes stamping or pressing difficult.

This paper presents the development of amorphous cores for electrical motor's application. A new method to process low iron loss amorphous cores is introduced. The concepts of designing AFPM motors are introduced. The design, manufacturing and test results of 11kW industrial motor are presented. This motor delivered 93% efficiency at full load, which places the motor in the IE4 level in the efficiency standard IEC60034-30, as published by the International Electrotechnical Commission (IEC).

### Reference

- 1) Z. Wang, Y. Enomoto, M. Ito, R. Masaki, S. Morinaga, H. Itabashi, and S. Tanigawa, "Development of a Permanent Magnet Motor Utilizing Amorphous Wound Cores," IEEE Trans. Magnetics, vol. 46, pp. 570-573, Feb. 2010.
- 2) Z. Wang, Y. Enomoto, M. Ito, R. Masaki, S. Morinaga, H. Itabashi, and S. Tanigawa, "Development of an Axial Gap Motor with Amorphous Metal Cores," IEEE Trans. Industry Applications, vol.47, no.3, pp.1293-1299, May/June2011.

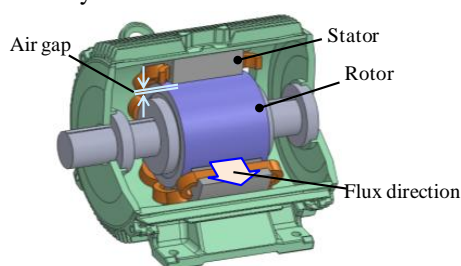


Fig.1 Radial-flux permanent-magnet motor.

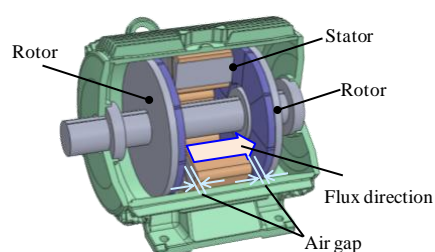


Fig.2 Axial-flux permanent-magnet motor.

Some of these developments are granted by the New Energy and Industrial Technology Development Organization(NEDO) through the "Funding program for development of realization technology for replacement and reduction of rare-earth metal".

## Development of High Density and Low Loss Powder Magnetic Core for Reactor in Hybrid Vehicles

Takeshi Hattori<sup>1</sup>, Masaki Sugiyama<sup>2</sup>, Hidefumi Kishimoto<sup>2</sup>, Takanobu Saito<sup>3</sup>  
<sup>1</sup>TOYOTA CENTRAL R&D LABS., INC., <sup>2</sup>TOYOTA MOTOR CORPORATION,  
<sup>3</sup>DAIDO STEEL CO., LTD.

Automobile usage has expanded throughout the world in recent years and has become one of the foundations of human society and economic activity. However, one of the repercussions of this trend is environmental issues such as global warming due to CO<sub>2</sub> emissions and air pollution. Consequently, there is a growing need for the development of hybrid and other low-emission vehicles. As part of these efforts, Toyota is working to popularize hybrid vehicles (HVs) by developing lower cost technology to help provide reasonably priced vehicles for the customer.

The subject of this presentation is the reactor, which is a part used in the boost converter inside the power control unit (PCU) in HVs. The purpose of the reactor is to increase the output of the HV system while lowering costs by reducing the required battery capacity of the vehicle. A reactor must be capable of stably achieving the inductance required for boosting the voltage of the system. At the same time, a reactor must also prevent overheating and achieve low core loss and low vibration to reduce noise inside the vehicle. For these reasons, the optimum core material is thin ( $t=0.1$  mm) electrical steel sheets with low magnetostriction. These sheets have low core loss and generate extremely low amounts of magnetostriction. However, since these sheets are expensive, a lower cost core material needed to be developed.

A new type of powder was developed for the reactor and a high density powder compaction technique was adopted<sup>1)</sup>. We focused on a high density powder compaction using net shaping, which is a technology capable of reducing manufacturing process and increasing material yields.

- (1) The particle shape of the Fe-Si magnetic powder was controlled to a spheroidal powder.
- (2) The surface of the powder was coated with a newly developed SiO<sub>2</sub> insulator.
- (3) The high density compaction technique increased the strength of the powder magnetic core.

As a result, the magnetic flux density was increased by approximately 35% and core loss was reduced by approximately 40% (Fig.1). The reactor core with equivalent electromagnetic characteristics to electrical steel sheets, for which is difficult to achieve with conventional powder magnetic cores, was developed and a great cost reduction was achieved. This is the first powder reactor core in the world to be installed in a vehicle (Fig.2, the third generation Prius that was launched in 2009).

### Reference

- 1) T. Hattori, M. Sugiyama, H. Kishimoto, and T. Saito: "Development of High-Density and Low-Loss Powder Magnetic Core for Reactor in Vehicles" (in Japanese). Annual Congress (Autumn) of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, 80 (2013).

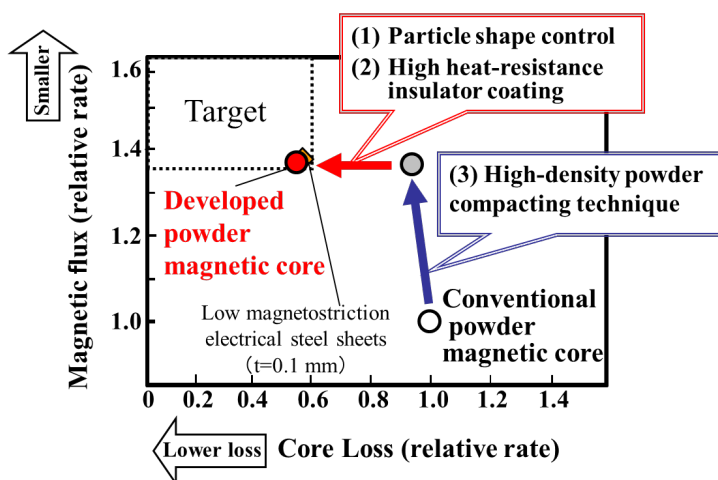


Fig.1 Positioning of Developed powder magnetic core

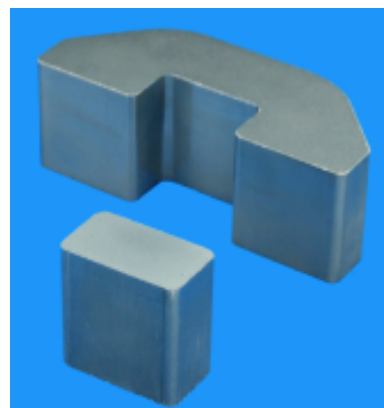


Fig.2 Developed reactor core

# Measurement technology of new permanent magnets and motors for development of high efficiency motors.

T. Kondo, S. Araki, Y. Sanga, Y. Asano, A. Yamagiwa

(Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM))

Recently, the demand for high-efficiency motors has been increased for saving the energy. However, the high energy product magnets without heavy rare-earth elements, of which ores are eccentrically located in some areas, are necessary to apply for high-efficiency motors of Hybrid Electric Vehicles (HEVs). Therefore, Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors (MagHEM) was founded in 2012 and consists of nine companies, an incorporated administrative agency, and an organization<sup>1)</sup>. The objective of MagHEM is the development of innovative magnetic materials by 2017 and 2022 and high-efficiency motors of HEV using these materials. In this paper, we introduce the activities for developing high-efficiency motors in MagHEM.

First, we show the development of motor material evaluation techniques for the development of high-efficiency motors using new magnetic materials developed by MagHEM. It is necessary to evaluate the demagnetization characteristics of magnets in a high-temperature environment because HEV/EV motors are used in this environment. However, the demagnetization state is not uniform in the magnet owing to the nonuniformity of the magnetic properties and the strength of the magnetic field applied by the armature coils. Furthermore, the flux density is only measured on the surface of the magnet to evaluate the demagnetization state, and the state inside the magnet is estimated by using FEA. Therefore, we develop a method to evaluate the three-dimensional demagnetization state including the inside the magnet by cutting the magnet into the cubes, as shown in Fig.1, and measuring the B-H characteristics of each magnet cube.

Further, it is important to establish a high-precision motor-loss measurement technology, especially the iron loss, for accurate evaluation of the motor efficiency. The mechanical loss generated in the bearings makes it difficult to precisely evaluate the iron loss in a conventional measurement system. Therefore, we are developing a high-precision motor-loss measurement system that dramatically reduces the mechanical loss in the system, as shown in Fig.2.

## Reference

- 1) Technology Research Association of Magnetic Materials for High-Efficiency Motors,  
<http://www.maghem.jp/english/about.html>

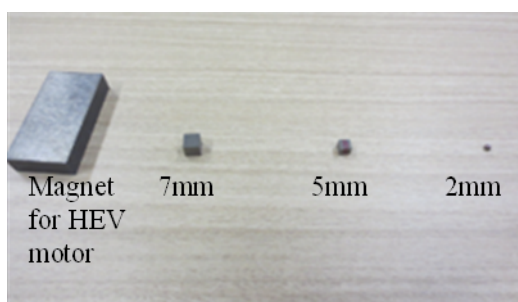


Fig. 1 Magnet cut into cubes.



Fig. 2 High-precision motor-loss evaluation system.



# パルス電流を用いたパックマンディスクにおける Vortex Core の極性反転

山田啓介, 佐藤知徳, 仲谷栄伸  
電通大情報理工

Switching of the Magnetic Vortex Core in a Pac-man Disk using a Single Current Pulse  
Keisuke Yamada, Tomonori Sato, and Yoshinobu Nakatani,  
Graduate School of Informatics and Engineering, The University of Electro-Communications,

## はじめに

磁気渦構造は、ソフト磁性体で作られた直径数百 nm～数 $\mu\text{m}$  程度の磁気ディスクに現れる特徴的な磁区構造である。磁気渦構造は、還流磁区構造(右/左巻き)や Vortex Core(渦コア)と呼ばれる中心部の吹き出し磁化(上/下向き)を持ち、それぞれ二成分の要素が独自にあることから、この特性を利用した不揮発性の記録素子が期待されている[1]。近年、渦コアの向きを交流・パルス・回転磁場/電流を用いて効率よく反転させる研究が盛んに行われてる[2,3]。今までに我々は、磁気ディスクにノッチ構造を持つパックマンディスク(PM)と呼ばれる磁気ディスクに注目し[4]、パルス磁場を用いて渦コアの反転エネルギーを減少させることを示した[5]。今回我々は、渦コア反転の制御性を高める方法を調べるため、ナノ秒オーダーのパルス電流を用いてパックマンディスク中の渦コア反転についてマイクロマグネティックシミュレーションより調べた。

## 結果

渦コアの樽型形状を再現するために、シミュレーションでは3次元モデルを用いた。ディスクを  $2 \times 2 \times 2.5 \text{ nm}^3$  の立方体セルで分割し、各セル内の磁気モーメントの運動は Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を解いて求めた。計算に用いたディスクは、直径  $D=200 \text{ nm}$ 、膜厚  $h=40 \text{ nm}$ 、ノッチサイズは、円周外側からの深さ  $d$  とノッチ角度  $\theta$  で定義した(図 1(a))。今回の計算では、ディスクや電極を流れる電流分布も考慮した。物質定数は、パーマロイ材の値を用いた[3,5]。パルス電流強度とパルス幅による反転の有無について調べた結果を図 1(b)に示す。渦コア反転に必要な閾反転電流密度( $j_c = 1.1 \times 10^{12} \text{ A/m}^2$ )は、同じ直径、膜厚を持つ円ディスクに比べて 75 %減少した。渦コア反転が起こる際に生成されるコアの向きは、コアの移動によって誘起されるキネティック磁場[3]の方向で決まることがわかった。また、渦コアの向きは、適切なパルス長と電流密度を持つパルス電流の印加方向により、一意に決めることが可能であることを示した。

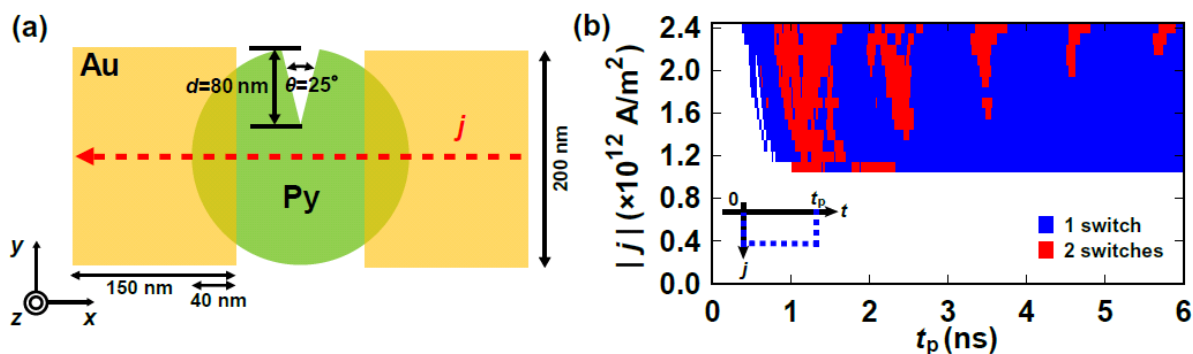


Figure 1 (a) Simulation model of the PM disk. (b) Diagram of the core switching as a function of the current pulse duration and amplitude in the PM disk.

## 参考文献

- [1] T. Shinjo, *et al.*, *Science* **289**, 930 (2000). [2] B. Van Waeyenberge, *et al.*, *Nature* **444**, 461 (2006).  
[3] K. Yamada, *et al.*, *Nature Mat.* **6**, 270 (2007). [4] M. H. Park, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 329 (2003).  
[5] T. Sato, *et al.*, *Appl. Phys. Express.* **7**, 033303 (2014).

## 拡張フーリエ像を用いたリバースモンテカルロ法による磁区構造の再構成

時井真紀、喜多英治、三俣千春\*、小野寛太\*\*、柳原英人、松本紳  
筑波大、\*物質・材料研究機構、\*\*高エネルギー加速器研究機構

Reconstruction of magnetic domain structure using Reverse Monte Carlo method with extended Fourier image

M.Tokii, E.Kita, C.Mitsumata\*, K.Ono\*\*, H.Yanagihara, M.Matsumoto

Univ. of Tsukuba, \*National Institute for Materials Science,

\*\*High Energy Accelerator Research Organization

中性子回折実験において得られた逆格子空間での情報から実空間での磁区構造を再構成することは、磁化過程の解釈に有用である。しかし、位相情報が欠落しているため、磁区構造への再構成は困難である。そこで回折データ分析に広く用いられ、3次元構造モデルの再構築にも利用されているリバースモンテカルロ法<sup>1,2)</sup>を用いた磁区構造の可視化を試みた。これまで、実空間像として、ストライプ構造や迷路構造を仮定し、リバースモンテカルロ法により、磁区構造の再構成を試みてきた。ボルツマン関数を用いたシミュレーテッドアニールの手法を取り入れることにより逆空間像と一致する磁区構造を得ることはできた。しかし、位相情報の欠落が原因で、磁区構造にずれが生じてしまう結果となった。そこで、逆空間像を拡張することで、実空間の位相のずれを回避する方法をリバースモンテカルロ法に取り入れた。実空間像と逆空間像を拡張した際の関係性から、未知の領域の算出方法を検討した結果、隣接する既知の値の平均を使用することで、Fig.1の計算結果に示すように実空間像における位相のずれを改善することができた。今後、さらに有効な手法を検討する予定である。

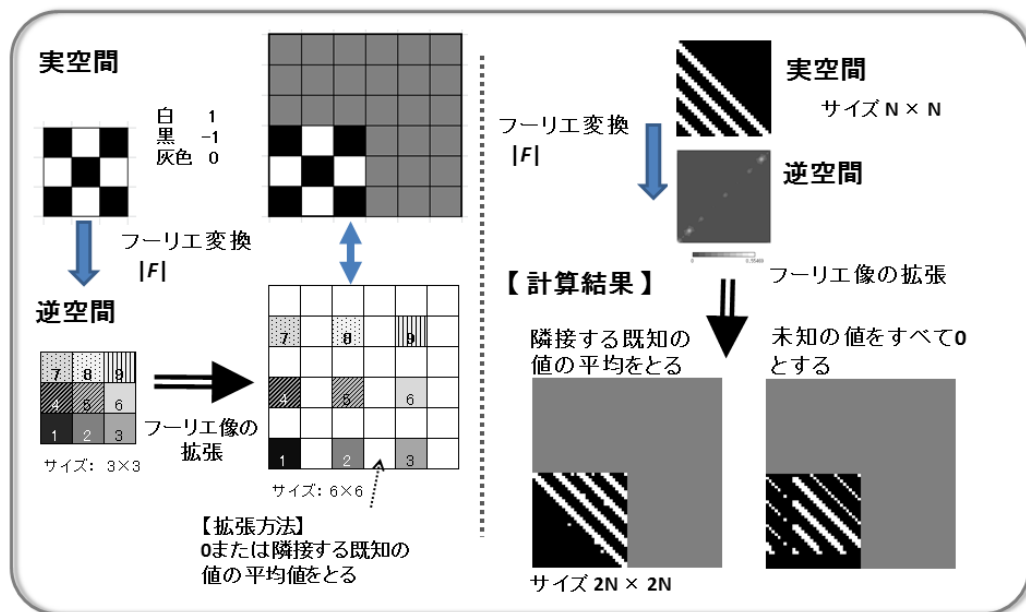


Fig.1 拡張フーリエ像を用いたリバースモンテカルロ法による計算手法と結果

### 謝辞

本研究は、(独) 科学技術振興機構(JST)による産学共創基礎基盤研究「革新的次世代高性能磁石」の支援を受けて行われたものである。

### 参考文献

- 1) K.Hagita, H.Okamoto, T. Arai, H.Kishimoto, N.Umesaki, Y.Shinohara, Y.Amemiya, AIP Conf. Proc. 368(2006) .
- 2) O.Gereben, L.Pusztai and R.L.McGreevy, J. Phys.: Condens.Matter, 22, 404216(2010).

## 積層 CoPt 垂直磁気異方性薄膜の層間相互作用が磁区構造に及ぼす影響

河村春樹, 早川研人, 杉田龍二  
(茨城大)

Effect of interlayer interaction on domain structure of CoPt stacked thin films with perpendicular anisotropy

H. Kawamura, K. Hayakawa, and R. Sugita  
(Ibaraki Univ.)

## はじめに

Co 基垂直磁気異方性薄膜は高い結晶磁気異方性と飽和磁化を有するため、ハードディスク用記録層として研究されている<sup>1)</sup>。積層 Co 基垂直磁気異方性薄膜の層間相互作用と磁気特性との関係について多くの研究が行われているが<sup>2), 3)</sup>、静磁相互作用が磁区構造に及ぼす影響に関しては不明な点が多い。本研究では、CoPt/Pt/CoPt 垂直磁気異方性薄膜において特に静磁相互作用に着目し、それが磁区構造に与える影響について検討した。

## 実験方法

積層 CoPt 薄膜は RF マグネトロンスパッタリング装置を用いて基板加熱を行わず作製した。構造は、 $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x(3 \text{ nm})/\text{Pt}(\delta_{\text{Pt}} \text{ nm})/\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x(10 \text{ nm})/\text{Pt}(100 \text{ nm})/\text{Glass substrate}$  である。x = 20, 30, 及び 40 at% とした。成膜時の Ar ガス圧を 2 mTorr とし、Pt 中間層の膜厚  $\delta_{\text{Pt}}$  を 0~30 nm の範囲で変化させた。磁区構造は磁気力顕微鏡 (MFM) により観察した。

## 実験結果

膜面垂直方向磁場により AC 消磁した積層 CoPt 垂直磁気異方性薄膜の MFM 像を Fig. 1 に示す。いずれの組成においても、 $\delta_{\text{Pt}}$  が薄い場合には  $\delta_{\text{Pt}} = 0$  と同様の maze 磁区が見られ、 $\delta_{\text{Pt}}$  が厚くなると irregular 磁区になる。これは、 $\delta_{\text{Pt}}$  が薄い場合には上層と下層が静磁的に結合し、両層の磁化分布が一体化したためである。なお、 $\delta_{\text{Pt}} = 0$  の膜が  $\delta_{\text{Pt}} \neq 0$  の積層膜に比べて maze 磁区の幅が狭くなっているのは、交換相互作用が加わるためと思われる。一方、 $\delta_{\text{Pt}}$  が厚くなると、上層に及ぼす下層の影響が減少するため、膜厚 3 nm の CoPt 単層膜の磁区である irregular 磁区が出現する。Fig. 1 より、maze 磁区から irregular 磁区へ変化するときの  $\delta_{\text{Pt}}$  の値  $\delta_{\text{Pt,T}}$

は、Pt 含有量が 20 at% から 40 at% に増加するのに伴って約 25 nm から 15 nm に減少していることがわかる。このような  $\delta_{\text{Pt,T}}$  の Pt 含有量依存性は、飽和磁化の減少に伴う漏れ磁場の減少に起因するものと考えられる。

## 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 C(24560394)により行われました。ここに深謝致します。

## 参考文献

- 1) Y. Wang, J. Ariake, T. Wang, S. Watanabe, N. Honda, F. S. Li, K. Ouchi: *J. Appl. Phys.*, **107**, 7732 (2010).
- 2) Y. Yamaguchi, S. Sato, S. Kumagai, T. Komine, and R. Sugita: *IEEE Trans. Magn.*, vol. 49, pp. 3584-3587(2013).
- 3) L. Lei, Y. Lu, Z. Liu, Y. Lv, Y. Zhang, S. Liu, C. Hao, and W. Lv: *J. Magn. Magn. Mater.*, **325**, 117 (2013).

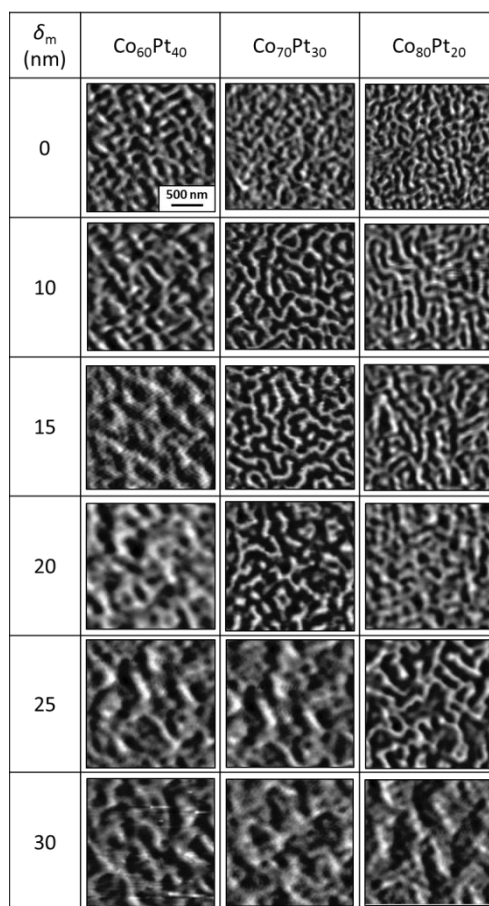


Fig. 1 MFM images of CoPt / Pt / CoPt films.

## 希土類金属 Dy の磁場誘起相転移相における磁気ヒステリシス・スケーリング特性

小原遼, 小林悟

(岩手大学)

## Magnetic hysteresis scaling in a field-induced phase for rare-earth metal Dy

Ryo Obara, Satoru Kobayashi

(Iwate University)

## 背景

磁壁の非可逆的移動を反映した B-H ヒステリシスループにおいて、その変数間に普遍的な磁気スケーリング特性が成り立つことが知られており、近年この法則性を利用した材料評価が着目されている。前回、リング型 Dy 多結晶試料を用いた B-H ループ測定から、ブロッホ磁壁の非可逆的移動が支配的な強磁性相の他、スパイラル磁壁が寄与するヘリカル相においても、べき指数 1.3~1.4 のスケーリング則が成り立つことが見出された。<sup>1)</sup> この結果はスケーリング則が磁壁、磁気秩序相に依存しないことを示唆する。しかし、励磁コイルを巻き付けたリング試料を用いたため最大磁場に実験的制約があった。そこで本研究では SQUID 磁化測定装置を用い、複雑な磁気構造を有する希土類金属 Dy の広い温度・磁場領域において磁気ヒステリシス・スケーリング則の妥当性を検証したので報告する。

## 実験方法

SQUID 磁束計を用いて多結晶 Dy 棒状試料について BH ループ測定を行った。Dy は面内磁気異方性を持ち、多彩な磁性相 ( $T_c=85\text{K}$  以下: 強磁性、Neel 温度  $T_N=175\text{K}$  以下: ヘリカル磁性、有限磁場中: ヘリファン磁性、ファン磁性) を示す。<sup>2)</sup>  $T=10\sim 170\text{K}$ 、 $H<2\text{T}$  の温度磁場範囲で測定を行った。

## 実験結果

ゼロ磁場近傍において強磁性相及びヘリカル磁性相の両相でべき指数  $n_m=1.36\pm 0.05$  のスケーリング則が得られた。これは以前のリング状試料で得られたべき指数と同様の値であり、磁壁の種類に依存しないスケーリング則の存在が本測定系でも確認された。

図 1 に有限磁場  $H_{dc}$  の周りで測定した結果を示す。測定は磁化が大きく磁場変化する磁場誘起相転移磁場近傍で行い、それぞれ強磁性相 ( $T=120\text{K}$ ,  $H_{dc}=5250\text{Oe}$ ), ファン磁性相 ( $T=150\text{K}$ ,  $H_{dc}=9250\text{Oe}$ ), ヘリファン磁性相 ( $T=170\text{K}$ ,  $H_{dc}=10500\text{Oe}$ ) 近傍のデータに対応する。ヒステリシス損失  $W_F^*$  と残留磁束密度  $B_R^*$  の間にスケーリング則が存在し、べき指数は  $n_m=1.62\pm 0.02$  の値を示した。ゼロ磁場近傍での値からのずれの理由については不明であるが、有限磁場下でもべきのスケーリング則が成立することが確認された。

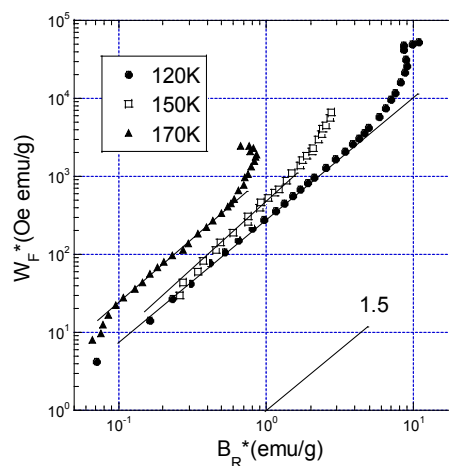


図 1: 有限磁場中におけるヒステリシス損失  $W_F^*$  と残留磁束密度  $B_R^*$  の両対数プロット

## 参考文献

- 1) S. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. 106, 057207 (2011).
- 2) S. Legvold, Ferromagnetic Materials, (North-Holland Physics Publishing, 1986), p. 183.

## 磁気コンプトン散乱による希土類-遷移金属薄膜の

## スピン・軌道・元素選択ヒステリシス測定

安居院あかね、櫻井浩\*、鈴木宏輔\*

(原子力機構、\*群馬大院理工)

Spin/Orbital/Element specific hysteresis curve of rare earth - transition metal film by magnetic Compton scattering measurement

A. Agui, H. Sakurai\*, K. Suzuki\*

(JAEA, \*Gunma Univ.)

## はじめに

最近、磁気コンプトン散乱と SQUID・VSM 等の測定と組み合わせた、スピン選択磁気ヒステリシス曲線 (SSMH) および軌道選択磁気ヒステリシス曲線 (OSMH) の測定が報告されている<sup>1,2)</sup>。さらに、我々は磁気コンプトンプロファイル (MCP) を解析し、元素選択磁気ヒステリシス曲線 (ESMH) を測定する手法を開発した<sup>3,4)</sup>。本発表では、これまでに希土類-遷移金属薄膜について行った SSMH、OSMH および ESMH の測定結果<sup>3,4)</sup>を報告する。

## 実験方法

磁気コンプトン散乱測定は大型放射光施設 SPring-8・BL08W で行った。試料は Tb, Co, Fe をターゲットとし RF スパッタリング法で Al フォイル箔 (12 $\mu$ m) 上に成膜した。薄膜はアモルファス合金であり、膜厚は 1 $\mu$ m とした。磁気コンプトン散乱および SQUID 磁力計の測定は、磁場を薄膜面に垂直に印加して行った。

## 実験結果

Fig. 1(a), (b)に Tb<sub>43</sub>Co<sub>57</sub>, Tb<sub>32</sub>Fe<sub>55</sub>O<sub>13</sub> の磁化曲線を示す<sup>3,4)</sup>。実線は SQUID 磁力計で測定した全磁化曲線、●は磁気コンプトン散乱から求めた SSMH、○は全磁化曲線と SSMH の差から求めた OSMH である。Tb<sub>43</sub>Co<sub>57</sub> では SSMH と OSMH が全磁化と同じ極性になっているのに対し、Tb<sub>32</sub>Fe<sub>55</sub>O<sub>13</sub> は SSMH が全磁化曲線と同じ極性で、OSMH が逆を向いている。また、SSMH と OSMH の形状は異なっている。これは希土類、遷移金属ごとの磁気モーメントの印加磁場依存性を反映していることがわかった。本手法は磁化反転を引き起こす前駆現象の検証など磁気スイッチング研究に応用できると考えている。

## 参考文献

- 1) A. Agui et al., J. Synchrotron Radiat., 17 (2010) 321.
- 2) M. Itou et al, Appl. Phys. Lett., 102 (2013) 082403.
- 3) A. Agui et al., Appl. Phys. Express, 4 (2011) 083002.
- 4) A. Agui et al., J. Appl. Phys., 114 (2013) 183904.

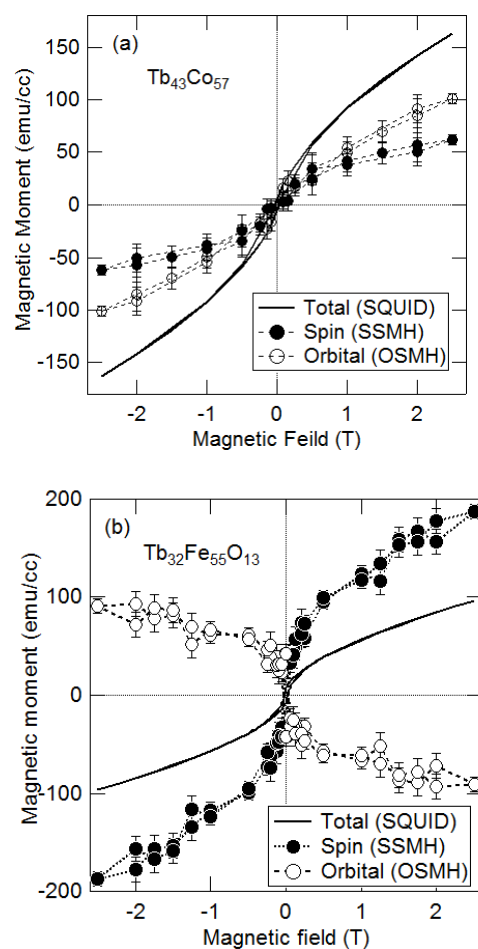


Fig. 1: (a) Magnetization curves of total, spin and orbital magnetic moment of Tb<sub>43</sub>Co<sub>57</sub> and (b) Tb<sub>32</sub>Fe<sub>55</sub>O<sub>13</sub> films.<sup>3,4)</sup>

# X 型強磁性交差細線における磁気反渦生成過程

後藤 穰、棚澤 友幾、関口 康爾\*、能崎 幸雄\*\*  
 (慶大理工、\*JST PRESTO、\*\*JST CREST)

Magnetization process of antivortex in X-shaped ferromagnetic cross wire

M. Goto, T. Tanazawa, K. Sekiguchi, Y. Nozaki  
 (Keio University, \*JST PRESTO, \*\*JST CREST)

## はじめに

磁気渦や磁気反渦と呼ばれるトポロジカルな磁化構造は磁化ダイナミクスの理解や人工格子への応用など、基礎と応用の両面から注目されている[1, 2]。しかし、磁気渦と比べて磁気反渦は実験の報告例が少なく、適切な試料形状や着磁過程があまり理解されていない。そこで本研究では磁気反渦の磁化過程を理解するため、X 型交差細線[3]の異方性磁気抵抗(AMR)比の変化を測定し、磁場掃引後の磁気力顕微鏡(MFM)像と比較した。更に、交差細線の磁化過程と磁気反渦の電気的な判別手法についても報告する。

## 実験方法

図 1 に X 型  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  交差細線の光学顕微鏡写真と回路図を示す。左上の電極端子から右下の電極端子へ電流を印加しながら磁場掃引に伴う抵抗変化を 2 端子測定した。初めに  $x$  方向へ  $-100$  mT を印加し、磁化を飽和させる。次に電気抵抗を測定しながら磁場  $B_x > 0$  mT で折り返し、零磁場へ掃引する。その後、MFM 測定より交差中心の磁区構造を確認した。

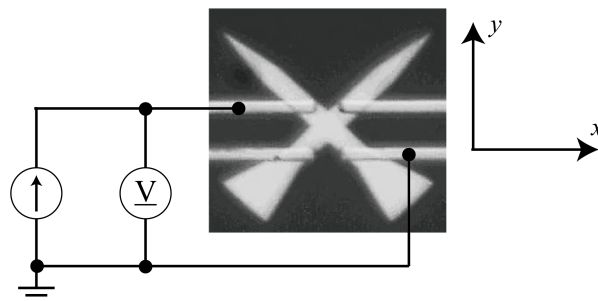


図 1 交差細線の光学顕微鏡写真と回路図

## 実験結果

図 2 に交差中心の MFM 像と AMR 比を示す。太い細線の磁化反転が確率的なため、同じ着磁経路でも形成される磁化構造は異なる。更に、各々の磁化構造の生成確率は折り返し磁場にも依存する。図 2 より、磁気反渦構造が生成する場合は残留磁化状態の抵抗が増加することが分かる。この結果より、電気抵抗変化を利用した磁気反渦の判定が可能であることが分かった。更に、磁化構造の折り返し磁場に対する依存性から磁化反転過程も判明したので合わせて報告する。

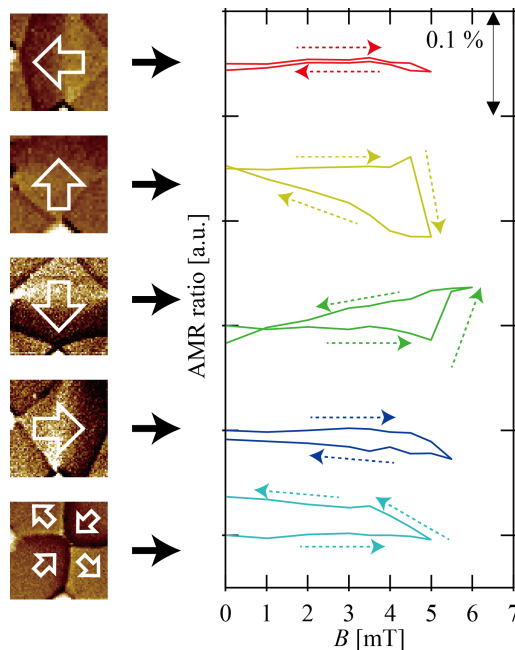


図 2 磁化構造と AMR 比の関係

## 参考文献

[1] S. D. Pollard, L. Huang, K. S. Buchanan, D. A. Arena, and Y. Zhu, Nat. Commun, **3**, 1028 (2012)  
 [2] S. Sugimoto, Y. Fukuma, S. Kasai, T. Kimura, A. Barman, and Y. Otani, Phys. Rev. Lett, **106**, 197203 (2011)  
 [3] V. L. Mironov, O. L. Ermolaeva, S. A. Gusev, A. Y. Klimov, V. V. Rogov, B. A. Gribkov, O. G. Udalov, and A. A. Fraerman, Phys. Rev. B, **81**, 094436 (2010)

## 引張応力を加えたオーステナイト系ステンレス鋼の局所的磁気特性

石渡真, 鈴木健司, 高瀬つぎ子, 山口克彦  
(福島大学)

Local magnetic properties of austenite stainless steel applied tensile stress

M. Ishiwata, K. Suzuki, T. Takase, K. Yamaguchi

(Fukushima Univ.)

## はじめに

構造材料として広く用いられているオーステナイト系ステンレス鋼は、その機械的な劣化時に局所的なマルテンサイト相 ( $\alpha'$ 相) を生じ微小領域に磁性を発現させることが知られている。安全性の向上のために磁性変化を検出して劣化度合いを評価することが注目され、圧痕を与えた点等で生成される強磁性的領域がマイクロ磁気光学カー効果 ( $\mu$ -MOKE) 測定、MFM 測定によって確認されてきた<sup>1)</sup>。しかし、これらの計測は、表面の凹凸が計測結果に影響を及ぼす可能性があるため、鏡面の試料から磁区観察と  $\mu$ -MOKE 測定を同一視野で行っていくことが信頼性の高い局所的磁気特性を得るために有用である。

破断に至らない引張応力を加えた応力集中部をマイクロに見ていくと、一部に  $\alpha'$ 相へと変態していない母相オーステナイト相 ( $\gamma$ 相) が残っているものと考えられる。そこで、本研究では、微小領域で種々の磁気特性を有していると考えられるオーステナイト系ステンレス鋼の局所的磁気特性を磁区観察と  $\mu$ -MOKE 測定から明らかにすることを目的とする。

## 実験方法

使用した試料には SUS304 を真空中で溶体化処理 (1050°C, 30 分間) を施したものをを用いた。引張応力の印加には材料試験システム (INSTRON 社製 5543) をを用いた。室温にて、0.5mm/min の引張速度で 350MPa (破断応力の約半分) までの引張応力を加えた。バルク試料の磁気特性は磁気特性測定装置 (Quantum Design 社製 MPMS) をを用いた。局所的磁気特性は、ネオアーク社と開発した  $\mu$ -MOKE 磁力計 (BH-PI7892)<sup>2)</sup> によって磁区観察から測定箇所を定めて測定した。

## 実験結果

Fig.1 はバルク試料の磁気特性である。応力を加えた後の試料は、強磁性的な性質を示していることが分かる。Fig.2 に引張応力を加えた後の磁区観察像を示す。図中の矢印は引張方向を示している。鏡面試料から、磁区観察によって、結晶粒面上に引張方向に対して斜め方向に発生する結晶構造の変化した線 (リュウダース帯) が観察され、異なる磁性領域が混在していることが確認できた。Fig.3 は、Fig.2 のリュウダース帯 (A 点) と母相面上 (B 点) での  $\mu$ -MOKE 測定による局所的磁気特性である。A 点が B 点より大きな保磁力、残留磁化を示したことから、リュウダース帯が  $\alpha'$ 相を主体とした磁性領域であることが分かる。リュウダース帯においては、発生する方向性等によっても異なった局所的磁気特性が得られる。

以上のように、鏡面試料において、磁区観察と  $\mu$ -MOKE 測定を用いることで、引張応力によって表出したリュウダース帯の局所的磁気特性が得られた。

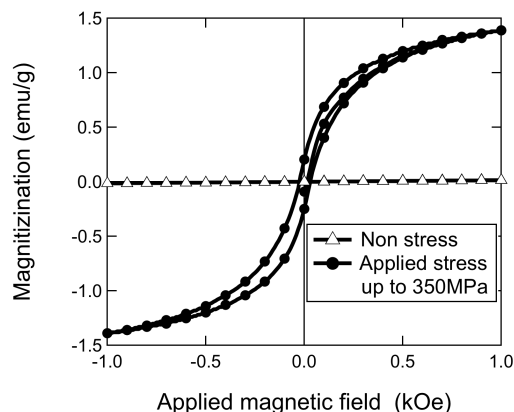


Fig.1 Magnetic hysteresis loop of SUS304 at 300K.

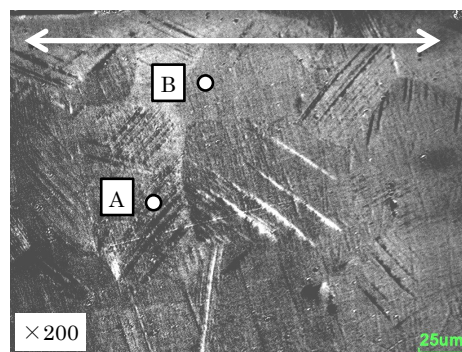


Fig.2 Magnetic domain scope observation image at difference magnetic field  $\pm 900$  Oe.

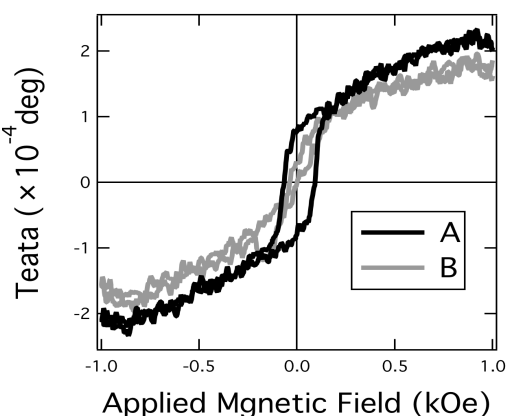


Fig.3 Magnetic hysteresis loops at A and B in Fig.2.

## 参考文献

- 1) J. Sort, et. al, appl.phys.letters, 89, 032509, 2006
- 2) K. Suzuki, et. al, Przegląd Elektrotechniczny, R. 89, NR 2b, 28-31, 2013

# D0<sub>22</sub>型結晶構造をとる Mn<sub>3</sub>Ge<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>の相安定性と磁気特性

佐々木徹、岡田宏成、梅津理恵\*  
(東北学院大工、\*東北大学金研)

Phase stability and Magnetic properties of Mn<sub>3</sub>Ge<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub> with the D0<sub>22</sub> type structure

T. Sasaki, H. Okada and R. Y. Umetsu  
(Tohoku Gakuin Univ., Tohoku Univ.)

## はじめに

現在、希土類元素に依存しない新規磁性材料の開発を目的とした研究が精力的に行われている。なかでも正方晶 D0<sub>22</sub>型構造をとる Mn<sub>3</sub>Ga は希土類元素を含まない物質であるにも関わらず、結晶磁気異方性が大きいことから、スピントロニクス材料としての応用が期待されている<sup>1)</sup>。また、Mn<sub>3</sub>Ge においても正方晶 D0<sub>22</sub> 構造をとることが知られている<sup>2)</sup>。我々は Mn<sub>3+x</sub>Ge (x = 0.0 ~ 1.0) の相安定性と磁気特性の評価を行い、過剰 Mn に対して D0<sub>22</sub> 相が安定化すること、飽和磁化が減少する傾向を示す結果を得た。そこで本研究では、Mn<sub>3</sub>Ga と Mn<sub>3</sub>Ge の間の組成領域である Mn<sub>3</sub>Ge<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub> (x = 0 ~ 1.0) における相安定性と磁気特性の評価を行った。

## 実験方法

試料はアーク溶解法により作製された。その際、化学的均一性を得るために 5 回溶解を行った。アーク溶解後の試料を均質化するために 800°C で 1 週間の熱処理を行い、その後 D0<sub>22</sub> 型構造を得るために 400°C で 1 週間の熱処理を行った。得られた試料に対し、粉末 X 線回折により相同定を行った。磁化は Physical Property Measurement System (PPMS) の試料振動型磁力計 (VSM) を用いて測定を行った。

## 実験結果と考察

Fig. 1 に D0<sub>22</sub> 型構造をとる Mn<sub>3</sub>Ge<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub> (x = 0.0 ~ 1.0) の粉末 X 線回折パターンを示す。x = 0.0 ~ 0.2 では不純物として Mn<sub>5</sub>Ge<sub>2</sub> の回折ピークが観測されており、先行研究と一致した<sup>2)</sup>。しかし、x = 0.0 では Mn<sub>5</sub>Ge<sub>2</sub> の低温相である κ 相が、x = 0.1, 0.2 では Mn<sub>5</sub>Ge<sub>2</sub> の高温相である ζ 相が観測され、それぞれ違う相が析出する結果となった。これは、Mn<sub>3</sub>Ge に Ga を置換したことで κ 相が消失したためであると考えられる。また、X 線回折の結果からは、x = 0.3 ~ 0.7 で単相が得られており、比較的広い組成範囲に単相領域が存在していることが明らかとなった。格子定数は Mn<sub>3</sub>Ge から Mn<sub>3</sub>Ga への置換に対して、c 軸方向が縮み、a 軸方向に伸びる直線的な変化を示しており、適切に Ga が置換されていることが確認された。また、単相領域における磁化測定の結果では、磁化は僅かながらにも上昇する傾向を示している。講演では、粉末 X 線回折と DSC 測定との考察に加え、D0<sub>22</sub> 型構造の単相領域における相安定性および磁気特性について報告する。

## 参考文献

- 1) B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterlik, and C. Felser, Appl. Phys. Lett. 90, 152504 (2007)
- 2) T. Ohoyama, J. Phys. Soc. Jpn. 16 (1961) 1995

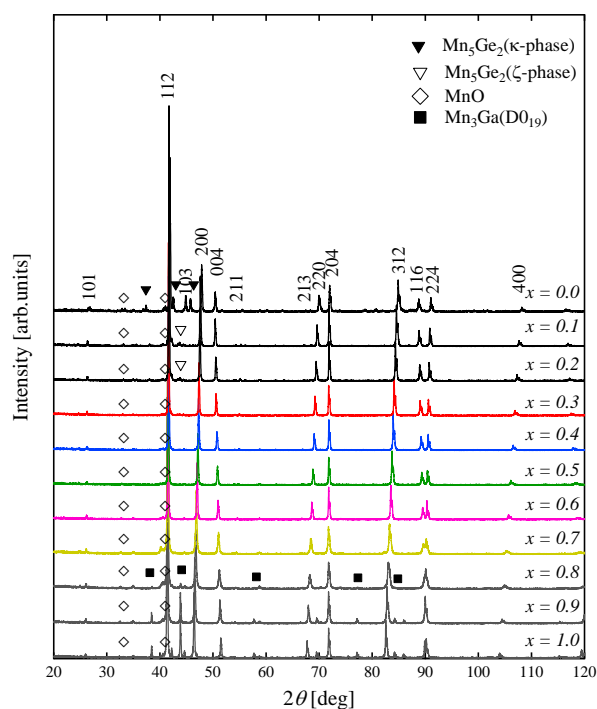


Fig.1 Powder X-ray diffraction patterns of Mn<sub>3</sub>Ge<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub> (x = 0.0 ~ 1.0) annealed at 400°C



# ホイスラー合金 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$ のマルテンサイト変態と磁気特性

岡田宏成、梅津理恵\*、鹿又武  
(東北学院大工、\*東北大金研、)

Martensitic transformation and magnetic properties of Heusler alloy  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$

H. Okada, R.Y. Umetsu\*, T. Kanomata

(Tohoku Gakuin Univ., \*IMR Tohoku Univ.)

## はじめに

Ni 基ホイスラー合金  $\text{Ni}_2\text{MnZ}$  ( $Z = \text{In, Sn, Sb}$ ) は  $L2_1$  型構造をとる強磁性体である。Z 原子を Mn で置換することによってマルテンサイト変態が出現し、磁場誘起逆マルテンサイト変態を伴ったメタ磁性形状記憶効果と呼ばれる機能性を発現する<sup>1)</sup>。同様な特性は、Pd 基ホイスラー合金  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Sn}_{1-x}$  においても確認されている<sup>2)</sup>。一方で、 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  はホイスラー合金では稀な反強磁性体である。我々は、 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  が低温強磁場下でメタ磁性転移を示し、磁場誘起磁性相へ転移することを前回報告した。この結果は、 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  の反強磁性は強磁性に隣接した状態であることを示唆している。本研究では、反強磁性を示すホイスラー合金へ過剰 Mn を導入したときのマルテンサイト変態の出現やその磁気特性を、強磁性ホイスラー合金の結果と比較することを目的として、 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  を作製し、構造特性、磁気特性、伝導特性の評価を行った。

## 実験方法

$\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  多結晶試料はアーク溶解法により作製された。均質な試料を得るために、 $1000^\circ\text{C}$  で 1 週間、 $500^\circ\text{C}$  で 5 日間の熱処理を行った。室温での粉末 X 線回折実験により、得られた試料の相同定を行った。磁化測定は試料振動型磁力計、電気抵抗測定は 4 端子法を用いて行われた。

## 実験結果と考察

Fig. 1 に  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  ( $x = 0 \sim 0.6$ ) の室温での粉末 X 線回折パターンを示す。 $x = 0.4$  までは  $L2_1$  型構造の単相で、格子定数は過剰 Mn の導入によって単調に減少することがわかった。 $x = 0.5$  ではマルテンサイト変態によって長周期変調構造へと変化しており、 $x = 0.6$  で  $L1_0$  型構造となることが明らかとなった。磁化測定の結果から、オーステナイト相とマルテンサイト相ともに強磁性状態は観測されなかった。強磁性ホイスラー合金と同様に、電気抵抗はマルテンサイト変態に伴って大きく増大することがわかった。強磁性ホイスラー合金では、マルテンサイト変態は  $x = 0.5$  付近で現れる。しかし、 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  では、 $x = 0.1$  ですでに、マルテンサイト相が低温下で出現しており、過剰 Mn の増加によって  $x = 0.5$  で変態温度が室温を超えることが明らかとなった。この結果から、 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  では母相の磁気状態がマルテンサイト変態の出現に影響している可能性が示唆される。

## 参考文献

- 1) R. Kainuma et al.: Nature 439 (2006) 957.
- 2) Y. Chieda et al.: J. Alloys Compd 553 (2013) 335.

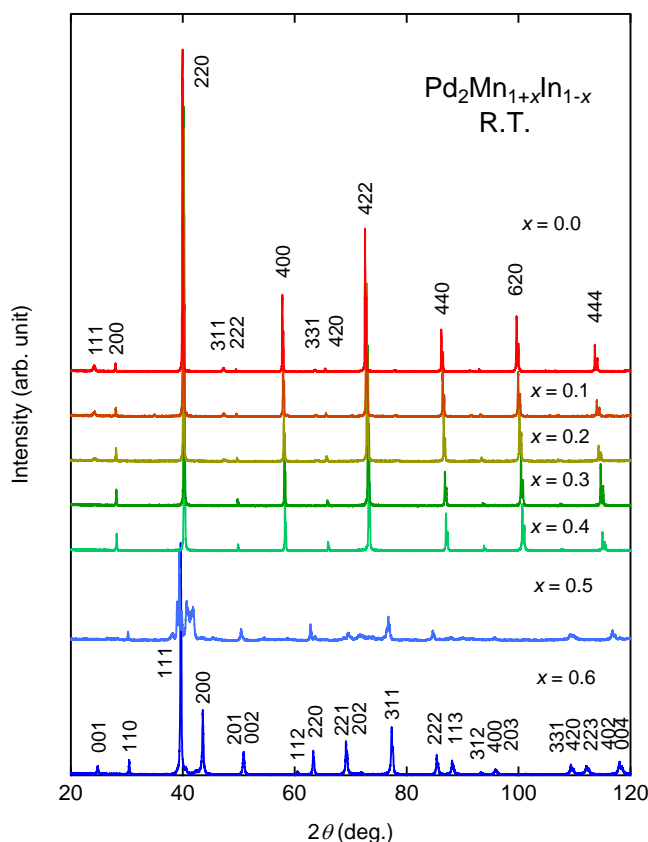


Fig. 1 Powder X-ray diffraction patterns of  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  at room temperature.

## 二次元近藤格子のメスバウア分光

井田和則, 岡野智宏, 中村哲朗, 若月厚志, 北尾真司\*, 瀬戸誠\*, 的場正憲, 神原陽一  
(慶大, \*京大)

### Mössbauer Spectroscopy of Two Dimensional Kondo Lattice

K. Ida, T. Okano, T. Nakamura, A. Wakatsuki, S. Kitao\*, M. Seto\*, M. Matoba, and Y. Kamihara  
(Keio Univ., \*Kyoto Univ)

#### 1. はじめに

Ce化合物に代表される近藤格子系においては伝導電子と局在電子の2種類の性質の異なる電子が存在する。これらの電子間では非磁性基底状態をもたらす近藤効果と、磁気秩序を安定化させる RKKY 相互作用が競合し、その結果化合物の磁性が決定される。Ce化合物の近藤格子系においては基底状態で反強磁性を示す物質が多く、強磁性を示す物質は少ない。我々は希少な二次元近藤格子系の強磁性体 CeRuPO[1]および常磁性体 CeFePO の固溶体 Ce(Ru<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>)PO[2]に着目した。この物質群において Ce は磁気モーメントを持ち、Fe は持たないと考えられてきた。本研究では Fe 原子の超微細構造の測定を行い、Fe 原子中の電子・磁気状態を明らかにしたことを報告する。

#### 2. 実験方法

本報告における多結晶試料は2段階に分けた固相反応により合成した。1次熱処理は化学量論比で Ce : Fe : P (以後 Ce - 2Fe - 2P) = Ce : Ru : P (以後 Ce - 2Ru - 2P) = 1 : 2 : 2 に混合した後、石英管に真空封入して熱処理を行った。2次熱処理は1次熱処理の物質および脱水した CeO<sub>2</sub> を用いて、化学量論比で Ce - 2Fe - 2P : Ce - 2Ru - 2P : CeO<sub>2</sub> = 1 - x : x : 1 に混合した。その後、ペレット状に成型し、石英管に減圧二重封入して熱処理を行った。試料合成後、<sup>57</sup>Co 線源を利用した <sup>57</sup>Fe メスバウア分光測定をコンベンショナルな透過法[3]により行った。この際、ゼロ磁場下での測定は冷凍機型のクライオスタットを用いて 4.2 - 300 K の領域で行った。また、x = 0.80, 0.87, 0.95 の試料に関しては超伝導マグネット型クライオスタットを用いて、最大 14 T までの磁場下での測定を 2 K および 100 K の温度下で行った。この際、常磁性体の標準試料として K<sub>4</sub>[Fe(CN)<sub>6</sub>]を用いた。

#### 3. 実験結果・考察

強磁性-常磁性の磁気量子臨界点付近である Ce(Ru<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>)PO (x = 0.87) の 2 K におけるメスバウア分光測定結果を Fig. 1 に、および精密化したアイソマーシフト(IS), 内部磁場(MF<sub>in</sub>), 四重極分裂(QS), 線幅(LW)を Table 1 に示す。ゼロ磁場下では磁気分裂が出現せず、母相 CeFePO の結果を支持するものであった[4]。磁場を印加した際にゼーマン分裂に起因するスペクトルの分裂を確認した。この際、電子密度の目安となる IS はほぼ一定であった。一方、磁場の増加に伴い、QS が減少傾向を示した。これは、鉄核子の位置における電場勾配が減少しており、FeP 層の四面体構造が正四面体型に近づいていることを示す。

加えて、試料中の MF<sub>in</sub> の値が外部磁場(MF<sub>ex</sub>)に比べて 0.2 T 程度の増加を示した。これにより巨視的には磁性を持たない Fe が微視的には低温かつ磁場下で 0.012 μ<sub>B</sub>/Fe 程度の自発磁化を示す。

#### 参考文献

- [1] E. M. Bruning, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 117206 (2008).  
[2] S. Kitagawa, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 033704 (2012).  
[3] R. L. Mössbauer, Z. Physik, **151**, 124 (1958).  
[4] T. Nakamura, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 064712 (2012).

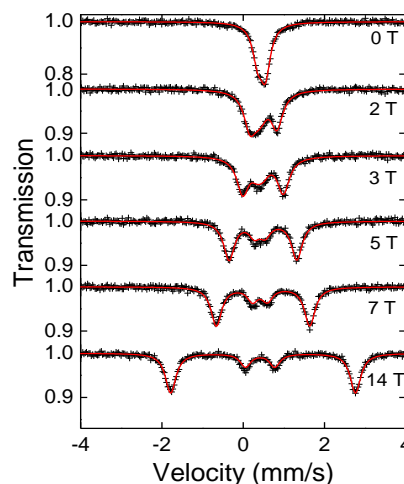


Fig. 1 Observed <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectra of Ce(Ru<sub>0.87</sub>Fe<sub>0.13</sub>)PO under magnetic fields at 2 K.

Table 1 Refined parameters of <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectroscopy measurements under magnetic fields for Ce(Ru<sub>0.87</sub>Fe<sub>0.13</sub>)PO at 2 K.

MF <sub>ex</sub> (T)	IS(mm s <sup>-1</sup> )	MF <sub>in</sub> (T)	QS (mm s <sup>-1</sup> )	LW (mm s <sup>-1</sup> )
0	0.450(3)	0.00(0)	0.285(3)	0.276(5)
2	0.449(3)	2.15(1)	0.031(5)	0.345(7)
3	0.447(4)	3.17(1)	0.033(6)	0.346(6)
5	0.447(4)	5.16(1)	0.036(7)	0.326(6)
7	0.450(4)	7.16(1)	0.030(7)	0.338(6)
14	0.448(3)	14.18(1)	0.033(5)	0.302(5)

## Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> のポストスピネル相の巨大原子変位および、その磁性

### Giant atomic displacement and the magnetism of Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> postspinel

○平井慈人<sup>1</sup>, Ian Fisher<sup>2</sup>

HPSTAR<sup>1</sup>, Stanford University<sup>2</sup> ○Shigeto Hirai<sup>1</sup>, Ian Fisher<sup>2</sup>

Manganates display strong coupling between lattice, spin and orbital degrees of freedom which can lead to magnetic frustration and Jahn-Teller distortion. Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> spinel [1] transforms into a CaMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-type post-spinel phase at high pressure which can be quenched back to ambient conditions [2]. Figure 1 shows the magnetic structure of Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> postspinel, which was obtained from low temperature neutron diffraction data (collected at SNS, ORNL). Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> postspinel exhibits an atomic displacement of approximately 0.25 Å at a magnetic phase transition at 210 K [2]. This giant atomic displacement is due to the coupled effect of built-in strain in the metastable structure with the orbital realignment of the Mn<sup>3+</sup> ion [2]. We also studied the pressure dependence of the transition temperature (210 K) using neutron diffraction technique, and found that it increases linearly at a rate of 5 K/GPa above 3 GPa, suggesting that postspinel structure of Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> is only metastable at modest pressures.

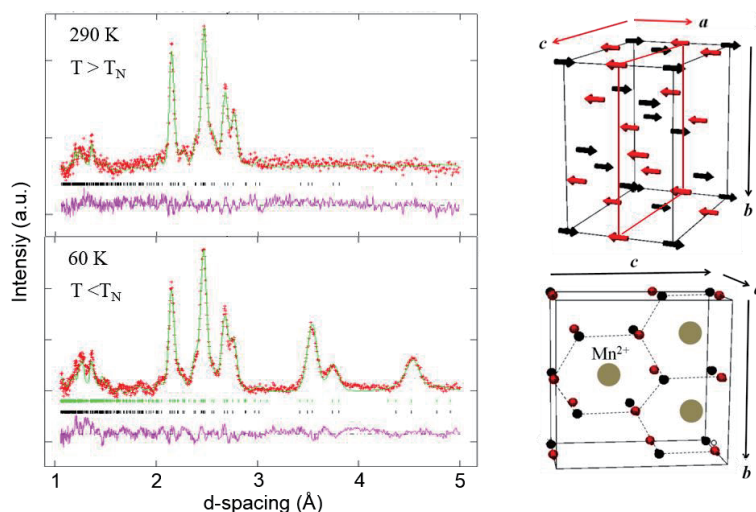


Figure 1. Neutron powder diffraction profile and the magnetic structure of Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> postspinel

[1] G. Aminoff, *Z. Kristallogr.* **64**, 475 (1927).

[2] S. Hirai, A.M. dos Santos, M.C. Shapiro, J.J. Molaison, N. Pradhan, M. Guthrie, C.A. Tulk, I.R. Fisher, and W.L. Mao, *Phys. Rev. B* **87**, 014417 (2013).

## GdAl<sub>2</sub> の白色 X 線磁気回折における共鳴効果

安達弘通<sup>1</sup>、河田洋<sup>2</sup>、伊藤正久<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>信州大、<sup>2</sup>高エネ研、<sup>3</sup>群馬大)

Resonance effect in white x-ray magnetic diffraction of GdAl<sub>2</sub>

H. Adachi<sup>1</sup>, H. Kawata<sup>2</sup>, M. Ito<sup>3</sup>

(<sup>1</sup>Shinshu Univ., <sup>2</sup>KEK, <sup>3</sup>Gunma Univ.)

我々は、希土類イオンのスピン形状因子を測定するために、強磁性化合物  $RAI_2$  ( $R$ =希土類) の単結晶試料に対して白色 X 線を用いた磁気回折実験を行ってきた。この手法は散乱角を 90 度に固定して行われるため、ブラッグの法則によって、物質 (面間隔) と反射の指数から X 線のエネルギーが一意に定まる。測定された回折強度からスピン形状因子を導く過程は非共鳴散乱理論に基づいているが、とりわけ上のようにして決まる回折 X 線のエネルギーが試料中の元素の吸収端近傍に位置する場合には、一般に分散と呼ばれる共鳴散乱の影響について考慮しなくてはならない。今回は、上述のスピン形状因子測定において、回折 X 線のエネルギーが Gd の吸収端にかなり近いところに位置する GdAl<sub>2</sub> の 444 反射について、この共鳴の効果を実験的に検討した結果について報告する。

実験は、スピン形状因子測定を行った PF の BL-3C において同様のセットアップを用いて行われた。ただし、散乱角を 90 度に固定する代わりに、その近傍を数度の角度範囲にわたって  $\theta$ - $2\theta$  法で調べた。1 つの反射を  $\theta$ - $2\theta$  法でトレースして行くことは、X 線のエネルギーをスキャンして行くことに他ならないが、今回測定を行ったエネルギー領域は、Gd の  $L_{II}$  端を横切る数百 eV の範囲に相当する。

得られた主要な知見は以下の通りである。

1. エネルギーが Gd の  $L_{II}$  端からおおよそ 200eV 下に相当する、散乱角が 90 度のところでは、共鳴効果を見逃す取り扱いではなく、非共鳴の散乱理論だけに基いてスピン形状因子を求めることはできない。
2. Gd の  $L_{II}$  端において、回折強度の磁化反転に伴う変化率 (磁気非対称比) の顕著な増大が観測された。そのスペクトル形状は、電気双極子遷移を仮定した共鳴磁気散乱のメカニズムで概ね再現することができる。

また、GdAl<sub>2</sub> は RKKY 型の典型的な強磁性体とみなされる場合が多いが、比熱や中性子回折など、そのような単純なモデルでは結果が十分に解釈できない実験の報告も幾つか知られている。この点については、今回測定を行った 15K と 110K のスペクトル形状の温度変化に関する限り、通常の RKKY 型の強磁性体という描像ととくに矛盾した傾向は見られていない。詳細は当日報告する。

# ランタノイドのオキシ水酸化物の Van Vleck 常磁性

和田直樹、佐俣博章  
(神戸大)

Van Vleck paramagnetism of lanthanoid oxyhydroxides

N. Wada, H. Samata  
(Kobe Univ.)

## はじめに

ランタノイドイオン  $Ln^{3+}$  の Van Vleck 常磁性は、古くから評価・解析がなされてきた。特に  $Eu^{3+}$  では、低温において温度に依存しない磁化率が観測され、その解析がなされている<sup>1,2)</sup>。しかし、これらの報告の多くでは、 $Eu^{2+}$  の混入による低温での磁化率の上昇が確認されている。そのため、新たな評価対象として、目的のランタノイドの  $Ln^{3+}$  のみを含む試料の合成が必要と考えた。 $Ln^{3+}$  を含む単純な化合物の一つにオキシ水酸化物  $LnOOH$  があり、我々は  $LnOOH$  の良質な結晶の合成手法を確立し、その評価・解析を行ってきた。今回は、 $EuOOH$  と  $SmOOH$  の結果について報告する。

## 実験方法

結晶は、 $NaOH$  と  $KOH$  の混合物を溶媒としたフラックス法により合成した。原料には  $Eu_2O_3$  (99.9%) または  $Sm_2O_3$  (99.9%) を用いた。得られた試料の結晶構造は、粉末 X 線回折のデータを用いた Rietveld 法により解析した。また、TG/DTA により熱的性質を、SQUID 磁束計により磁化の磁場依存性と磁化率の温度依存性を評価した。磁化率の温度依存性については、キュリーの法則に補正項として Van Vleck の常磁性項を加えて解析した。

## 実験結果

合成した結晶の光学写真を Fig. 1 に示す。結晶は、最大で 0.5 mm 程度の板状となった。Rietveld 解析の結果、いずれの結晶も目的とする  $LnOOH$  であった (Fig. 2)。熱分析の結果では、オキシ水酸化物が水分子を放出することにより酸化物に変化する際の重量損失のみが観測され、加熱後の試料の粉末 X 線回折の結果と合わせて、得られた試料がオキシ水酸化物の単相であると判断した (Fig. 3)。

$EuOOH$  の磁化率の温度依存性では、低温において Van Vleck 常磁性特有の温度に依存しない磁化率が観測された。また、 $Eu^{2+}$  の混入により生じる低温での磁化率の上昇は観測されず、Van Vleck の常磁性項を考慮することで解析が可能であった。発表では、その他の評価結果とともに磁化率の解析結果を報告する。

## 参考文献

- 1) N. L. Huang, J. H. Van Vleck, J. Appl. Phys. 40 (1969) 1144.
- 2) Y. Takikawa, S. Ebisu, S. Nagata, J. Phys. Chem. Solids 71 (2010) 1592.

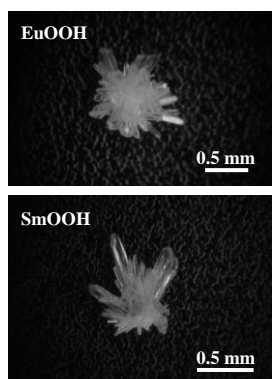


Fig.1 Photographs of as-grown crystals.

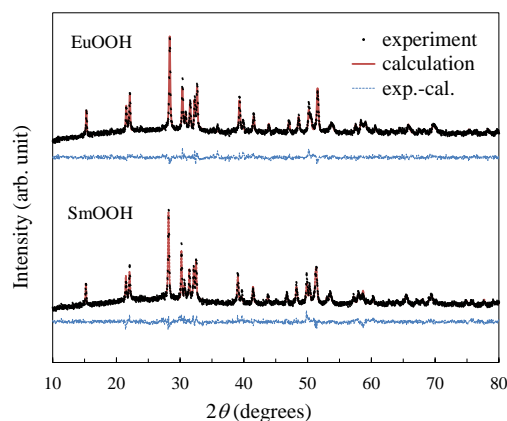


Fig.2 Powder XRD profiles and results of refinement by the Rietveld method.

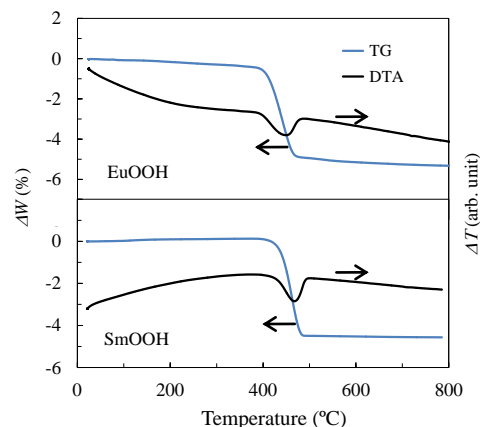


Fig.3 TG/DTA profiles of as-grown crystals.

# Sr系六方晶X型フェライトの作製と磁性

神島謙二、益子卓之、柿崎浩一、酒井政道、渡邊剛\*  
(埼玉大、\*理研)

Synthesis of a Sr-based X-type hexaferrite and its magnetic properties

K. Kamishima, T. Mashiko, K. Kakizaki, M. Sakai, K. Watanabe\*  
(Saitama Univ., \*RIKEN)

## 1. 緒言

Sr系の六方晶X型フェライト ( $\text{Sr}_2\text{Me}_2\text{Fe}_{28}\text{O}_{46}$ ; Me=2価遷移金属イオン) はM型 ( $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ ) とW型 ( $\text{SrMe}_2\text{Fe}_{16}\text{O}_{27}$ ) の中間という複雑な構造をとるため、単相の作製は困難である。そのため、Sr系のX型フェライトについての作製報告は非常に少ない<sup>1),2)</sup>。本研究では、これまで報告のないNiを含むSr系六方晶X型フェライトの作製と、その磁気的特性を明らかにすることを目的とした。

## 2. 実験方法

出発原料は $\text{SrCO}_3$ 、 $\text{NiO}$ 、および $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を用い、X型フェライト( $\text{Sr}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{28}\text{O}_{46}$ )の化学量論組成になるように秤量した。これらの粉末を湿式ボールミルで24時間混合した後、乾燥した。この混合粉を分散剤と共に遊星ボールミルを用いて1100 r.p.m.で10分間粉砕した。得られた粉末を $1\text{ t/cm}^2$ の圧力で成形した。その後、 $850^\circ\text{C}$ で5時間、大気中で仮焼成した。この試料を乳鉢で粉砕し $1\text{ t/cm}^2$ の圧力で成形した。その後 $1200\sim 1250^\circ\text{C}$ で5時間、大気中で焼成した。試料の結晶構造は粉末X線回折法により解析した。磁化値および保磁力は振動試料型磁力計(VSM)で測定した。

## 3. 結果および考察

図1は $1200\sim 1250^\circ\text{C}$ で焼成した $\text{Sr}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{28}\text{O}_{46}$ のX線回折図を示す。 $1200\sim 1220^\circ\text{C}$ で焼成した試料はM型相の単相であり、X型相は生成しなかった。 $1230^\circ\text{C}$ 以上で焼成した試料からX型相が生成した。特に $1240^\circ\text{C}$ で焼成した試料ではX線回折図からほぼ単相のX型フェライトが生成した。

図2は $1240^\circ\text{C}$ で焼成した $\text{Sr}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{28}\text{O}_{46}$ の磁化の温度依存性を示す。この実験結果からキュリー温度は $468^\circ\text{C}$ である。一方、M型フェライト( $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ )とW型フェライト( $\text{Sr}_2\text{Me}_2\text{Fe}_{28}\text{O}_{46}$ )のキュリー温度は $460^\circ\text{C}$ と $497^\circ\text{C}$ である<sup>3),4)</sup>。X型フェライトはこれらの中間の構造をとるため、本実験で得られたキュリー温度は、妥当であると考えられる。

以上より、今まで報告のなかったNiを含むSr系六方晶X型フェライト $\text{Sr}_2\text{Ni}_2\text{Fe}_{28}\text{O}_{46}$ の作製に成功した。

## 参考文献

- 1) N. Langhof *et al.*, J. Solid State Chem. 182 (2009) 2409.
- 2) T. M. Perekalina *et al.*, Sov. Phys. JETP (English Transl.) 31 (1970) 440.
- 3) 太田恵造, 磁気工学の基礎 I, 共立全書 (1973) 193.
- 4) L. A. Bashkurov *et al.*, Inorg. Mater. 39 (2003) 525.

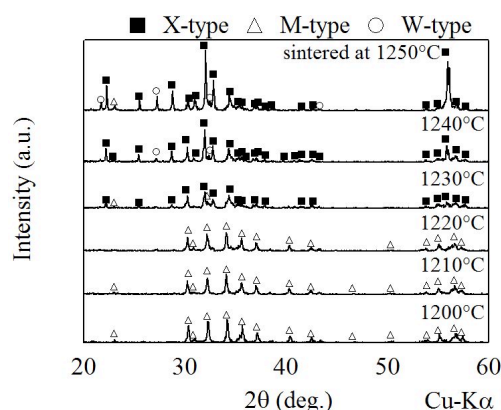


図1 各温度で焼成した試料のX線回折図

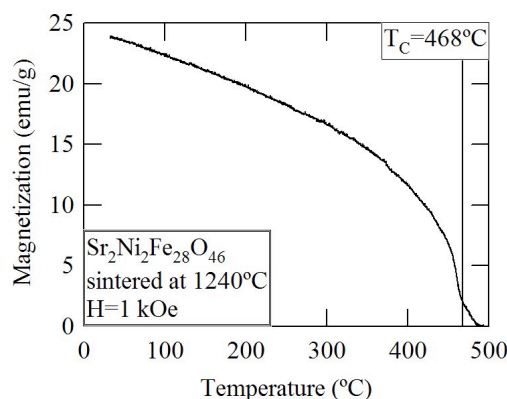


図2  $1240^\circ\text{C}$ で焼成した試料の熱磁気曲線

### 3 端子スピン蓄積デバイスにおける Hanle 効果信号の解析

高村陽太<sup>1,2</sup>, 悪七泰樹<sup>1</sup>, 周藤悠介<sup>1</sup>, 菅原聡<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>東工大像情報, <sup>2</sup>東工大電子物理)

Analysis of Hanle-effect signals observed in three-terminal spin-accumulation devices

Y. Takamura<sup>1,2</sup>, T. Akushichi<sup>1</sup>, Y. Shuto<sup>1</sup>, and S. Sugahara<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Imaging Sci. and Eng. Lab., Tokyo Inst. of Tech., <sup>2</sup>Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

#### はじめに

Si チャネルへのスピン注入/検出や Si チャネル内でのスピンドイナミクスを理解し、スピン MOSFET<sup>1</sup> 等の Si スピンデバイスを実現するために極めて重要となる。これまで、これらの現象はスピンバルブトランジスタ、4 端子非局所デバイス、3 端子スピン蓄積(3T-SA)デバイスなどによる Hanle 効果の測定によって解析が行われてきた。特に 3T-SA デバイスによる評価は、デバイスプロセスの容易さから最も広く用いられている評価法である。しかし、3T-SA デバイスにおいて観測される信号にはスピン注入源のトンネル障壁やその Si との界面にトラップされたスピンによる Hanle 効果による信号も重畳されることや、また解析に用いられている単一の Lorentz 関数だけでは表せない信号の観測なども報告されており、得られた信号が真に Si チャネルに蓄積したスピンによるものか、慎重に検討する必要がある。

本研究では、3T-SA デバイスで観測される Hanle 効果による信号をスピン拡散方程式のインパルス応答を用いて解析を行った。Si チャネルに蓄積したスピンによる Hanle 効果の信号波形は Lorentz 型とはならず、トラップスピンによる信号波形(Lorentz 型)と分離できることを明らかにした。さらに、高品質の CoFe/MgO/Si 接合をスピン注入源とした 3T-SA デバイスを作製し、このデバイスによって観測された Hanle 効果による信号波形は上記の 2 つの関数形の重ね合わせを用いることで精度よくフィットできることを明らかにした。

#### 解析方法

Hanle 効果は、1 次元のスピン拡散方程式のインパルス応答<sup>2</sup>を求め、このインパルス応答に磁場による歳差運動因子を掛け、入力とともに時間で畳み込みを用いることで定式化できる。

$$S(x, B) = \lim_{t \rightarrow \infty} \int_0^t s_0 \frac{x}{\sqrt{4\pi D(t-t')}} e^{-\frac{x^2}{4D(t-t')}} e^{-\frac{t-t'}{\tau_{sf}}} \cos \omega_L(t-t') u(t') dt' \quad (1)$$

ここで、 $D$  は拡散定数、 $\tau_{sf}$  はスピン緩和時間、 $\omega_L$  はラーモア周波数、 $u(t)$  は入力である。この被積分関数(インパルス応答)は、従来 Hanle 効果の解析に用いられてきた畳み込み積分の被積分関数の関数形と異なることに注意が必要である(時間に対する畳み込みの場合こちらが正しい)。有限の幅を持った電極下のスピン蓄積による Hanle 効果は、式(1)をさらに位置  $x$  に関して畳み込みと電極幅に渡る積分を実行することで定式化できる。一方、トラップスピンに関しては、トラップされたスピンに対するレート方程式を用いて Hanle 効果の表式を求めることができる。チャネルに蓄積したスピンに対する Hanle 効果信号は、非 Lorentz 型の関数となるが、トラップスピンの Hanle 効果信号は Lorentz 型の関数となる。これらのスピンが共存する場合は、上記 2 種の関数形の重ね合わせになる。

#### 実験結果

Fig. 1 に作製した 3T-SA デバイスを示す。スピン注入源の構造は、CoFe/MgO/ $n^+$ -Si (P;  $4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) である。MgO は、Si 清浄表面に超高真空スパッタで成膜した Mg のラジカル酸化によって形成し、ラジカル酸素アニールによって高品質化してある。CoFe は分子線堆積法により成膜した。

このデバイスによって観測された Hanle 効果信号を Fig. 2 に示す(灰色のドット)。また、この観測結果は、単一の Lorentz 関数では精度よくフィットできず、チャネルでのスピン蓄積による Hanle 信号(破線)とトラップ電子に対する Hanle 信号(点線)の重ね合わせ(実線)を用いることで精度よくフィットできた。これは、Si チャネル内に蓄積されたスピンによる Hanle 効果の存在を意味する。フィッティングから求めた Si チャネル中のスピン緩和時間とトラップスピンの緩和時間は、それぞれ 240 ps と 30 ps となった。

本研究で開発した 3T-SA における Hanle 効果の信号解析法は、チャネルに蓄積したスピンとトラップスピンによる Hanle 効果の信号を分離できるため、蓄積スピンのみの評価が可能となる。

#### 参考文献

- 1) S. Sugahara, IEE Proc.: Circuits Devices Syst. **152**, 355 (2005).
- 2) Y. Takamura, T. Akushichi, A. Sadano, T. Okishio, Y. Shuto, and S. Sugahara, J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

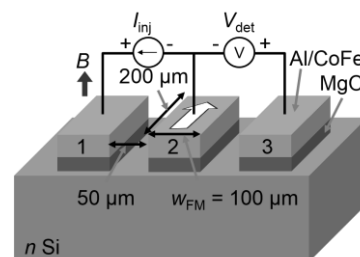


Fig. 1 3T-SA device.

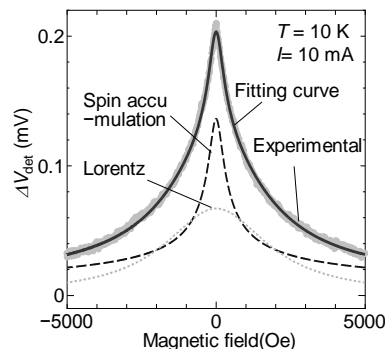


Fig. 2 Hanle-effect signal and fitting curves.

# ラジカル酸素アニールによる高品質トンネル障壁を有する CoFe/MgO/Si および CoFe/AlO<sub>x</sub>/Si コンタクトを用いたスピン蓄積の評価

患七泰樹<sup>1</sup>, 高村陽太<sup>2</sup>, 周藤悠介<sup>1</sup>, 菅原聡<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 東工大像情報, <sup>2</sup> 東工大電子物理)

Spin accumulation using CoFe/MgO and AlO<sub>x</sub>/Si contacts with high quality tunnel barriers prepared by radical-oxygen annealing

T. Akushichi<sup>1</sup>, Y. Takamura<sup>2</sup>, Y. Shuto<sup>1</sup>, and S. Sugahara<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Imaging Sci. and Eng. Lab., Tokyo Inst. of Tech., <sup>2</sup> Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

## はじめに

MOSFET にキャリアスピンによる機能を付加したスピン MOSFET<sup>1</sup> は, CMOS ロジックシステムのエネルギー削減効率を究極的に高められる不揮発性パワーゲーティングのキー・デバイスとして注目されている<sup>2</sup>. スピン MOSFET を実現するために最も重要な課題の一つは Si チャネルへの高効率スピン注入・検出の実現である. CoFe/MgO/n-Si, CoFe/AlO<sub>x</sub>/n-Si トンネルコンタクトは Si へのスピン注入・検出の検証に広く用いられているスピン注入源である. これらのトンネル障壁である MgO や AlO<sub>x</sub> は主に電子線蒸着法やプラズマ酸化法によって形成されている<sup>3,4</sup>. 今回, 我々は Si 基板上に堆積した Mg 薄膜および Al 薄膜のラジカル酸化によって MgO, AlO<sub>x</sub> 薄膜を形成し, さらにラジカル酸素アニールによって高品質化した MgO, AlO<sub>x</sub> 薄膜をトンネル障壁とする CoFe/MgO/n-Si, CoFe/AlO<sub>x</sub>/n-Si スピン注入源を作製して, スピン蓄積の評価を行った. ラジカル酸素アニールによるトンネル障壁の膜質改善によってスピン蓄積信号に顕著な変化が現れた. この詳細について報告する.

## 実験方法

スピン注入源として, Al(100nm)/CoFe(30nm)/MgO/n<sup>+</sup>-Si および Al(100nm)/CoFe(30nm)/AlO<sub>x</sub>/n<sup>+</sup>-Si トンネルコンタクトを作製した. Pドープ n<sup>+</sup>-Si 基板のキャリア濃度は  $4 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$  である. トンネルコンタクト構造の作製はスパッタ/ラジカル酸化/分子線堆積 (MBD)・マルチチャンバーシステムを用いて真空一貫で行った. 超高真空中での熱処理によって Si の清浄表面を形成し, この Si 表面に室温でスパッタ法を用いて Mg または Al を 0.5nm 堆積した. 次に, 室温でラジカル酸化を行い, トンネル障壁を作製した. この後, ラジカル酸素雰囲気中でのトンネル障壁のアニールを 400°C で 30 分間施し高品質化した. 次いで, MBD 法を用いて 400°C で CoFe を堆積した. 比較用のサンプルとしてラジカル酸素アニールを施していないトンネルコンタクトも作製した. スピン注入の評価として, 図1に示す 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, Si チャネルに蓄積されたスピンの Hanle 効果の観測を行った.

## 実験結果

図2に CoFe/MgO/Si および CoFe/AlO<sub>x</sub>/Si コンタクトによるスピン注入測定およびス

ピン抽出測定の結果を示す. (a)および(b)が AlO<sub>x</sub> トンネル障壁, (c)および(d)が MgO トンネル障壁の場合である. (b)と(d)がトンネル障壁形成後にラジカル酸素アニールを行ったものである. この結果から, ラジカル酸化による室温形成トンネル障壁を用いた場合には, どちらのトンネル障壁でもスピン注入・抽出測定で得られた信号はともにローレンツ関数でよくフィッティングできることがわかった. 一方, ラジカル酸化後にラジカル酸素アニールを行ったサンプルでは, 得られた信号をローレンツ関数のみでは, 精度よくフィッティングすることができなかった. トラップスピンはローレンツ型のスピン蓄積信号となるが, Si 中の蓄積スピンについてはローレンツ型とはならず, ローレンツ型よりシャープな形状の信号となる<sup>5</sup>. そこで, この二つの関数形を仮定して, フィッティング解析を行った. ラジカル酸素アニールのないものはローレンツ関数のみでフィットできるのに対して, ラジカル酸素アニールを行ったサンプルでは 2 つの関数の重ね合わせによって, フィッティングできた. これらの結果は, トンネル障壁の形成後にラジカル酸素アニールを行うことによって, トラップスピンによる信号(ローレンツ関数)が減少し, Si へのスピン注入成分が現れることを示している. ラジカル酸素アニールによるトンネル障壁の膜質と界面の高品質化は Si チャネルへのスピン注入に有効である.

## 参考文献

- 1) S. Sugahara, IEE Proc. Circuits, Devices & Sys. **152**, 355 (2005).
- 2) S. Yamamoto, *et al.*, Electronics Lett. **47**, 1027 (2011).
- 3) T. Uemura, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 132411 (2012).
- 4) T. Inokuchi, *et al.*, J. Appl. Phys. **111**, 07C316 (2012).
- 5) Y. Takamura, *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

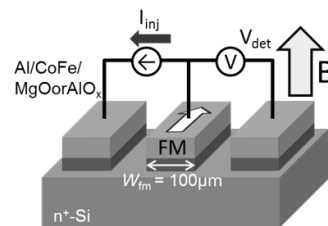


Fig. 1 3T spin accumulation device

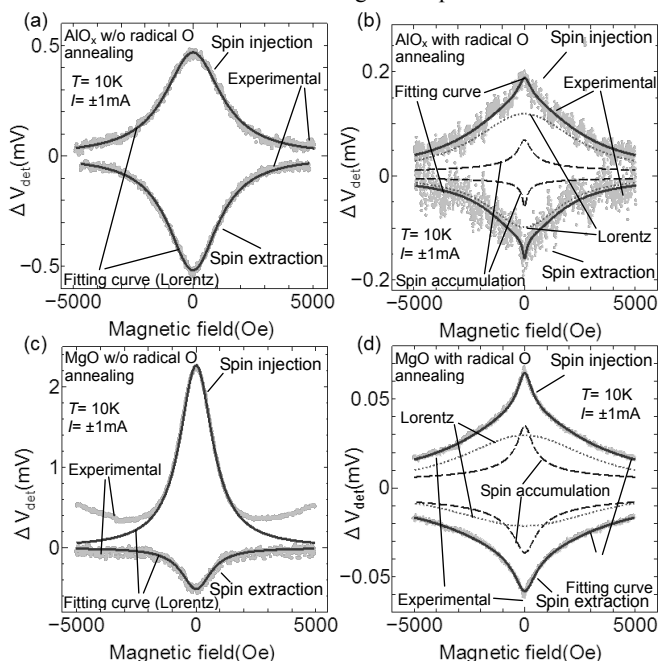


Fig. 2 Hanle-effect signals at 10K for spin injection and extraction measurements using CoFe/MgO/Si and CoFe/AlO<sub>x</sub>/Si spin injectors, and their fitting curves (a) AlO<sub>x</sub> tunnel barrier without radical-oxygen annealing (b) AlO<sub>x</sub> tunnel barrier with radical-oxygen annealing, (c) MgO tunnel barrier without radical-oxygen annealing (d) MgO tunnel barrier with radical-oxygen annealing.



## B2 型 $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}/\text{MgO}/\text{Si}$ スピン注入源の作製と評価

川目悠<sup>1</sup>, 悪七泰樹<sup>1</sup>, 周藤悠介<sup>1</sup>, 高村陽太<sup>2</sup>, 菅原聡<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>東工大院像情報, <sup>2</sup>東工大電子物理)

Preparation and characterization of a B2-ordered  $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}/\text{MgO}/\text{Si}$  spin injector

Y. Kawame<sup>1</sup>, T. Akushichi<sup>1</sup>, Y. Shuto<sup>1</sup>, Y. Takamura<sup>2</sup>, and S. Sugahara<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Imaging Sci. and Eng. Lab, Tokyo Inst. of Tech., <sup>2</sup>Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

### はじめに

近年, 低消費電力集積回路のキーデバイスとして, MOSFET 型のスピントランジスタであるスピン MOSFET が注目されている[1]. スピン MOSFET を実現するためには, スピン注入および検出の高効率化が重要となる. ハーフメタル・フルホイスラー合金  $\text{Co}_2\text{FeSi}_{1-x}\text{Al}_x$ (CFSA)は, B2 構造でも十分なハーフメタル性を示し[2], また室温に比べてキュリー温度( $\sim 1100\text{K}$ )が十分に高く, さらに Si とのバリアハイトを十分に低減させることが可能であるため, Si チャネルに対する高効率スピン注入源の強磁性電極として極めて有望である[3]. 今回, 我々は Si チャネルへのスピン注入源として実績のある MgO トンネルコンタクト上に, 分子線堆積(MBD)法を用いて高品質 CFSA 薄膜の形成を実現した. さらに, CFSA/MgO/Si 接合をスピン注入源とする 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, スピン注入・抽出の評価を行った.

### 実験方法

作製したサンプル構造は CFSA(30nm)/MgO(3nm)/ $n^+$ -Si( $4 \times 10^{19}\text{cm}^{-3}$ )である. サンプルは, MBD/ラジカル酸化/スパッタ装置を超高真空下で接続したマルチチャンバースystemを用いて, 真空一貫で作製した. MgO は, マグネトロンスパッタを用いて Si 基板に Mg を 1.5nm 堆積し, 室温でラジカル酸化を行った後, ラジカル酸素を照射しながらアニールを行うことにより膜質を改善した. 次に, MBD 法により  $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}$  を基板温度  $400^\circ\text{C}$  で堆積した. スピン注入源の構造評価は, XPS, XRD (規則度の解析には本研究室考案の拡張 Webster モデル[4]を用いた), TEMを用いた. また, スピン注入の評価は, 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, 蓄積スピンの Hanle 効果測定を用いた.

### 実験結果

まず, XPS によって界面構造の評価を行った. MgO と Si の界面にサブオキไซด์が MgO の室温形成時から存在したが,  $400^\circ\text{C}$  までのラジカル酸素アニールでも変化せず, この界面構造は安定であることがわかった(Si の酸化は進まない). 次に,  $400^\circ\text{C}$  でラジカル酸素アニールを施したサンプル上に MBD 法により, CFSA を堆積した. XRD による極点図解析から, CFSA が面内無配向の(100)配向柱状多結晶であることを確認した. また, 明瞭な(200)規則格子線が観測され(Fig.1), CFSA が少なくとも B2 構造を有していることがわかった. 拡張 Webster モデルを用いて算出した B2 規則度は約 63%であった. TEM 観察から, CFSA 薄膜は柱状配向した多結晶であることを確認した. この結果は XRD と一致した. また, MgO/Si 界面には, 大きなラフネスは観測されず, 急峻な界面が形成されていることがわかった(Fig.2). 次に, CFSA/MgO/Si をスピン注入源とする 3 端子スピン蓄積デバイスを作製し, Hanle 効果の測定を行った(Fig.3). スピン抽出測定では, 明瞭な Hanle 信号が得られたが, スピン注入測定では得られなかった. 抽出側で得られた Hanle 信号は, ローレンツ関数ではフィッティングすることは出来ず, Si チャネルに蓄積したスピンを表現できる解[5]をローレンツ関数と重ね合わせることでフィッティングが可能となった. この結果は, CFSA/MgO/Si トンネル接合を用いたスピン抽出の実現を示唆するものである.

### 参考文献

- (1)S. Sugahara, IEE Proc. Circuits Devices Syst. **152**, 355 (2005).
- (2)T.M.Nakatani et al., J. Appl. Phys. **102**, 033916 (2007).
- (3)Y. Kawame et al., the 12th Joint MMM-Intermag Conference, paper EI-06 (2013).
- (4)Y. Takamura, et al., J. Appl. Phys. **105**, 07B109 (2009).
- (5)Y. Takamura, et al., J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

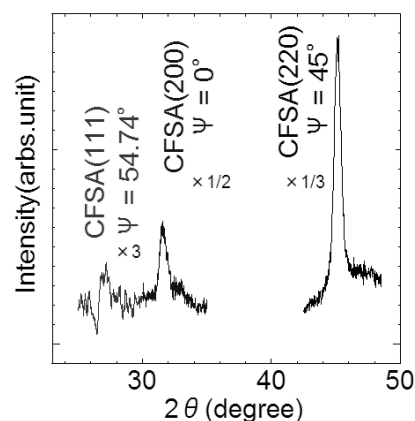


Fig. 1 XRD superlattice lines for a CFSA film formed on a high quality MgO/Si structure.

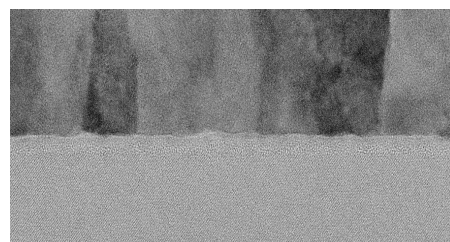


Fig. 2 TEM image of the fabricated CFSA/MgO/Si structure

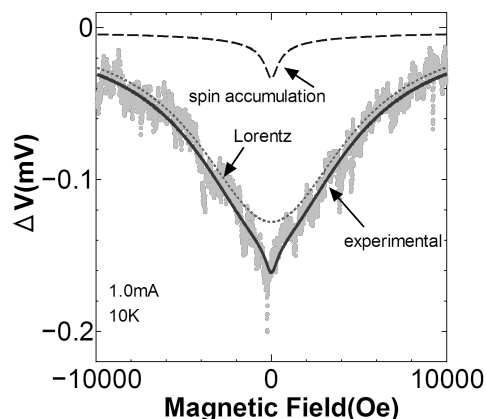


Fig. 3 Hanle-effect signal and its fitting curve

# CoFe/TiO<sub>2</sub>/Si トンネルコンタクトの作製とそのスピン注入源への応用

高橋克典<sup>1</sup>, 悪七泰樹<sup>1</sup>, 周藤悠介<sup>1</sup>, 高村陽太<sup>2</sup>, 菅原聡<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 東工大像情報, <sup>2</sup> 東工大電子物理)

Fabrication of a CoFe/TiO<sub>2</sub>/Si tunnel contact and its application for spin injector

K. Takahashi<sup>1</sup>, T. Akushichi<sup>1</sup>, Y. Shuto<sup>1</sup>, Y. Takamura<sup>2</sup>, and S. Sugahara<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Imaging Sci. and Eng. Lab., Tokyo Inst. of Tech., <sup>2</sup> Dept. of Physical Electronics, Tokyo Inst. of Tech.)

## はじめに

スピン MOSFET[1]を実現するためには Si チャネルに適合したスピン注入源の開発が重要になる。特に、オン状態におけるチャネル抵抗を考慮した設計が、スピン注入効率とデバイス性能から重要になる。スピン MOSFET の実現が期待されるナノスケールのチャネルでは、チャネル抵抗は非常に低く、これまで研究が進められている AlO<sub>x</sub> や MgO をトンネル障壁としたスピン注入源では、抵抗が大きすぎて適切ではない。今回、我々はナノスケールのチャネルに適合したスピン注入源のトンネル障壁として、TiO<sub>2</sub>を提案する。TiO<sub>2</sub>は Si との接合において伝導帯側に 0.1eV 程度の低いエネルギー障壁を形成[2]することから、CoFe<sub>2</sub>Si<sub>x</sub>Al<sub>1-x</sub>などの低仕事関数の強磁性金属を用いることで、非常に低いトンネル障壁(低抵抗)のスピン注入源を実現できると期待される。また、TiO<sub>2</sub>は低抵抗の MTJ として研究されていたこともあり、TMR も観測されている[3]。したがって、強磁性金属/TiO<sub>2</sub>/Si トンネルコンタクトはスピン MOSFET のスピン注入源として有望である。ラジカル酸化を用いた TiO<sub>2</sub>/Si 構造の形成と、これを用いたスピン注入源の検討について報告する。

## 実験方法

Si 上への TiO<sub>2</sub>の形成では、界面におけるシリサイドの形成を防ぐために、まず室温で Si 上に Ti をスパッタで堆積し、さらに室温でラジカル酸化を行うことで TiO<sub>2</sub>の形成を行った。次いで、膜質の向上のために、この TiO<sub>2</sub>/Si 構造形成後に、ラジカル酸素雰囲気中でアニールを行った。界面構造を XPS によって評価を行い、電気特性はダイオードを作製して、電流密度-電圧(*J-V*)特性から評価した。さらに、3 端子スピン蓄積デバイスを作製して、Si へのスピン注入を評価した。

## 実験結果

はじめに、室温でラジカル酸化によって形成した TiO<sub>2</sub>/Si およびラジカル酸素アニール処理した試料を XPS によって評価した。Fig. 1(a),(b)に Ti2p スペクトル, Si2p スペクトルをそれぞれ示す。室温でのラジカル酸化後 400°C のラジカル酸素アニールまでは界面にサブオキシドが観測されるのみで界面構造に劣化がないことがわかった。一方、500°C でラジカル酸素アニールを行うと Si<sup>4+</sup>(SiO<sub>2</sub>)は観測されないものの、Si のサブオキシドの増大が確認され、界面構造が変化したことがわかった。次にラジカル酸素アニールの効果を Al/CoFe/TiO<sub>2</sub>/n<sup>+</sup>-Si(P;4×10<sup>19</sup>cm<sup>-3</sup>)/Al 構造のダイオードを作製し、*J-V* 特性から評価した。室温でラジカル酸化のみを行った試料ではバラツキが大きかったが、400°C でラジカル酸素アニールを行うことで、特性のバラツキは大きく減少した。ピンホールなどの欠陥が減少したと考えられる。また、この *J-V* 特性から、TiO<sub>2</sub>と Si との間の障壁高さはおよそ 0.1eV 程度と見積もることができた。次に、CoFe/TiO<sub>2</sub>/n<sup>+</sup>-Si(P;4×10<sup>19</sup>cm<sup>-3</sup>)をスピン注入源としたスピン蓄積デバイスの作製を行い、蓄積スピンの Hanle 効果の測定を行った。Fig. 2(a),(b)に結果を示す。注入および抽出で明瞭な Hanle 信号の観測に成功した。また、得られた波形はローレンツ関数のみではフィッティングすることができず、Si チャネルに注入された蓄積スピンの Hanle 効果を正しく表現できる関数形[4]を加えることで、波形を再現することができた。この結果は、CoFe/TiO<sub>2</sub>/n<sup>+</sup>-Si トンネルコンタクトによって、Si チャネルへスピン注入できたことを示唆する。

## 参考文献

- 1) S. Sugahara, IEE Proc. Circuits, Devices & Sys. **152**, 355 (2005).
- 2) J. Robertson, J. Vac. Sci. Technol. B **18**, 1785 (2000).
- 3) J. Gang. Zhu, and C. Park, Mater. Today, **9**, 36(2006).
- 4) Y. Takamura, *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 17C307 (2014).

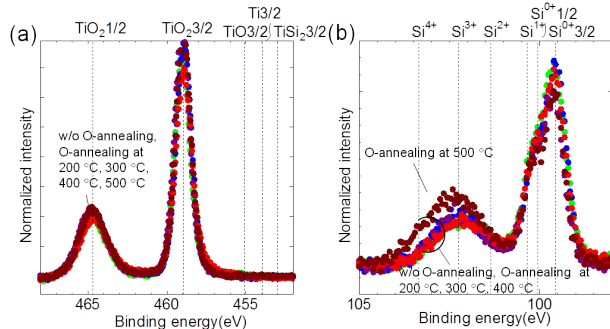


Fig. 1 (a) XPS Ti2p spectra and (b) Si2p spectra for an as-oxidized TiO<sub>2</sub>/Si sample at room temperature and TiO<sub>2</sub>/Si samples with radical oxygen annealing at 200°C, 300°C, 400°C, and 500°C

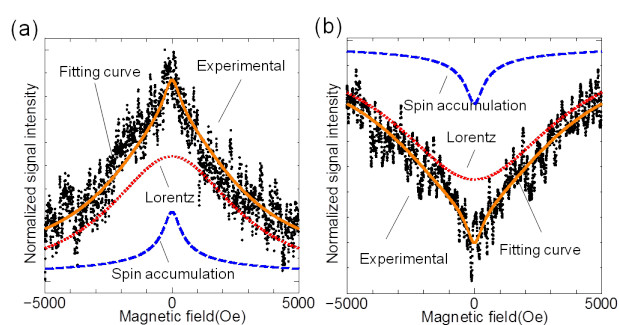


Fig. 2 Hanle-effect signals at 10K for (a) spin injection and (b) spin extraction measurements. Their various fitting curves are also shown.

## GaAsにおける四端子非局所スピバルブ信号と Hanle 信号のゲート制御

宮川拓望, 秋保貴史, 蝦名優也, 山本眞史, 〇植村哲也  
(北海道大学)

Gate control of spin-valve signal and Hanle signal in GaAs observed by a four-terminal nonlocal geometry

T. Miyakawa, T. Akiho, Y. Ebina, M. Yamamoto, and T. Uemura,  
(Hokkaido Univ.)

## はじめに

スピントランジスタをはじめとする半導体スピ機能デバイスの実現には、強磁性体電極から半導体へのスピ注入、および、チャンネル中を伝導するスピ偏極電流のゲート制御が必須である。スピ注入に関してはこれまで盛んに研究がなされ、Si や GaAs, Ge などさまざまな半導体チャンネルにて実証がなされている。一方、ゲート制御に関しては三端子 Hanle 効果測定により観測される強磁性体電極直下へのスピ蓄積信号のゲート制御が報告されている[1]ものの、半導体チャンネル中を伝導するスピ偏極電流により生成されるスピ信号のゲート制御に関する報告例はない。今回、我々は GaAs チャンネルにおける四端子非局所スピバルブ信号および Hanle 信号のゲート制御を実証したので報告する。

## 実験方法

p 型 GaAs (001) 基板上に p-GaAs バッファ層 ( $\text{Be} = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , 250 nm), ud-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As (50 nm), n<sup>-</sup>-GaAs (Si =  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , 700 nm), n<sup>+</sup>-GaAs (Si =  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , 30 nm), Fe (10 nm) を MBE 法により成長した。その後、Ar イオンミリング, EB リソグラフィ等を用いて p-i-n 接合型バックゲートを有する横型スピ輸送デバイスに加工した。Fig. 1 に示すように、電極 1, 3 間に一定の電流 ( $I_{\text{bias}}$ ) を流し、電極 2, 4 間の電圧 ( $V_{\text{NL}}$ ) を計測する cross nonlocal 配置にて、スピバルブ信号と Hanle 信号のゲート電圧 ( $V_G$ ) 依存性を 77 K にて測定した。  $V_G$  は接地された電極 3 を基準に、p 型バックゲートに印加した。

## 結果と考察

Fig. 2 に、 $I_{\text{bias}} = 20 \mu\text{A}$ ,  $V_G = 0, -1.5, -2.5 \text{ V}$  のときのスピバルブ信号と Hanle 信号を示す。  $I_{\text{bias}} > 0$  のとき、スピ偏極電子は電極 3 から n-GaAs に注入される。 Fig. 2 に示すように、スピバルブ信号および Hanle 信号の大きさは  $V_G$  により明瞭に変化しており、このことから、GaAs チャンネルを流れるスピ偏極電流のゲート変調が実証された。スピ注入の標準的なモデルによれば、スピバルブ信号の変化量 ( $\Delta V_{\text{NL}}$ ) はチャンネルのシート抵抗 ( $\rho_{\text{sh}}$ ) に比例する。しかしながら、今回の結果では、 $V_G$  を 0 から  $-2.5 \text{ V}$  まで変化させた時に、 $\rho_{\text{sh}}$  はおよそ 5 倍となったのに対して、 $\Delta V_{\text{NL}}$  はおよそ 2 倍となり、両者は一致しなかった。このことは、 $\Delta V_{\text{NL}}$  の  $V_G$  による変化は単に  $\rho_{\text{sh}}$  の変化だけでは説明できず、その他の要因、例えば、スピ注入効率が  $V_G$  により変化することなども考慮する必要があることを示唆している。

**謝辞** 本研究は JSPS 科研費 25286039 の助成を受けて行われた。

1) Y. Ando et al., APL **99**, 132511 (2011).

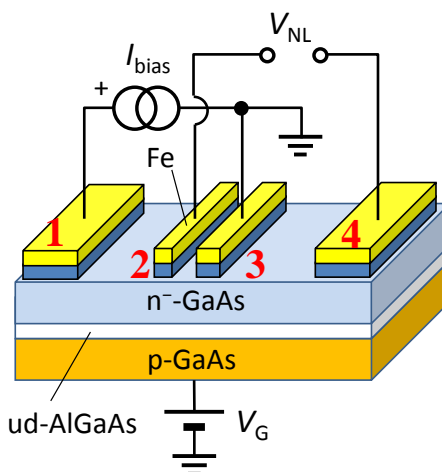


Fig. 1. Schematic device structure and circuit configuration.

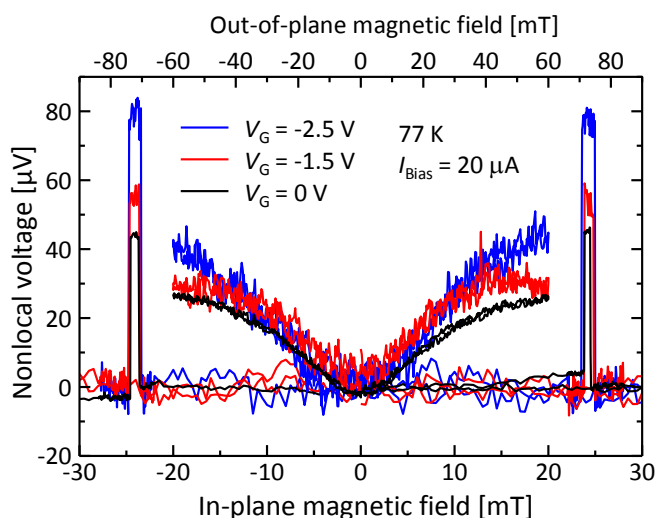


Fig. 2. Spin-valve signals and Hanle signals at  $I_{\text{bias}} = 20 \mu\text{A}$  for  $V_G = 0, -1.5, \text{ and } -2.5 \text{ V}$ .

## GaAs における過渡 oblique Hanle 信号に対する核磁気共鳴の影響

蝦名優也, 秋保貴史, 山本真史, 植村哲也  
(北海道大学)

Influence of nuclear magnetic resonance on transient oblique Hanle signals in GaAs

Y. Ebina, T. Akiho, M. Yamamoto, and T. Uemura,  
(Hokkaido Univ.)

## はじめに

近年, 強磁性体電極から半導体に注入された電子スピンの核スピンの効率的に偏極される動的核スピン偏極(DNP), 及び, 核磁気共鳴(NMR)による核スピン制御が量子情報デバイスへの応用の観点から注目されている. 最近, 我々は, DNP に要する時間スケールよりも早い時間スケールで外部磁場を掃引する過渡 oblique Hanle 効果測定により, GaAs における核スピンの外部磁場の変化に対する過渡応答特性や DNP による核磁場の生成時間を明らかにした[1]. 本研究の目的は, DNP により生成された核スピン偏極に対する NMR の過渡 oblique Hanle 信号に及ぼす影響を明らかにすることである.

## 実験方法

半絶縁性 GaAs (001)基板上に undoped-GaAs バッファ層 (250 nm),  $n^-$ -GaAs (700 nm,  $\text{Si} = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ),  $n^+$ -GaAs (30 nm,  $\text{Si} = 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ), Fe (10 nm)を MBE 法により成長した. その後, Ar イオンミリング, EB リソグラフィー等を用いて横型スピン輸送デバイスに加工した (Fig. 1). 過渡 oblique Hanle 効果測定は 4.2 K で非局所配置において行った. 外部磁場 ( $\mathbf{B}_{\text{ob}}$ )は  $\mathbf{B}_{\text{ob}} = B_{\text{ob}}\mathbf{u}$  ( $\mathbf{u}$  は  $(\sin 13^\circ, 0, \cos 13^\circ)$ の単位ベクトル)の条件で印加した. 初期状態として核磁場を生成するため,  $B_{\text{ob}} = +40 \text{ mT}$ ,  $I = -10 \mu\text{A}$  印加のもとで 150 秒待機した後非局所電圧 ( $V_{\text{NL}}$ )の  $B_{\text{ob}}$  依存性を測定した.  $B_{\text{ob}}$  は +40 mT から -40 mT  $\sim 0.38 \text{ mT/s}$  の速さで掃引し, RF 磁場は Fig. 1 における y 軸方向に印加した.

## 結果と考察

Fig. 2 に, RF 磁場がない場合と 175kHz の RF 磁場を照射した場合それぞれの oblique Hanle 測定結果を示す. RF 磁場がない場合, 生成された核磁場に由来する二つのサイドピークが観測された. 一方, RF 磁場のもとでは, 両サイドピークの大きさは減少し, 負側のピークは完全に消失した. この原因を明らかにするため, 非局所信号 ( $V_{\text{NL}}/I$ ) が極小となる磁場の値 (Fig. 2 の緑色矢印) の RF 周波数依存性を評価したところ,  $^{71}\text{Ga}$  に対する磁気回転比から見積もられる共鳴磁場に相当するところで非局所信号が低下することがわかった. また同様に, 変化量は小さいものの,  $^{69}\text{Ga}$  (Fig. 2 の橙色矢印) や  $^{75}\text{As}$  (Fig. 2 の黒色矢印) の NMR に起因した非局所信号の変化も観測された. これらのことから, RF 磁場印加に伴う過渡 oblique Hanle 信号の変化は, NMR による核磁場の消失が原因であることがわかった. 従来の定常状態での oblique Hanle 信号測定では NMR による信号変化は共鳴磁場のところだけで生じるのに対し, 過渡信号に対しては共鳴磁場以外のところでも見られ, NMR の検出が容易であることが示された. このことは, 核スピンの外部磁場の変化に対する過渡応答特性を評価できることに加え, 本手法の特徴の一つである.

## 謝辞

本研究は JSPS 科研費 25286039 の助成を受けて行われた.

## 参考文献

- 1) T. Akiho *et al.*, PRB **87**, 235205 (2013)

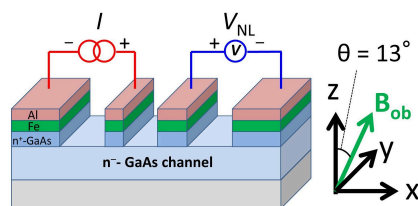


Fig. 1 : Schematic diagram of device structure.

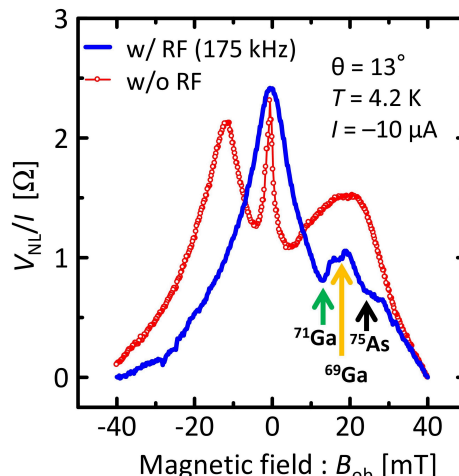


Fig. 2 :  $B_{\text{ob}}$  dependence of  $V_{\text{NL}}/I$  with and w/o RF magnetic field, where  $V_{\text{NL}}$  is the nonlocal voltage, and  $I$  is the injection current.

## 逆ペロブスカイト $\text{Co}_3\text{FeN}$ 薄膜の異方性磁気抵抗効果

安藤 弘紀、榊原 英樹、河合 俊介、植田 研二、浅野 秀文  
(名大院工)

Anisotropic magnetoresistance effect of anti-perovskite  $\text{Co}_3\text{FeN}$  thin films

H. Ando, H. Sakakibara, S. Kawai, K. Ueda, H. Asano  
(Nagoya Univ.)

### はじめに

逆ペロブスカイト窒化物磁性体  $\text{Co}_3\text{FeN}$  は、高い負のスピンの分極率<sup>1)</sup>を持つ強磁性材料であり、同じ逆ペロブスカイト窒化物磁性体同士だけでなく酸化物ペロブスカイトとの格子整合性がよいため、積層構造で多様な応用が期待できる。現在、分子線エピタキシー(MBE)法により  $\text{SrTiO}_3$  基板(格子ミスマッチ: -4.1%)上に  $450^\circ\text{C}$  で作製された報告<sup>2)</sup>があるが、本研究では、反応性スパッタ法を用いて、積層構造作製に有利な低温成長  $\text{Co}_3\text{FeN}$  薄膜を作製し、ハーフメタル性を評価するために異方性磁気抵抗効果<sup>3)</sup>について調査した。

### 実験方法

反応性マグネトロンスパッタ法により  $\text{Co}_3\text{Fe}$  ターゲットを用いて  $\text{Co}_3\text{FeN}$  薄膜( $\text{La}_{0.18}\text{Sr}_{0.82}$ )( $\text{Al}_{0.59}\text{Ta}_{0.41}$ )  $\text{O}_3(001)$ 基板(LSAT 基板)(格子ミスマッチ: -2.8%)上に、ガス圧は 2.5 Pa、膜厚 50-100nm で、スパッタガス  $\text{Ar} + 8-10\%\text{N}_2$ 、基板温度は  $250-350^\circ\text{C}$  の範囲で作製した。

### 実験結果

Fig. 1 に膜厚 50 nm、窒素濃度 10% で作製した  $\text{Co}_3\text{FeN}$  薄膜の面直格子定数と半値幅の基板温度依存性を示す。基板温度  $275^\circ\text{C}$  以上で  $\text{Co}_3\text{FeN}(00l)$  ピークが観測された。 $300^\circ\text{C}$  以下の低温でも、理論値に近い格子定数でロッキングカーブの半値幅も比較的狭い  $\text{Co}_3\text{FeN}$  が得られていることが分かった。基板温度  $300^\circ\text{C}$  で作製した試料で、 $\text{Co}_3\text{FeN}(200)$  ピークの面内  $\phi$  スキャンにおいて 4 回対称ピークが観測でき、LSAT 基板上に cube-on-cube にエピタキシャル成長していることが分かった。また、この薄膜は  $M_s = 1350 \text{ emu/cc}$  の磁化と小さな保磁力  $H_c = 25 \text{ Oe}$  の強磁性であり、 $R_a = 0.56 \text{ nm}$  と素子の下部電極に適した小さな値が得られた。Fig. 2 は  $\text{Co}_3\text{FeN}$  薄膜の異方性磁気抵抗効果を測定したもので、負の AMR 比が得られた。負の AMR 効果はハーフメタルの必要条件<sup>3)</sup>であるが、DOS の計算値<sup>1)</sup>を考慮すると、この薄膜はマイノリティスピン電子が伝導を主に担っていると考えられ、 $\text{Co}_3\text{FeN}$  のハーフメタル性を示唆している。講演では  $\text{Co}_3\text{FeN}$  の特性評価としてアンドレーエフ反射を用いてスピンの分極率を求め、AMR 効果との関連についても議論する。

### 参考文献

- 1) Y. Takahashi *et al.*, J. Magn. Magn. Mater, **323**, 2941, (2011).
- 2) T. Sanai *et al.*, J. Crystal Growth, **357**, 53, (2012).
- 3) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn, **81**, 024705, (2012).

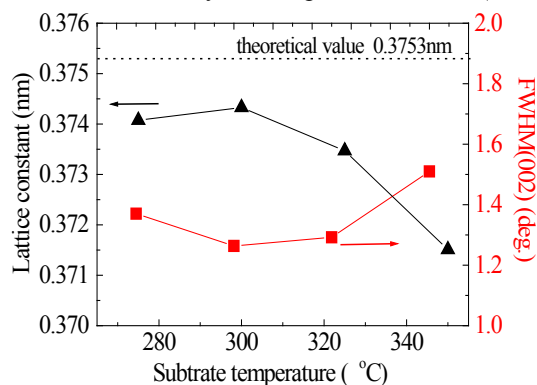


Fig. 1. Lattice constant (triangles line) and FWHM (squares line) plotted against substrate temperature of  $\text{Co}_3\text{FeN}$  thin films.

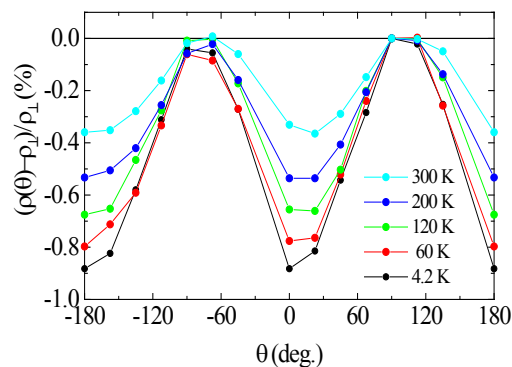


Fig. 2. Resistance changes of  $\text{Co}_3\text{FeN}$  films as a function of the magnetic-field direction  $\theta$  measured with respect to the sensing-current direction. The current  $I$  flowed along  $\text{Co}_3\text{FeN}[100]$ . The applied magnetic field was 4 kOe.

# $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 擬単結晶薄膜の異方性磁気抵抗効果 ～規則度依存性～

鹿原 和樹<sup>1</sup>, 角田 匡清<sup>1</sup>, 古門 聡士<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>東北大, <sup>2</sup>静岡大)

Anisotropic magnetoresistance effect in pseudo single crystal  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N films ~degree of order dependence~

K. Kabara<sup>1</sup>, M. Tsunoda<sup>1</sup>, and S. Kokado<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>Shizuoka Univ.)

## 1. はじめに

我々はこれまでに、 $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 薄膜で負の異方性磁気抵抗 (AMR) 効果が観測されることを見出し[1]、理論予測[2]された Fe<sub>4</sub>N の少数スピン電子伝導の証拠であることを示した[3]。また Fe<sub>4</sub>N 擬単結晶薄膜で電流を Fe<sub>4</sub>N[100]方向に流した場合、50 K 以下の温度で AMR 比の大きさが急激に増大し、AMR 曲線に  $\cos 40$ 成分が重畳する特徴的な変化を示す[4]が、その起源については明らかとなっていない。Fe<sub>4</sub>N の特異なスピン依存伝導は、ペロブスカイト構造の体心位置に存在する N 原子と面心位置に存在する Fe 原子との電子軌道混成が原因である[2]ことから、本研究では N 原子位置の規則度を変化させた擬単結晶  $\gamma'$ -Fe<sub>4</sub>N 薄膜を作製し、AMR 効果と規則度との関係について調べた。

## 2. 実験方法

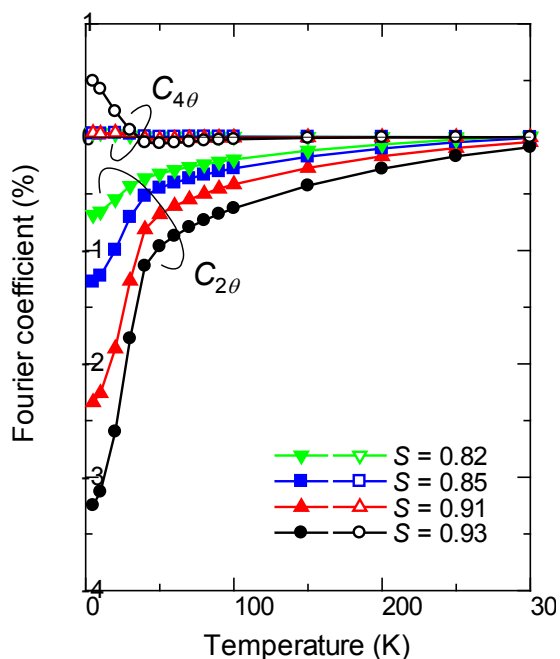
反応性スパッタ法を用い MgO(100)単結晶基板上に 50 nm 厚の Fe<sub>4</sub>N 擬単結晶薄膜をエピタキシャル成長させた。成膜直後の Fe<sub>4</sub>N 薄膜を、成膜装置内で 50~300°C の範囲で温度を変えて 15 分間熱処理した。冷却後、酸化防止層として 2 nm 厚の Ta 薄膜を Fe<sub>4</sub>N 薄膜に堆積させた。試料の構造解析は XRD により行い、Fe<sub>4</sub>N(100) と Fe<sub>4</sub>N(200)の回折線強度比から N 原子位置の規則度 ( $S$ ) を求めた。各熱処理温度に対応して  $S = 0.82 \sim 0.93$  の試料が得られた。各試料を 0.2 mm 幅×7 mm 長のストライプ状に加工し、直流 4 端子法で Fe<sub>4</sub>N[100]方向の電気抵抗 ( $R$ ) を 5~300 K の温度範囲で測定した。30 kOe の直流磁界を膜面内に印加し、印加磁界方向と電流方向の間の角度 ( $\theta$ ) の関数として  $R$  (AMR 曲線) を測定した。 $\theta = 0$  ( $90^\circ$ ) における抵抗値  $R_{//}$  ( $R_{\perp}$ ) を用いて、AMR 比を  $(R_{//} - R_{\perp}) / R_{\perp}$  と定義した。

## 3. 実験結果

図には各試料の AMR 曲線から求めた  $\cos 2\theta$  ( $\cos 4\theta$ ) 成分のフーリエ係数  $C_{2\theta}$  ( $C_{4\theta}$ ) の測定温度依存性を示す。ここで  $2C_{2\theta}$  が AMR 比に相当する。50 K 以下での AMR 比の大きさの急激な増大と  $\cos 4\theta$ 成分の重畳現象が、 $S$  の低下に伴って徐々に消失してゆくことが判った。著者らによる最近の AMR の理論[5]によれば、結晶場が AMR に及ぼす効果として、スピン軌道相互作用によるスピン混成から生じる従来の  $\cos 2\theta$ 形状の AMR 効果[3,6]に加えて、 $d_x$ 軌道と  $d_y$ 軌道のエネルギー差 ( $\Delta$ ) とフェルミ準位における両軌道の状態密度差に応じた  $\cos 2\theta$ 成分、ならびに正方晶歪に伴う  $d_x$ 内の軌道分裂に応じた  $\cos 4\theta$ 成分が、AMR 曲線に重畳することが示されている。N 位置の不規則化ならびに測定温度の上昇は Fe<sub>4</sub>N の電子構造の結晶場分裂を低減させる結果、低温における AMR 効果の特徴的な変化が  $S$  の低下に伴って低減したものと考えられる。

## 参考文献

- 1) M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Express **2** (2009) 083001.
- 2) S. Kokado et al., Phys. Rev. B **73** (2006) 172410.
- 3) S. Kokado et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 024705.
- 4) M. Tsunoda et al., Appl. Phys. Express **3** (2010) 113003.
- 5) S. Kokado et al., Phys. Status Solidi C **11** (2014) 1026.
- 6) S. Kokado et al., Adv. Mater. Res. **750-752** (2013) 978.



# ハーフメタルホイスラー合金薄膜における異方性磁気抵抗効果の定量解析

桜庭裕弥<sup>1</sup>、古門聡士<sup>2</sup>、平山悠介<sup>1</sup>、古林孝夫<sup>1</sup>、介川裕章<sup>1</sup>、李松田<sup>1</sup>、高橋有紀子<sup>1</sup>、宝野和博<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup> 物材機構、<sup>2</sup> 静岡大院工)

Quantitative analysis of anisotropic magnetoresistance effect in half-metallic Heusler compounds films

Y. Sakuraba<sup>1</sup>, S. Kokado<sup>2</sup>, Y. Hirayama<sup>1</sup>, T. Furubayashi<sup>1</sup>, H. Sukegawa<sup>1</sup>, S. Li<sup>1</sup>, Y. K. Takahashi<sup>1</sup>,  
and K. Hono<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Shizuoka Univ.)

## はじめに

1990年代より理論的に提唱されたCo基フルホイスラー合金系材料のハーフメタル性は、高いスピン偏極率を反映した巨大な磁気抵抗効果やスピン蓄積効果などにより実験的に実証され、室温での高いスピン偏極率を利用した次世代HDD用磁気ヘッドなどへの応用が期待されている。しかしながら応用上の課題として、室温におけるスピン偏極率の更なる改善に加え、デバイス作製上の熱処理温度や膜厚の制限への対応など解決すべき問題はまだまだ残されている。従って、デバイス応用実現のためには、ホイスラー合金の材料組成・熱処理温度・膜厚等を系統的に変化させた上でそれらのスピン偏極率を評価し、更なる最適化を図る必要がある。しかしながら、室温でのスピン偏極率の評価には、巨大磁気抵抗素子など面倒な微細加工を必要とするデバイス作製が伴うため、材料探索やデバイス作製条件の最適化を効率的に行うことは非常に困難である。

近年、古門らにより強磁性体における異方性磁気抵抗効果(AMR)を包括的に取り扱う新たな理論モデルが提案され、ハーフメタル材料のAMR効果の符号は必ず負になることが示された<sup>1)</sup>。これに基づきYangらは $\text{Co}_2\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 薄膜試料におけるAMR効果を系統的に評価し、高いスピン偏極率が得られる $x \leq 0.6$ においては古門らの予測通りAMRが負になり、AMR効果の測定がハーフメタル材料探索の指針となることを示した<sup>2)</sup>。本研究ではこれらの知見を更に発展させるために、 $\text{Co}_2\text{MnZ}$ ,  $\text{Co}_2\text{FeZ}$  ( $Z = \text{Al}, \text{Si}, \text{Ga}, \text{Ge}$ )系の種々の薄膜試料におけるAMR効果を系統的に定量評価し、合金組成、規則度、並びにCPP-GMR素子における磁気抵抗効果の大きさと総合的に解析することにより、AMR効果の符号及び絶対値とスピン偏極率の相関に関する知見を得ることを目的とした。

## 実験方法

超高真空スパッタ装置によって $\text{Co}_2\text{MnZ}$ ,  $\text{Co}_2\text{FeZ}$ 薄膜(50 nm)をMgO単結晶基板上に室温成膜し、熱処理温度を300–650°Cまで変化させた。AMR効果は電流方向を固定し、外部磁場(5kOe)を薄膜面内方向で回転させることにより評価した。ホイスラーの価電子数 $N_V$ を正確に評価するために、ICP分析によって組成分析を行い $N_V$ とAMRの相関について評価した。

## 実験結果

作製した $\text{Co}_2\text{FeZ}$ ,  $\text{Co}_2\text{MnZ}$ 系薄膜試料のAMR比を価電子数 $N_V$ に対してプロットした結果、ハーフメタルギャップを反映するAMRの正負の変化が明瞭に確認された(Fig.1)。また従来のCPP-GMRの実験結果との比較により、高い負のAMR効果が得られる組成と $L_{21}$ 規則状態において、大きなMR比や $\Delta R_A$ が得られる定量的相関が明瞭に確認された。本研究により、簡便なAMR効果の測定により材料のスピン偏極率に関する知見が得られることが確認された。<sup>3)</sup>

参考文献 1) S. Kokado *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024705 (2012). 2) F. Yang *et al.*, Phys. Rev. B, **86**, 020409R (2012) 3) Y. Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104**, 172407 (2014).

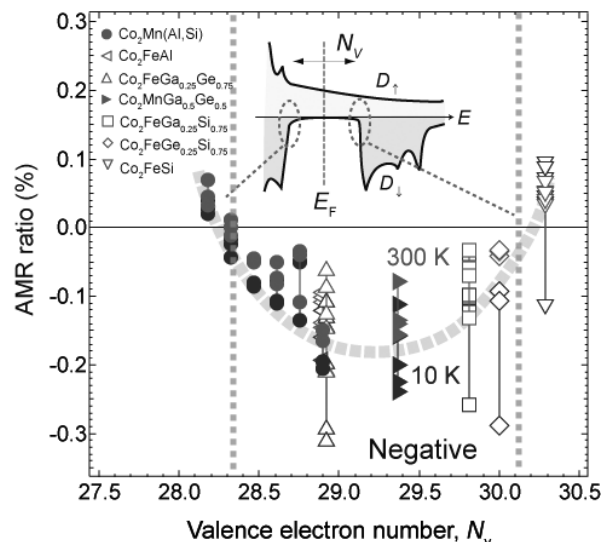


Fig. 1 Total valence electron number  $N_V$  dependence of AMR ratio in  $\text{Co}_2\text{MnZ}$  and  $\text{Co}_2\text{FeZ}$ <sup>3)</sup>

# Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)(Si, Al)ホイスラー合金の磁気抵抗効果

## Magnetoresistances Effects in Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)(Si, Al) Heusler Alloys

矢子 ひとみ、窪田 崇秀、高梨 弘毅

(東北大金研)

H. Yako, T. Kubota, and K. Takanashi

(Institute for Materials Research, Tohoku Univ.)

### はじめに

電子の持つ電荷とスピンの2つの自由度を応用して新機能を創製するスピントロニクス分野は急速な発展を見せており、デバイスの高性能化を実現するために高いスピン分極率を有する材料の開発が進められている。特に、ハーフメタルホイスラー合金は高いスピン分極率を有していることから注目を集めている。最近、桜庭等により異方性磁気抵抗効果(AMR)における抵抗変化率とその符号が、ハーフメタル性と相関を示すことが報告された<sup>1)</sup>。本研究では、5元系ホイスラー合金 Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)(Si, Al)について、AMR効果の合金組成、試料作製条件ならびに測定温度依存性について報告を行い、ハーフメタル性との関係について議論する。

### 実験方法

MgO (100) 基板を 650°C でフラッシングした後、基板加熱を行いながら Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.5</sub>Mn<sub>0.5</sub>(Si<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>) (CFMSA) を 50 nm 成膜した。基板加熱温度は、300°C, 400°C, 500°C, 600°C とした。x = 0, 1 の 4 元ホイスラー合金については合金ターゲットを用い、5 元ホイスラー合金の成膜時には Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)Si (CFMS) および Co<sub>2</sub>(Fe, Mn)Al (CFMA) ターゲットからの同時スパッタにより成膜した。ホイスラー合金成膜後は、酸化防止のためにキャップ層として Au を 2 nm 成膜した。試料の抵抗値は直流 4 端子法により 100 μA の電流を試料に流して測定した。

AMR 効果は、2 kOe の磁場を磁化容易軸方向に印加することで磁化を飽和させ、試料を薄膜面内方向で回転させることで評価した。結晶構造は X 線回折 (XRD) 装置、また、磁化を試料振動型磁力計 (VSM) によりそれぞれ評価した。

### 実験結果

作製した全試料は、XRD 測定の結果エピタキシャル成長していることを確認した。また、基板加熱温度 500°C で作製した CFMA、CFMSA、CFMS についてはいずれも L<sub>21</sub> 規則構造に起因する超格子反射を確認した。VSM 測定の結果、L<sub>21</sub> 構造が得られた試料の飽和磁化はバルク値程度の値であった。Fig. 1 に CFMA、CFMSA、CFMS 薄膜の室温における AMR 曲線を示す。横軸の角度は、電流と磁化(磁場)が直行する場合を 0° と定義した。全ての試料において負の AMR 効果が観測された。また、AMR 比の絶対値は CFMSA 薄膜において 0.3% と最大となることが分かった。講演では、AMR 比の試料作製条件(基板加熱温度)依存性ならびに面直通電型の巨大磁気抵抗素子の磁気抵抗変化率との関係についても議論する予定である。

### 謝辞

本研究の一部は、日本学術振興会 科研費 基盤研究 (S) (No. 25220910) 並びに、情報ストレージ推進機構 (SRC) による支援を受けて行われた。

### 参考文献

1) Y. Sakuraba et al., Appl. Phys. Lett., **104**, 172407 (2014).

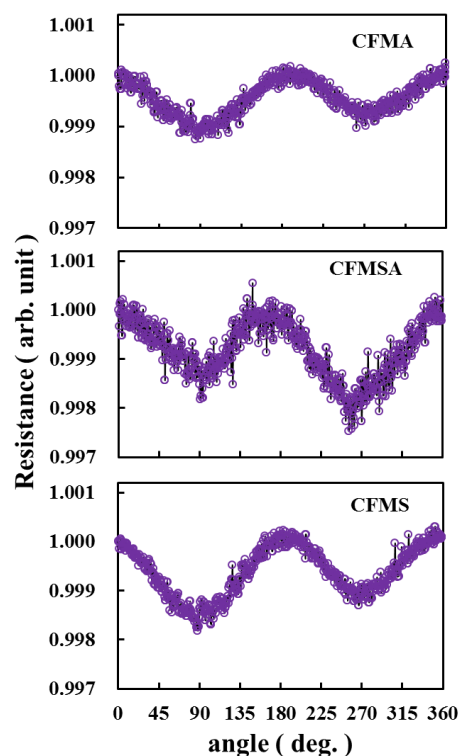


Fig. 1 Angular dependence of electrical resistance in CFMA, CFMSA and CFMS films at room temperature.



## bcc 型 Cu 基合金をスペーサー層に用いた CPPGMR

古林孝夫、高橋有紀子、宝野和博  
物質・材料研究機構

CPPGMR using Cu-based bcc alloys for a spacer layer

T. Furubayashi, Y.K. Takahashi, K.Hono

National Institute for Materials Science

### はじめに

これまで CPPGMR 素子のスペーサー層としては fcc 金属である Cu あるいは Ag が多く用いられており、Co 基ホイスラー合金磁性層との組み合わせにより大きな MR 値が得られている。スペーサー層としてホイスラー合金と同じ bcc 構造の材料を用いることにより、界面で良好なバンド整合性が得られ MR が改善されるという予想から、これまで L2<sub>1</sub> 型 Cu<sub>2</sub>RhSn [1] や B2 型 NiAl [2] が試みられてきたが顕著な効果は得られていない。これらの合金ではスピン拡散の効果が大きいため MR が本来の値に比べ減少しているのではないかと考えられる。そこで本研究では、同様の結晶構造を持ちスピン拡散の効果が小さいと考えられる材料として、原子番号が比較的小さくまた磁性元素を含まない B2 型 CuZn 合金及び D0<sub>3</sub> 型 Cu<sub>3</sub>Al 合金をスペーサー層に用いることを試みた。Cu<sub>3</sub>Al は高温相であるがスパッタ膜としては作成できる可能性がある。

### 実験

磁性層としてはホイスラー合金 Co<sub>2</sub>Fe(Ga<sub>0.5</sub>Ge<sub>0.5</sub>) (CFGG)を用いた。擬スピンバルブ型 CPPGMR 素子作製のため、MgO(001)単結晶基板上に sub/Cr(10)/Ag(100)/CFGG(10)/CuZn or Cu<sub>3</sub>Al(5)/CFGG(10)/Ag(5)Ru(8)、括弧内は膜厚(nm)、の積層構造でマグネトロンスパッタにより成膜した。製膜後にアニールを行い、微細加工により CPP 型素子を作成した。

### 結果

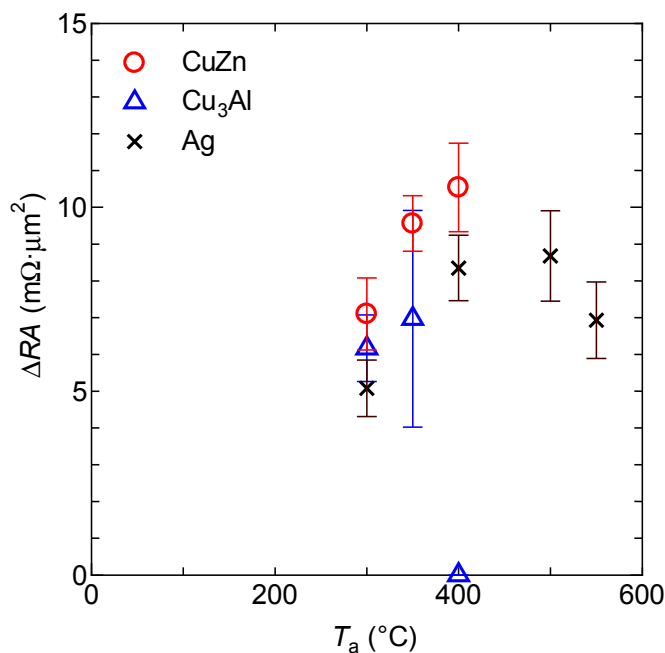
X線回折の結果、MR測定用試料と同様の基板と下地層を用いて CFGG 上に作成した 20nm 厚の CuZn は(001) 方位にエピタキシャル成長した B2 構造をとることがわかった。Cu<sub>3</sub>Al は(001)方位のエピタキシャル成長が確認されたが、D0<sub>3</sub>規則構造を示す回折線は見られず、A2 不規則構造であると考えられる。

図に室温で測定した抵抗変化×素子面積 ( $\Delta RA$ ) をアニール温度  $T_a$  に対して示した。比較のため Ag スペーサーを用いた同じ強磁性層、膜厚の素子の結果 [3] も示しているが、比較的低い  $T_a$  で Cu 基合金を用いた方が明らかに高い  $\Delta RA$  が得られている。Ag スペーサーの場合に比べ界面散乱のスピン非対称性が增强されることにより MR が増大していると考えられる。

本研究は JSPJ 科研費 2224609、25249087 の助成を受けたものである。

### 参考文献

- [1] K. Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 222501 (2009).  
[2] N. Hase *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 440 (2011).  
[3] H.S. Goripati *et al.* J. Appl.Phys. **113**, 043901 (2013).



# Crystal orientation dependence of band matching in CPP-GMR pseudo spin-valves with $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ge}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})$ Heusler alloy and NiAl spacer

Jiamin CHEN<sup>1,2</sup>, T. Furubayashi<sup>2</sup>, Y. K. Takahashi<sup>2</sup>, and K. Hono<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup>University of Tsukuba, <sup>2</sup>National Institute for Materials Science

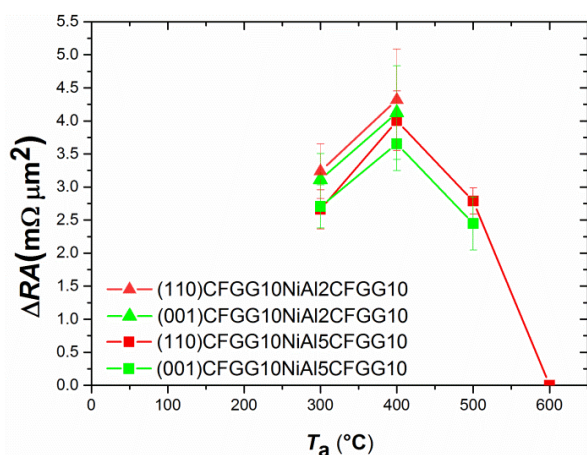
According to the Valet–Fert model<sup>1</sup>, the MR ratio depends not only upon the bulk spin polarization and the resistivity of ferromagnetic (FM) layers, but also upon the interfacial spin asymmetry that is a function of the lattice and band matching at the FM/non-magnetic metal (NM) interfaces<sup>2</sup>. It is highly relevant, therefore, to study whether or not the crystal orientation relationship between the Heusler layers and a spacer layer affects the interfacial spin scattering asymmetries or MR outputs. In our previous study of (001) and (110) epitaxial CPP-GMR devices, we found the change of crystal orientation in  $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ (CFGG)/Ag system had introduced a different lattice mismatch at CFGG/Ag interface resulting in various MR outputs. The influence of lattice matching on the interfacial spin scattering asymmetry is considered to be the main reason for the  $\Delta RA$  value difference<sup>3</sup>. However, how the band matching changes according to different crystal orientation is still unclear to us, because both lattice matching and band matching change when we alter the crystal orientation in CFGG/Ag system. To focus only on the band matching influence, we prepared CPP-GMR PSVs consisting of CFGG and B2 NiAl alloy for a spacer<sup>4</sup>. This combination is free of lattice matching influence depending on the crystal orientation because both alloys have the same bcc structure. The effects of the crystal orientation on band matching were examined by comparing with the devices' MR output in (001) and (110) orientations.

Pseudo spin valves (PSVs) in (110) orientation with the layer structure of sapphire/Ta(20)/W(100)/NiAl(10)/CFGG(10)/NiAl(2,5)/CFGG(10)/NiAl(5)/Ru(8) and (001) orientation with structure of MgO(001)/Cr10/Ag(100)/NiAl(10)/CFGG(10)/NiAl(2,5)/CFGG(10)/NiAl(5)/Ru(8) (unit: nm) were fabricated using an ultrahigh vacuum magnetron sputtering machine. The films were annealed at temperatures ranging from 300 to 600 °C after the deposition. The microstructure was characterized by XRD, HADDF-STEM and EDS mapping.

Figure 1 summarizes  $\Delta RA$  against the annealing temperature  $T_a$ . At the  $T_a$  of 300 and 600 °C, Both (110) orientation and (001) orientation devices show similar  $\Delta RA$  values. When the spacer thickness reduces from 5nm to 2nm, the MR outputs improve slightly. These results suggest that there is no or very small orientation dependence of band matching on MR output.

Figure 2 shows the plot of the saturation magnetization/unit film area ( $M_s/A$ ) value as a function of  $t_F$ . The intercept of the  $t_F$  vs.  $M_s/A$  plot represents the thickness of the magnetic dead layer at CFGG/NiAl interface. Both films in two different orientations show negligibly small dead layer thickness, which indicates a good lattice matching between the CFGG and NiAl layers. This result proves that the films are comparable and free of lattice matching influence on MR output.

This work was partly supported by JSPS Grant-in-Aid for Scientific Research (A) 22246091 and (A) 25249087.



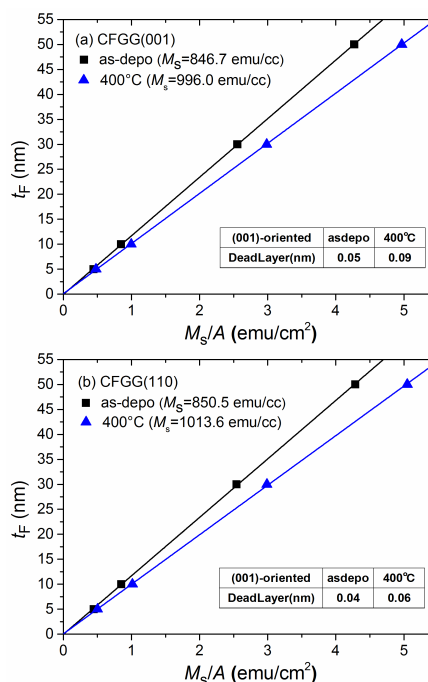
**Fig.1** Annealing temperature dependence of  $\Delta RA$  of the film stack in (110) and (100) orientation with NiAl spacer.

[1] Valet and A. Fert, Phys. Rev. B **48**, 7099 (1993).

[2] K. Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 222501 (2009).

[3] J. Chen *et al.*, J. Appl. Phys. in press.

[4] N. Hase *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **324**, 440 (2011).



**Fig.2** Plots of  $M_s/A$  versus CFGG layer thickness ( $t_F$ ) (a) in a (001)-oriented CFGG film and (b) in a (110)-oriented CFGG film.

## CPP-GMR pseudo spin-valves using ferromagnetic Heusler layer $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$ and nonmagnetic Heusler spacer $\text{Cu}_2\text{CrAl}$

Y. Du<sup>1,2</sup>, T. Furubayashi<sup>2</sup>, Y. K. Takahashi<sup>2</sup>, Y. Sakuraba<sup>2</sup>, K. Hono<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Tsukuba 305-8571, Japan

<sup>2</sup>National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

The current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistance (CPP-GMR) devices utilizing Co-based full Heusler alloys in the past few years have drawn much attention due to their potential application in the read sensors of ultrahigh density hard disk drives. Recent studies by Li *et al* and Sakuraba *et al* have demonstrated large MR ratio of over 50% and resistance change-area ( $\Delta RA$ ) product of  $\sim 12 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  by depositing epitaxial CPP-GMR film stacks on MgO (001) single-crystalline substrates. In these works, Ag was adopted as the spacer layer. On the other hand, other spacer materials have been proposed theoretically and experimentally. Nikolaev *et al* realized the all-Heusler CPP-GMR devices with ferromagnetic  $\text{Co}_2\text{MnGe}$  (CMG) and nonmagnetic  $\text{Rh}_2\text{CuSn}$  (RCS) Heusler films. Desirable band matching for the majority spins of CMG and RCS was proved by band calculations and finally the  $\Delta RA$  of  $4 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$  was achieved. Another work by Ko *et al* demonstrated the possible usage of Heusler spacer  $\text{Cu}_2\text{CrAl}$  (CCA) for the CPP-GMR devices, yet no experimental work was done. In this work we investigated the CPP-GMR properties of pseudo spin-valves using ferromagnetic Heusler layer  $\text{Co}_2\text{Fe}(\text{Ga}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})$  (CFGG) and nonmagnetic Heusler spacer CCA.

Thin film of  $\text{Cr}(10)/\text{Ag}(100)/\text{CFGG}(15)/\text{CCA}(20)/\text{Ag}(5)/\text{Ru}(8)$  was sputter-deposited on MgO(001) substrates and annealed from  $300^\circ\text{C}$  to  $400^\circ\text{C}$ . The CCA films with different compositions were investigated by using different sputtering targets. The structural properties were examined by XRD, HAADF-STEM and EDS mapping. For the CPP-GMR properties, film stack of  $\text{Cr}(10)/\text{Ag}(100)/\text{CFGG}(5)/\text{CCA}(t_N)/\text{CFGG}(5)/\text{Ag}(5)/\text{Ru}(8)$  was deposited and annealed at  $300^\circ\text{C}$  before the microfabrication. Four-probe measurement was performed for transport properties.

For CCA thin films with the composition of  $\text{Cu}_2\text{Cr}_{0.72}\text{Al}$ , as shown in Figure 1, CCA (002) peak that indicates B2 ordering appears when annealed above  $300^\circ\text{C}$ . Better  $L2_1$  ordering is observed when performing the Phi scan for the films. CPP-GMR devices with 10 nm CFGG and 5 nm CCA demonstrated MR ratio of 4-5%. On the other hand, when increasing the Cr content in the  $\text{Cu}_2\text{Cr}_x\text{Al}$  films from  $x=0.72$  to  $x=1$ , the MR ratio decreases dramatically, and this indicates that excess Cr is detrimental to improve the MR output. Finally, in Figure 2 we summarized the MR ratio as a function of the CCA thickness ( $t_N$  varies from 2.8-5.0 nm), possible interlayer exchange coupling in the elliptical CPP-GMR devices may explain the MR oscillation.

### Reference

- 1) Li *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103** (2013) 042405
- 2) Sakuraba *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101** (2012) 252408
- 3) Nikolaev *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94** (2009) 222501
- 4) Ko *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95** (2009) 202502

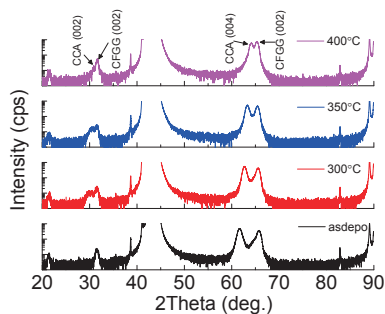


Figure 1 XRD profiles for film stack of  $\text{MgO}/\text{Cr}10/\text{Ag}100/\text{CFGG}15/\text{CCA}20/\text{Ag}5/\text{Ru}8$ . (units in nm)

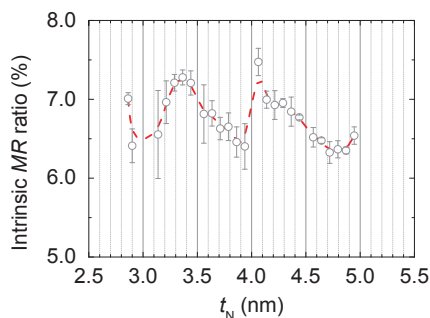


Figure 2 MR ratio as a function of CCA spacer thickness.

## Co<sub>2</sub>(Fe,Mn)Si 合金を用いた高出力スピントルク発振素子

関剛斎、桜庭裕弥<sup>†</sup>、荒井礼子\*、今村裕志\*、高梨弘毅  
(東北大金研、\*産総研ナノスピントロニクス、<sup>†</sup>現: 物材機構)

High power spin torque oscillator using a Co<sub>2</sub>(Fe,Mn)Si alloy

T. Seki, Y. Sakuraba<sup>†</sup>, H. Arai\*, H. Imamura\* and K. Takanashi  
(IMR, Tohoku Univ., \*AIST, <sup>†</sup>Present affiliation: NIMS)

### はじめに

ナノサイズの巨大磁気抵抗(GMR)素子あるいは磁気トンネル接合(MTJ)素子では、直流電流( $I_{dc}$ )と外部磁場( $H$ )を調整することでスピントルクとダンピングトルクが拮抗した状態を実現でき、磁化が定常的な歳差運動を示す。この現象はスピントルク発振と呼ばれ、歳差運動に起因して素子抵抗が時間的に振動するため、素子端に高周波電圧( $V_H$ )が発生する。スピントルク発振素子は、ナノ素子単体で構成され、発振周波数が磁場や電流によって可変であるという特徴から、チップ間通信用素子、レーダー、あるいは小型マイクロ波発生源などへの応用が検討されている。しかしながら、応用に向けて解決すべき課題があり、発振出力の増大と発振純度(Q 値)の向上が重要な課題である。発振出力は磁気抵抗(MR)比の 2 乗に比例するため、大きな MR 比が得られる MTJ 素子をベースとしたスピントルク発振素子が研究開発の主流となっている[1]。しかしながら、MTJ 素子は高電圧印加によるトンネルバリアにおける絶縁破壊が懸念され、加えて GMR 素子と比較して Q 値の向上が難しい。

そこで、我々は GMR 素子をベースとしたスピントルク発振素子において、発振出力の向上などの特性改善を試みてきた。ホイスラー合金の一部は 100%のスピン分極率が理論予測されるハーフメタルと呼ばれる物質群であり、大きな GMR 効果を期待できる。これまでに、Co<sub>2</sub>MnSi (CMS)ホイスラー合金を GMR 素子の強磁性層に用いることにより、室温で 36.4%の MR 比を報告し[2]、GMR 素子においても高い発振出力を得ることに成功した[3,4]。本研究では、出力の更なる増大を目指し、CMS よりも大きな GMR 効果を示す Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si (CFMS)ホイスラー合金[5]を用いて、様々な外部磁場方位においてスピントルク発振特性を系統的に評価した。

### 実験

超高真空対応マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(100)単結晶基板上に薄膜試料を作製した。薄膜の積層構造は、MgO 基板 || Cr (20 nm) | Ag (40 nm) | CFMS (20 nm) | Ag (5 nm) | CFMS (3 nm) | Ag (2 nm) | Au (5 nm)であり、CFMS 層は室温で成膜後 500 °C でアニールすることにより L2<sub>1</sub>構造への規則化を促進した。作製した薄膜を、100 nm × 170 nm サイズのピラーへと微細加工した。2 端子法により MR 曲線を測定したところ、30 %の MR 比が得られた。さらに、電極抵抗などの寄生抵抗を差し引くと、MR 比は 48%となった。

図 1 に  $I_{dc} = 3$  mA を印加した時の高周波スペクトルを示す。 $H = 3$  kOe を素子の面垂直方向に印加した場合、9.5 GHz に線幅の狭い発振ピークが観測された。面内磁場における測定結果と比較すると、発振出力および Q 値を向上の観点から、垂直磁場が有効であることが確認された。さらに測定条件の最適化により、出力が 23.7 nW、Q 値が 1124 の発振が観測された。講演時にはマイクロマグネティクスの計算結果をもとに、励起されている発振モードについても議論する。

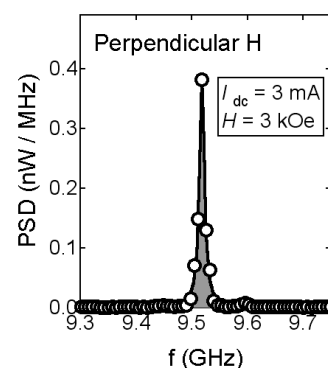


Fig. 1 Power spectral density (PSD) for the device with the GMR stack of CFMS / Ag / CFMS.

本研究の一部は、「先端スピントロニクス材料と伝導現象(ASPIMATT)」の支援を受けて遂行された。また、植田正輝氏、大倉遼氏にはサンプル作製および測定に関してご協力頂いた。

### 参考文献

- [1] H. Maehara *et al.*, *Appl. Phys. Exp.*, **6**, 113005 (2013). [2] Y. Sakuraba *et al.*, *Phys. Rev. B*, **82**, 094444 (2010). [3] R. Okura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **99**, 052510 (2011). [4] T. Seki *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **113**, 033907 (2013). [5] Y. Sakuraba *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 252408 (2012).

## 垂直磁化 Ta/CoFeB/MgO フリー層を用いた

### 3 端子磁壁移動型 MRAM の動作原理

谷川博信、鈴木哲広、末光克巳、大嶋則和、北村卓也、大河内拓雄\*、小嗣真人\*、木下豊彦\*、  
 小山知弘\*\*、千葉大地\*\*、吉村瑤子\*\*\*、上田浩平\*\*\*、小野輝男\*\*\*、苅屋田英嗣  
 (ルネサスセミコンダクタマニュファクチャリング、\*JASRI、\*\*東京大、\*\*\*京都大)

Operating principle of a three-terminal domain wall device  
 with perpendicularly magnetized Ta/CoFeB/MgO free layer

H. Tanigawa, T. Suzuki, K. Suemitsu, N. Ohshima, T. Kitamura, T. Ohkochi\*, M. Kotsugi\*, T. Kinoshita\*,  
 T. Koyama\*\*, D. Chiba\*\*, Y. Yoshimura\*\*\*, K. Ueda\*\*\*, T. Ono\*\*\*, E. Kariyada  
 (RSMC, \*JASRI, \*\*Tokyo Univ., \*\*\*Kyoto Univ.)

#### はじめに

電流誘起磁化反転現象は、Magnetic random access memory (MRAM)に代表される磁気デバイスの記録書き込み技術として幅広く研究開発が行われている。記録書き込み時と読み出し時の電流経路が異なる3端子構造は、記録読み出し時の誤書き込みが無いという利点がある。本講演では、フリー層に垂直磁気異方性を有する Ta/CoFeB/MgO 積層膜を用いた3端子磁壁移動型 MRAM を試作・評価し、フリー層の磁化反転機構について調べた結果を述べる。

#### 3 端子磁壁移動型 MRAM

Fig. 1 に試作した磁壁移動型 MRAM の概念図と測定配置を示す。磁化の向きが固定されている2つのハード層がフリー層の直下に設置されている。2つのハード層は磁化の向きが互いに反平行な状態であり、ハード層からの漏洩磁場によってフリー層の磁化方向を制御することで、フリー層に単一の磁壁を導入することができる。記録書き込み時には2つのハード層間にパルス電流を印加し、読み出し時にはハード層と MTJ 層の間に電流を印加して MTJ 抵抗値を検出する。フリー層線幅 130 nm において、書き込み電流値 0.16 mA の低電流書き込み、および MR 比 80% の良好な読み出し特性を得ている<sup>1)</sup>。しかしながら、ハード層境界に導入された磁壁が電流駆動していると仮定すると、その方向は電流と同方向であることになる。上記の磁壁移動方向は、報告されている CoFeB フリー層の磁壁移動方向と逆である<sup>2)</sup>。フリー層の磁化反転機構を調べるため、フリー層のみの場合の磁壁電流駆動現象を電氣的検出および磁区観察、および3端子素子の電流-抵抗特性におけるハード層磁化方向依存性を調べた。その結果、電流印加による磁壁生成とその磁壁の駆動によってフリー層の磁化反転が完了していることが明らかとなった<sup>3)</sup>。

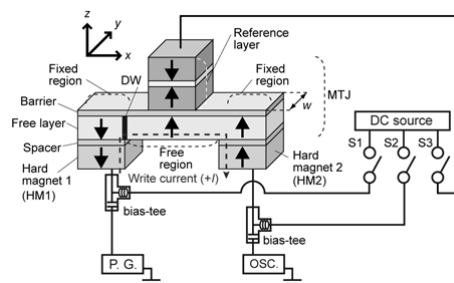


Fig. 1 Schematic illustration of the three-terminal DW device and experimental setup.

#### 参考文献

- 1) T. Suzuki *et al.*, Symp. VLSI Technology Dig. Tech. Pap., 2013, p. 138.
- 2) S. Fukami *et al.*, Appl. Phys. Lett. **98**, 082504 (2011).
- 3) H. Tanigawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 063001 (2014).

# MTJを一括加工した磁壁移動型 MRAM の電流書き込み特性

末光克巳、鈴木哲広、谷川博信、北村卓也、苅屋田英嗣  
(ルネサスセミコンダクタマニュファクチャリング)

Writing properties of domain wall MRAM devices using one step etching process for MTJ films  
K. Suemitsu, T. Suzuki, H. Tanigawa, T. Kitamura, E. Kariyada  
(RSMC)

## はじめに

垂直磁化を用いた磁壁移動型 MRAM 素子として、MTJ を磁化自由層と参照層で 2 回加工する構造が提案されている<sup>1)</sup>。しかし、素子の微細化や工程数の削減のためには、MTJ を一括加工することが望ましい。Fig. 1 にその構造の一例を示すが、MTJ が磁化固定層(HL1 および HL2)の一部を覆うことで、磁化自由層(FL)に磁化固定領域ができるため、電流による磁壁移動動作が可能となる。MTJ 長が短いほど FL の磁化固定領域が狭く、電流書き込み時の MR 比が大きくなる一方で、磁化固定領域が安定に存在せず、電流動作がしにくくなるという懸念がある。そこで MTJ 長を変えたときの、MR 比および電流動作の可否についての評価を行った。

## 実験方法

Fig. 1 に示す磁壁移動型 MRAM 素子は、FL に垂直磁化 CoFeB、トンネルバリア(TB)に MgO、参照層(RL)に CoFeB と Co/Pt 多層膜の積層膜を用いた。また 2 つの磁化固定層(HL1 および HL2)は、共に Co/Pt 多層膜から構成されるが、保磁力に差をつけ外部磁界によりそれらの磁化方向を反平行にした。MTJ はメタノールエッチングにより一括加工されるが、HL1 および HL2 の上にエッチングストップとして Ta CAP を設け、HL が加工されることを防いだ。また設計値として MTJ 長( $L_{MTJ}$ )を 400 nm から 700 nm の範囲とし、FL の磁化自由領域の長さ( $L_{FR}$ )を 260 nm 一定とした。このとき電流動作時に得られる MR 比を  $MR_L$ 、FL の磁化を全反転させて得られる MR 比を  $MR_H$  とすると、 $MR_L / MR_H$  は設計上  $L_{FR} / L_{MTJ}$  と等しく 0.65 から 0.37 の値が得られると期待されるが、実際は加工後に寸法が変わるため値は多少変化する。

## 結果

400 nm から 700 nm の全範囲の  $L_{MTJ}$  で電流書き込みが可能であり、また  $L_{MTJ}$  が短いほど  $MR_L / MR_H$  が高いことが確認された。Fig.2 に  $L_{MTJ}$  の設計値を 400 nm とした 1Kbit アレイにおける、電流書き込み時のトンネルバリアの抵抗分布を示す。 $MR_L$  の平均値として 86% が得られ、 $MR_L / MR_H$  の値も 0.88 となり、電流書き込み時の MR 比の低下が 12% 程度と小さいが、電流動作が可能であることが確認された。また MTJ を一括加工することで、ウェハ全面で高い抵抗歩留りが得られることもわかった。

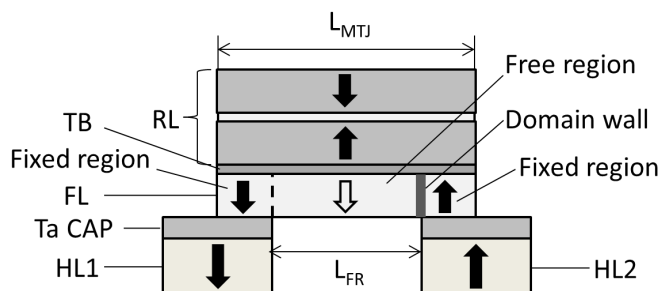


Fig.1 Schematic cross-section of the domain wall device

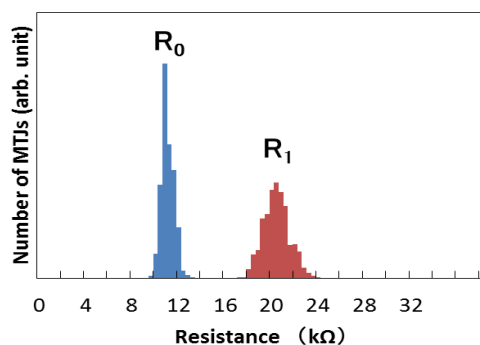


Fig.2 Low- and high-resistance distributions of MTJ cells in 1-Kbit array

## 参考文献

- 1) S. Fukami *et. al.*, Symp. VLSI Technology Dig. Tech. Pap., 2009, p. 230.

## CoPt/Ru/CoPt 参照層を持つ垂直磁化 MTJ の磁気抵抗曲線

福島 章雄、薬師寺 啓、甲野藤 真、久保田 均、今村 裕志、湯浅 新治  
(産業技術総合研究所・ナノスピントロニクス研究センター)

MR-loops of perpendicularly magnetized MTJ with CoPt/Ru/CoPt reference layer

A. Fukushima, K. Yakushiji, M. Konoto, H. Kubota, H. Imamura and S. Yuasa  
(Spintronics Research Center, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

### はじめに

近年、垂直磁化 MTJ は、高密度スピン RAM の候補として注目され、研究開発がすすめられている。我々は低電圧磁化反転を可能とする MTJ として、MgO でキャップされた FeB を磁化自由層、CoPt/Ru/CoPt を磁化参照層とする垂直磁化 MTJ<sup>[1]</sup>を開発した。この膜構成による MTJ 素子の磁化曲線について報告する。

### 実験方法

膜構成は、MgO キャップ / [ FeB 1.9 nm (磁化自由層) ] / MgO バリア (RA 値  $6 \Omega \mu\text{m}^2$ ) / [ FeB 1.0 nm / Ta 0.2 nm / CoPt 1.3 nm / Ru 0.9 nm / CoPt 2.4 nm (磁化参照層) ] であり、微細加工により  $120 \text{ nm} \Phi$  の MTJ 素子に加工した。面直方向に  $\pm 6000 \text{ Oe}$  の磁界を印加し、磁化曲線を測定した。得られた MR 比は 120% 程度である。

### 実験結果

この素子において、CoPt/Ru/CoPt 参照層は、 $|H| < 2 \text{ kOe}$  において反強磁性的に結合することが解っている。初めに大きな磁界をかけ、その後小さくしていった場合、磁化自由層に隣接した CoPt 層が先に反転するため、初期状態の磁界方向に応じて、参照層の磁化の向きが up-down あるいは down-up という 2 つの異なる Minor ループを持つというユニークな特徴を持っている。Fig1 に測定した磁化曲線を示す。(a) が Major ループ、(b) は負の磁界方向から、(c) は正の方向から測定した Minor ループである。2 つの Minor ループは異なるシフト磁界を持つことが解る。また、どちらのループに属していても、ゼロ磁場においては、同一の抵抗値を示す。

しかしながら、2 つの Minor ループの反転磁界が異なることを利用し、プローブ磁界 (片方の Minor ループでは反転し、もう片方では反転しない程度の磁界) を与えた前後での抵抗値を読出すことで<sup>[2]</sup>で、どちらかのループに属しているかを判断することが可能である。

### 参考文献

- 1) K. Yakushiji *et al.*, Appl. Phys. Express **6** (2013), 113006.
- 2) R. Zhang *et al.*, IEEE Trans. Mag. **35** (1999), 2829.

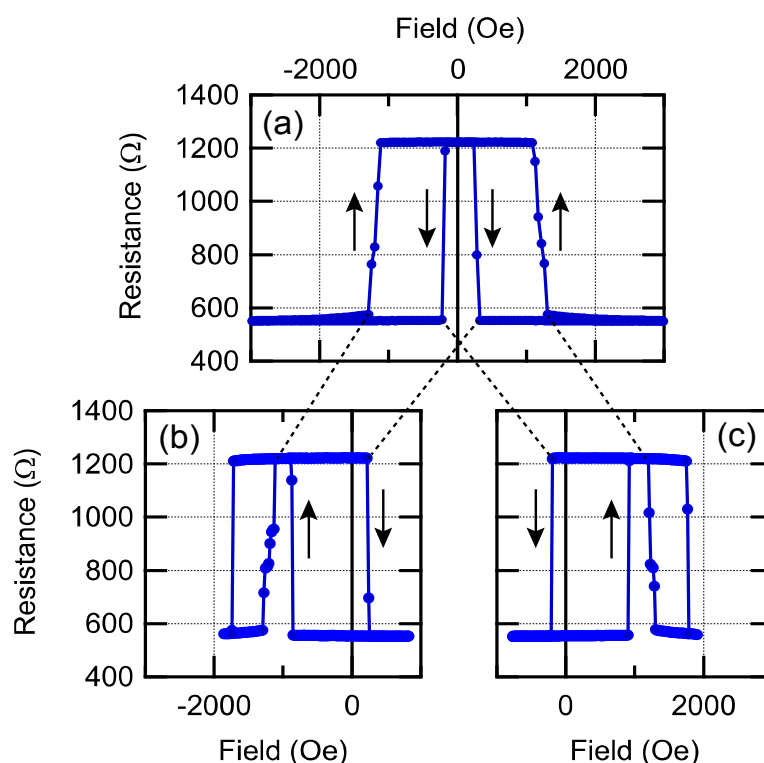


Fig. 1 (a) Major loop and (b, c) minor loops of pMTJ with CoPt/Ru/CoPt reference layer.

# ドライアイス処理によるリフトオフを用いた磁気抵抗素子の加工

三宅耕作、角田匡清、佐橋政司

(東北大学大学院工学研究科電子工学専攻)

MR element fabrication with lift-off process by dry ice blaster

Kousaku Miyake, Masakiyo Tsunoda, Masashi Sahashi

(Department of Electronic Engineering, Tohoku University)

## 目的

スピントロニクスの研究分野において、微細な膜面垂直通電型素子が多く用いられている。記録密度の向上に伴い、ヘッドの微細化や MRAM 素子の微細化が要求され、100 nm 以下の微細なデバイスによる研究が要求されている。CPP 素子のピラーは通常、レジストパターンをマスクとするミリング、絶縁層によるコーティング、超音波洗浄による剥離という工程が用いられることが多く、特にリフトオフの工程に確実性が無いため歩留りを悪化させる。大学等の小規模な研究機関では大規模に加工条件を突き詰めることが困難であり、容易に研究を進めることができない状況である。

断熱膨張によりノズルから生成した微細なドライアイス粒子をピラー型レジストに当てると、柔らかく、微細なレジストピラーは破碎され選択的に剥離される。この工程でリフトオフは容易に達成されるが、素子に対してドライアイス粒子との摩擦による静電気や機械的なダメージなどが懸念される。これらの点について調べるため素子加工を行い、評価を行った。

## 実験方法

試料は MgO-MTJ からなるスピンバルブである。上下電極はフォトリソグラフィと Ar イオンミリングによって加工した。ネガレジストを用いた電子線リソグラフィとパターンに対するアッシングを用いたスリミング工程によって 100nm 程度のピラーパターンを形成した。ミリングによってピラー加工を行い、RF スパッタによって SiO<sub>2</sub>(35nm)をコーティングしたのち、除電用の Cu 6nm を続けて成膜した。この試料に対して、試料表面とホルダ間の導通(50Ω程度)を確保したうえで、ドライアイス粒子(全協化成 ドライアイス処理装置)で処理を行った。処理中は X 線イオナイザーで除電し、雰囲気はイオン化効率の良いドライエアーを用いた。露点は-25°C以下で、処理後に結露などは見られなかった。試料は、処理後に残留レジストを剥離するためリムーバーで洗浄した。また、比較のために、リムーバーを用いて 1 h 程度超音波洗浄のみを行った試料も作成した。

## 実験結果

図 1 にドライアイス処理工程 A を行って作成した試料と、従来の超音波洗浄のみによるリフトオフ工程 B で作成した試料の磁気抵抗効果の測定結果を示す。両試料を比較して、素子特性に大きな違いは見られず素子に対するダメージは見られなかった。また図 2 に工程 A の剥離後の試料の SEM 像を示す。工程 B では 1 h 程度の超音波洗浄で確率的にリフトオフが行えるが、加工中に熱などのダメージが加わるなどすると剥離が困難となり、実験の再現性が悪い。一方、工程 A では、処理のみで 250nm 以下の素子はほぼ全て剥離できた。しかし、400nm 以上の大きな素子ではほとんど剥離されなかったため、体積の大きなレジストは機械的強度が強くドライアイス粒子が微小な場合は剥離できないことが分かった。ドライアイス処理は、照射する粒子のサイズの制御が重要であると考えられる。しかしながら、微細な素子を作る目的には適しており、有効であることが分かった。

**謝辞** 本研究の一部は、経済産業省の産学連携イノベーション促進事業により助成されたものです。

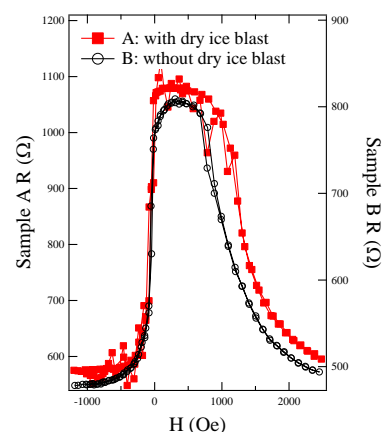


図 1. 作製した素子の MR 曲線 A:ドライアイス処理、B:超音波洗浄のみ。

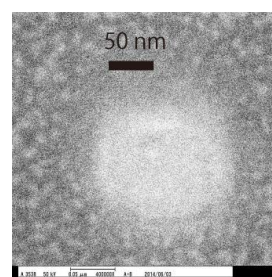


図 2 剥離後の試料の SEM 像



# ホイスラー合金 $\text{Co}_2\text{FeAl}$ とスピネル $\text{Mg-Al-O}$ バリアを用いた格子整合強磁性トンネル接合

介川裕章<sup>1</sup>、T. Scheike<sup>1,2</sup>、古林孝夫<sup>1</sup>、Z. C. Wen<sup>1</sup>、猪俣浩一郎<sup>1</sup>、三谷誠司<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup> 物材機構、<sup>2</sup> 筑波大)

Lattice-matched magnetic tunnel junctions using Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  and spinel  $\text{Mg-Al-O}$  barrier  
H. Sukegawa,<sup>1</sup> T. Scheike,<sup>1,2</sup> T. Furubayashi,<sup>1</sup> Z. C. Wen,<sup>1</sup> K. Inomata,<sup>1</sup> S. Mitani<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Univ. Tsukuba)

## はじめに

Co 基ホイスラー合金 ( $\text{Co}_2\text{XY}$  型、 $X$  は遷移金属、 $Y$  は主に典型元素) は高いスピン偏極率、高いキュリー温度を有するため、これを用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) では巨大なトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が期待されるため盛んに研究がなされてきた。コヒーレントトンネル効果による TMR 増大効果を示す  $\text{MgO}$  がホイスラー-MTJ のバリアとして用いられるようになり、近年巨大な TMR 比が報告されるようになった。特に  $\text{Co}_2\text{MnSi/MgO/CoFe}$  構造を有する MTJ において 2000% もの極めて大きな TMR 比が低温で報告されている<sup>1)</sup>。その一方、ホイスラー-MTJ の室温における TMR 比は  $\text{CoFeB/MgO/CoFeB}$  系 MTJ の最大値に比べまだ小さく、その向上が求められている。一般的に  $\text{MgO}$  と Co 基ホイスラー合金との格子不整合は数% と無視できない程度に大きく、 $\text{MgO}$  界面近傍に多数の欠陥が導入<sup>2)</sup>されることによりハーフメタル特性を引き出すことが容易ではない。また、ホイスラー合金の表面は活性であるため、酸化物バリア形成時に容易に酸化されやすく、バリア層との界面を理想的に保つことが必要となる。これらの問題の解決を目指して、本研究では格子定数が  $\text{MgO}$  よりも小さいスピネル系トンネルバリア ( $\text{Mg-Al-O}$ )<sup>3)</sup>を用いて高品質な格子整合ホイスラー-MTJ の作製を行った。ホイスラー合金には、 $\text{Co}_2\text{FeAl}$  (CFA)<sup>4)</sup>を用い、 $\text{Mg-Al-O}$  層と CFA 層間に  $\text{CoFe}$  層を挿入することでバリア界面の構造の調整も図った。

## 実験方法

MTJ 多層膜は、マグネトロンスパッタ装置を用いて  $\text{MgO}(001)$  単結晶基板上に  $\text{Cr/Co}_{50}\text{Fe}_{50}$  層をバッファーとして、 $\text{CFA}(5\text{ nm})/\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$  挿入層 ( $d_{\text{CoFe}}$ ) /  $\text{Mg-Al-O/Co}_{50}\text{Fe}_{50}(5\text{ nm})/\text{IrMn}$  構造を作製した。CFA 層は  $\text{Co-Fe-Al}$  の合金ターゲットから成膜を行った。また、 $\text{Mg-Al-O}$  バリア層は  $\text{Mg/Mg-Al}$  合金の 2 層膜をプラズマ酸化することにより得た<sup>3)</sup>。作製した MTJ 多層膜は適宜磁場中熱処理を行い、TMR 比及び面積抵抗 RA の評価には面内電流トンネル (CIPT) 法および、素子微細加工後に直流 4 端子法を用いて行った。

## 実験結果

バリア層作製条件、ポストアニール条件を最適化することにより、(001) 方位にエピタキシャル成長した  $\text{CFA}(\text{CoFe})/\text{Mg-Al-O/CoFe}$  構造の MTJ 素子の作製に成功した。CFA は X 線回折から  $B2$  構造を有していることがわかった。CFA/ $\text{MgO/CoFe}$  ( $d_{\text{CoFe}} = 0\text{ nm}$ ) 構造において、室温で約 230% の比較的大きな TMR 比が得られた。これは CFA の持つ高いスピン分極率に加え、 $\text{Mg-Al-O}$  バリアのコヒーレントトンネル効果が有効に働いているためであると考えられる。CoFe 層を挿入することで TMR 比の向上がみられ、 $d_{\text{CoFe}} = 1\text{ nm}$  において最大の室温 TMR 比 : 281% が得られた。その一方で RA は  $d_{\text{CoFe}}$  の増大とともに減少し、バリア層作製時の酸化による CFA 表面へのダメージが CoFe 層挿入により低減されている可能性が示唆される。MTJ 構造最適化により今後さらなる TMR 特性の向上が期待できる。

## 参考文献

- 1) H. Liu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 132418 (2012).
- 2) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 184418 (2009).
- 3) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012); Appl. Phys. Lett. **103**, 142409 (2013).
- 4) W. H. Wang *et al.*, Appl. Phys. Lett. **95**, 182502 (2009); Phys. Rev. B **82**, 092402 (2010).

# (Fe,Co)<sub>4</sub>N 薄膜を用いた強磁性トンネル接合の作製

鹿原 和樹, 角田 匡清  
(東北大学)

Fabrication of magnetic tunnel junctions with (Fe,Co)<sub>4</sub>N films

Kazuki Kabara and Masakiyo Tsunoda

(Tohoku Univ.)

## はじめに

$\gamma$ -Fe<sub>4</sub>N/MgO/CoFeB の積層構造を有する強磁性トンネル接合(MTJ)において、Fe<sub>4</sub>N の負のスピンの分極[1]を反映したインバーストンネル磁気抵抗効果が報告されている[2]。また、Takahashi らの理論計算[3]によれば、Fe<sub>4</sub>N の面心位置の Fe を Co に置換した FeCo<sub>3</sub>N はフェルミ面で多数スピンの状態密度(DOS)が無く、ハーフメタリックであると報告している。さらに、我々は異方性磁気抵抗効果の測定から(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 薄膜がハーフメタルである可能性を既に報告している[4]。そこで本研究では同薄膜を強磁性層に用いた MTJ の形成を試みた。

## 実験方法

Bare Si 基板上に Cu(5nm)/Fe-N(10)/Cu(50)/下部強磁性層/MgO(1.5)/Co<sub>0.75</sub>Fe<sub>0.25</sub>(4)/MnIr(5)/Ru(7) の MTJ を作製した。下部強磁性層は(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N および Fe<sub>4</sub>N/(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N とし、Ar+30%N<sub>2</sub> の混合ガスを用いた反応性 DC マグネトロンスパッタ法で作製し、堆積直後に赤外線(IR)加熱処理を施した。作製した薄膜の結晶構造解析には X 線回折法(XRD)を、また TMR 特性評価には CIPT を用いた。

## 実験結果

MTJ の作製に先立ち(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 薄膜の加熱耐性について検討した。Fig.1 に MgO 基板上、Cu 下地層上、Fe<sub>4</sub>N 強磁性層上それぞれに作製し、300°C で IR 加熱処理を施した 10nm 厚の(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 薄膜の in-plane XRD プロファイルを示す。MgO 基板上の試料では、bcc CoFe の回折線が確認できることから(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 相が熱分解してしまっていることがわかる。別途行った実験から MgO 基板上の(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 薄膜の IR 加熱耐性温度は 120°C であることが判った。一方で Cu 下地層上および Fe<sub>4</sub>N 強磁性層上の試料では、Cu と(Fe,Co)<sub>4</sub>N の回折線のみが確認できることから、(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 相が保たれていることが確認される。このことは、下地との格子ミスフィットを小さくすることにより(Fe,Co)<sub>4</sub>N 薄膜の加熱耐性温度が向上することを意味している。

Fig.2 は(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N および Fe<sub>4</sub>N/(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 下部強磁性層を用いた MTJ の後加熱処理温度に対する TMR 比をプロットしたものである。両 MTJ で Fe<sub>4</sub>N 基 MTJ と同様にインバース TMR 効果が得られた。(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 基 MTJ と比較して、Fe<sub>4</sub>N/(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 基 MTJ では高い TMR 比が得られている。また、(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 基 MTJ では 320°C 以上で TMR 比が急激に低下しているが、Fe<sub>4</sub>N/(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 基 MTJ では 370°C でも -30% 以上の TMR 比を維持できている。このことは格子ミスフィットが Cu 下地層よりさらに小さい Fe<sub>4</sub>N 下地層を用いることで(Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N 層の加熱耐性温度が向上したことによるものと考えられる。

## 参考文献

- 1) S.Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73** (2006) 172410
- 2) Y.Komasaki, *et al.*, J. Appl. Phys. **105** (2009) 07C928
- 3) Y.Takahashi, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **323** (2011) 2941
- 4) 角田 匡清 他, 第 37 回日本磁気学会講演概要集, 5aC-10 (2013)

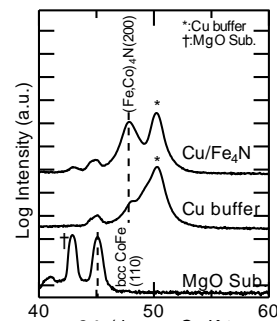


Fig.1 In-plane XRD profile for (Fe<sub>0.25</sub>Co<sub>0.75</sub>)<sub>4</sub>N layer.

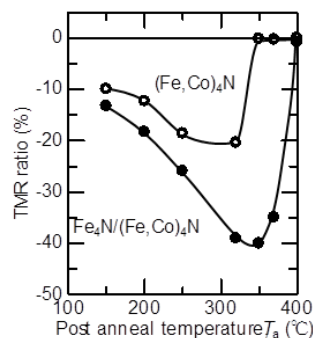


Fig.2 Dependence of TMR ratio against post anneal temperature.

## 極薄 Fe 酸化物層挿入による MgO 上 Fe 層成長の濡れ性改善効果

野崎隆行<sup>1,4</sup>, 大久保忠勝<sup>2</sup>, 塩田陽一<sup>3,4</sup>, 久保田均<sup>1,4</sup>, 福島章雄<sup>1,4</sup>, 宝野和博<sup>2</sup>, 鈴木義茂<sup>3,4</sup>, 湯浅新治<sup>1,4</sup>

1. 産総研 ナノスピントロニクス研究センター 2. 物材機構, 3. 阪大基礎工, 4. CREST-JST

Improvement in the wettability of an Fe layer grown on MgO by insertion of an ultrathin Fe oxide layer

T. Nozaki<sup>1,4</sup>, T. Okubo<sup>2</sup>, Y. Shiota<sup>3,4</sup>, H. Kubota<sup>1,4</sup>, A. Fukushima<sup>1,4</sup>, K. Hono<sup>2</sup>, Y. Suzuki<sup>3,4</sup> and S. Yuasa<sup>1,4</sup>

1. AIST, Spintronics Research Center, 2. NIMS, 3. Osaka Univ. 4. CREST-JST

### はじめに

トンネル磁気抵抗素子における磁気記録(フリー)層の薄膜化は低駆動電力化における1つの指針である。スピン注入磁化反転の臨界電流低減だけでなく、最近では電圧による磁気異方性制御技術などへの展開においても重要性が高まっている。しかしながら、Feに代表される3d遷移金属強磁性体は、通常酸化マグネシウム(MgO)と比較して大きな表面エネルギーを有するため、Fe上のMgO層は平坦な成長が可能であるが、MgO上のFeは島状成長が促進され、1nm前後の超薄膜領域での高品質薄膜形成が困難となる。この問題は上部フリー層型のトンネル磁気抵抗素子を作製する際の弊害となる。

本発表では、MgO/Fe積層の界面に極薄のFe酸化物層を挿入することで見出された、MgO上極薄Fe層成長の濡れ性、および磁気特性改善効果について報告する。

### 実験方法および結果

分子線エピタキシー装置を用いてMgO(001)基板の上にCr(or Fe)/MgO(2 nm)/Fe-oxide(*t*)/Fe(0.8 nm)/MgO(2 nm)構造を作製した。Fe-oxideは原子状酸素雰囲気下での金属Fe成長による反応性蒸着法を用い[1]、それ以外の各層は電子線蒸着により作製した。図1に(a) Fe-oxide層無し、および(b) *t*=0.3 nmの場合の中間Fe層のRHEED像(挿図)、および暗視野-STEM(Scanning Transmission Electron Microscope)による断面像を示す。黒い領域がMgO層、その間に挟まれた白い領域が超薄膜Fe層である。MgO上に直接Fe層を成長させた場合、島状成長を示唆するスポット状のRHEED像が観察され、STEM像においてもその様子が確認された。一方で極薄のFe-oxide層を挿入した場合、1nm以下の超薄膜にも関わらずストリーク状のRHEEDパターンが観察され、STEM像においても非常に平坦なFe層が形成されていることが分かった。

さらに、Fe膜厚を0.4~1.5nmの領域で変化させて磁気特性を系統的に調べた結果、MgO上への成長の場合には1nmにおいて超常磁性を示唆する磁化曲線となったのに対し、極薄Fe-oxide層を挿入した場合は0.6nmまで薄膜化した場合でも角型のヒステリシスが観察され、磁気特性の改善にも有効であることが分かった[2]。

### 参考文献

[1] T. Nozaki *et al.* Appl. Phys. Exp. **6**, 053005 (2013)

[2] T. Nozaki *et al.* Appl. Phys. Exp. **6**, 113004 (2013)

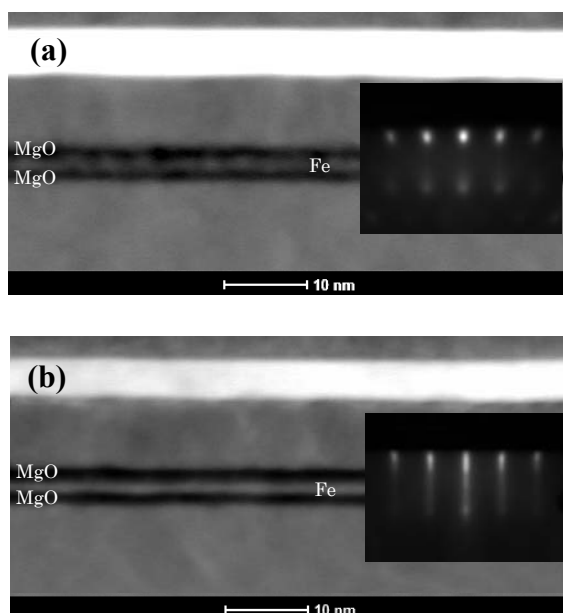


図1 (a) Fe-oxide層挿入無し、および(b) Fe-oxide層厚 *t* = 0.3 nmの場合の暗視野STEM像。MgO層(黒領域)に挟まれた超薄膜Fe層の設計膜厚は0.8 nmである。挿図は各構造における中間Fe層のRHEED像を示す。

## MgO(001)基板上に成長させた Rh / FeCo 膜の磁気特性

大宮裕之, <sup>○</sup>吉田真司, 王博羽中, 金谷峻介, 高橋海里, 荒川明, 長谷川崇, 斉藤伸\*, 石尾俊二  
(秋田大工資, \*東北大学)

Magnetic properties of Rh/FeCo film grown on MgO(001) substrate

H. Omiya, S. Yoshida, B. Wang, S. Kanatani, K. Takahashi, A. Arakawa, T. Hasegawa, S. Saito\*, S. Ishio  
(Akita Univ. \*Tohoku Univ.)

### はじめに

第1原理計算によると  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$  は  $x=0.5\sim 0.6$  の場合に、軸比( $c/a$ )が 1.22~1.25 を取ると  $1.0 \times 10^8 \text{ erg/cm}^3$  の高結晶磁気異方性( $K_u$ )を発現すると報告されており<sup>1-2)</sup>, 高  $K_u$  と高  $M_s$  を兼ね備えた材料として期待されている. 実験では, 適当なバッファ層を用いたエピタキシャル成長によって FeCo に正方晶歪が導入できれば, 垂直磁気異方性が誘起されるという報告がある<sup>3)</sup>. 本研究ではバッファ層として Rh を用いて, FeCo 結晶に誘起される結晶磁気異方性( $K_u$ )を評価した. 今回は  $K_u$  の組成依存性と膜厚依存性に焦点をあてて検討していく.

### 実験方法

マグネトロンスパッタリング法により, 基板温度  $400^\circ\text{C}$  として, MgO(001)基板上に(001)配向した Rh を成膜した. その後, 基板温度を  $200^\circ\text{C}$  として, FeCo を成膜し, 最後に Ru を保護膜として成膜した. 磁気特性評価には極カー効果測定装置, 構造評価には X線回折装置, 結晶磁気異方性( $K_u$ )の算出には磁気トルクを用いた.

### 実験結果

Fig.1 は, MgO(001)sub. / Rh(20 nm) /  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$ (1.5 nm) ( $x=0, 0.2, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8, 1$ ) / Ru(2nm)の室温での極カー効果の測定結果を示している. 磁化曲線には明瞭な変化が現れ,  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$  の組成が  $x=0.4\sim 0.6$  で垂直磁気異方性を発現し, Fe もしくは Co の増加とともに垂直磁気異方性は消失する. Fig.2 では, 磁気トルクの組成依存性を示している. トルク曲線は, ほぼ  $2\theta$  成分のみであり, 従って  $L_{2\theta}$  はほぼ  $K_{u1}$  に対応している. 磁気トルクの値は Co の濃度を増加させるにつれて大きくなり,  $x=0.5$  付近で最大値となり,  $x=0.6$  以上では減少する. この結果は第1原理計算の結果と傾向が良く一致している. 最も磁気トルクの値が大きかった  $x=0.5$  に着目し, 上記と同じ膜構造で FeCo の膜厚を 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 5.0 nm と変化させた.  $K_{u1}$  の値は, 膜厚の増加とともに減少し 2.5~3.0 nm 付近で負に転ずる.

学会時には, FeCo 中の正方晶歪に誘起された一軸磁気異方性及び Rh による界面効果, 更に第3元素添加の効果についても報告する.

### 参考文献

- 1) T. Burkert *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 027203 (2004)
- 2) Y. Kota, A. Sakuma, *J.magn.Soc.Jpn.* **37**, 17-23 (2013)
- 3) F. Yildiz *et al.*, *Phys. Rev. B* **80**, 064415 (2009)

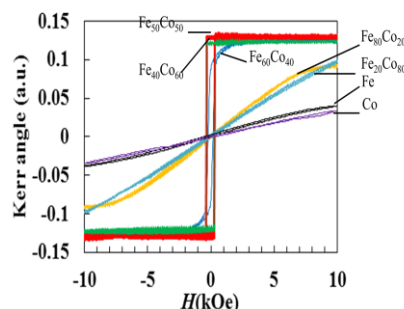


Fig.1 Polar Kerr loops of  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$  films.

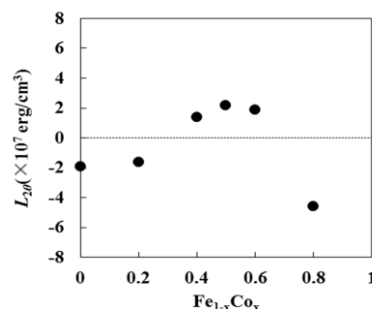


Fig.2 Composition dependence of  $L_{2\theta}$  for  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$  films.

## FePt/FeCo 二層膜の結晶構造並びに表面・界面異方性

王 博羽中, 大宮 裕之, 吉田 真司, 荒川 明, 佐々木 博美, 佐久間 昭正\*, 石尾 俊二  
(秋田大工資, 東北大学\*)

### Crystalline structure and surface/bulk magnetic anisotropy in FePt/FeCo bilayer films

B. Wang, H. Oomiya, S. Yoshida, A. Arakawa, H. Sasaki, A. Sakuma, S. Ishio  
(Akita Univ., Tohoku Univ.)

**はじめに:** FePt は  $10^7 \text{ erg/cm}^3$  を超える大きな一軸磁気異方性を示す。bcc FeCo は磁性材料の中で、最も大きな飽和磁化を有す金属磁性材料であり、更に正方晶歪 ( $c/a \sim 1.2$ ) を付加することによって、FePt と同レベルの一軸磁気異方性  $K_u$  が誘起されることが第 1 原理計算並びにいくつかの実験によって報告されている。これらより FePt と FeCo に複合材料は、FeNdB のエネルギー積を越える永久磁石材料、あるいは現在盛んに研究されている二次元記録、熱アシスト記録、パターン記録等に対応可能な次世代 FePt 系メディアとなる可能性がある。本研究では、FePt/FeCo 二層膜の磁気相図、FePt および FeCo 各層の磁気異方性の定量的評価を行い、次いで FePt/FeCo 二層膜の結晶構造との対応および第 1 原理計算結果との比較を行なったので報告する。

**実験方法:** Fe<sub>60</sub>Pt<sub>40</sub>/Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub> (t nm) 薄膜 ( $0 \leq x \leq 1; 0 \leq t \leq 10$ ) は、 $10^{-6}$  Pa の超高真空中で MgO (001) 基板上に製膜した。まず、FePt 層 (10 nm) を製膜後 640 °C でアニールを行い、その後 200 °C に冷却して FeCo  $t_{\text{FeCo}} = 0 \sim 10$  nm を製膜した。磁気異方性は、磁化曲線の解析ならびにトルクメータを用いた。磁化曲線の解析では、磁気エネルギー  $F$  を次式の一次元モデルで与え、印加磁場の増減に伴う FePt、FeCo 各成分の磁化の安定方向の変化から磁化曲線を算出し、膜面および垂直方向の磁化曲線測定結果とのフィッティングにより膜の一軸磁気異方性  $K_u(\text{FePt})$ 、 $K_u(\text{FeCo})$  を求めた。なおここで  $F$  は、以下の通りである。

$$F = \sum_i \{-M_i H \cos(h - \varphi_i) + (K_u - 2\pi M_i^2) \sin^2 \varphi_i\} V_i + \sum_i J_{i,i+1} \cos(\varphi_i - \varphi_{i+1}) / t$$

ここで、 $i$  は磁性層の番号、 $h$ 、 $\varphi_i$  は磁場及び磁化が  $c$  軸となす角度である。

**実験結果:** Fig1 は、FePt、FeCo の各層の磁気異方性である。FeCo 膜厚が 1 nm 以下のときは FeCo も FePt 同程度の  $K_u$  を保持しており、両者の分離は困難である。次いで FeCo の  $K_u$  は次第に減少するが、膜厚が 2 nm でも正の値を有している。更に 2 nm 以上になると、 $K_u$  はゼロもしくは負の値に転ずる。断面 TEM 観察および X 線観察の結果によれば、FePt 上に製膜した FeCo では、初期層として FePt (001) 面に整合した fcc 相が形成され、その後格子緩和を起し bcc 格子へと変化し  $c/a$  は 1 に近づく。また第 1 原理計算の結果から、FeCo 中に生じる FePt 層との界面効果は、およそ 1 nm 程度で消失すると考えられる。即ち、膜厚が 2 nm のときの磁気異方性はほぼバルク効果と考えられる。そこで、FeCo 膜厚が 2 nm の時の FeCo 依存性を Fig2 に示した。図のように  $K_u$  の組成依存性は、FeCo が正方晶歪を有する場合の第 1 原理計算の傾向とよく一致している。結晶構造と磁気異方性の実験結果を合わせ、膜厚 2 nm 程度の FeCo 膜の磁気異方性は、正方晶歪によるものと考えられる。

以上をまとめると、膜厚 1 nm 以下の fcc 初期層では、FePt との界面効果と正方晶歪の両者により磁気異方性が誘起され、1 nm 以上では正方晶歪が一軸磁気異方性を誘起していると考えられる。更に膜厚を増加すると正方歪が緩和され、磁気異方性も消失する。

本研究は JST 産学共創基礎基盤研究プログラム「次世代磁石」による支援うけて行われたものである。

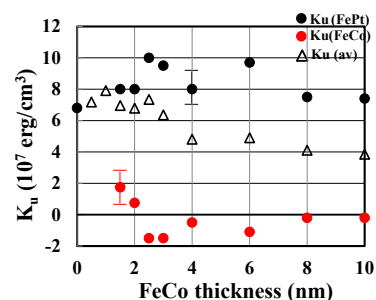


Fig.1 Thickness dependence of uniaxial anisotropy  $K_u$  of FePt and FeCo in the FePt/FeCo bilayer.

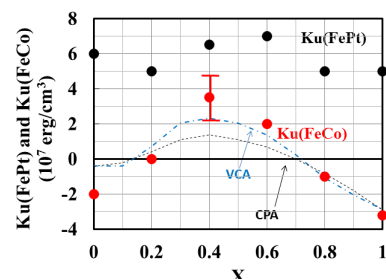


Fig.2 Composition dependence of uniaxial anisotropy  $K_u$  of Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub> in the FePt/FeCo bilayer.

# $L1_0$ FePt-M(M=Mn,Rh)薄膜の磁気相転移温度に対する格子歪効果

木村詩織, 山田紘己, 長谷川崇, 荒川明, 石尾俊二  
(秋田大工資)

Effect of lattice distortion on magnetic phase transition on  $L1_0$  FePt-M(M=Mn,Rh) thin film

S. Kimura, H. Yamada, T. Hasegawa, A. Arakawa, S. Ishio  
(Akita Univ.)

## はじめに

$L1_0$ 型 FePt 規則合金薄膜は, [001]方向 ( $c$  軸方向) に  $7.0 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  の大きな  $K_u$  を有する. FePt の各サイトに Rh などの第三元素を置換すると, 室温において強磁性 (FM) -反強磁性 (AF) 相変化することが知られている<sup>1)</sup>.  $L1_0$ 型  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  薄膜の  $0 \leq x \leq 0.30$  の組成における各  $T_c$  の値が報告されているが<sup>2)</sup>,  $x > 0.30$  以降の詳細なデータが取られておらず, 各組成に対する詳細な相転移温度を求める系統的な実験は極めて少ない. また, 第一原理計算により  $L1_0$ 型 FePt 規則合金の  $c/a$  の減少に伴い,  $T_c$  も減少するという計算結果が報告されている<sup>3)</sup>. しかしながら,  $c/a$  と相転移温度の相関を実験的に研究した報告はまだなされていない. そこで本研究では, 異なる基板を用いて歪を導入し,  $L1_0$ 型  $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  および  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  薄膜における磁化温度変化と磁気相転移温度を調査し,  $c/a$  と相転移温度との相関を考察する.

## 実験方法

熱酸化 Si 基板と MgO 基板の二つの異なる基板を用いて, 各試料に歪を導入した. 成膜はマグネトロンスパッタリング装置を用い, 室温で熱酸化 Si 基板上に膜厚 6.12 nm の  $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  および  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  と  $\text{SiO}_2$  (10 vol.%) を同時成膜した.  $\text{SiO}_2$  (10 vol.%) は  $c$  軸の配向制御のための添加剤であり, これにより引張歪が導入されることが分かっている<sup>4)</sup>. また, MgO 基板上には  $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  および  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  を成膜した. 次いで各基板の試料を急速加熱処理装置を用いて, 昇温速度  $300 \text{ }^\circ\text{C/s}$ , 熱処理温度  $700 \text{ }^\circ\text{C}$ , 保持時間 10 分間の熱処理を行った. 組成比 ( $x$ ) は Pt と Rh または Fe と Mn の膜厚比を変えることで制御した. 結晶構造の評価には X 線回折装置, 磁気特性の評価には振動試料型磁力計及び超電導量子干渉素子を用いた.

## 実験結果

Fig. 1 は, 熱処理後の  $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  薄膜の Rh 置換濃度  $x$  に対する相転移温度を示している.  $\text{SiO}_2$  基板上に成膜した薄膜は MgO 基板上に成膜した薄膜よりも相転移温度が上昇する傾向を示している. Fig. 2 は, Fig. 1 のデータを  $c/a$  で整理したものである. 同組成で見た場合,  $T_c$  は  $c/a$  の減少に依存して上昇している. この傾向は, 先行研究<sup>3)</sup>の計算結果とは逆の傾向となっている. キュリー温度  $T_c$  に関しては, ここには示していないが,  $a$  軸のみが縮小した場合には, それに伴い  $T_c$  は低下した. これは  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  とは逆の傾向となった. 一方  $c$  軸の変化に対しては,  $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  及び  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  のいずれも相関を示さなかった. また, AF-FM 相転移温度  $T_0$  に関しては, ここには示していないが,  $c$  軸の減少に対し,  $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  においては  $T_0$  は低下し, 反対に  $(\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x)_{50}\text{Pt}_{50}$  においては  $T_0$  は上昇した. これらの違いは歪導入に伴う電子構造の変化に起因するものと考えられるが, 現状では歪の差が僅かであるため, 今後は基板を工夫し歪量をさらに増加させた実験を行う.

1) T. Hasegawa *et al.*, *Acta Materialia* **56**, 1566 (2008). 2) D. B. Xu *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 07B747 (2011). 3) X. B. Liu *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 07B762 (2011). 4) T. Narisawa *et al.*, *J. Appl. Phys.* **109**, 033918 (2011)

本研究は NEDO 若手グラント(11B0700d)の助成を受けて行われた.

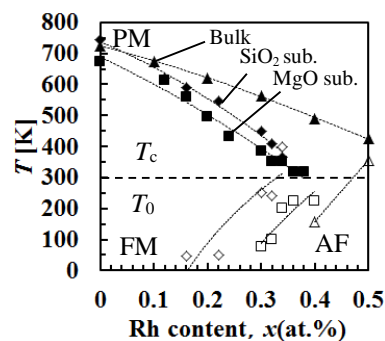


Fig.1 Rh composition ( $x$ ) dependence of phase transition temperatures of  $L1_0$   $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  films.

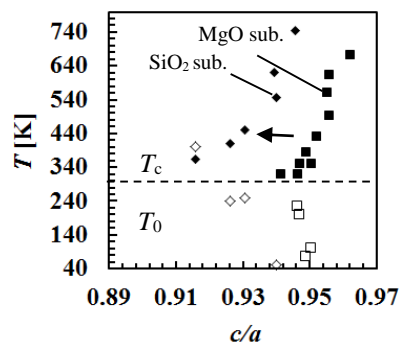


Fig.2  $c/a$  dependence of  $T_c$  of  $L1_0$   $\text{Fe}_{50}(\text{Pt}_{1-x}\text{Rh}_x)_{50}$  films.

## Fe/Co 人工格子による FeCo 膜の作製と磁気特性

新宅 一彦、藤島 周\*、石尾 俊二\*  
(秋田県産業技術センター、\*秋田大工資)

Preparation and magnetic properties of FeCo films by using Fe/Co superlattices

K. Shintaku, S. Fujishima\*, S. Ishio\*  
(Akita Industrial Technology Center, \*Akita Univ.)

### はじめに

NdFeB 磁石が開発されてから 30 年が経過し、その間に新磁石の探索が長年試みられてきたが、これを越えるものは見つかっておらず、次世代磁石の開発が強く望まれている。また、磁石性能に加えて資源的な観点からも既存磁石の飛躍的特性改善や新磁石の開発が必要とされている。L<sub>20</sub>FeCo は NdFeB に比べて磁気異方性や飽和磁化が約 50% 大きいと予測されている<sup>1)2)</sup>。また、FeCo/Pt 多層膜において、理論値前後の大きな歪みを生じたとの報告もある<sup>3)</sup>。下地膜とのエピタキシャルにより、FeCo に結晶歪みを導入し、磁気特性との関係を調べた。

### 試料作製

試料は、MgO(100)単結晶基板上に、Ar ガス雰囲気中で dc マグネトロンスパッタ法により作製した。到達真空度は  $1\sim 3\times 10^{-7}$  Pa であった。作製された膜の構造は Cu-K $\alpha$  線を用いた X 線回折 (XRD) により調べた。磁化曲線は試料振動型磁力計 (VSM) と極カー効果磁束計で測定した。

### 結果と考察

IrMn/Pt 下地膜上に作製された各層が単原子層程度の Fe/Co 人工格子膜は、XRD 測定により、単結晶的なエピタキシャル FeCo 膜が得られ、結晶方位関係は、膜垂直方向が MgO(100)/fcc-Pt(100)/bcc-FeCo(100)、膜面内方向が MgO(100)/fcc-Pt(100)/bcc-FeCo(110)であることが確認された (図 1)。下地膜とのエピタキシャル関係と人工格子の手法を用いることにより、低温での作製が可能となり、界面での拡散を抑制しながら、原子層レベルでの結晶配向や組成が制御された高品質な FeCo 膜を得ることが可能となった。正方晶歪みの大きさ  $c/a$  は、膜厚が薄くなると大きくなり、5nm で 3~4%程度、3nm 以下では 5~8%程度である。磁化測定からは、保磁力が数 Oe 程度の面内軟磁性膜になっている。大きな異方性を出すためには、理論値に近い 20% 以上の歪みを与えることが重要と思われる。大きな歪みを得るために、下地膜の改良や添加元素などの検討を行った。別に報告する多層膜とともに、膜厚が薄い (1nm) ところでは大きな磁気異方性の兆候があり、さらに大きな歪みを与える製膜条件、材料の探索を進行中である。格子歪みや組成依存性などの L<sub>20</sub>型 FeCo 合金の基本特性を探索することは、材料設計の指針となる理論計算との整合性を検討する上でも極めて重要である。また、第 3 元素の可能性など、新規な材料を探索するモデル物質としての役割を担うことが期待され、応用的な観点からも重要であると考えられる。

### 謝辞

本研究の一部は JST 研究成果展開事業 (産学共創基礎基盤研究プログラム) の援助を受けたものである。

### 参考文献

- 1) T. Burkert, L. Nordstrom, O. Eriksson, and O. Heinonen, Phys. Rev. Lett., 93, 027203 (2004).
- 2) Y. Koda, and A. Sakuma, J. magn. Soc. Jpn., 37, 17-23 (2013).
- 3) G. Andersson et al., Phys. Rev. Lett., 96, 037205 (2006).

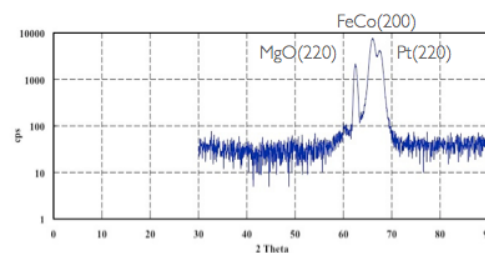
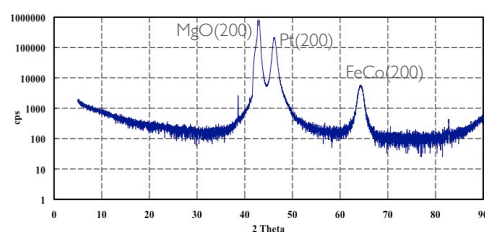


図 1 エピタキシャル FeCo (11nm) 膜の XRD パターン。(上) 面直、(下) 面内。

## [FeCo/Pt]多層膜の正方晶歪みと磁気異方性

藤島周, 新宅一彦\*, 石尾俊二

(秋田大工資, \*秋田県産業技術センター)

Tetragonal distortion and magnetic anisotropy of [FeCo/Pt] multilayer films

S.Fujishima, K.Shintaku, S.Ishio

(Akita Univ., \*Akita Industrial Technology Center)

### はじめに

次世代永久磁石や情報記録媒体の向上には、高結晶磁気異方性( $K_u$ )、高飽和磁化( $M_s$ )を兼ね備えた新材料の開発が必要不可欠である。T. Burkert<sup>1)</sup>、G. Andersson<sup>2)</sup>、Y. Kota、A. Sakuma<sup>3)</sup>らの第一原理計算によれば、 $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$ におけるCoの組成が0.5-0.6、軸比( $c/a$ )が1.2-1.25の値を取ったとき  $10^7 \text{ erg/cm}^3$ をはるかに超える  $K_u$ を誘起することができると予想される。また、[FeCo/Pt]多層膜において、 $c/a=1.2-1.3$ の大きな歪みが生じ、一軸磁気異方性が発現されるとの実験結果が報告されている<sup>2)</sup>。本研究では先行研究の結果を検証するとともに、発現する磁気異方性を定量的に評価することを目的とする。

### 実験方法

成膜には超高真空多元スパッタ装置(到達真空度  $1-3 \times 10^{-7}$  Pa)を用いた。MgO(001)単結晶基板を  $600^\circ\text{C}$ で加熱し、1時間保持した。次に、基板温度を  $330^\circ\text{C}$ に下げバッファ層として IrMn、Ptの順に成膜した。その後、基板温度を  $200^\circ\text{C}$ に保持し、FeCoとPtを交互に20層成膜した。磁気特性評価には振動試料型磁力計(VSM)、構造評価にはX線回折装置(XRD)を用いた。

### 実験結果

FeCoとPtのミスフィットから  $c/a$ の値は数%増加していると考えられる。しかし、XRD測定から out of plane, in-planeともにFeCoピークは観測することができず歪みの算出は困難であった。ただし、別途報告する同様の成膜条件で作製したPtバッファ層上のFeCo単層膜での  $c/a$ の増加は10%以下であった。Fig. 1(a)、(b)、(c)はFeCoの膜厚を変化させたVSMの測定結果である。FeCoの膜厚が  $0.84 \text{ nm}$ (6 ML)のとき磁化曲線は面内方向を向いているが、 $0.56 \text{ nm}$ (4 ML)を境に磁化曲線が等方的になっている。このことから、FeCoの膜厚が薄ければ垂直磁気異方性が增大していると考えられる。また、本報告ではFeCoの組成依存性、多層膜におけるPt膜厚依存性、成膜温度依存性、ガス圧依存性など実験もっており、詳細は当日発表する予定である。

### 謝辞

本研究の一部はJST研究成果展開事業(産学共創基礎基盤研究プログラム)の援助を受けたものである。

### 参考文献

- 1) T. Burkert et al., *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 027203(2004)
- 2) G. Andersson et al., *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 037205(2006)
- 3) Y. Kota, A. Sakuma, *Jmag. Soc. Jpn.* **37**, 17-23(2013)

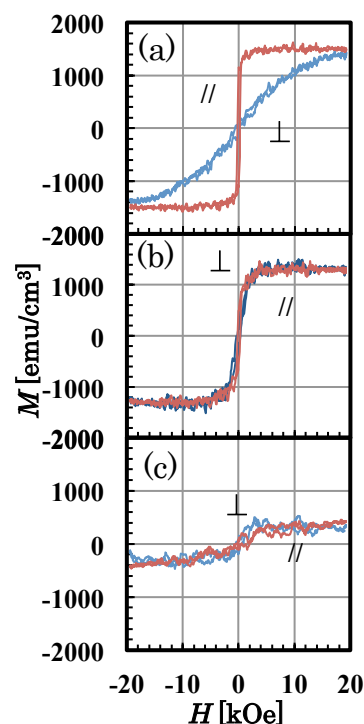


Fig. 1 M-H curves of  
 (a) [FeCo(0.84 nm)/Pt(3.12 nm)]<sub>20</sub>  
 (b) [FeCo(0.56 nm)/Pt(3.12 nm)]<sub>20</sub>  
 (c) [FeCo(0.28 nm)/Pt(3.12 nm)]<sub>20</sub>



# CoPt/Pt/CoPt 薄膜の静磁相互作用が磁気特性に及ぼす影響

早川研人, 河村春樹, 野宮直人, 杉田龍二  
(茨城大)

Effect of magnetostatic interaction on magnetic properties of CoPt/Pt/CoPt thin films

K. Haykawa, H. Kawamura, N. Nomiya, and R. Sugita  
(Ibaraki Univ.)

## はじめに

CoPt 基薄膜は高い垂直磁気異方性と飽和磁化を有するため、ハードディスクの記録層や磁気転写用マスター媒体の磁性層として研究されている<sup>1), 2)</sup>。積層 Co 基薄膜の層間に働く相互作用については多くの研究がなされているが<sup>3), 4)</sup>、積層 CoPt 垂直磁気異方性膜における層間静磁相互作用に関する議論は十分には行われていない。本研究では、CoPt/Pt/CoPt 薄膜の静磁相互作用が磁気特性に及ぼす影響について検討した。

## 実験方法

高周波マグネトロンスパッタ装置を用いて、ガラス基板上に、Pt 下地層 (100 nm)、下層 Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub> 膜 (10 nm)、Pt 中間層 ( $\delta_{Pt}$  nm)、上層 Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub> 膜 (3 nm) をこの順に成膜した。Pt 中間層厚  $\delta_{Pt}$  を 0~30 nm とした。成膜時ガス圧を 2 mTorr とし、成膜は全て室温にて行った。成膜した試料のヒステリシス曲線を振動試料型磁力計 (VSM) により測定した。

## 実験結果

Figs. 1, 2 は、それぞれ Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub> 単層膜 (Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub>/Pt(100 nm)/ガラス基板) 及び積層膜の膜面垂直方向ヒステリシス曲線である。単層膜の Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub> 膜厚は 3, 10 nm、積層膜の  $\delta_{Pt}$  は 15, 20, 25 nm である。膜厚 3 nm 及び 10 nm の単層膜の角型比はそれぞれ 1 及び 0.1 であり、特性が大きく異なる。 $\delta_{Pt} = 15$  nm の積層膜においては、上層 Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub> 膜と下層 Co<sub>70</sub>Pt<sub>30</sub> 膜が静磁相互作用により結合して一体化し、膜厚 13 nm の単層膜と同じヒステリシス曲線になっている。 $\delta_{Pt}$  が厚くなると、上下層間の静磁結合が弱まり、 $\delta_{Pt} = 25$  nm のヒステリシス曲線では、上層と下層の分離が明瞭になっている。ヒステリシス曲線における横軸近傍の最も急峻な傾きを  $S_0$ 、核形成磁場  $H_n$  と保磁力  $H_c$  間の飽和磁化/2 の点での傾きを  $S_1$  として、 $S_0/S_1$  の  $\delta_{Pt}$  依存性を Fig. 3 に示す。上下層が静磁相互作用により一体化している  $\delta_{Pt} \leq 15$  nm の積層膜では、 $S_0/S_1$  は約 0.9 になっており、 $15 \text{ nm} \leq \delta_{Pt} \leq 25 \text{ nm}$  の領域で上下層間の相互作用が急激に弱まることが分かる。 $\delta_{Pt} \geq 25 \text{ nm}$  では、 $S_0/S_1$  は 6.0 を越えており、上下層間の結合がかなり弱いことが示されている。

## 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 C(24560394) により行われました。ここに深謝致します。

## 参考文献

- 1) Y. Wang, et al: *J. Appl. Phys.*, **107**, 7732 (2010).
- 2) N. Sheeda, et al: *IEEE Trans. Magn.*, **45**, 3676 (2009).
- 3) S. Guo, et al: *J. Magn. Magn. Mater.*, **344**, 35 (2013).
- 4) G. Gubbiotta, et al: *J. Magn. Magn. Mater.*, **286**, 468 (2005).

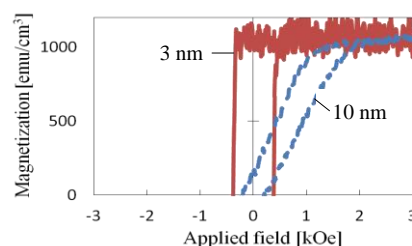


Fig. 1 Perpendicular hysteresis loops of 3 and 10 nm thick CoPt single layer films.

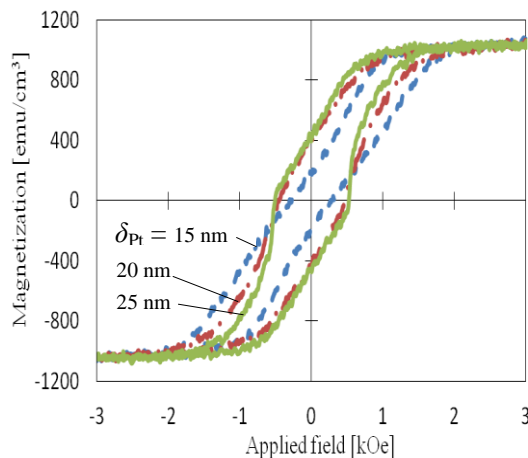


Fig. 2 Perpendicular hysteresis loops of stacked CoPt films with 15, 20 and 25 nm thick Pt interlayers.

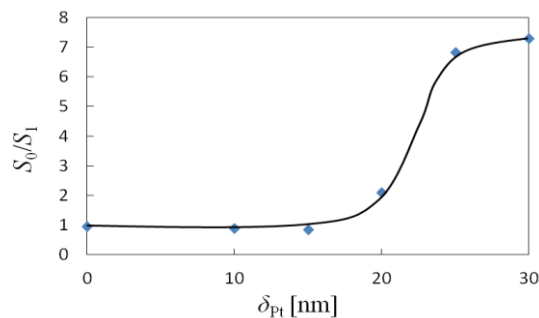


Fig. 3 Dependence of  $S_0/S_1$  on thickness of Pt interlayer.

小田洋平・今村裕志  
(産総研ナノスピ)

### Lattice distortion effect on magnetocrystalline anisotropy in corundum-type $\text{Cr}_2\text{O}_3$

Y. Kota and H. Imamura  
(AIST Spintronics RC)

#### 1 はじめに

近年,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  に極薄の Co 層を積層した交換バイアス膜において垂直交換バイアスおよび  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の電気磁気効果を利用した交換バイアス磁場の制御が実現されており [1], 酸化物を用いた電圧制御による低消費電力メモリや媒体の開発に関心が集まっている. しかしながら  $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Co}$  交換バイアス膜のブロッキング温度は試料の作製条件等に依存し, かつ  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  のネール温度 (308 K) を大きく下回るのが現状である. Meiklejohn-Bean のモデルの考え方によれば交換バイアスのブロッキング温度は反強磁性層の磁気異方性定数に比例すると考えられおり,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の磁気異方性を分析することはブロッキング温度向上の指針を得るために重要である.

そこで本講演では, 局所スピン密度近似 (LSDA) に基づく電子状態の第一原理計算によりコランダム型  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の結晶磁気異方性エネルギーの計算を行った結果について報告する. 特に  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  層とその下地層との間の格子ミスフィットから生じる格子歪の影響について検証する. 電子状態の第一原理計算には Vienna *ab-initio* simulation package を用い, 遷移金属のオンサイトクーロンエネルギーの補正 (+ $U$ ) を考慮した. また  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の格子定数と体積については実験値 [2] を参照した.

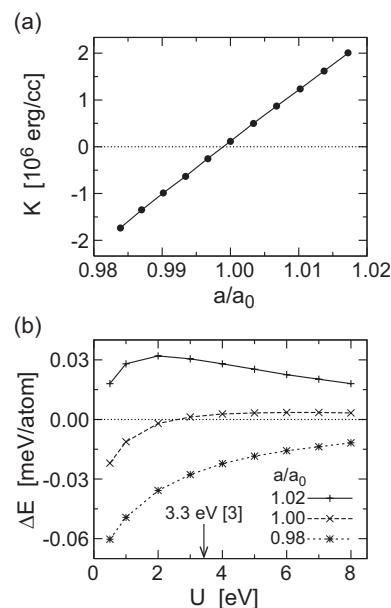
#### 2 計算結果・考察

Figure 1(a) は磁気異方性定数  $K$  と規格化された面内格子定数  $a/a_0$  との関係プロットしたものである. ただクーロンエネルギーの補正值  $U$  は文献 [3] で与えられた参照値 ( $U=3.3$  eV) を用い, また等体積変形となるように面直方向の格子定数を設定した.  $K > 0$  ( $K < 0$ ) のとき面直 (面内) 方向が容易軸方向となる. Figure 1(a) から  $K$  は  $a/a_0$  に対して線形に振る舞い,  $a/a_0$  が 1.00 近傍で  $K$  の符号が変化することが分かる. さらにここで Fig. 1(b) に経験的パラメータである  $U$  に対する  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の結晶磁気異方性エネルギー  $\Delta E$  の依存性を調べた結果を示す.  $a/a_0$  が 0.98, 1.02 のとき,  $U$  が 3.3 eV 付近もしくはそれ以上の領域では  $U$  の増加とともに  $\Delta E$  は一様にゼロに近づいている (ただし  $a/a_0$  が 1.00 のときは  $U > 6$  eV でゼロに近づいている). これは  $U$  の増加によって  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  のエネルギーギャップ, つまり占有状態と非占有状態との間のエネルギー差が大きくなることに起因するものと考えられる.

これらの結果から  $K$  には  $U$  に対する依存性があるものの,  $a/a_0$  を大きくすることで  $K$  が増大するため, 面内伸張による  $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Co}$  のブロッキング温度の向上が期待できる. 講演では結晶磁気異方性の計算結果に加え, 磁気双極子相互作用由来の磁気異方性 [4] との競合についても議論する予定である.

#### References

- 1) Y. Shiratsuchi *et al.*, *Appl. Phys. Express* **3**, 113001 (2010); X. He *et al.*, *Nature Materials* **9**, 579 (2010); T. Ashida *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 152409 (2014).
- 2) L. W. Finger and R. M. Hazen, *J. Appl. Phys.* **51**, 5362 (1980).
- 3) N. J. Mosey *et al.*, *J. Chem. Phys.* **129**, 014103 (2008).
- 4) M. Tachiki and T. Nagamiya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **13**, 452 (1958); J. O. Artman *et al.*, *Phys. Rev.* **138**, A912 (1965).



**Fig. 1** (a) Magnetic anisotropy constants  $K$  of  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  as a function of normalized in-plane lattice constant  $a/a_0$ . (b)  $U$  parameter dependence of magnetic anisotropy energy  $\Delta E$ . Positive (negative) sign of  $K$  and  $\Delta E$  indicates out-of-plane (in-plane) anisotropy.

# MOD 法による MgO(100) 基板上への Co フェライト薄膜の作製と評価

二宮南, 佐々木教真, 鶴井隆雄, 篠崎健二, 小松高行, 石橋隆幸  
(長岡技術科学大学)

Preparation and characterization of Co-ferrite thin films on MgO (100) substrate by metal organic decomposition method

M. Ninomiya, M. Sasaki, T. Tsurui, K. Shinozaki, T. Komatsu, T. Ishibashi  
(Nagaoka Univ. of Technology)

## 1. はじめに

近年, 反応性高周波マグネトロンスパッタリング法を用いて MgO(100)基板上に  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  ( $x = 0.75, 1.0$ ) 薄膜を作製した場合に薄膜のエピタキシャル成長に伴い発現する格子歪によって強い垂直磁気異方性を示すことが報告されている<sup>1)</sup>. また, Co フェライトは分子線エピタキシー法やパルスレーザー堆積法で作製した場合にも大きな垂直磁気異方性を示すことが報告されている. 本研究では上記のような真空装置を用いない簡便な薄膜作製方法である有機金属分解(MOD)法を用いて薄膜を作製し, 薄膜の結晶性及び磁気特性の評価を行った.

## 2. 実験方法

薄膜は MgO(100)基板(10 mm×10 mm×0.5 mm)上に高純度化学研究所製 CoFe(1/2)の MOD 溶液を用いて作製した. Co フェライト薄膜は, MOD 溶液を基板に塗布(3000 rpm, 30 秒), 乾燥(100°C, 10 分), 仮焼成(450°C, 10 分)を 5 回繰り返した後, 本焼成(550°C/700°C/850°C, 1 時間)を行うことによって作製した. 結晶性は X 線回折(XRD)法, 試料表面の形状は原子間力顕微鏡(AFM), 磁化測定は室温で振動試料磁力計(VSM), さらに局所的な結晶構造を透過型電子顕微鏡(TEM)により評価した.

## 2. 結果及び考察

Figure 1 に 700°C で本焼成を行った試料の X 線回折パターンを示す. 42.9 deg., 43.5 deg. にそれぞれ MgO の 200 回折線及び  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  の 400 回折線が確認できた. また,  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  の 400 回折線の半値幅から求められる格子定数は 8.34 Å であり, バルクの  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  の格子定数 8.38 Å に比べ面直方向に -0.05% ほど歪んでいた. この結果は, 新関らが報告した強い垂直磁気異方性を示す場合の格子歪である -1.108% よりも値が小さいことがわかった<sup>1)</sup>.

次に Fig. 2 に同じ試料の磁化曲線を示す. 面内, 面直方向ともに保磁力は約 1 kOe であることがわかった. また, 磁気異方性が見られなかったことから格子歪による垂直磁気異方性が発現しなかったと考えられる. 発表では TEM を用いた薄膜の構造解析結果についても報告する予定である.

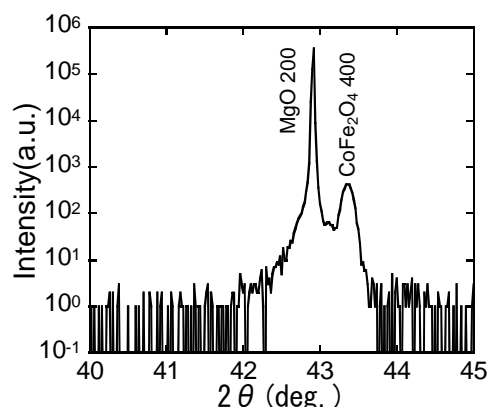


Fig.1 XRD pattern of the film annealed at 700°C

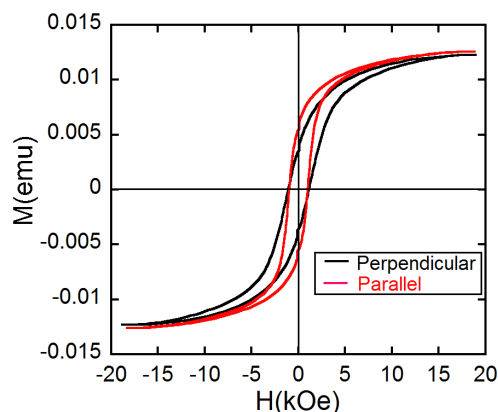


Fig.2 M-H loop of the film annealed at 700°C

## 参考文献

- 1) T. Niizeki, Y. Utsumi, R. Aoyama, H. Yanagihara, J. Inoue, Y. Yamasaki, H. Nakao, K. Koike, and E. Kita, Appl. Phys. Lett. **103**, 162407 (2013).

## Cr(211)下地層上に形成した Ni-Fe 薄膜の Fe/Ni 組成と膜結晶構造

皆川成行・大竹充・二本正昭・桐野文良\*・稲葉信幸\*\*

(中央大, \*東京藝大, \*\*山形大)

Relationship between Fe/Ni Composition and Crystal Structure

in the Ni-Fe Thin Films Deposited on Cr(211) Underlayer

Shigeyuki Minakawa, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Fumiyoshi Kirino\*, and Nobuyuki Inaba\*\*

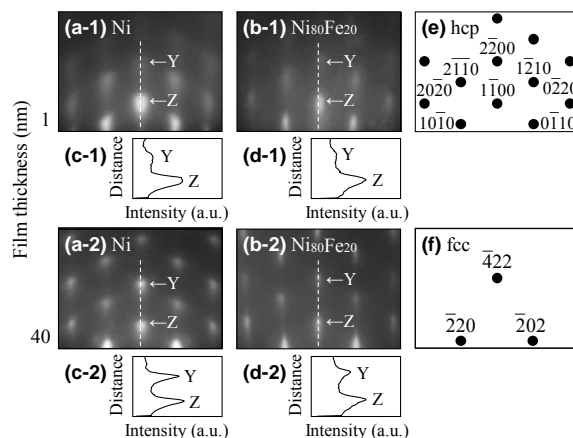
(Chuo Univ., \*Tokyo Univ. Arts, \*\*Yamagata Univ.)

**はじめに** Ni, Fe, Ni-Fe 合金は代表的な軟磁性材料で, 安定結晶構造は fcc もしくは bcc 構造である. 材料の結晶構造が異なると磁気特性も変化する. 近年, バルク状態図には存在しない準安定な結晶構造を持つ磁性材料のデバイス応用が注目されている. これまで, Cr(211)や MgO(001)面上において, 準安定 hcp 構造をもつ Ni および Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (at. %) 膜が形成されることが報告されているが<sup>1,2)</sup>, 詳細な構造解析は殆ど行われていない<sup>3,4)</sup>. 本研究では, Cr(211)下地層上に Ni, Ni-Fe, Fe 膜を形成し, 膜厚および Fe/Ni 組成が膜の結晶構造に及ぼす影響を系統的に調べた.

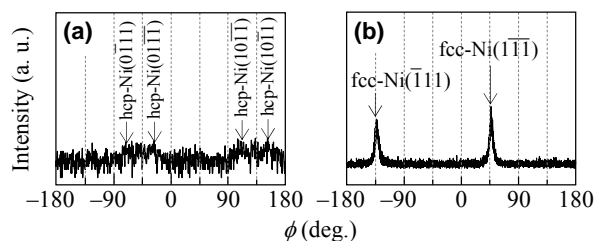
**実験方法** 試料の作製には RHEED 装置付きの超高真空 RF マグネトロンスパッタリング装置を用いた. MgO(110)基板上に 10 nm 厚の Cr(211)<sub>bcc</sub> 下地層を基板温度 300 °C でヘテロエピタキシャル成長させた. その後, 室温で Cr 下地層上に Ni, Ni-Fe もしくは, Fe 膜を形成した. 膜厚を 1 から 40 nm の間で変化させた. 構造評価には RHEED および XRD, 磁化曲線測定には VSM を用いた.

**実験結果** Fig. 1(a-1)および(b-1)に 1 nm 厚の Ni および Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> 膜に対して観察を行った RHEED パターンを示す. hcp 結晶の形成を示す (Fig. 1(e)) 回折パターンが観察されており, 準安定 hcp 構造をもつ Ni および Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> 膜がヘテロエピタキシャル成長により形成されていることが分かる. RHEED 解析により, エピタキシャル方位関係を hcp(1 $\bar{1}$ 00)[0001] || bcc-Cr(211)[01 $\bar{1}$ ]と決定した. この方位関係は, Cr(211)下地層上にエピタキシャル成長した hcp-Co 膜の場合と同様であった<sup>5)</sup>. 膜厚の増加に伴い, Fig. 1(c)および(d)に示す RHEED 回折強度プロファイルのスポット Y に対するスポット Z の強度が増大しているのが確認される. 極点図形 XRD 解析を行ったところ (Fig. 2), hcp(0001)面が fcc(111)面と平行になった方位関係で, 相変態が生じていることが分かった. hcp および fcc 結晶の方位関係は fcc(2 $\bar{1}$ 1)[111] & fcc(2 $\bar{1}$ 1)[111] || hcp(1 $\bar{1}$ 00)[0001]であった. したがって, 膜厚の増加に伴い, Fig. 1(f)に示す fcc 結晶からの RHEED パターンが hcp 結晶からのパターンに重畳しているものと解釈される. Fig. 3 に 40 nm 厚の Ni および Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> 膜の面外 XRD パターンを示す. MgO 基板および Cr 下地層からの反射に加え, hcp 結晶からの反射を確認できる. fcc(211)は禁制反射のため, 観察されていない. 当日は, Fe および Fe リッチの Ni-Fe 合金膜の構造解析結果についても, 報告する.

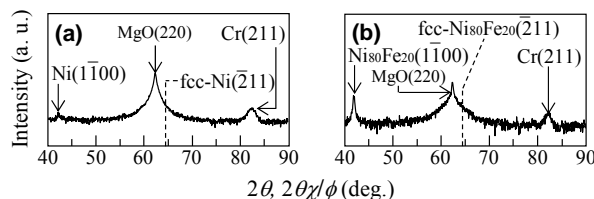
**参考文献** 1) J. C. A. Huang *et al.*: *J. App. Phys.*, **83**, 7046 (1998). 2) W. Tian *et al.*: *App. Phys. Lett.*, **86**, 131915 (2005). 3) M. Ohtake *et al.*: *J. Phys.: Conf. Ser.*, **266**, 012122 (2011). 4) M. Ohtake *et al.*: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **50**, 103001 (2011). 5) A. Nakamura and M. Futamoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, L1410 (1993).



**Fig. 1** (a, b) RHEED patterns observed for (a) Ni and (b) Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> films of (a-1, b-1) 1 and (a-2, b-2) 40 nm thicknesses deposited on Cr(211) underlayers at RT. (c, d) RHEED intensity profiles along the dotted lines in (a, b). (e, f) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (e) hcp(1 $\bar{1}$ 00) and (f) fcc(2 $\bar{1}$ 1) crystals.



**Fig. 2**  $\phi$ -scan XRD patterns of (a) hcp-Ni{10 $\bar{1}$ 0} and (b) fcc-Ni{111} poles obtained from an Ni/Cr/MgO specimen.



**Fig. 3** Out-of-plane XRD patterns of (a) Ni/Cr/MgO(110) and (b) Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Cr/MgO(110) specimens.

# 異なる結晶構造の下地層上に形成した エピタキシャル FePt 合金薄膜の構造解析

沼田裕介・大竹充・二本正昭・桐野文良\*・稲葉信幸\*\*  
(中央大, \*東京藝大, \*\*山形大)

Structural Analysis of Epitaxial FePt Alloy Thin Films  
Deposited on Underlayers with Different Crystal Structures

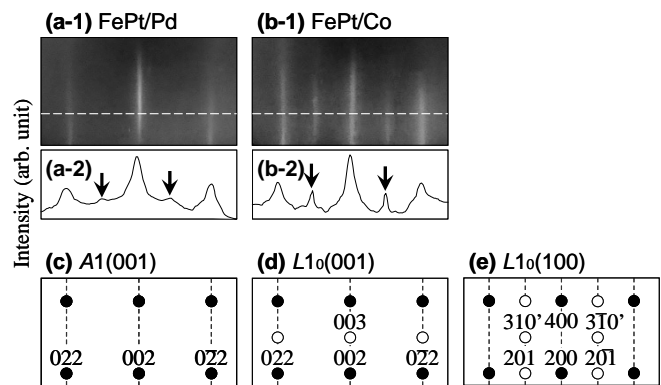
Yusuke Numata, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, Fumiyooshi Kirino\*, and Nobuyuki Inaba\*\*  
(Chuo Univ., \*Tokyo Univ. Arts, \*\*Yamagata Univ.)

**はじめに** FePt 合金は  $c$  軸方向に  $6.6 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  の高い  $K_u$  を持ち、その薄膜は磁気記録媒体や MRAM などへの応用に向けて研究されている。デバイス応用では磁化容易軸である  $c$  軸の方位制御が重要となる。 $c$  軸方位は下地層の結晶構造や結晶方位によって変化する<sup>1,2)</sup>。本研究では、(001)もしくは(110)単結晶基板上にヘテロエピタキシャル成長させた fcc, hcp, もしくは bcc 構造を持つ金属下地層上に FePt 膜を形成し、詳細な構造解析を行った。

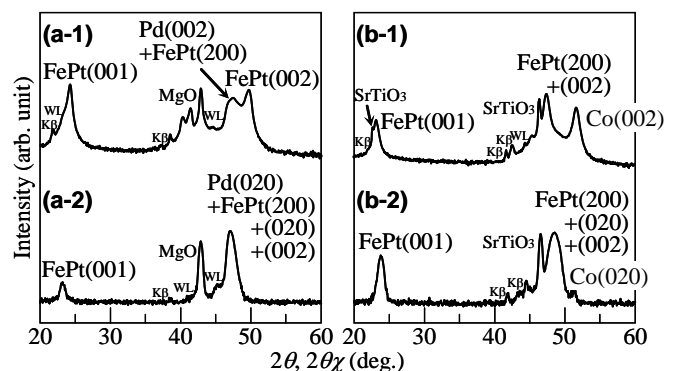
**実験方法** 膜形成には RHEED 装置付きの超高真空 RF マグネトロンスパッタリング装置を使用した。下地層上に基板温度  $600^\circ\text{C}$  で FePt 膜を形成した。下地層材料として、fcc (Pd, Co など), hcp (Ru など), および bcc (Cr など) を用いた。構造評価には RHEED および XRD, 磁化曲線測定には VSM を使用した。

**実験結果** Fig. 1(a-1)および(b-1)に、それぞれ、fcc-Pd(001)および fcc-Co(001)下地層上に形成した FePt 膜の RHEED パターンを示す。いずれの膜に対しても、ストリーク状の鮮明な回折パターンが観察されており、エピタキシャル FePt 膜が得られていることが分かる。Fig. 1(c)-(e)に、Al(001),  $L1_0$ (001), および,  $L1_0$ (100)結晶に対して、結晶構造から推定される RHEED パターンの模式図を示す。いずれの膜の RHEED パターンにおいても、Fig. 1(a-2)および(b-2)の強度プロファイル中の矢印で示すように、 $L1_0$ (100)結晶の形成を示す超格子スポットから構成されるストリークが観察されており、膜中に  $c$  軸が面内に向いた  $L1_0$ (100)結晶が存在していることが分かる。一方、 $c$  軸が面直に向いた  $L1_0$ (001)結晶からの超格子反射は、ストリーク状の回折パターンが観察されている場合、 $L1_0$ (100)結晶からの基本反射と重畳してしまい、識別することができない。そこで、XRD を用いて、構造解析を行った。Fig. 2(a-1)および(b-1)に面外 XRD パターン、Fig. 2(a-2)および(b-2)に面内パターンを示す。いずれの膜に対しても、 $L1_0$ (100)結晶の形成を示す面内 FePt(001)超格子反射に加え、 $L1_0$ (001)結晶の形成を示す面外超格子反射が観察されており、 $L1_0$ (001)結晶も存在していることが分かる。RHEED および XRD パターンにおいて、fcc-Co 下地層上に形成した FePt 膜に対しては、fcc-Pd 下地層上のものに比べ、 $L1_0$ (100)結晶からの超格子反射強度が強いことから、面内に  $c$  軸に向いた  $L1_0$ 結晶が優先的に形成されていることが分かる。この理由として、FePt/Pd 界面の格子ミスマッチはマイナスであるのに対して、FePt/Co ではプラスであるため、fcc-Co 下地層上に形成した FePt 膜では面内方向の格子に圧縮応力がかかり、 $L1_0$ (100)結晶の形成が促進されたものと考えられる。当日は、fcc(110)下地層や、hcp もしくは bcc 構造を持つ下地層上に形成した FePt 膜の構造についても報告する。

**参考文献** 1) D. H. Wei, F. T. Yuan, H. W. Chang, and Y. D. Yao: *J. Appl. Phys.*, **103**, 07E138 (2008).  
2) E. Yang, S. Ratanaphan, D. E. Laughlin, and J. G. Zhu: *IEEE Trans. Magn.*, **47**, 81 (2011).



**Fig. 1** [(a-1), (b-1)] RHEED patterns and [(a-2), (b-2)] the intensity profiles observed for FePt films deposited on (a) fcc-Pd(001) and (b) fcc-Co(001) underlayers. The intensity profiles of (a-2) and (b-2) are measured along the dotted lines in (a-1) and (b-1), respectively. (c)-(e) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (c) Al-FePt(001), (d)  $L1_0$ -FePt(001), and (e)  $L1_0$ -FePt(100) crystals. The open and filled circles correspond to superlattice and fundamental reflections, respectively.



**Fig. 2** [(a-1), (b-1)] Out-of-plane and [(a-2), (b-2)] in-plane XRD patterns of FePt films deposited on (a) fcc-Pd(001) and (b) fcc-Co(001) underlayers. The intensity is shown in a logarithmic scale.

# GaAs(111)単結晶基板上に形成した bcc 構造を持つ Fe, Co および Ni 薄膜の構造解析

曾田卓裕・皆川成行・大竹充・二本正昭・稲葉信幸\*  
(中央大, \*山形大)

Structure Analysis of Fe, Co, and Ni Thin Films with bcc Structure Formed on GaAs(111) Substrates  
Takahiro Soda, Shigeyuki Minakawa, Mitsuru Ohtake, Masaaki Futamoto, and Nobuyuki Inaba\*  
(Chuo Univ., \*Yamagata Univ.)

**はじめに** Fe, Co および Ni は代表的な軟磁性材料であり, 磁気応用デバイスとして広く用いられている. これらの材料はバルク状態では安定構造としてそれぞれ bcc, hcp および fcc 構造をとるが, 薄膜状態では状態図に存在しない準安定な構造を持つ結晶の形成が可能であることが報告されている<sup>1-3</sup>. 結晶構造が異なると磁気特性が変化するため, 準安定構造を持つ 3d 強磁性遷移金属は新磁性材料として注目されている<sup>4</sup>. これまで我々は GaAs(100)基板上での膜形成初期過程で bcc 構造をもつ Co および Ni 膜が形成されることを報告した<sup>5,6</sup>. 本研究では, GaAs(111)基板上に Fe, Co および Ni 膜を形成し, 膜の結晶構造に及ぼす膜厚の影響を系統的に調べた.

**実験方法** 試料の作製には RHEED 装置付きの超高真空 RF マグネトロンスパッタリング機構を用いた. GaAs(111)基板を 600 °C の加熱処理により表面清浄化処理を行った後, 室温で膜厚を 1 から 40 nm の範囲で変化させた Fe, Co および Ni 膜を形成した. 膜の形成過程と形成後の構造解析に RHEED および XRD をそれぞれ用い, 磁化曲線測定には VSM を使用した.

**実験結果** Fig. 1(a-1)-(c-1)に 1 nm 厚の Fe, Co および Ni 膜に対して観察した RHEED パターンを示す. すべての材料において, bcc 単結晶の形成を示す (Fig. 1(d)) 回折パターンが観察された. したがって GaAs(111)基板上に準安定 bcc-Co および bcc-Ni 結晶がヘテロエピタキシャル成長していることが分かる. RHEED パターンから決定したエピタキシャル方位関係は

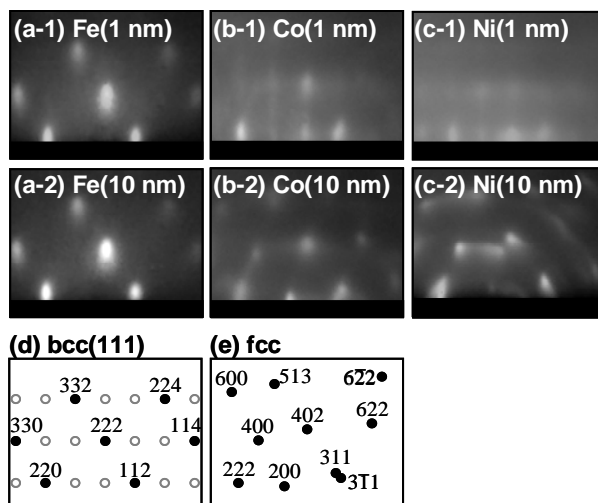
$$\text{bcc}(111)[1\bar{1}0] \parallel \text{GaAs}(111)[1\bar{1}0]$$

であった. Fig. 1(a-2)-(c-2)に 10 nm 厚の Fe, Co および Ni 膜に対して観察した回折パターンを示す. Fe 膜においては 1 nm 厚の場合と同様に bcc 構造の反射が観察されたが, Co および Ni 膜においては fcc 結晶の形成を示す (Fig. 1(e)) 回折パターンが得られた. この結果は準安定な bcc 結晶がより安定な fcc 結晶へと, バルクにおける bcc 構造の相変態として知られている Nishiyama-Wasserman (NW)<sup>7</sup>の結晶方位関係によって変態している可能性が示唆される. したがって, 膜表面では膜厚の増加に伴い, NW の関係に従い, 最密充填面である bcc{110}面と fcc(111)面が平行になった方位関係で相変態が生じたものと解釈される. RHEED パターンから決定した方位関係は

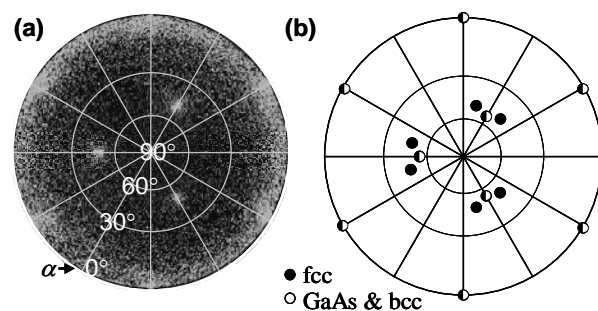
$$\text{fcc}\{111\}\langle 110\rangle \parallel \text{bcc}\{110\}\langle 001\rangle$$

であった. Fig. 2(a) に 40 nm 膜厚の Co 膜で測定した XRD 極点図形を示す. GaAs 基板反射の他に fcc-Co 結晶に対応する反射 (Fig. 2(b)) が確認され, 膜内においても NW の関係で結晶の相変態が進行したことが推定される. 当日は磁気特性解析についても報告する.

**参考文献** 1) J. C. A. Huang *et al.*: *J. App. Phys.*, **83**, 7046 (1998). 2) Y. U. Idzerda *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 2480 (1989). 3) C. S. Tian *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 137210 (2005). 4) X. -G. Zhang *et al.*: *Phys. Rev. B*, **70**, 172407 (2004). 5) M. Ohtake *et al.*: *Key Eng. Mat.*, **605**, 478 (2014). 6) M. Ohtake *et al.*: *Eur. Phys. J. B*, **86**, 1 (2013). 7) Z. Nishiyama: *Sci. Tohoku Univ.*, **23**, 638 (1934).



**Fig. 1** (a)-(c) RHEED patterns observed for (a) Fe, (b) Co, and (c) Ni films of (a-1)-(c-1) 1 and (a-2)-(c-2) 10 nm thicknesses deposited on GaAs(111) substrates at RT. (d, e) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (d) bcc(111) and (e) fcc crystals. The incident electron beam is parallel to GaAs[1 $\bar{1}$ 0].



**Fig. 2** (a) Pole-figure XRD pattern of a 40-nm-thick Co film deposited on GaAs(111) substrate at RT measured by fixing the diffraction angle of  $2\theta_B$  at  $44^\circ$ . (b) Schematic diagrams of diffraction pattern simulated for GaAs, bcc-Co(111), and fcc-Co crystals.

# Co ナノ粒子を含有するメソポーラスシリカ薄膜の構造と磁気特性

加藤大雄, 榮岩哲二

(信州大)

Structure and magnetic properties of meso-porous silica thin films with Co nano particles

H.Kato, T.Haeiwa

(Sinshu Univ.)

## はじめに

界面活性剤の自己会合を利用し、それを鋳型として得られるメソポーラスシリカ材料は、その細孔内に磁性金属を充填することで絶縁体に区切られた磁性金属の孤立粒子(磁性ナノ細線アレイ)を形成することができ、TMR 効果を利用したスピントロニクスデバイスなどへの活用が期待されている。本研究ではEASA(Electro-Assisted Self-Assembly)法を用いて、細孔が基板に対して垂直配向したメソポーラスシリカ薄膜を生成し、細孔内に Co 充填を試み薄膜の構造及び磁気特性について検討したので報告する。

## 実験方法

エタノール 20mL、トリメチルステアリルアンモニウムクロリド 0.766g、硝酸ナトリウム 0.17g、蒸留水 20mL、オルトケイ酸テトラエチル 0.71mL、塩酸 80 $\mu$ L からなる混合液を常温で 2.5 時間攪拌し、前駆体溶液とする。ポテンショスタットの作用極に基板(Ti をスパッタコートしたスライドガラス)、対極に SUS 板を配置し、参照電極(Ag-AgCl)に対して-2.0v の電位を 30s 印加しメソポーラスシリカ薄膜を成膜する。基板は蒸留水で洗浄した後、電気炉中で 130 $^{\circ}$ C6 時間エイジングし、続けて 250 $^{\circ}$ C4 時間焼成した。

細孔内へのCo充填には、電解パルスメッキ法を用いた。硫酸コバルト5.0g、ホウ酸1.5g、蒸留水50mLからなる混合液をメッキ溶液とした。めっき条件は電圧6.0v、パルス幅20ms、100パルスとした。

## 実験結果

Fig.1(a),(b)に成膜したメソポーラスシリカ薄膜の SEM 像を示す。薄膜のほぼ全範囲(2.6cm $\times$ 1.5cm)で周期的な細孔が観察された。また、表面に規則的な細孔が観察されることから、細孔が基板に対して垂直に配向していると考えられる。細孔径は 3.5nm、周期は 4.7nm であった。Fig.2 に電解パルスメッキを行った後の薄膜の面内方向への磁化曲線を示す。面内・垂直ともにヒステリシスがなかったため、超常磁性的な性質を持つことが観察された。また、面内・垂直ともに磁化がほぼ同じであったため、Co の粒子形状は球状に近いことが考えられる。

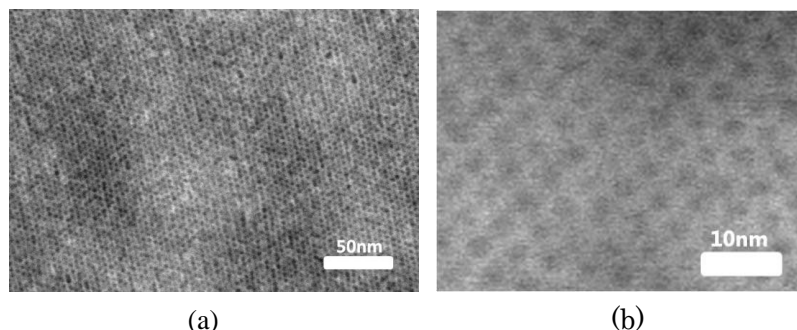


Fig.1 SEM photograph meso-porous silica thin film

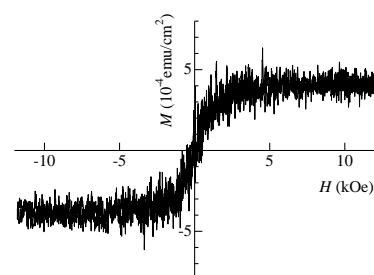


Fig.2 Magnetic hysteresis curves of meso-porous silica thin film with Co

**参考文献** M.Etienne, S.Sallard, M.Schroder, Y.Guillemain, S.Mascotto, B.M.Smarsly, A.Walcarius, Chem. Mater. 22, 3426-3432, 2010.

# Preparation of $\text{Bi}_2\text{YFe}_5\text{O}_{12}$ and $\text{BiGd}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ magnetic garnet thin films by Metal Organic Decomposition method on GGG and glass substrate

D. A. Wahid, T. Hattori, J. Sato, and H. Shimizu

Tokyo University of Agriculture and Technology, Koganei, Tokyo 184-8588, Japan

Spatial light modulator (SLM) is a real-time programmable device for modifying amplitude, phase or polarization of optical wavefront by electrically controlled signals. Application of magneto-optic SLM (MOSLM) is highly expected because of their extremely fast pixel switching speed and non-volatile property. A single crystal garnet with perpendicular magnetic anisotropy and two polarizers have been used as a pixel element to switch the optical output depending on the up and down magnetization owing to Faraday Effect<sup>[1]</sup>. Magnetic garnet films with high Faraday rotation and efficient magnetization reversal are required for various applications in the visible and near infrared spectral regions.

We prepared and characterized the Bi:YIG ( $\text{Bi}_2\text{YFe}_5\text{O}_{12}$ ) and Bi:GdIG ( $\text{BiGd}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ) films by metal organic decomposition (MOD) method on (111) gadolinium gallium garnet (GGG) and glass substrate in different annealing temperature of 620 – 800 °C under dry air, in order to investigate the relationship among the Faraday effect, magnetic anisotropy, and fabrication condition, because fabrication condition determines the film composition, crystal structure and magnetic anisotropy. The thin films prepared in this study were investigated by Faraday effect and X-ray diffraction (XRD). Fig. 1 shows the Faraday rotation spectra of the Bi:YIG and Bi:GdIG thin films. Fig. 2 shows the magnetic field dependence of the Faraday rotation (normalized) for these samples. Fig. 3 shows XRD patterns of these films showing no other peaks associated with polycrystalline or impurity phases. With increasing the annealing temperature, XRD intensity from the thin films increased, and Faraday rotation increased, showing that the amount of  $\text{Fe}^{3+}$  associated to the magnetic garnet crystal increased. Furthermore, the magnetic anisotropy of samples is changed from in plane to perpendicular direction by increasing the annealing temperature. A possible reason for the change of magnetic anisotropy are the difference of chemical composition ( $\text{O}_2$  deficiency) of Bi:YIG and Bi:GdIG thin films by increase of annealing temperature. The other reason is that the strain from the GGG substrate is decreased as shown in Fig. 3, leading to perpendicular magnetic anisotropy<sup>[2-3]</sup>.

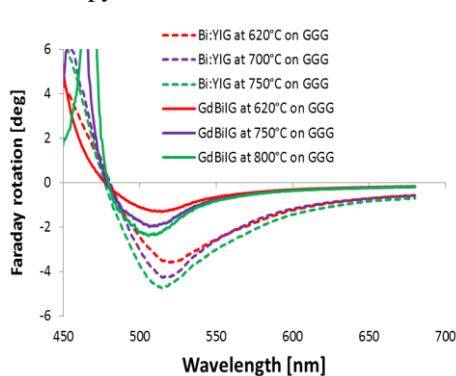


Figure.1. Faraday rotation spectra of Bi:YIG and Bi:GdIG films on GGG substrates

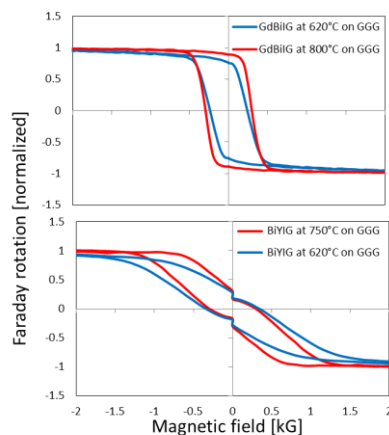


Figure.2 magnetic field dependence of normalized Faraday rotation at the wavelength of 600 nm

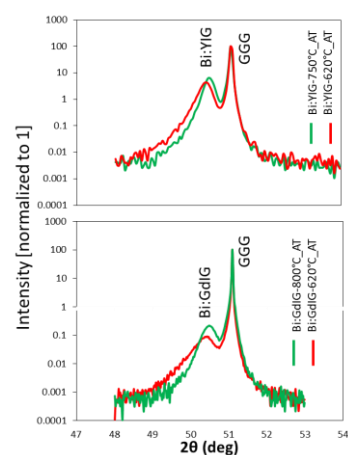


Figure.3 XRD pattern of Bi:YIG and Bi:GdIG on GGG substrate

## Reference

- 1) K. H. Chung, et al., Magn. Soc., Jpn., 32, (2008) 114-116
- 2) X.R.Zhao et al., Appl. Surface Science, 255, (2006). 2628-2633
- 3) K. Matsumoto et al., IEEE. Tran. Mag, 28, (1992) 2985-2987



# FeRh 系合金/BaTiO<sub>3</sub> ヘテロ構造における磁気相転移に与える 格子歪の影響

鈴木一平、伊藤満、谷山智康  
(東工大)

Strain effect on magnetic phase transition of FeRh alloy system/BaTiO<sub>3</sub> heterostructures

I. Suzuki, M. Itoh, T. Taniyama  
(Tokyo Tech.)

## はじめに

CsCl型 FeRh 規則合金は、室温では反強磁性であるが 380 K 付近で強磁性へと磁気転移する特異な物質として知られ、エピタキシャル薄膜においては、格子歪によって磁気転移温度が変調されることが報告されている[1, 2]。本研究では、Ga を添加することで磁気転移温度を調整した FeRh 合金(Ga-FeRh)を典型的な強誘電体である BaTiO<sub>3</sub>(001) (BTO)基板上に成膜し、BaTiO<sub>3</sub>の構造相転移に伴う格子歪変化が FeRh の磁気特性に与える影響を調べた。

## 実験方法

試料は、MgO(001)及び BTO(001)単結晶基板上に MBE 法を用いて Fe, Rh 及び Ga を同時蒸着することで作製した。XRD を用いて構造評価を行い、磁化の温度依存性、磁場依存性及び磁気抵抗を VSM、PPMS を用いてそれぞれ測定した。

## 実験結果

XRD の結果より、超格子反射である(001)ピークが見られ、規則化した Ga-FeRh が MgO(001)及び BTO(001)基板上にエピタキシャル成長していることを確認した。次に、磁化の温度依存性を測定した結果を Fig.1 に示す。MgO 基板上に比べ BTO 基板上では Ga-FeRh と基板との大きな格子不整合に起因して転移が散漫となっているが、反強磁性-強磁性転移が観察された。冷却過程において 285 K 及び 190 K 付近に磁化の変化が見られ、特に 190 K 付近では磁化が大きく減少した。これらの温度は BTO の正方晶から斜方晶、斜方晶から菱面体晶への構造相転移温度にそれぞれ一致する。この相転移温度の近傍で磁化の磁場依存性を測定したところ、相転移の低温側で飽和磁化の減少が確認された。本結果は、BTO の斜方晶から菱面体晶への相転移に伴う格子歪変化によって Ga-FeRh において強磁性から反強磁性への磁気転移が誘起されたことを示唆している。この時、BTO (100)の c ドメイン上では(1-10)方向の圧縮応力が増大し(110)方向では応力が緩和する。一方 a ドメイン上では圧縮応力が増大していると考えられる。今回使用した BTO 基板は a ドメインの割合が多かったため、圧縮応力増大によって反強磁性状態が安定化したと考えられる。一方で、290 K 付近では磁化が増大したが、磁化の磁場依存性においては飽和磁化の値は変化していないことから、BTO の正方晶から斜方晶への相転移に伴う FeRh の磁気異方性の変化を反映したものと考えられる。

## 参考文献

- 1) S. Maat, *et al.*, Phys. Rev. B. 72, 214432 (2005).
- 2) C. Bordel *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 117201 (2012).

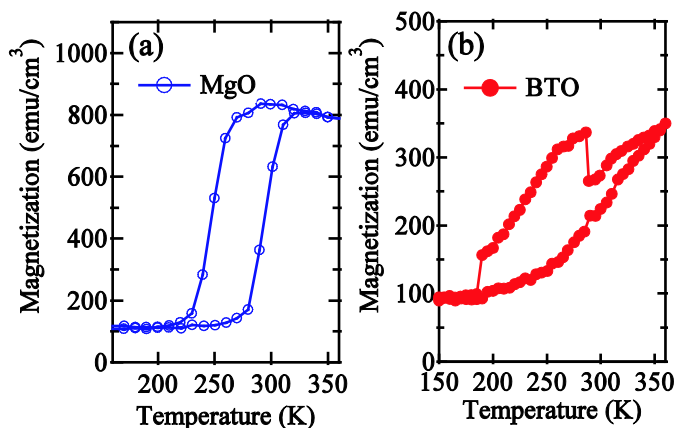


Fig.1 Temperature dependence of magnetization of (a)Ga-FeRh/MgO and (b)Ga-FeRh/BTO.

## Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe 多層膜における Fe 層の磁化過程

長浜太郎 川井智博 高橋望 柳瀬隆 島田敏宏

北海道大学大学院 工学研究院

Magnetization process of Fe layer in Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe multilayers

Taro Nagahama, Tomohiro Kawai, Nozomi Takahashi, Takashi Yanase, Toshihiro Shimada

Graduate School of Engineering, Hokkaido University

多くの磁性薄膜は多層膜化により、磁気異方性や保磁力などの磁気特性が大きく影響される。また、その様な影響をうまく利用することにより、磁気特性を制御し、デバイスなどに活用している。磁性金属多層膜系で見られる層間交換相互作用はその典型的な例といえよう。一方で酸化物系材料でのそのような研究はまだあまり多くない。しかし、酸化物を用いたスピントロニクス素子への応用の可能性を広げるには、磁気特性の積極的な制御は欠かすことはできない。今回我々は、典型的な磁性酸化物である Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> を含む Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe 多層膜を作製し、その磁気特性の評価を行った。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> を含む多層膜の磁気特性については、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Fe の直接交換相互作用<sup>1</sup>および Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/MgO/Fe での層間交換相互作用に関する報告<sup>2</sup>があるが、非磁性金属を挟んだ構造での磁気特性の評価は報告がない。本研究では高品質なエピタキシャル多層膜を作製し、その磁気特性を詳細に調べた。

作製した試料の構造は MgO(100)<sub>s</sub>(110)/NiO(5 nm)/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(60 nm)/Cr(*t*<sub>Cr</sub>=0-10 nm)/Fe(5 nm)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(2 nm)である。試料の作成は反応性 MBE 法で行った。Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 製膜時の酸素分圧は 4×10<sup>-4</sup>Pa、製膜温度は 300°Cで行った。Cr は 130°Cで製膜、その後は室温で製膜した。エピタキシャル成長を RHEED により確認した。磁化過程は磁気カー効果を用いて室温で測定した。

図 1 に MgO(100)/NiO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 多層膜の、Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, Cr, Fe それぞれの RHEED 像を示す。それぞれきれいなストリークが観測され、エピタキシャル成長をしていることが分かる。次に図 2 に MgO(110)/NiO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 多層膜の場合の磁気ヒステリシス曲線を示す。Cr 層の厚さは上から 0.2, 5.0, 9.5 nm である。金属層が比較的薄いため、最表面の Fe 層の磁化曲線と、下層の Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 層の磁化曲線が共に観察されている。単層膜の磁化曲線などから、保磁力の小さい方が Fe 層の磁化反転で大きいほうが Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 層の磁化反転に対応している事がわかる。Cr 層が厚くなるほど Fe 層の保磁力が大きく増大することが分かった。

### 参考文献

- 1) H. Yanagihara *et al* 2008 *Appl. Phys. Express* **1** 111303
- 2) H. Yanagihara *et al* *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2011 **44** 064011

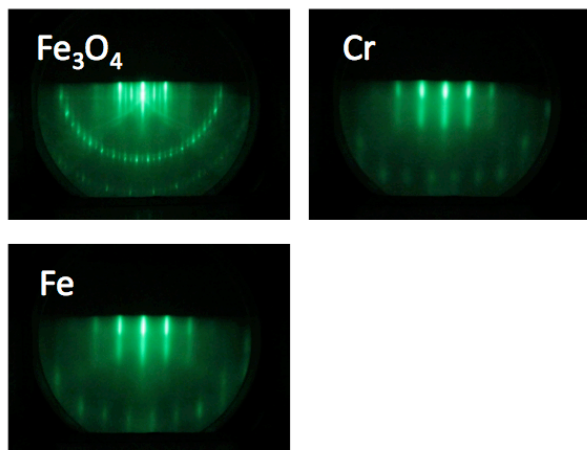


図 1 MgO(100)/NiO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の RHEED 像

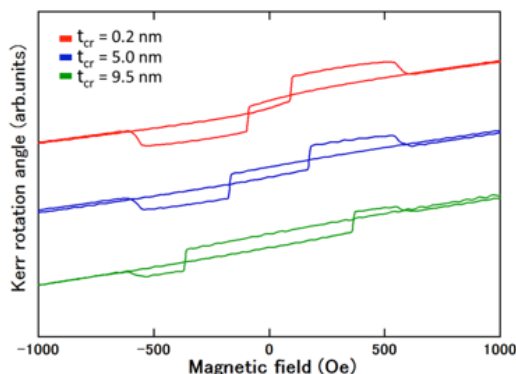


図 2 MgO(110)/NiO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Cr/Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の磁化過程

# 基板相転移に伴う強磁性 Pd(100)超薄膜の磁性の変化

櫻木俊輔、田尻寛男\*、佐藤徹哉  
(慶大理工、\*JASRI/SPring-8)

Change in magnetism of ferromagnetic Pd(100) ultra thin film by phase transition of the substrate

S. Sakuragi, H. Tajiri\*, and T. Sato  
(Keio Univ., \*JASRI/SPring-8)

## はじめに

Pdはバルクでは非磁性ながらも、ナノスケール下では強磁性を発現する。電子構造計算によれば、Pd(100)超薄膜は量子井戸状態に起因して強磁性を発現するようになり、加えてその磁性は巨大電場を印加することで強磁性-非磁性間でのスイッチングが可能であると予想されている<sup>1)</sup>。講演者らはこれまでに、SrTiO<sub>3</sub>(100)上にエピタキシー成長したPd(100)超薄膜を作製し、その磁性について議論を行ってきた。結果、Pd(100)超薄膜が強磁性を発現し、その磁性が電子構造計算による予想と矛盾しない事実から、量子井戸状態に基づく新しい磁性発現機構の存在を実験的に明らかにしている<sup>2)</sup>。しかしながら、Pd/SrTiO<sub>3</sub>界面に生じ得る歪みや電子状態の変化がこの新しい磁性発現機構にどのような効果を与えるかについては、まだ十分に議論が行われていない。そこで本研究では、SrTiO<sub>3</sub>が約105 K以下で構造相転移を生じることを利用し、相転移点前後で生じるPd/SrTiO<sub>3</sub>界面の状態変化に起因したPd(100)超薄膜の磁性変化について調査を行った。

## 実験方法

Pd(100)超薄膜の作製はMBEを用いて行った。SrTiO<sub>3</sub>(100)基板上に3段階成長法<sup>3)</sup>を用いることでPdをエピタキシー成長させ、それを超高真空チャンパーとフランジ接続された石英管に一度も大気に曝すことなく封入した。このようにして作製したサンプルについて、SQUID磁力計を用いることで低温から室温までの磁化の温度依存性を測定した。

## 結果・考察

図1に、SQUID磁力計から得られた強磁性Pd(100)超薄膜の磁化の温度依存性を示す。強磁性Pd(100)超薄膜のサンプルの他に、ブランクサンプルとして未蒸着のSrTiO<sub>3</sub>を準備し、測定を行った。図1から、強磁性Pd(100)超薄膜の磁化の温度依存性曲線が、SrTiO<sub>3</sub>の相転移点である105 K付近でブランクサンプルとは異なる挙動を示していることがわかる。これは、SrTiO<sub>3</sub>の相転移が、Pd(100)超薄膜の磁性に影響していることを示す。SrTiO<sub>3</sub>は相転移点以下で、結晶の対称性がCubicからTetragonalに変化し、加えてc軸方向のd電子のエネルギーが、他の2つの軸のものに比べて25 meV上昇することが知られている<sup>4)</sup>。今回の実験では、それら基板の状態の変化がPd(100)の形成する量子井戸状態を変調し、磁性に変化を生じさせた可能性があると考えられる。講演では、磁性変化の原因について考察を深め、議論を行う予定である。

## 参考文献

- 1) S. Aihara *et al.*, J. Appl. Phys. **112** 073910 (2012).
- 2) S. Sakuragi *et al.*, (submitted).
- 3) T. Wagner, G. Richter and M. Rühle, J. Appl. Phys. **89**, 2606 (2001).
- 4) Y. J. Chang *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 235109 (2010).

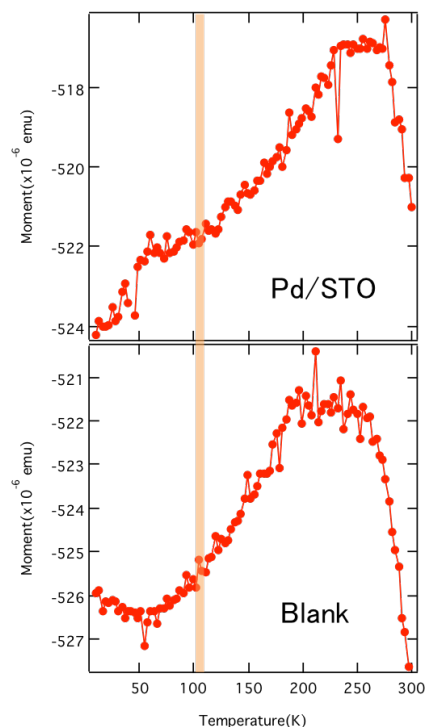


図1 磁化の温度依存性

Rh 上に積層された bct-Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 合金の垂直磁気異方性に関する理論的評価

兵頭一茂\*, 小田洋平\*\*, 佐久間昭正\*

(\* 東北大, \*\* 産総研)

Theoretical evaluation with respect to perpendicular magnetic anisotropy of bct-Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> stacked on Rh

K. Hyodo\*, Y. Kota\*\*, and A. Sakuma\*

(\*Tohoku Univ., \*\* AIST)

## 1 はじめに

bct-Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 合金は c 軸長と a 軸長の比 (c/a) を 1.25 に近づけることで、巨大な結晶磁気異方性定数 ( $K_u \approx 100$  Merg/cm<sup>3</sup>) が得られることが理論的に予測されている<sup>1)</sup>. この系の実現のため、近年下地層との格子ミスマッチによって bcc-FeCo 合金の格子を歪ませる (c/a>1) 試みがなされている<sup>2),3)</sup>.

Lao らは fcc-Rh 層間に Fe, Co 層を交互積層させることで、c/a  $\approx$  1.2 の bct-Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 合金を作製した<sup>3)</sup>. そして、測定された  $K_u$  から、現象論的に与えられた式

$$K_u \times t_{FM} = K_v \times t_{FM} + K_{int} \quad (1)$$

( $t_{FM}$ : FeCo 合金の膜厚) へのフィティングによって、それぞれバルク磁気異方性定数  $K_v = (2.50 \pm 0.34) \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup>, 界面磁気異方性定数  $K_{int} = (0.68 \pm 0.34)$  erg/cm<sup>2</sup> と値を見積もっている. このように実験試料は薄膜であるのに対して、本材料に関して行われた既存の理論研究はバルクを想定したものであるため、新たに bct-FeCo 合金の薄膜化、並びに下地層が  $K_u$  に与える影響の理論的評価が必要である.

本研究では実験と同じ FeCo/Rh の  $K_v$ ,  $K_{int}$  を第一原理計算を用いて評価し、各磁気異方性の起源を解明することを目的として以下の計算を行った. 手法として局所スピン密度近似に基づいた強結合線形マフィンティン軌道法を用い、fcc-Rh 層に挟まれた bct-Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 規則合金 (c/a=1.2) について、 $t_{FM}$  を変えて  $K_u$  を計算した. そして、実験と同様に式 (1) へのフィティングから  $K_v$  と  $K_{int}$  を求めた.

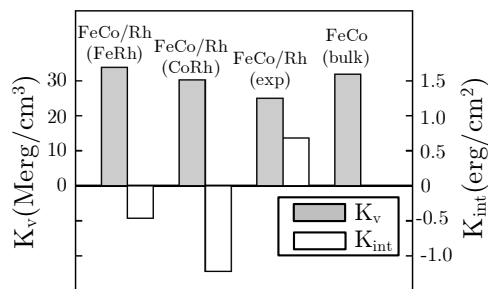
## 2 結果および考察

計算結果から式 (1) へのフィティングで得られた  $K_v$ ,  $K_{int}$  を fig.1 に示す. FeCo/Rh(FeRh), FeCo/Rh(CoRh) は、それぞれ Fe, Co 原子を Rh 界面に配置した場合の計算結果である. また FeCo/Rh(exp) は実験値のフィティング結果<sup>3)</sup> であり、FeCo(bulk) は bct-FeCo(c/a=1.2) バルクでの計算値である. まず  $K_v$  に関して、各理論値と実験値のよい一致が確かめられた. また、FeCo/Rh(FeRh), FeCo/Rh(CoRh) で  $K_v$  はバルクの計算値とほぼ一致し、式 (1) が界面原子に依らず  $K_v$  を評価できていることが分かった.

一方、 $K_{int}$  については、計算値は FeCo/Rh(FeRh), FeCo/Rh(CoRh) の両方で  $K_{int} < 0$  となり、 $K_{int} > 0$  であった実験値とは符号すら一致しない結果となった. これは実験で作製された薄膜の界面が、計算で想定した理想的な系とは大きく異なる可能性を示唆している. 講演では、 $K_{int}$  が実験と理論で大きく異なる理由について種々の観点から議論する予定である.

## References

- 1) T. Burkert *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 027203 (2004)
- 2) B. Wang *et al.*, *Jour. Appl. Phys.*, **115**, 133908 (2014)
- 3) B. Lao, J. W. Jung and M. Sahashi, *IEEE. Trans. Magn.*, (in press)



**Fig. 1** Comparison of results between calculation (FeCo/Rh(FeRh), FeCo/Rh(CoRh), FeCo(bulk)) and experiment (FeCo/Rh(exp)) with respect to bulk anisotropy  $K_v$  and interface anisotropy  $K_{int}$  of bct-Fe<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> stacked on Rh.

## GdFeCo/TbFe 二層膜の垂直磁気異方性とダンピング定数の TbFe 層厚依存性

東出智寛, 代兵, 加藤剛志, 岩田聡, 綱島滋\*  
(名古屋大学, \*名古屋産業科学研究所)

TbFe layer thickness dependences of perpendicular anisotropy and damping constant for amorphous GdFeCo/TbFe bilayer

T. Higashide, B. Dai, T. Kato, S. Iwata, S. Tsunashima\*  
(Nagoya Univ., \*Nagoya Industrial Science Research Institute)

## はじめに

Gbit 級 MRAM を実現するための技術として, スピン注入磁化反転が注目されている. このスピン注入磁化反転はセルサイズの微少化に伴い反転電流が減少するため大容量化に有効な手段である. これまでに我々は希土類-遷移金属である GdFeCo や GdFeCo/TbFe 二層膜をメモリー層とする垂直磁化型のスピン注入磁化反転素子を作成し, 磁化反転臨界電流密度  $J_c$  と磁気異方性  $K_{\text{eff}}$  について報告してきた<sup>1,2)</sup>. しかしながら  $J_c$  と密接な関係のある二層膜のダンピング定数は調べられていない. 本研究では GdFeCo/TbFe 二層膜のダンピング定数  $\alpha$  を超短パルスレーザーを用いた pump-probe 法により評価し, ダンピング定数  $\alpha$  と反転電流密度  $J_c$  との関係を調べた.

## 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタリング装置により, 熱酸化膜付き Si 基板上に substrate / Ta (5 nm) / CuAl (30 nm) / Ta (3 nm) / Tb<sub>16</sub>Fe<sub>84</sub> (x nm) / Gd<sub>21</sub>(FeCo)<sub>79</sub>(10-x nm) / Ta (2 nm) を成膜した. x = 0 ~ 5 nm の範囲で層厚を変化させた. さらに pump-probe 測定で S/N を向上させるため, この膜上に RF マグネトロンスパッタにより SiN (140 nm) を成膜した. 試料の磁化ダイナミクスは, 中心波長 1560 nm, パルス幅 1 ps, 繰り返し周波数 200 kHz のファイバーレーザーを用いた pump-probe 法により測定した. 測定時には膜面法線方向から 45 度傾けた方向に外部磁界を最大 7.8 kOe 印加した.

## 結果と考察

Fig. 1 は外部磁界 4.8 kOe を加えて, pump-probe 法により測定した GdFeCo(10-x nm) / TbFe(x nm) 二層膜 (x = 0, 1, 2) の歳差運動を示している (黒丸). 磁化の歳差運動を減衰振動関数  $e^{-t/\tau} \sin \omega t$  によりフィッティング (実線) し,  $\omega$  と  $\tau$  の外部磁界依存性を Chappert の式<sup>3)</sup>によりフィッティングすることでダンピング定数  $\alpha$  を求めた. GdFeCo 単層膜の  $\alpha$  は 0.049 であったが TbFe 層を 1 nm 挿入することで  $\alpha = 0.295$  に大幅に増加した. Fig. 2 は過去に報告した GdFeCo / TbFe 二層膜をメモリー層とするスピン注入素子の,  $J_c$  と  $K_{\text{eff}}$  の TbFe 層の膜厚依存性を示している<sup>2)</sup>.  $J_c$  は TbFe 層を 1 nm 挿入することで 2 倍程度になっているが, 今回求めたダンピング定数の増加は約 6 倍となったため, 二層膜の  $J_c$  は膜平均のダンピング定数では十分説明できないという結果を得た.

## 参考文献

- 1) B. Dai et al., IEEE Transactions Magnetics, **49**, issue7, pp.4359-4362(2013)
- 2) B. Dai et al., The 37th Annual Conference on MAGNETICS in Japan(2013)
- 3) C. Chappert et al., Phys. Rev. B, **34**, 3192 (1986).

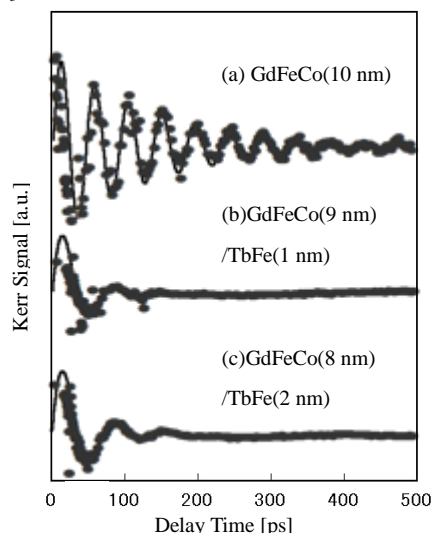


Fig1. TRMOKE waveforms of GdFeCo(10-x) / TbFe(x) multilayer with (a) x = 0 nm (b) x = 1 nm (c) x = 2 nm measured at  $H_{\text{ext}} = 4.8$  kOe.

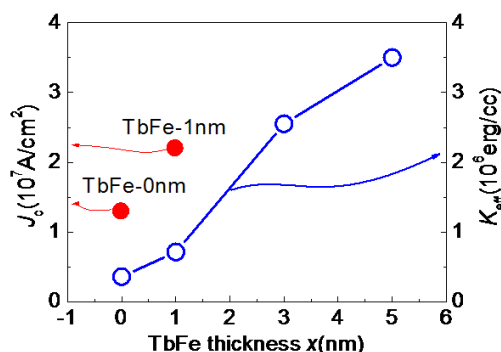


Fig2. Dependences of  $J_c$  and  $K_{\text{eff}}$  on The thickness of TbFe in the memory bilayer<sup>3)</sup>

## CoPt/Ru 垂直磁化膜の VNA-FMR

草薙勇作, 岡本 聡, 菊池伸明, 北上 修, 加藤剛志\*, 岩田 聡\*  
(東北大多元研, \*名古屋大)

VNA-FMR of perpendicular magnetic CoPt/Ru films

Y. Kusanagi, S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Kato\*, and S. Iwata\*  
(IMRAM, Tohoku Univ., \*Nagoya Univ.)

### はじめに

ナノ秒からサブナノ秒領域での磁化挙動は静磁場下でのそれとは大きく異なり、歳差運動に基づく動的挙動が顕著となる。近年、マイクロ波アシスト磁化反転やスピン注入磁化反転など、動的磁化挙動の制御が重要となっている。この動的磁化挙動における主要因子としてダンピング定数  $\alpha$  があるが、その起源や磁気異方性との関係など未だ不明な部分も多く、また実用が期待される材料においても未だ十分に調べられていないのが現状である。メモリ材料への応用が期待される材料の一つに Ru 下地上に成膜した hcp-CoPt 合金(以下 CoPt/Ru)があり、Pt 組成が 10~30 at.% の範囲で最大で  $2 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  程度<sup>1)</sup> の高い垂直磁気異方性を示す。本研究では CoPt/Ru 膜の強磁性共鳴を測定し、ダンピング定数と諸特性、膜構造などとの相関を調べることを目的とする。

### 実験方法

作製した試料の膜構成は、SiO<sub>2</sub> sub. / Ta(5 nm) / Pt(10 nm) / Ru(20 nm) / CoPt(20 nm) / Ta(2 nm) とした。成膜には DC マグネトロンスパッタを用いた。磁化曲線を Kerr 効果を用いて測定し、異常 Hall 効果測定と GST 法<sup>2)</sup>により実効的異方性磁界  $H_k^{\text{eff}}$  を求めた。また石英基板上に成膜した CoPt 膜をフォトリソグラフィと Ar イオンエッチングを用いパターン(1500 × 8 μm)を形成し、絶縁層として SiO<sub>2</sub> を成膜し、その上にリフトオフ法を用いて Cu コプレーナ線路(信号線路幅 10 μm, 膜厚 100 nm)を作製した。強磁性共鳴(FMR)の測定では外部磁場  $H_{\text{dc}}$  を試料面に対し垂直に印加し、ベクトルネットワークアナライザ(VNA)を用いて透過特性  $S_{21}$  を測定し、位相成分を取り除くためノルムをとった。ローレンツ関数でフィッティングするためにノルムの2乗  $|S_{21}|^2$  を求め、共鳴の起きていない基準スペクトルとの差分  $\Delta|S_{21}|^2$  からダンピング定数を評価した。

### 実験結果

得られた共鳴スペクトルを Fig.1 に示す。ピーク強度は小さいものの外部磁場  $H_{\text{dc}}$  を大きくするにつれ共鳴周波数は高周波側にシフトしている。またこの共鳴ピークをローレンツ関数でフィッティングし共鳴周波数  $f_r$  を求め、 $H_{\text{dc}}$  に対しプロットした結果を Fig.2 に示す。これより求めた  $H_k^{\text{eff}}$  の値は GST 法により求めた  $H_k^{\text{eff}}$  の値とほぼ同じだった。また共鳴ピークの半値幅より求めた  $\alpha$  の値は 0.2 程度となり、extrinsic な成分が含まれているものの Co/Pt 多層膜の場合(0.02~0.1)に比べはるかに大きな値となった。この原因としては合金化による影響、下地による影響が考えられる。今後はダンピング定数の CoPt 膜厚、Ru、Pt 膜厚依存性および Pt 組成依存性を調べ磁気異方性との関係を議論する予定である。

### 参考文献

- 1) T. Shimatsu *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 2995 (2007)
- 2) S. Okamoto *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **90**, 4085 (2001)

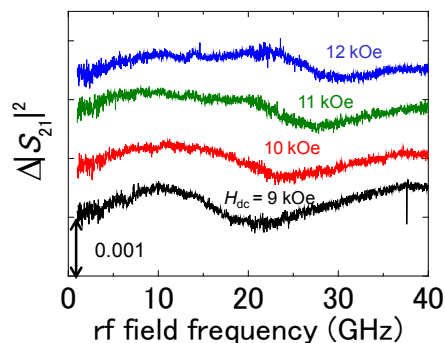


Fig. 1 FMR spectra for CoPt / Ru film.

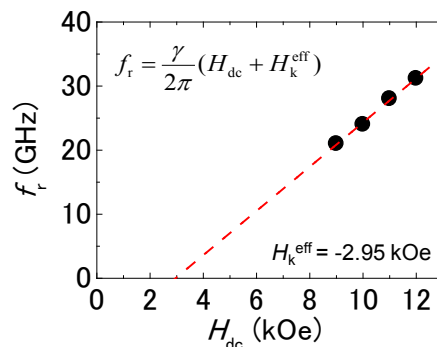


Fig. 2  $f_r$  vs  $H_{\text{dc}}$ . Dashed line is fitting result.

## MBE 成長した Ag 添加 CoPt, CoPd 膜の構造と磁気特性

永田 太洋, 徳岡 良浩, 瀬戸 陽介, 加藤 剛志, 岩田 聡  
(名古屋大学)

Structure and magnetic properties of MBE grown CoPt-Ag and CoPd-Ag films

T. Nagata, Y. Tokuoka, Y. Seto, T. Kato, S. Iwata  
(Nagoya University)

### はじめに

$L1_0$ -FePt 膜の規則化温度の低減及び微粒子化には, Fe と非固溶な Ag 添加が有効であることが報告されている. 一方,  $L1_0$ -FePd への Ag 添加は規則化温度低減には有効であるが, 微粒子化には有効ではないことが報告されている<sup>1)2)</sup>. そこで, 本研究では  $L1_0$  型合金への Ag 添加効果を系統的に調査するため, 同じ  $L1_0$  構造を持つ CoPt 薄膜への Ag 添加を試みた. また, バルクでの規則相の存在しない CoPd についても, 薄膜の研究報告が少ないため,  $Co_{50}Pd_{50}$  薄膜を作成し, Ag 添加による構造と磁気特性の変化を調べた.

### 実験方法

CoPt-Ag (20nm)及び CoPd-Ag (20nm)は, MBE 法による三元同時蒸着によって作製した. 蒸着中の真空度は  $5 \times 10^{-9}$  Torr 以下であり, Co, Pt, Pd, Ag の蒸着速度はそれぞれ水晶膜厚モニターにより制御した. 基板には MgO (001)を用い, 基板温度  $300^\circ\text{C}$ において成膜した. CoPt-Ag 膜は MgO 基板上に直接成膜したが, CoPd-Ag 膜は CoPd と MgO の格子定数差を緩和させるため, バッファ層 Pd(10nm)を挿入した. 結晶構造は成膜中の RHEED 観察及び成長後の XRD, 表面構造は AFM, 磁気特性は AGM 及びトルク磁力計, 磁気光学 Kerr 効果は偏光面変調法でそれぞれ測定した.

### 実験結果と考察

Fig. 1 は  $300^\circ\text{C}$ で成長した  $(CoPt)_{100-x}Ag_x$  膜の X 線回折プロファイルと  $M-H$  ループを示している. X 線プロファイルより CoPt 膜が 001 配向していることが分かる. また, 規則相からの 001 回折線が明瞭に観察されてる. 更に, Ag の添加により, CoPt001 ピーク強度が増大しており, 規則化が促進されていることが分かる. なお, Ag 添加による CoPt のピーク位置はほとんど変化していない.  $M-H$  ループにおいては, Ag5%添加膜で膜法線方向の保磁力が最も大きくなった. これは, 規則化の促進と共に, 結晶粒が微粒子化したことが影響していると考えられる.

Fig. 2 は  $300^\circ\text{C}$ で成長した  $(CoPd)_{100-x}Ag_x$  膜の X 線回折プロファイルを示している. CoPd 膜は 001 配向となっているが  $L1_0$  規則相に対応する 001 ピークは観測されなかった. また, CoPt とは異なり Ag を添加することで CoPd 002 のピークが高角側にシフトしている.

以上から, CoPt-Ag では Ag は CoPt に固溶せず分離しているが, CoPd-Ag では Ag と合金化していると考えられる. 先行研究の FePt と FePd に対する Ag の添加効果と比較すると, FePt-Ag と CoPt-Ag で類似性が見られ, また, FePd-Ag と CoPd-Ag に類似性が見られることが分かった<sup>2)</sup>.

### 参考文献

- 徳岡ら, 第 37 回日本磁気学会学術講演概要集, p198, (2013).
- Y. Tokuoka, et. al, J.Appl. Phys., 115(2014) 17B716.

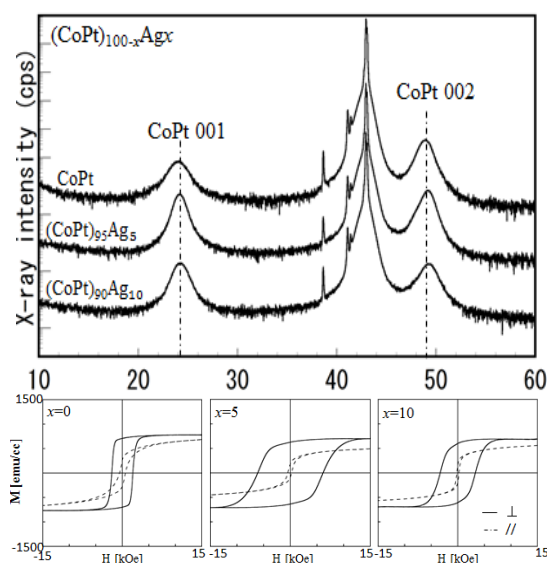


Fig. 1 XRD profiles and  $M-H$  loops of  $(CoPt)_{100-x}Ag_x$  grown at  $300^\circ\text{C}$

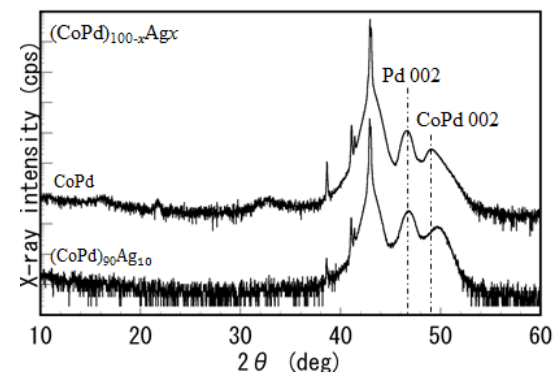


Fig. 2 XRD profiles  $(CoPd)_{100-x}Ag_x$  films grown at  $300^\circ\text{C}$

# 垂直磁気異方性を示す $(\text{Co,Fe})_3\text{O}_4(001)$ エピタキシャル薄膜における磁気特性の基板温度依存性

内海優史, 新関智彦, 井上順一郎, 柳原英人, 喜多英治  
(筑波大学)

Growth Temperature Dependence of Magnetic Properties on  $(\text{Co,Fe})_3\text{O}_4(001)$  Epitaxial Films with Perpendicular Magnetic Anisotropy

Y. Utsumi, T. Niizeki, J. Inoue, H. Yanagihara, and Eiji Kita  
(Univ. of Tsukuba)

## はじめに

スピネル構造を持つコバルトフェライト  $(\text{Co, Fe})_2\text{O}_4$  は, B 位置に配位した  $\text{Co}^{2+}$  イオンの軌道角運動量が結晶場中でも消失しないため, 大きな結晶磁気異方性を示すことが知られている<sup>1)</sup>. また薄膜は, 基板との格子不整合の結果, 磁気弾性効果を通じて強い垂直磁気異方性を示す. 我々は,  $\text{CoFe}$  合金ターゲットを用いた反応性スパッタリング法により,  $\text{MgO}$  基板上に大きな垂直磁気異方性を示す  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  薄膜を作製することに成功している<sup>2,3)</sup>. その作製条件に強く依存して垂直磁気異方性定数 ( $K_u$ ) や, 飽和磁化 ( $M_s$ ) が著しく変化するなどの報告がある. さらに成膜時の温度 ( $T_s$ ) に依存して角型比が大きくなることを確認した. そこで,  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4(001)$  薄膜の成膜条件と磁気特性, 特に角型比について焦点を当てて調べることにした.

## 実験方法

$\text{MgO}(001)$  劈開面を基板としてターゲットには  $\text{CoFe}$  合金を用いて  $\text{O}_2$  反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により試料を作製した.  $\text{Ar}+\text{O}_2$  雰囲気中で成膜を行い, 成膜時の  $\text{O}_2$  流量を最大 10 sccm まで変化させた. 基板温度  $T_s$  は 200 °C から 600 °C まで変えて最適な条件を探った. 試料評価は, RHEED 観察, X 線小角反射率法による膜厚測定, XRD を行った. 室温において  $\pm 70$  kOe の範囲で磁化測定, Quantum design 社 PPMS を用いて磁気トルク測定を行った. また, SIMS による測定を行い膜厚方向への  $\text{Mg}$ ,  $\text{Co}$ ,  $\text{Fe}$  の拡散の様子を確認した. さらに TEM 測定を行うことで, 成膜温度 ( $T_s$ ) と逆位相領域 (APD), 逆位相境界 (APB) の関係について調べた.

## 実験結果

図 1 に成膜温度の異なる  $\text{Co}_{0.75}\text{Fe}_{2.25}\text{O}_4/\text{MgO}(001)$  薄膜の飽和磁化, 角型比を示す. 飽和磁化は  $T_s \sim 300^\circ\text{C}$  程度でバルク並みの値となるが, 角型比は  $600^\circ\text{C}$  程度で成膜しないと 0.9 を超える値とならない.  $T_s = 300^\circ\text{C}$  と  $600^\circ\text{C}$  で成膜した試料の SIMS 測定の結果では,  $\text{Fe}$ ,  $\text{Co}$  の分布には大きな差が見られなかった. また  $T_s = 600^\circ\text{C}$  の試料において基板の成分である  $\text{Mg}$  が 30-40 nm 程度薄膜側に拡散している様子が確認された. また  $T_s = 300^\circ\text{C}$  と  $600^\circ\text{C}$  で成膜した試料の APD に関する TEM 測定の結果では, 両者に関して領域の大きさや境界幅に関する差は見られなかった.

講演では, 基板温度が磁化過程に及ぼす影響についてより詳細に検討して報告したい.

## 謝辞

本研究は, 文部科学省元素戦略プロジェクトの助成を受けて行われた.

## 参考文献

- 1) J. C. Slonczewskii, Phys. Rev. 110 (1958) 1341
- 2) T. Niizeki et al. Appl. Phys. Lett. 103 (2013) 162407
- 3) 内海他, 第 37 回日本磁気学会学術講演会 3aC-1

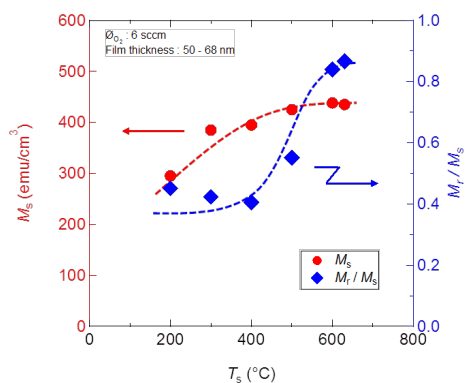


図 1  $M_s$  及び角型比の基板温度依存性



## スパッタリング法で作製した $\text{NiFe}_2\text{O}_4(001)$ 膜の磁気特性

森下純平, Ritesh Patel, 鈴木和也, 新関智彦, 柳原英人, 喜多英治  
(筑波大学)

Magnetic Properties of  $\text{NiFe}_2\text{O}_4(001)$  epitaxial films grown by reactive magnetron sputtering

J. Morishita, Ritesh Patel, K.Z. Suzuki, T. Niizeki, H. Yanagihara, and E. Kita  
(Univ. of Tsukuba)

### はじめに

鉄と様々な遷移金属によって構成される酸化物であるスピネルフェライトは、高いキュリー温度を持ち構成元素によって絶縁体からハーフメタルまで、軟磁性から硬質磁性まで多様な物性を示すことから、スピントロニクス材料として大きな可能性を秘めた物質群である。スピネルフェライトの薄膜化についてはこれまでに多くの先行研究があるものの、得られる膜の品質や物性は、一般的にスピネルフェライトの種類（構成元素）、成膜方法、条件等に大きく依存することから、スピントロニクスデバイスの要素材料として利用するのは容易ではない。なかでも  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  は、高い絶縁性を有することから、これまでにスピニフィルタの障壁材料として利用する試みがなされているが、期待されるほど大きな MR は得られていない<sup>1)</sup>。このことは、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  の持つ潜在的な特性を引き出すためには、その膜成長の機構と構造について詳細に検討する必要があることを示唆している。そこで本研究では  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  に着目し、スピントロニクスデバイスへの応用を念頭にその成膜方法・条件について調べることにした。

### 実験

単結晶  $\text{MgO}(001)$  及び  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  の 2 種類の基板上に、反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により  $\text{NiFe}_2\text{O}_4(30 \text{ nm})$  を作製した。ターゲットには Fe Ni 合金を用いて  $\text{Ar}+\text{O}_2$  雰囲気中で成膜した。また、このときの成膜温度は  $300^\circ\text{C}$  とした。成膜時の  $\text{O}_2$  導入量をパラメータとして試料を作製しその構造、物性を評価した。反射高速電子線回折法(RHEED)により薄膜のエピタキシャル成長を確認し、蛍光 X 線分析法(XRF)により Ni と Fe の組成を評価した。磁化測定には、振動式磁力計(VSM) を用いた。

### 結果及び考察

$\text{MgO}(001)$  及び  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  の 2 種類の基板上に成膜した  $\text{NiFe}_2\text{O}_4(001)$  薄膜は、どの条件においてもエピタキシャルに成長していることを確認した。しかし磁化過程は強く基板種に依存し  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  (格子不整合: 3.2%) 上ではバルク並みの飽和磁化を持つ面内磁化膜であったのに対し、 $\text{MgO}(001)$  (格子不整合: -0.3%) 上に成長させた  $\text{NiFe}_2\text{O}_4(001)$  薄膜では、磁化がほとんど消失していた。図 1 に酸素導入量に対してそれぞれの基板上に成膜した  $\text{NiFe}_2\text{O}_4(001)$  薄膜の飽和磁化を示す。 $\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  基板上に成長した  $\text{NiFe}_2\text{O}_4(001)$  薄膜は、 $\text{O}_2$  導入量が 10 sccm 付近でバルク並みの飽和磁化を示し、電気抵抗は  $10^5 \Omega \text{ cm}$  以上であった。講演では、基板種の違いがどのように膜成長に影響を及ぼし、磁気特性の違いに現れるのか考察する。

### 謝辞

本研究は、文部科学省元素戦略プロジェクトの助成を受けて行われた。

### 参考文献

- 1) U. Lüders et al. APL, 88, 082505 (2006)

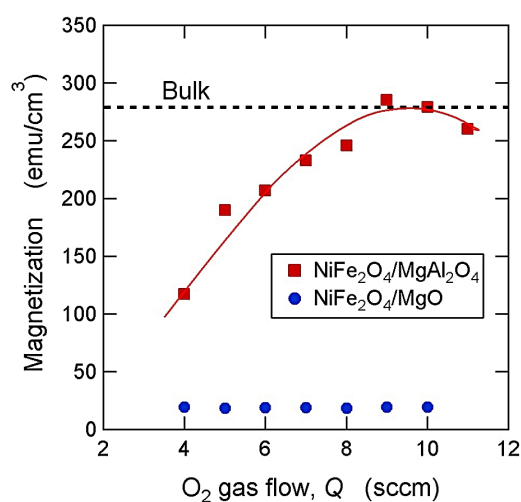


図 1 飽和磁化の酸素流量依存性

## 高垂直磁気異方性コバルトフェライト (001) 薄膜におけるカチオン価数・サイト分布

新聞智彦, 内海優史, 柳原英人, 井上順一郎, 芝田悟朗,\* 門野利治,\* 酒巻真粧子,\*\* 雨宮健太,\*\* 小出常晴,\*\* 喜多英治  
(筑波大,\* 東大,\*\*KEK)

Determination of cation site occupancies in cobalt-ferrite (001) thin films with high perpendicular magnetic anisotropy

T. Niizeki, Y. Utsumi, H. Yanagihara, J. Inoue, G. Shibata,\* T. Kadono,\* M. Sakamaki,\*\*

K. Amemiya,\*\*, T. Koide,\*\*, and Eiji Kita

(Univ. of Tsukuba,\* Univ. of Tokyo,\*\*KEK)

## はじめに

コバルトフェライト  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  (CFO) は、数あるスピネルフェライトの中でも特異的に高い結晶磁気異方性ならびに大きな磁歪効果を示すことが知られている。これらの特性を利用して、エピタキシャル格子歪みにより CFO 薄膜に高い垂直磁気異方性を付与する試みが主にパルスレーザー堆積法や反応性分子線エピタキシー (MBE) 法を用いて行われている<sup>1)</sup>。最近、我々は反応性マグネトンスパッタ法を用いて大きなエピタキシャル格子歪みを有する CFO 薄膜を作製し、初めて  $10 \text{ Merg/cm}^3$  を超える高い垂直磁気異方性定数  $K_u$  を得ることに成功した。格子歪みのないバルク CFO における高い結晶磁気異方性は八面体配位 B サイト (Oh) に位置する  $\text{Co}^{2+}$  の電子状態がその鍵を握ることが知られているが<sup>3)</sup>、大きな格子歪みを導入することで高い  $K_u$  を獲得したスパッタ CFO 薄膜についても同様の議論が成り立つかは自明ではない。そこで本研究では、高い  $K_u$  を示すスパッタ CFO 薄膜について軟 X 線内殻磁気円二色性 (XMCD) 分光を行い、主構成要素である Co, Fe の元素選択的磁気モーメントを求め、さらに実験結果と Ligand Field Multiplet (LFM) モデルとの比較を行うことで、カチオン価数およびサイト分布を調べた。

## 実験方法

劈開した MgO(001) 基板の上に、反応性 rf マグネトンスパッタリングにより  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  薄膜 ( $x = 0.75, 1.0$ ) を 50-100 nm エピタキシャル成長させた。ターゲットには CoFe 合金を用い、 $\text{O}_2$  流量は 6.0 sccm、基板温度は  $300^\circ\text{C}$  とした。また、参照試料として  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  薄膜も作製した。XMCD の測定は KEK-PF/BL-16A にて行い、磁場 5 T を印加しながら 660-820 eV のエネルギー範囲で行った。測定には全電子収量法を用い、その検出深さが数 nm と小さい点を考慮して、表面保護層は用いなかった。

## 実験結果および考察

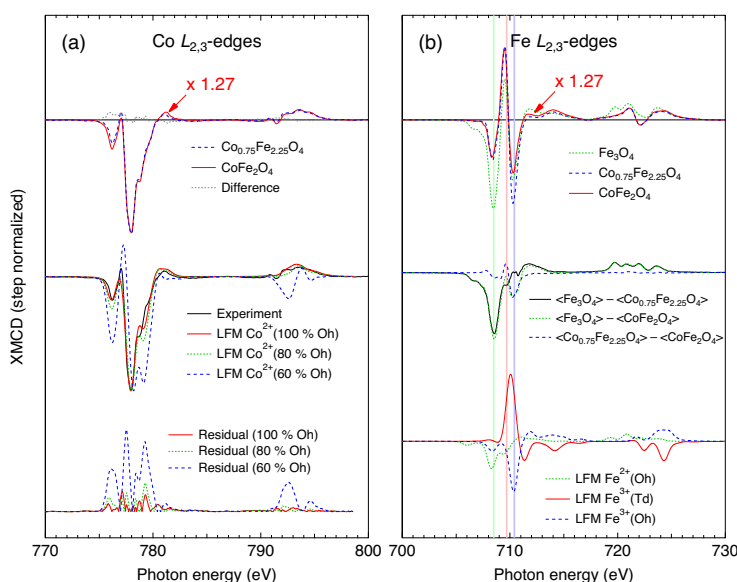
Fig. 1(a) に  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  薄膜 ( $x = 0.75, 1.0$ ) の Co 2p XMCD スペクトルを示す。 $x = 1.0$  は 5 T でも磁化が未飽和だったため、スペクトルにそれを補償するための係数 1.27 を乗じた。その結果、両スペクトルの形状はほぼ一致した。そこで、 $x = 0.75$  に絞って、様々なサイト分布を仮定した LFM スペクトルとの比較を行った結果、 $\text{Co}^{2+}$  (100 % Oh) において実験結果との残差が最小となった。このことから、 $x = 0.75, 1.0$  ともに Co カチオンは  $\text{Co}^{2+}$  として八面体配位 B サイトに位置することが分かった。

比較的単純なサイト分布を持つ Co カチオンに対し、Fe カチオンは少なくとも 3 通りの価数・サイト分布を持つことが予想されるので、参照試料である  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  と比較しつつ解析を行った。Fig. 1(b) に  $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$  薄膜 ( $x = 0.75, 1.0$ ) と  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  の Fe 2p XMCD スペクトルについて、それぞれ単位格子あたりの振幅におおして差し引きを行い、 $\text{Fe}^{3+}$  (Td) と  $\text{Fe}^{3+}$  (Oh) の成分を可能な限り相殺した結果を示す。LFM スペクトルとの比較から、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  と CFO の差は予想通り  $\text{Fe}^{2+}$  (Oh) であることが分かった。一方、 $x = 0.75$  と  $x = 1.0$  の差、すなわち  $x = 0.75$  における余剰な Fe は、Moyer ら<sup>4)</sup> が得た結果  $\text{Fe}^{2+}$  (Oh) とは対照的に  $\text{Fe}^{3+}$  (Oh) であり、電荷補償を考えると必然的に空格子点を伴うことが分かった。これは CFO 作製時の酸素流量 (最適値) が、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  の場合に比べて圧倒的に大きいことが原因と考えられる。

本研究は、文部科学省元素戦略プロジェクトの助成を受けて行われた。

## References

- 1) W. Huang *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 262506 (2006).
- 2) T. Niizeki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 162407 (2013).
- 3) R. Bozorth *et al.*, *Phys. Rev.*, **99**, 1788-1798 (1955).
- 4) J. Moyer *et al.*, *Phys. Rev. B* **84**, 1 (2011).



**Fig. 1** (a)  $x = 0.75, 1.0$  の Co 2p XMCD スペクトルと様々なサイト分布を仮定した  $\text{Co}^{2+}$  の LFM スペクトル. (b)  $x = 0.75, 1.0$  および  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  の Fe 2p XMCD スペクトルと  $\text{Fe}^{2+}$  (Oh),  $\text{Fe}^{3+}$  (Td),  $\text{Fe}^{3+}$  (Oh) LFM スペクトル.

## 回転磁界を利用したカプセル内視鏡の多機能化

村田里史、足達亮太、本田崇  
(九工大)

Multi-functionalization of capsule endoscope using rotating magnetic field

S. Murata, R. Adachi, T. Honda

(Kyushu Inst. of Tech.)

### はじめに

飲むだけで消化管内を観察できるカプセル内視鏡が日本国内でも広く使用されるようになった。しかし、現状では観察機能しかないため、診断や治療の機能の実現が待たれている。本研究では回転磁界の回転面の違いを利用し、カプセルに複数の機能を持たせることを試みたので報告する。

### 素子構成と動作原理

ここでは多機能化の一例として、カプセル内視鏡（母船）を十二指腸内に停滞させ、胆管へ組織採取用の子機を放出・回収する動作について述べる。Fig.1 に外壁を外し機構が剥き出しの素子構成を示す。母船となるカプセルの先端部に子機を内蔵する筒を設置した構成である。母船は、3本のリンクが外側（左右と上部）に広がる停滞機構を有する。停滞機構用アクチュエータは、カプセル長軸方向と平行に設置したネジ(M2.6)に、NdFeB 磁石( $\phi 5\text{mm} \times 1.5\text{mm}$ 、2個)を固定した六角ナット(M2.6)とブッシュを挿入し構成される。その反対側にはジョイントとリングを有する3本のCu線(左右2本:16mm長、上部1本:25mm長)を取り付け、リングとアクチュエータのブッシュを3本のリボン状PET(幅2mm、長さ15mm、0.1mm厚)で接続した。また、ブッシュには復元力のための超弾性線を設置した。

子機には粘度の高い胆汁内を推進することを想定し、らせん機構を採用した。Alパイプ( $\phi 2\text{mm} \times 6\text{mm}$ )に、Cu線( $\phi 0.2\text{mm}$ )をらせん状に $45^\circ$ で2条巻き付け、その両端にNdFeB磁石( $\phi 2\text{mm} \times 2\text{mm}$ )を配置している。なお、NdFeB磁石の磁化は、らせん軸に対して垂直な方向である。

Fig.2 に母船と子機の動作原理を示す。母船は、回転磁界をZ-X面に印加することで駆動する。磁気トルクによってナットが回転しながらブッシュを押し込むと、PETフィルムのだわみによってリンクが押し上げられカプセル側面から大きく突出し、カプセルを停滞させる。この際、上部リンクによりカプセルは下方向に押しつけられる。この状態で引き続きX-Y面に回転磁界を印加すると、子機が回転しらせん構造による抵抗力推進で胆管内を移動する。子機の回収と停滞機構の解除は、回転磁界を逆回転することで行う。

### 実験結果

実験は十二指腸・胆管モデルを利用し、胆管内部を100cStのシリコーンオイルで満たして行った。母船の停滞機構のリンクの最大突出長は約30mmであり、十二指腸モデル内で停滞し、胆管のある側にカプセルを押しつけることができた。停滞機構の駆動は周波数1Hz、150Oeで行ったが、誤って子機が放出されることはなかった。子機は70Oeの回転磁界で駆動させ、鉛直方向に対する放出と回収も可能であった。

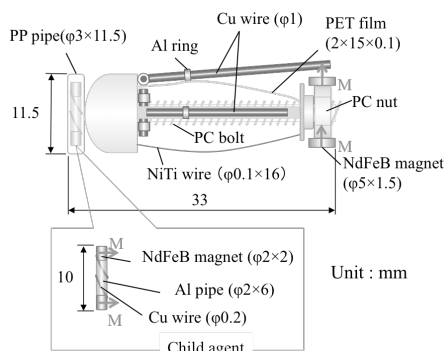


Fig.1 Capsule with child agent.

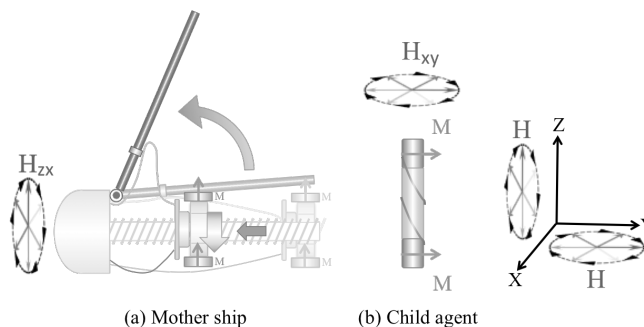


Fig.2 Actuation principle.

# 回転磁界を利用したカプセル内視鏡用停滞機構の開発

吉村亮哉、本田崇  
(九工大)

Development of anchoring mechanism for capsule endoscope using rotating magnetic field

R. Yoshimura, T. Honda  
(Kyushu Inst. of Tech.)

## はじめに

カプセル内視鏡は飲み込むだけで消化管内を観察できる画期的な医療機器である。その一方で体内のカプセルの移動は消化管の蠕動運動に支配されるため、病変部の詳細な観察ができないなどの課題がある。そこで新たに外部磁界で駆動する停滞機構を考案したので、そのプロトタイプについて報告する。

## 素子構成と動作原理

Fig.1 に初期状態の停滞機構の構成を示す。外径 10mm、長さ 35mm のカプセル管体内部に、ポリカーボネート製のネジ(M2.6)をカプセルの中心に長軸方向と平行に固定した。そのネジに、4 個の L 字金具を等間隔に取り付けたブッシュ (動力伝達部) と、ポリカーボネート製六角ナット(M2.6)に 2 個の NdFeB 磁石 ( $\phi 4 \times 1.5\text{mm}$ ) を磁化方向が揃うように取り付けた回転型アクチュエータが装着される。また、動力伝達部の金具には、カプセル側面から外側に突出してカプセルを停滞させるためのリボン状の PET フィルム (幅 2mm、長さ 18mm、75 $\mu\text{m}$  厚) を 4 本取り付け、そのもう一端をカプセル外壁に接着した。

Fig.2 に動作原理を示す。2 軸コイルで発生する回転磁界をカプセルの長さ方向に対し垂直な面で印加すると、アクチュエータの磁石が磁気トルクを受け、六角ナットが時計周りに回転し、ネジが締まるように奥に進む。このときアクチュエータが動力伝達部を押し込み、その結果 PET フィルムが座屈し、そのたわみ部分がカプセル側面から大きく突出する。このときの消化管内壁との摩擦力によってカプセルはその場に停滞する。また、停滞を解除するには、反時計周りの回転磁界を引加し、ナットを逆回転させることでアクチュエータを初期位置まで移動させる。このとき動力伝達部は、PET フィルムの弾性力によって戻る。

## 実験結果

PET フィルムの座屈による突出長は、アクチュエータの軸方向の移動量に対し直線的に増加するが、移動量 4.5mm (六角ナットが 10 回転) 時に 6mm で飽和した。このときの外径は 22mm となり、初期状態から 2.2 倍まで拡大した。駆動磁界は、PET フィルムの必要座屈荷重とアクチュエータの軸方向の推力を測定し、70Oe と設定した。駆動に要する時間 (無負荷) は、10Hz で 1 秒、20Hz で 0.5 秒と高速である。これらの基礎特性を基に、ウシ小腸を用いた停滞能力の検証実験を行った。糸をつないだカプセルをウシ小腸内に入れ、引っ張ることで最大静止摩擦力を測定した。その結果、停滞機構駆動前の約 60mN であったのが、停滞機構駆動後にはおよそ 700~800mN まで増加し、提案した停滞機構の効果を示すことができた。

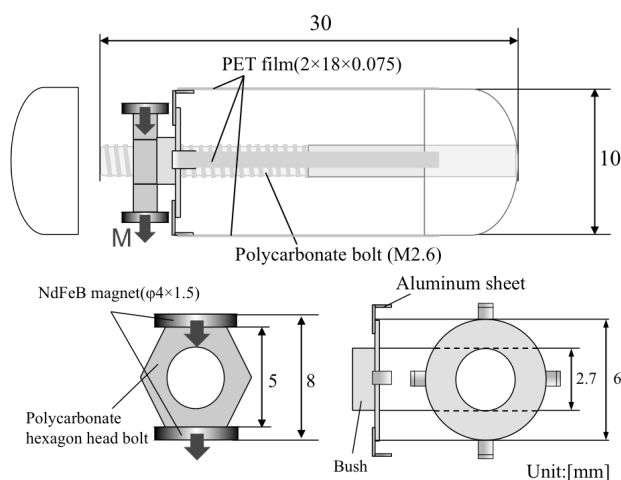


Fig.1 Structure of anchoring mechanism

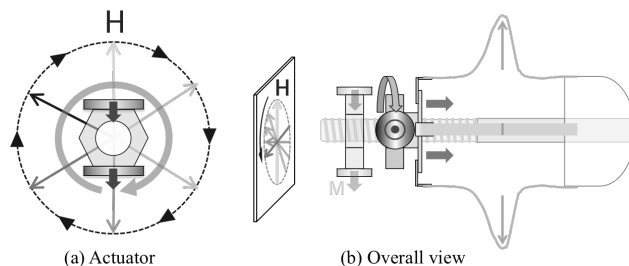


Fig.2 Actuation principle of anchoring mechanism

# 血管内治療用磁気アクチュエータと励磁システム

高橋雅人、平 裕馬、山田 努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

Magnetic actuator and excitation system for intravascular treatment

M. Takahashi, Y. Taira, T. Yamada, Y. Takemura  
(Yokohama National University)

## はじめに

磁性体を用いたアクチュエータによる低侵襲な医療が注目されている<sup>[1]</sup>。近年では磁気アクチュエータに磁界を印加することでトルクや推進力を与え、動脈硬化の病変を削る治療が想定されている<sup>[2]</sup>。本研究では、磁界のシミュレーションから、コイル端部に磁石を配置したとき、一对のヘルムホルツコイルで磁石に回転力と推進力の両方を与えることを示した。また、複数のコイルが作る合成磁場を利用した磁石の姿勢制御や、アクチュエータの回転による石灰の研削実験を行い、患部へのアクチュエータの誘導と治療が可能であることを示した。

## 実験方法

電磁界解析ソフトウェアを用いて、ヘルムホルツコイルの作る磁界の解析を行った。また、径方向に着磁された直径 2.5mm、長さ 10mm の円柱状磁石に対し、磁界が直交するように設置した複数のコイルから磁場を印加し、姿勢を制御した状態での誘導を行った。また、磁石と研磨剤で構成されるアクチュエータに交流磁界を印加し回転させ、動脈硬化の病変を模した石灰の研削実験を行った。

## 実験結果

Fig. 1 より、ヘルムホルツコイルの中心における  $z$  軸方向の磁場  $H_z$  の  $x$  軸方向微分である  $dH_z/dx$  はコイル端部で最大となり、コイル中心に近づくにつれ減少することが確認された。Fig. 2 のように磁石を配置すると、磁石には磁気モーメントと磁場勾配に比例した力が発生する<sup>[3]</sup>ため、磁石はコイル端部から中心に向かって移動すると考えられる。また、ヘルムホルツコイルから交流磁界を印加すると、磁石に働くトルクを一定方向にすることができるため、磁石を一方向に回転させることができる。磁石と励磁コイルを Fig. 2 のように配置し、交流磁界を印加したところ、磁石が回転しながらコイル中心へと推進した。この運動を利用し、病変を模した石灰をドリルのように削ることが期待できる。チューブ内に病変部を模した石灰を配置し、磁石と研磨剤で構成されるアクチュエータに交流磁場を印加したところ、回転運動による研削が可能であることが確認された。

## 参考文献

- [1] S. H. Kim et al., *Artificial Organs*, Vol. 37, issue 10, pp.920-926, 2013.  
 [2] C. Yu et al., *Sensors and Actuators A: Physical*, Vol.161, issue 1-2, pp.297-304, 2010.  
 [3] P. J. Flanders, *Journal of Applied Physics*, Vol.63, pp.3940-3945, 1988.

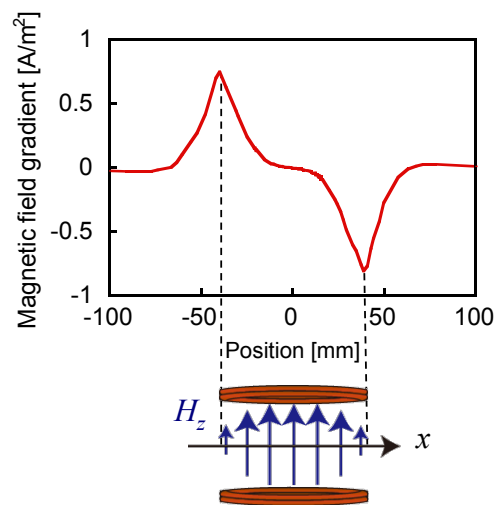


Fig. 1 Magnetic field gradient  $dH_z/dx$  generated by Helmholtz coil.

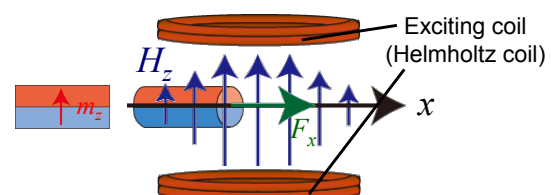


Fig. 2 Placement of exciting coil and magnetic actuator.

## ヒト細胞への抗がん剤作用に対する交流磁界曝露影響

牛丸 透, 柿川 真紀子, 山田 外史  
(金沢大学)

Effect of ELF magnetic fields on anticancer drug potency against human lung cancer cell line

Toru Ushimaru, Makiko Kakikawa, Sotoshi Yamada

(Kanazawa University)

### はじめに

近年、磁界の医療応用において、磁界曝露による複合治療を目指した研究が行われている。例えば変異原性の化学物質や放射線などの併用曝露の報告がある。また当研究室において、大腸菌での抗がん剤作用が交流磁界曝露により増強したこと<sup>1)</sup>が確認され、がん標的的化学療法に向けてヒト細胞を用いた検討を行っている。これはがん細胞に磁界曝露することで薬剤作用を局所的に増強させることが期待されている。これまでヒト細胞では、抗がん剤作用による細胞の生死判別を行う方法として Trypan Blue, Cell Counting Kit-8(CCK-8), コロニーアッセイを使用して、抗がん剤作用への磁界影響を検討した<sup>2)</sup>。コロニーアッセイでは、抗がん剤作用が他の方法より正確に測定でき、有意に磁界影響があることが確認された。今回は、抗がん剤 Cisplatin, Paclitaxel, Bleomycin を使用し、薬剤作用への磁界影響をコロニーアッセイにより検討した結果を報告する。

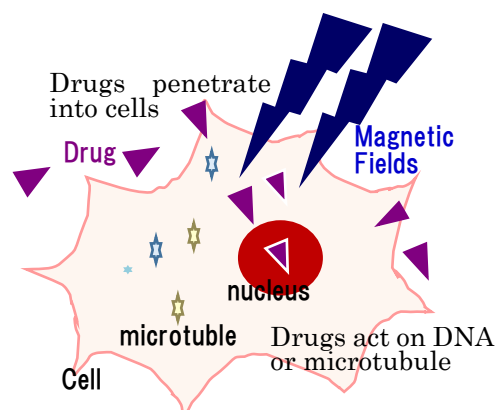


Fig.1. Drug action on human lung cancer cells under magnetic fields

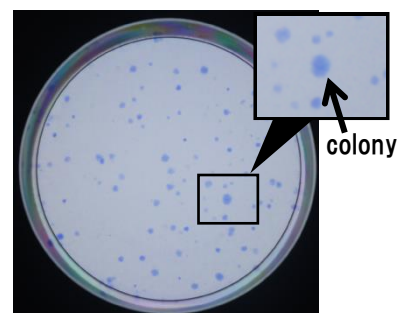


Fig.2. The A549 colony stained by Giemsa

### 抗がん剤作用への磁界影響評価方法

ヒト肺がん細胞株 A549 を使用し、抗がん剤 Cisplatin, Paclitaxel, Bleomycin での磁界影響を検討した。2枚の同細胞数を含むディッシュに同濃度の抗がん剤をそれぞれ添加し、Exposure 槽と Control 槽で培養を行った。Exposure 槽では、Fig.1 の交流磁界発生装置を細胞培養用の CO<sub>2</sub> インキュベータ内に設置し、交流磁界(周波数 60 Hz, 磁束密度 50 mT ± 10%)を曝露した<sup>3)</sup>。反応後、抗がん剤を取り除き、培養させコロニーを形成させた(Fig.2)。Exposure 層と Control 槽におけるコロニー数の比較を行い、薬剤作用における磁界影響を検討した。

### 抗がん剤作用への磁界影響測定結果

撒いた細胞数と Exposure, Control で形成したコロニー数から細胞生存率を求め、抗がん剤作用として評価を行った。Fig.3 に抗がん剤 Cisplatin における Exposure と Control での細胞生存率を示す。Exposure において細胞生存率の減少が確認でき、薬剤作用が磁界曝露により濃度換算で約 1.1 倍に増強した。他の抗がん剤においても同様に検討する。

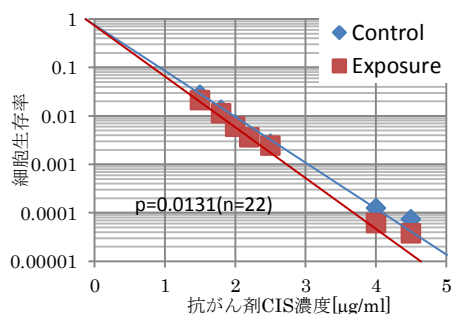


Fig.3. Concentration of CIS and cell viability

### 参考文献

- 1) M. Kakikawa, S. Yamada, IEEE Transactions on Magnetics 48 (11), art. no. 6332585, pp. 2869-2872(2012)
- 2) K. Mori, M. Kakikawa, S. Yamada, IEE Japan. MAG-12-127, MBE-12-096(2012)
- 3) M. Kakikawa, S. Yamada, Y. Ikehata, IEEE Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.133 No.6 pp.385-386 (2013)

## 培養細胞を用いたがん温熱治療における 細胞周期同調・抗体結合磁性ナノ粒子の効果

○巻田 遼<sup>1</sup>, 赤池 正平<sup>1</sup>, 松本 亨<sup>1</sup>, 清野 貴史<sup>1</sup>, 大多 哲史<sup>1</sup>, 山田 努<sup>1</sup>, 竹村 泰司<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>横浜国立大学)

Effects of hyperthermia using cultured cell by entrainment of cell cycle and  
antibody-conjugated magnetic nanoparticles

○Ryo Makita<sup>1</sup>, Shouhei Akaike<sup>1</sup>, Toru Matsumoto<sup>1</sup>, Takafumi Seino<sup>1</sup>, Satoshi Ota<sup>1</sup>, Tsutomu Yamada<sup>1</sup>,  
Yasushi Takemura<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>Yokohama National University)

### 背景と目的

磁性ナノ粒子を用いたがん温熱療法において粒子の患部への集積が課題となっている。本研究では、抗体結合磁性ナノ粒子を用いた抗体・温熱併用療法の実現に向け抗体結合磁性ナノ粒子の細胞選択性の検証を目的とした。また、チミジンを用いて細胞周期を同調した際の時間毎の加温後の細胞生存率を測定することで、周期別の細胞の熱感受性の検証を行った。

### 実験方法

HeLa 細胞、TIG-1 細胞の混合培養下に磁性ナノ粒子(MNPs)と抗体結合磁性ナノ粒子(Complexes)を曝露し、磁界を印加した際の細胞増殖率を測定した。また、ダブルチミジンブロック法を用いて周期を同調させた HeLa 細胞に磁性ナノ粒子を曝露し、時間毎に磁界を印加した際の細胞生存率を測定した。粒子濃度 800  $\mu\text{g}/\text{well}$ 、励磁周波数 210 kHz、励磁磁界強度 250 Oe、励磁磁界印加時間 60 分とした。

### 結果と考察

結果は Fig. 1, 2 となり MNPs、Complexes での HeLa 細胞の増殖率は 83.4 %、74.2 %であるのに対して TIG-1 細胞では 7.7 %、80.3 %であった。HeLa 細胞では MNPs と比較して Complexes において細胞増殖率は僅かに低下した。対して TIG-1 細胞では Complexes における細胞増殖率の顕著な増加が確認された。このことから抗体結合磁性ナノ粒子の細胞選択性が示された。

また細胞周期を同調させた実験では、S 期後半から G2 期前半に励磁した差異に細胞生存率の低下を確認した。これは、過去に恒温水槽を用いた実験の結果と一致している<sup>[1]</sup>。

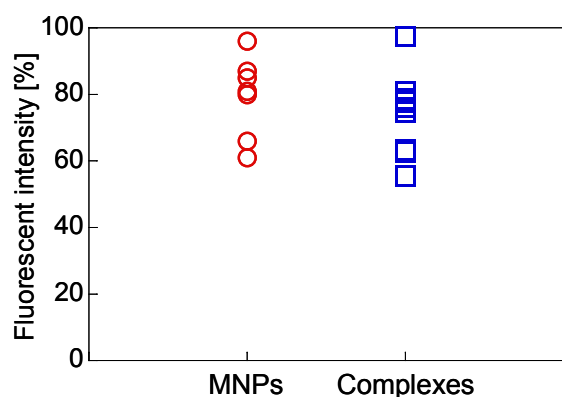


Fig. 1 HeLa 加温時の細胞増殖率

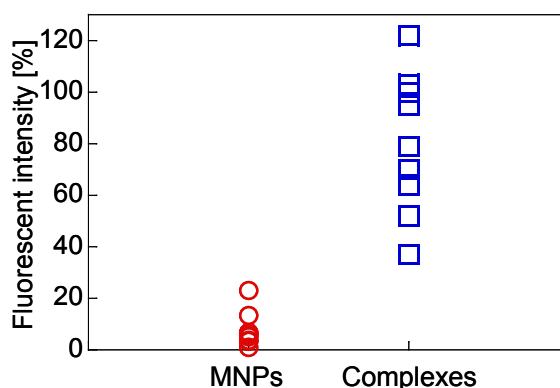


Fig. 2 TIG-1 加温時の細胞増殖率

### 参考文献

[1] R. J. Palzer *et al.*, Cancer Research, Vol. 33, p. 423 (1973)

# 磁気回路式交流磁場発生装置のコアおよびコイル形状がギャップ間磁場に与える影響

佐伯優樹, 中川貴, 清野智史, 山本孝夫  
(大阪大学)

Effects of coil and core shape of the magnetic circuit type alternating magnetic field generator on magnetic field in core gap

Y. Saeki, T. Nakagawa, S. Seino, T. A. Yamamoto,  
(Osaka University)

## 1. 研究背景

磁気ハイパーサーミアとは、交流磁場により発熱する発熱体をがん患部に挿入し体外から磁場を印加することでがん組織のみを局所的に加熱する方法である。近年、磁性ナノ粒子は磁気ハイパーサーミア用発熱体として有望で研究報告数は増え続けている。磁性ナノ粒子を発熱体とした磁気ハイパーサーミアの場合、その発熱量は磁場強度に強く依存する。したがって、磁性ナノ粒子を集積させた生体内のどの部位も均一に加熱するためには、大型で人体内の広い領域に均一かつ強力な高周波の磁場を発生でき、かつ消費電力が少ない磁場発生装置の開発が求められている。本研究では磁気回路のギャップ間に強力な磁場を発生できるという特徴に注目し、磁場発生装置をシミュレーター上で構築し、均一な磁場を得る回路構造について検討した。実際に製作することを想定して、磁場発生装置のコア形状とコイルの巻き方を変えて、均一と見なせる磁場強度領域の比較を行った。

## 2. 実験

計算には電磁場シミュレーター(Ansoft Maxwell 3D 12)を用いた。先行研究<sup>1)</sup>よりシミュレーションの整合性は確認されている。ギャップ幅が 50~300 mm の磁気回路を組み、磁場強度分布を解析した。E 字が向い合せになるようなフェライトコアの中央部突起にコイルとして銅線を 5 ターンずつ巻く構造にした。先行研究の成果から均一な磁場を得るためにギャップ幅とコア半径を同程度とした。コア断面形状とコイルの巻き方を円および角形とした(図 1)。どちらの形状でもコア断面積を一定にし、コイルに交流(1 MHz)20 A の電流を流し、ギャップ間の磁場強度を計算した。

## 3. 計算結果と考察

解析の一例としてコアのギャップ幅が 50 mm の場合の結果を示す。コア断面形状、巻き方にかかわらずギャップ間の広い空間に磁場強度が均一(45~50 Oe)と見なせる領域が得られることがわかった(図 2)。ギャップ幅を 300mm とした場合でも同様の結果となった。臨床に供する大型の磁場発生装置ではコアの加工・接着が必要となり、従来検討していたコア断面が円形のものでは製作の困難が予想される。今回の結果から加工に有利な角型であってもその性能を維持できることが示された。

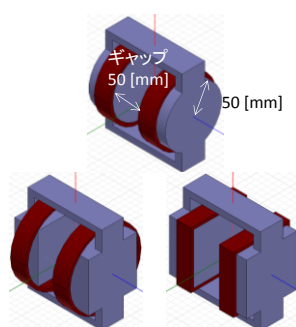


図 1. 設計回路全体図  
上: 円形コア円形巻  
左: 角形コア円形巻  
右: 角形コア角形巻

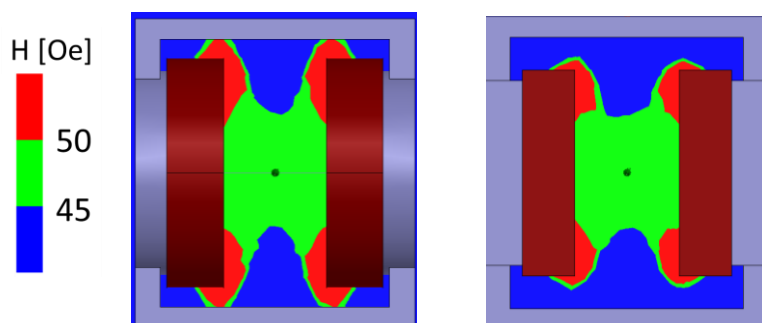


図 2. 円形コア円形巻(左)と角形コア角形巻(右)の中心面上の磁場分布比較。均一な磁場領域(45~50 Oe)はどちらの形状でも同程度の体積となる結果が得られた。

1) M. Takahashi, T. Nakagawa, S. Seino, T. A. Yamamoto, "Design of magnetic circuit for radiofrequency hyperthermia", J. Magn. Soc. Jpn. 38 (2014) 102-106.



# Energy dissipation of superparamagnetic suspensions in correlation with their nonlinear response of dynamic magnetization

S. B. Trisnanto<sup>1</sup>, Y. Kitamoto<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, Yokohama 226-8052, Japan

Nonlinear dependence of magnetization incorporated within superparamagnetic system upon magnetic field strength is basically found as the consequence of its saturation with respect to either the alignment of magnetic moments or the coexisting interparticles interactions. A mathematical approach of this nonlinearity is well described by Langevin function which takes the in-between dominance of Zeeman energy and thermal energy into account. Owing to this phenomenon, it has been huge interest to explore the capability of such superparamagnetic suspensions in biomedical fields along with the utilization of sinusoidal magnetic field to induce magnetization responses of the suspended particles. In this manner, a few amount of external field energy is dissipated during relaxation processes of the particles in which its value corresponds to the imaginary part of magnetic susceptibility. This mechanism of energy dissipation is mainly used as fundamental concept in developing magnetic hyperthermia, a temporary local heating of cancer at 43°C<sup>1)</sup>. Meanwhile, translation of Langevin function into polynomial form leads to a term of harmonic magnetization of which the contribution cannot be omitted in order to obtain high resolution of magnetic particle imaging while applying high field strength of alternating magnetic field.

The change of hyperthermic efficiency (of energy dissipation in form of temperature increase) related to nonlinear magnetization is supposed to have a correlation with excitation of harmonic magnetization within nonlinear region of Langevin function. To verify this hypothesis, we experimentally measured and evaluated complex magnetic susceptibility of superparamagnetic suspensions containing iron oxides nanoparticles, with respect to the dependence of particles behavior upon magnetic field strength  $H_0$  at fundamental frequency  $f$ . The measurements were done at 0.3 kHz, 3 kHz, 30 kHz, and 300 kHz in frequency with amplitude ranging from 6.5 to 65 Oe-rms. The equilibrium susceptibility at fundamental frequency  $\chi_l$  was then calculated toward estimation of efficiency of harmonic excitation regarding nonlinearity of magnetization response observed in the respective specimens. From Fig. 1 showing the evolutionary deviation of magnetization from its linear response represented by  $d\chi_l/dH_0$  in the function of frequency, the excitation of harmonic magnetization can be said to be generally significant at low frequency. Here, higher value of the negative gradient simply means that the decrease of magnetization becomes greater when field strength increases. Otherwise, the magnetization response becomes linear as the gradient reaches to zero value at higher frequency. The nonlinearity at low frequency itself can be addressed to relaxation dynamics of the particles causing such saturation of rotational motions, based on further evaluation of imaginary part of magnetization. We can also see in Fig. 1 that a weakly interacting particles system of Specimen 1 shows more linear behavior compared to a clustered particles system of Specimen 2. Furthermore, in accordance with these results, we will numerically discuss the contribution of nonlinear response of dynamic magnetization in attenuating the hyperthermic efficiency as a compensation of harmonic excitation.

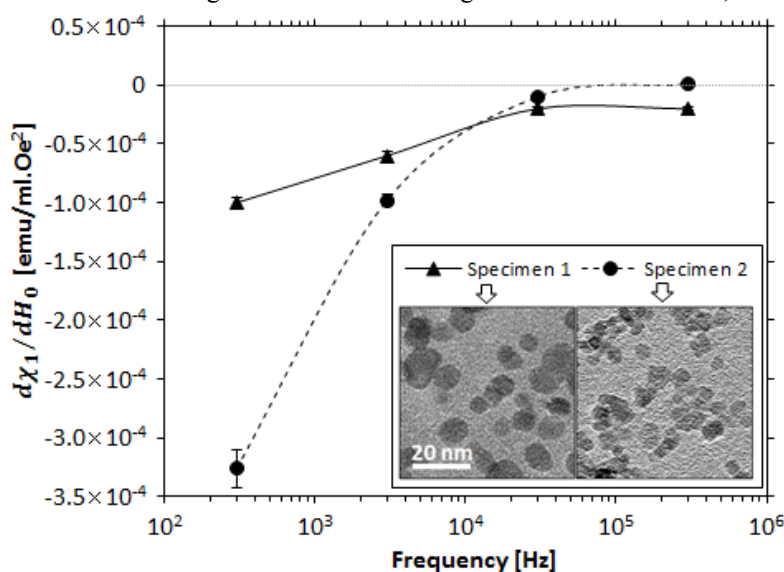


Fig. 1 Gradient of equilibrium susceptibility at fundamental frequency

## Reference

- 1) R. E. Rosensweig, J. Magn. Mater., **252** (2002) 370–374.

# 磁化測定による磁性ナノ粒子の磁気粒径分布と 交流磁場中での発熱特性の評価

中川貴、渡邊和真、清野智史、山本孝夫  
(大阪大学)

Evaluation of magnetization distribution of magnetic nanoparticles by magnetization measurement and estimation of heating ability of them under alternating magnetic fields

Takashi Nakagawa, Kazuma Watanabe, Satoshi Seino, Takao A. Yamamoto  
(Osaka University)

## 緒言

超常磁性の磁性ナノ粒子は、交流磁場印加下でネール緩和またはブラウン緩和により発熱する。この特性は、磁気ハイパーサーミアや磁場による生活性物質の機能性制御への応用が検討されている。超常磁性の磁性ナノ粒子の発熱特性の評価には Rosensweig の提唱する式<sup>1)</sup>がよく用いられる。この式は磁性ナノ粒子の粒子径を変数として導入しており、粒子径に依存した発熱量を評価することができる。しかし、Rosenweig の式から得られる発熱量は単位粒子質量当たりの値で、粒子径が定まれば磁性ナノ粒子の濃度に依存しないとされている。ところが、実験的に検証すると、磁性ナノ粒子の発熱特性は濃度によって変化することが多い。本研究では、MRI の造影剤として利用されている Resovist® の交流磁場中での発熱特性を、濃度の異なる溶液で測定し、磁化分布を評価した上で、実験値と計算値の乖離の原因を考察した。

## 実験

Resovist® の原液 (27.9 mg-Fe/mL)、10 倍希釈 (2.79 mg-Fe/mL)、100 倍希釈 (0.279 mg-Fe/mL) 溶液を準備し、断熱状態で、1MHz、50 Oe-rms の交流磁場を印加して、温度上昇を測定し、温度上昇のデータをもとに Specific Absorption rate (SAR [W/g]) を算出した。また、これらの溶液の磁化を VSM で測定した。VSM で得られた磁場-磁化曲線を Langevin 関数で fitting することで、磁気粒子径分布を算出した。磁化測定から得られた磁気粒子径分布を考慮した Rosensweig の式から得られる SAR と実測した SAR を比較した。

## 結果と考察

図 1 に交流磁場印加時の温度上昇から算出した Resovist® の SAR の濃度依存性を示す。原液と 10 倍希釈液ではほぼ同等の SAR 値となっているが、100 倍に希釈すると SAR が大幅に上昇することが分かる。濃度変化によって、Resovist® の質量磁化や磁気異方性定数、粘度が SAR 値をこれぐらい変化させるほど変わるとは考え難い。磁化測定結果から得られた磁気粒子径分布は図 2 に示すように原液と 10 倍希釈ではほとんど変わらず 5 と 27 nm 付近に二つのピークを有する。しかし、100 倍希釈液では、13nm 付近にも大きなピークが現れ、磁気粒子径分布が変化することがわかる。これらの磁気粒子径分布を Rosensweig の式に導入し SAR を計算した結果も図 1 に示す。実測した SAR とは絶対値がおおよそ 3 倍程度異なるが、発熱量の相対的な傾向は説明できることがわかった。

## 参考文献

- 1) R. E. Rosensweig, *J. Magn. Magn. Mater.* 252 (2002) 370.

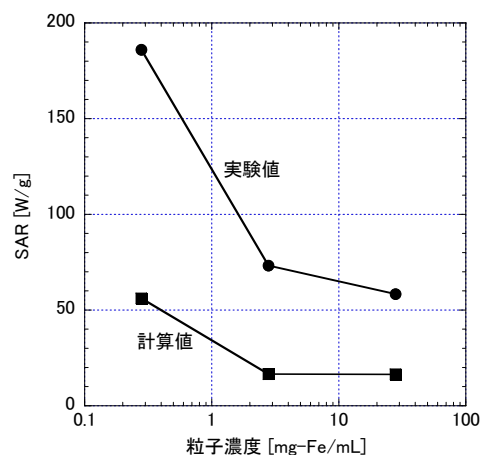


図 1 Resovist の SAR の濃度依存性

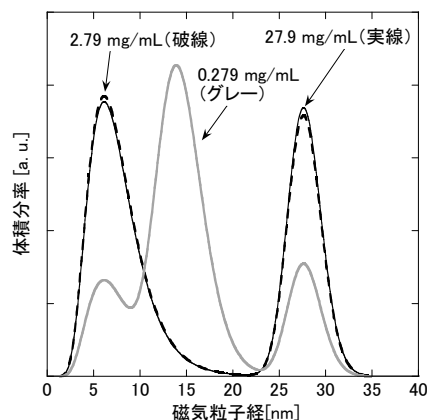


図 2 磁化測定から算出した磁気粒径分布

# (La, Sr, Mn, Cu)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の交流磁場中でのヒステリシス測定による 発熱量評価

加渡寛尚、中川貴、清野智史、山本孝夫  
(大阪大学)

Calorific value estimation of (La, Sr, Mn, Cu)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> by measurements of hysteresis loop  
in alternating magnetic field

H. Kado, T. Nakagawa, S. Seino, T. A. Yamamoto  
(Osaka University)

## 1. 研究背景

磁気ハイパーサーミアとは、体外から印加した交流磁場によって発熱する発熱体を、体内に集積あるいは挿入して、発熱体周辺のみを選択的に加温し、がん組織のみを殺傷する治療法である。発熱体には、がん周囲の正常組織へのダメージを最小限に抑えるために、正確な温度コントロールが要求される。また、治療効果を高めるために、発熱量が大きいことも必要とされる。本研究では、発熱体として(La, Sr, Mn)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (以下 LSM) と(La, Sr, Mn, Cu)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (以下 LSMC)の焼結体に着目した。LSMC は、交流磁場を印加し続けた際に、その温度がキュリー温度  $T_c$  付近で一定になることが報告されている<sup>1)</sup>。発熱量が大きい発熱体作製のためには、正確に発熱量を評価する必要がある。本研究では、LSM と LSMC のヒステリシス測定による発熱量評価を目的とし、その温度依存性も調べた。

## 2. 実験

LSM と LSMC 試料は、均一な組成の試料を得るために、錯体重合法を用いて作製した。得られた試料の組成と構造をプラズマ発光分光分析、X線回折により評価した。ヒステリシスは、励磁コイル中に挿入したピックアップコイル中に試料をいれ、試料挿入前後の誘導起電力の差分から試料の交流磁場中の磁束密度を算出した。試料に水を流すことで、その温度を一定に保った。磁場は、40 Oe-rms、1 MHz の交流磁場を印加した。ヒステリシスの温度依存性に関しては、20 °C から 50 °C の範囲で測定した。発熱量は、ヒステリシスの面積に周波数をかけることで算出した。

## 3. 結果と考察

Fig. 1 に印加電流値と 20 °C で測定したピックアップコイルの誘導起電力の測定値を示す。印加電流に対して誘導起電力がおおよそ 1/4 周期遅れていることがわかる。電流値の傾きが最大になる時に誘導起電力は最大値を取ることから、正確に測定できていることがわかる。電流値から磁場を、誘導起電力から磁束密度を算出した結果を Fig. 2 に示す。ヒステリシスが描かれていることがわかる。このヒステリシスループの面積から発熱量の評価も行った。

## 参考文献

- 1) M. Horiki *et al.*, Journal of the Magnetism Society of Japan Vol.35, No.1, 2011 p22-26

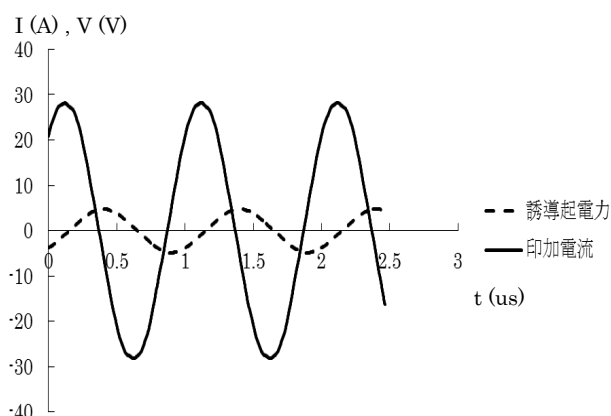


Fig. 1 Applied current of exciting coil and induced electromotive force of pickup coil

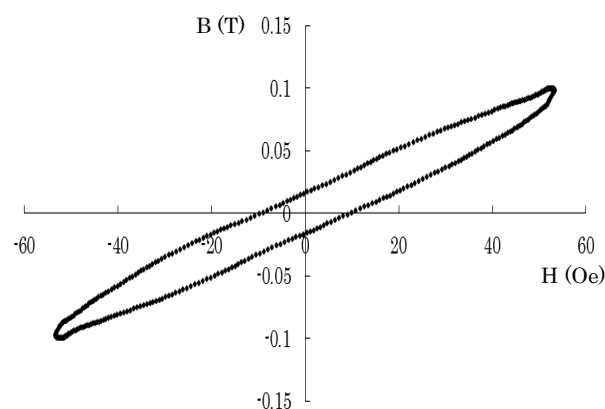


Fig. 2 Hysteresis loop of LSM at 293 K under 40 Oe-rms alternating magnetic field (1 MHz).

## 磁性ナノ粒子の交流ヒステリシス測定と磁気損失

大多 哲史、山田 努、竹村 泰司  
(横浜国立大学)

Measurement of AC hysteresis curves of magnetic nanoparticles and their magnetic loss

Satoshi Ota, Tsutomu Yamada and Yasushi Takemura  
(Yokohama National University)

### はじめに

磁性ナノ粒子は、交流磁場中において磁気損失に相当する発熱を生じるために、ハイパーサーミア（がん温熱治療）の発熱体としての応用が期待されている。がん細胞にのみ存在する抗原と特異的に反応する抗体を結合させるなど、磁性ナノ粒子の表面修飾により生体機能を付与させることも可能である。現状の課題としては、(1) 高い発熱を生じる磁性ナノ粒子の作製、(2) 印加磁場強度・周波数の最適化、(3) 腫瘍部への磁性ナノ粒子の集積、に大別される。(2)については、より大きな強度と高い周波数、即ち高いエネルギーをもって磁性ナノ粒子を励磁することに越したことはないが、コイルの設計上、かなりの制限を受ける。人体深部に 100 kHz オーダーの高周波磁場を到達させるためのコイルは、低インピーダンス化、発熱の抑制と冷却などをクリアしなくてはならない。(1)の磁性ナノ粒子の作製においても、そもそも(2)の最適な磁場条件下での磁気特性を前提にしないといけない。本講演では、種々の磁性ナノ粒子の交流磁化率及び交流ヒステリシスの測定から、磁気損失やその溶媒中濃度依存などを評価し、現実的に磁性ナノ粒子がどの程度の発熱をもたらすか定量的に考察した結果を報告する。

### 実験方法・結果

高周波磁場下での磁性ナノ粒子の損失や発熱を評価する手段には、発熱温度の測定 (caloric measurement) や交流磁化率の実部・虚部の測定などがある。温度測定からは、SLP (specific loss power) という指標が、単位 [W/g]をもって算出される。SLP は、磁場強度  $H$  及び周波数  $f$  に依存するものの、実際に得られる発熱量を評価できることが特徴である。ILP (intrinsic loss power) は、SLP を  $H^2 \cdot f$  で規格化した値であり、励磁条件に依存しない材料本来の発熱指標と考えられる。

温度測定から求める SLP は、試料及びその周辺部の環境、磁気特性の濃度依存など留意すべき事項が多い。そこで我々は、交流ヒステリシス曲線から SLP や ILP を算出することを提案している。測定対象となる試料の重量に依存することなく、Fig.1 に示すように飽和磁化  $M_s$  で規格化することにより、SLP や ILP が算出可能であり、またヒステリシスの形状からは磁性ナノ粒子の特徴、振る舞いが考察できる、などの利点がある。

Fig.1 は、振幅 50 Oe で測定した Resovist<sup>®</sup> のマイナーループである<sup>1)</sup>。VSM で測定した DC マイナーループから、試料が超常磁性を示し、ヒステリシス損失がないことが確認される。交流磁場に対しては、磁性ナノ粒子の磁気モーメントの回転が印加磁場に対して遅れるために、10 kHz においてもヒステリシスを示す。周波数を増加させると、磁気モーメントの回転が印加磁場方向に追従できなくなり、見かけの保磁力は増加し、50 Oe 印加時の磁化の印加磁場成分は減少することが明瞭に観測される。周波数依存からは、Néel 緩和と Brownian 緩和の分離が可能である。SLP、ILP の算定と評価、磁性ナノ粒子の濃度依存などの詳細を当日発表する。

### 参考文献

- 1) Nakamura *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **49**, 240, 2013.

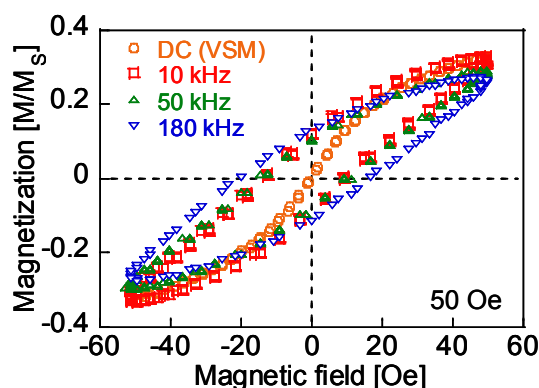


Fig. 1 Dc and ac minor hysteresis loops of Resovist<sup>®</sup> ( $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) measured under magnetic field of 50 Oe.

## 培養細胞内における磁性ナノ粒子の発熱量の評価

大多哲史、山田努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

Evaluation of heat value of magnetic nanoparticles in cultured cells

S. Ota, T. Yamada, Y. Takemura  
(Yokohama National University)

### はじめに

交流磁場化印加時の細胞内および細胞外の磁性ナノ粒子の磁化回転を評価した。交流磁場を印加した際のヒステリシス曲線を粉末状態、固定状態、液中での分散状態で測定が可能である<sup>[1]</sup>。本測定では、温度上昇を測定するからではなく、ヒステリシス曲線の面積から磁性ナノ粒子の SLP (Specific loss power) や ILP (Intrinsic loss power) を見積もることができる。本研究では、磁性ナノ粒子を添加した細胞を回収し、細胞内の磁性ナノ粒子の SLP および ILP の測定を行った。

### 実験方法

ポリエチレンイミン(PEI)修飾酸化鉄ナノ粒子を作製し、ヒト子宮頸がん(HeLa)細胞に添加した。粒子添加から 24 時間後に細胞を剥離し、DC および AC ヒステリシス曲線の測定を行った。また同様の磁性ナノ粒子を粒子自体の回転を防ぐために固定した試料および滅菌水中に分散させた試料を作製し、DC および AC ヒステリシス曲線の測定を行った。

### 実験結果

Figure 1 (a) に DC メジャーロープの低磁界部分を拡大した図を示す。液中分散試料に比べて細胞試料は固定試料と同様に保磁力が大きい。これは液中分散試料の粒子は磁場の変化に追従して回転可能なため異方性が小さいが、固定試料は異方性が大きいためである。Figure 1 (b) に AC マイナーロープを示す。液中分散試料は保磁力が大きく、対して固定試料、細胞試料は保磁力が小さい。これより、固定、細胞試料では Brownian 緩和が生じないため、液中試料に比べて磁気緩和損失が小さいことが示された。以上より、磁性ナノ粒子は細胞内において固定状態であることが示された。高周波における AC ヒステリシス曲線についても測定を行い、細胞 1 つに対して生じる SLP および ILP の見積もりを行った。

### 参考文献

- [1] Nakamura et al., *IEEE Trans. Magn.*, 49, 240, 2013.  
[2] Dutz et al., *Nanotechnol.*, 22, 265102, 2011.

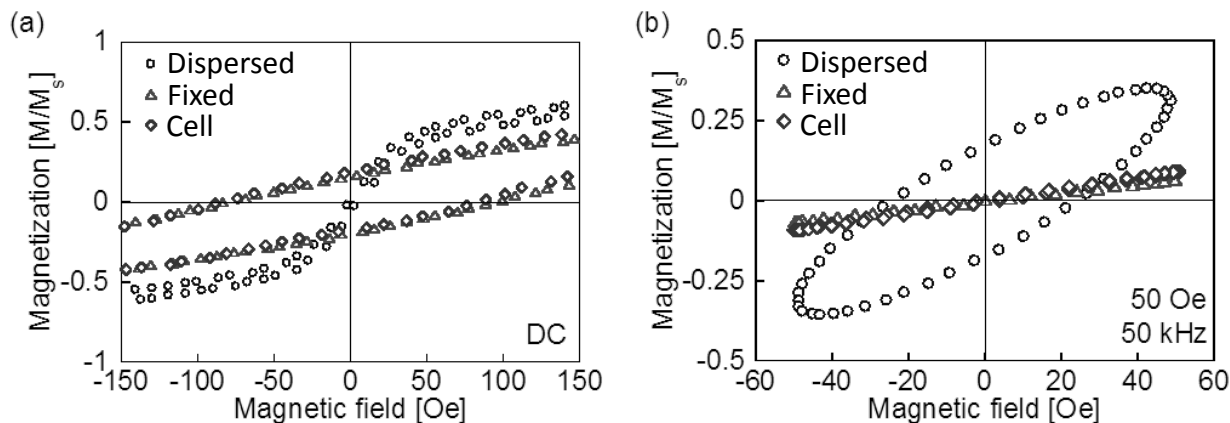


Fig. 1 (a) DC メジャーロープの低磁場部分の拡大図

(b) AC マイナーロープ

## 磁性ナノ粒子分散体の交流磁化過程と発熱

大田浩司, 関淳史, 井坂大智, 堀内あかり, 岸本幹雄, 柳原英人, 喜多英治, 間宮広明<sup>A</sup>  
(筑波大学, NIMS)

Dynamic hysteresis loops and heat generation of magnetic nanoparticles for hyperthermia  
K. Ota, A. Seki, D. Isaka, A. Horiuchi, M. Kishimoto, H. Yanagihara, E. Kita, and H. Mamiya<sup>A</sup>  
(Univ. Tsukuba, NIMS<sup>A</sup>)

### はじめに

近年、癌の治療法の一つとして、腫瘍に集積させた磁性ナノ粒子に高周波磁場を印加して発熱させる磁気温熱治療法が検討されている。液体中に分散した磁性ナノ粒子の発熱機構には、磁気ヒステリシス損失と超常磁性緩和（ネール緩和）、粒子の回転運動による摩擦（ブラウン緩和）が考えられるが、これらの発熱への寄与は、ナノ粒子と分散媒の性質により磁場の周波数と振幅に対して異なる。本研究では、より効率良くナノ粒子を発熱させることを目的として、広帯域磁場発生装置を作製し、交流磁場中での磁性流体の昇温特性と磁化過程を測定してその周波数・磁場振幅依存性から発熱機構を議論する。

### 実験方法

高周波磁場発生には LC 共振回路を用い、磁場発生部にはリッツ線を 100 回巻いたソレノイドコイル（内径 14mm 長さ 30mm）を用いた。磁化検出にはパルス強磁場下の磁化測定で利用される 8 の字型ピックアップコイル[1]を用いた。試料により検出コイルに誘起された電圧をデジタルオシロスコープにより積分し、磁化曲線を再構成した。印加可能な磁場振幅( $H_0$ )は 400 kHz 以下では 600 Oe、1 MHz 以下では 300 Oe である。測定試料には超常磁性流体の Resovist<sup>®</sup>と楕円平板型強磁性ナノ粒子(DINP) [2]の分散体を用いた。

### 実験結果

図 1 に Resovist の  $H_0=200$  Oe での交流磁化曲線を示す。Resovist は直流測定(DC)では超常磁性を示すが、高周波ではループが開き、飽和傾向の見られる磁化過程を示した。この結果は緩和時間より短時間での観測であることを示唆する。また、図 2 に粒径約 70 nm の強磁性ナノ粒子分散体の  $H_0=600$  Oe での交流磁化曲線を示す。保磁力と角型比が乾燥状態での測定(DC)に比べて増加し、周波数依存性が小さく高磁場印加時において顕著に現れている。この結果はランダムな磁化容易軸の分布では解釈が困難なことを示唆する。

謝辞：この研究は科学研究費（23300185）の支援により行った。

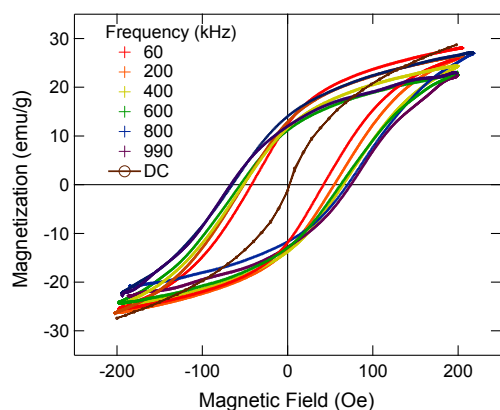


図 1 Resovist<sup>®</sup>の交流磁化過程

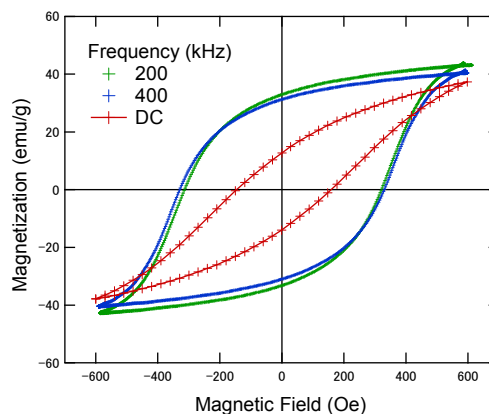


図 2 強磁性ナノ粒子[2]の交流磁化過程

[1] 松尾晶：私信

[2] M. Kishimoto, *et al.*, IEEE Trans. Magn., 49 (2013) 4756

## Magnetic Field Effects on Colloids and Surface Phenomena

Sumio Ozeki

Department of Chemistry, Faculty of Science, Shinshu University,  
3-1-1 Asahi, Matsumoto, Nagano 390-8621, Japan

Magnetic property is one of universal properties of materials, which arises from angular momentum of an electron and nucleus. Diamagnetism and paramagnetism result in orbital motion and spinning of electrons. Therefore, any material will interact with magnetic fields. If the structures and properties of materials are controlled by magnetic fields, we may be available for a general method of materials processing.

Magnetic fields affect chemical reactions,<sup>1,2</sup> chemical equilibria,<sup>3-5</sup> structures and physical properties of materials<sup>6-7</sup> via both the direct effects such as quantum mechanical, thermodynamic, and mechanical effects and the indirect effects such as convection, concentration changes, and temperature changes. However, since the magnetic energy of diamagnetic and paramagnetic materials is much smaller than the thermal energy at moderate temperature, it was believed to be insufficient to overcome the activation energy associated with chemical and physical processes. The magnetic energy ( $12.5 \text{ mJ mol}^{-1}$ ) of an electron spin in a field of 1 T corresponds to the thermal energy of 0.67 K or electric energy of 58  $\mu\text{V}$ , and is about only  $10^{-5}$  of the thermal energy of  $205 \text{ kJ mol}^{-1}$  at 300 K.<sup>8</sup> Therefore, thermal energy disturbs magnetic effects in feeble magnetic systems. Consequently, it does not seem that magnetic field effects appear even at moderate temperatures at which materials are processed. However, a variety of magnetic field effects were found in fact using high magnetic fields in appropriate systems and sophisticated techniques.

Magneto-Science,<sup>8-10</sup> a new science of materials using magnetic fields, is recently developed all over the world. Magneto-Science covers mainly the subjects on feeble magnetic materials such as soft matters, carbons, ceramics, organometals. Colloidal and interfacial systems under magnetic fields are very attractive and important because the dimension is very much sensitive to magnetic fields. In this review we introduce several examples in colloid and interface chemistry under magnetic fields. Molecular assemblies such as micelles, bimolecular membranes, and vesicles were changed in shape and, in some cases, size by magnetic fields. Since mesophases are sensitive to relatively low magnetic fields, magnetic fields controlled not only its own structures and functions but also cooperatively other magnetically-insensitive materials. Moreover, a few interesting magnetic response in hydrogels are summarized.

### References

- 1) U. E. Steiner, T. Ulrich, *Chem. Rev.* **1989**, *89*, 51.
- 2) H. Hayashi, Y. Tanimoto, *Dynamic Spin Chemistry*, ed. by S. Nagakurra, H. Hayashi, T. Azumi, Kodansha-Wiley, Tokyo / New York, **1998**, Chapter 2 and 3.
- 3) M. Yamaguchi, H. Nomura, I. Yamamoto, I. Ohta, T. Goto, *Phys. Lett.* **1987**, *126A/2*, 133.
- 4) M. Fujino, I. Yamamoto, M. Yamaguchi, T. Goto, S. Miura, *J. Alloys. Compd.* **1995**, *231*, 631.
- 5) S. Ozeki, J. Miyamoto, S. Ono, C. Wakai, T. Watanabe, *J. Phys. Chem.* **1996**, *100*, 4205.
- 6) B. J. Gaffney, H. M. McConnell, *Chem. Phys. Lett.* **1974**, *24*, 310-313.
- 7) S. Ueno, M. Iwasaka, *J. Appl. Phys.* **1996**, *79*, 4705-4707.
- 8) *Magneto-Science*, ed. by M. Yamaguchi, Y. Tanimoto, Kodansha-Springer, Tokyo, **2006**.
- 9) *Jikikagaku (Magneto-Science)*, ed. by S. Ozeki, Y. Tanimoto, and M. Yamaguchi, K. Kitazawa (supervised), IPC, Tokyo, **2002** (in Japanese).
- 10) Ayumi Sakaguchi, Atom Hamasaki, and Sumio Ozeki, *Chem. Lett.*, **2012**, *41*, 342.

# Chiral surface formation by magnetoelectrolysis

Iwao Mogi

(Institute for Materials Research, Tohoku University)

## 1. Introduction

Chiral surfaces of catalysts are responsible for asymmetric synthesis of organic materials. Particular concern is that surfaces of minerals could play chiral catalytic roles for prebiotic synthesis of amino acids in molecular evolution. A study of chiral surface formation is thus of great significance from wide viewpoints of chiral catalysts, pharmaceutical industry and the origin of life on the early earth.

When a magnetic field is imposed to an electrochemical cell, the Lorentz force acting on the faradaic currents causes convections around the electrodes in the electrolytic solutions. This is well known as the MHD (magnetohydrodynamic) effect. There exists two kinds of MHD flow in the magnetic fields perpendicular to the electrode surface; micro-MHD vortices on a fluctuated surface of the electrodeposits and a macroscopic flow around the electrode edge (the vertical MHD flow). The micro-MHD vortices could produce chiral defects such as screw dislocations on the electrodeposit surfaces, and the vertical MHD flow breaks the symmetry in the micro-MHD vortices, leading to the induction of surface chirality. Our previous papers<sup>1,2)</sup> reported that the magnetoelectrodeposition (MED) induces surface chirality of Ag and Cu films. Here we show two new methods for the chiral surface formation; magnetoelectrochemical etching (MEE) and rotational MED.

## 2. Magnetoelectrochemical etching

The symmetry breaking mechanism in the coupling of micro-MHD and vertical MHD flows would be applicable to magnetoelectrochemical etching, thus we have tried to explore chiral surface formation in MEE processes. The MEE experiment was a galvanostatic dissolution of a copper film in a 50 mM CuSO<sub>4</sub> + 0.5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> aqueous solution under a magnetic field of 5 T perpendicular to the film surfaces. The MEE copper films were used as an electrode, and the chirality of such electrodes was examined by voltammetric measurements of enantiomers of alanine (an amino acid). The MEE film electrodes exhibited the difference in oxidation currents between the enantiomers, and such a chiral behavior depended on the magnetic field direction and the etching current. The former result shows that the MEE process could induce chirality on the etching film surfaces, and the latter suggests that the chirality induction is responsible for the combination of the micro-MHD vortices and the vertical MHD flows, as proposed in the MED processes.

## 3. Rotational magnetoelectrodeposition

Another method for the symmetry breaking in the micro-MHD vortices is Rotational MED,<sup>3)</sup> in which the electrochemical cell was rotated in a magnetic field of 5 T during the electrodeposition with a frequency of 2 Hz in a clockwise or anticlockwise direction. The MED copper film electrodes exhibited chiral behavior for the electrochemical reaction of alanine enantiomers, and the direction of rotation allowed control of the chiral sign.<sup>4)</sup> This chiral induction arises from the asymmetric influence of the system rotation on the cyclonic and anticyclonic micro-MHD vortices around the electrode surfaces.

## References

- 1) I. Mogi, K. Watanabe, *ISIJ Int.*, **47**, 585 (2007).
- 2) I. Mogi, K. Watanabe, *Int. J. Electrochem.*, **2011**, ID: 239637 (2011).
- 3) R. Aogaki and R. Morimoto, *Heat and Mass Transfer-Modeling and Simulation* (ed. M. Hossain, InTech, Croatia) p.189 (2011).
- 4) I. Mogi, R. Morimoto, R. Aogaki, K. Watanabe, *Scientific Reports* **3** (2013) 2574.



## Diamagnetic responses in biogenic micro crystals and possible application for micromirror device

Masakazu Iwasaka<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Research Institute of Nanodevice and Bio Systems, Hiroshima University

Kagamiyama 1-4-2, Higashi-Hiroshima, Japan

<sup>2</sup>JST PRESTO, Saitama, Japan

iwasaka@hiroshima-u.ac.jp

Living creatures such as fish and algae are utilizing micro crystals which are genetically produced in cellular tissue. In case of fishes, guanine crystals are generated in chromatophore on the surface of fish body, and control the structural colors for the purpose of utilizing solar light reflection. Some of alga carry out photosynthesis and fix the carbon dioxide. Coccolithophore is one of the alga that forms calcium carbonate crystal by biomineralization. Coccolith is a dish shaped assemble of calcium carbonate crystals whose physiological functions unrevealed at present.

In this report, we observe quick responses of the biogenic crystals of both fish and algae under magnetic fields. At first, we found a drastic change of light scattering in goldfish scale guanine crystals under magnetic fields of 5 T ~10 T. A structural color in guanine crystal array was changed during the magnetic field sweeps. A determination of threshold of the magnetic field effect revealed that the minimum magnetic fields for the light scattering inhibition was around 200 mT for the case of the biogenic guanine crystal plate. The crystals caused a diamagnetic orientation at several hundreds of mT and changed the light reflection direction. The same kind of measurements were carried out on the coccolith discs of coccolithophore, *E. huxleyi*. We observed a change in structural colors in an aggregation of coccolith discs during magnetic field changing between 0 T and 2 T. However in the same manner with guanine crystals suspension, a homogeneously isolated coccolith discs showed a magnetic orientation at 400 mT. We obtained a light scattering changes which depended on the combination of the directions of light, magnetic field and the observation.

The employed micro crystals were floated in an aqueous solution with a Brownian motion. The magnetic response at 200 mT suggested that their diamagnetic energy exceed the thermal energy  $kT$ . A simple calculation of the energy supported this hypothesis. It is expected that the magnetic control of the floating micro crystals can be applied for the micro-mirrors in wet MEMS that will provide a new micro-fluidic device for biomedical systems.

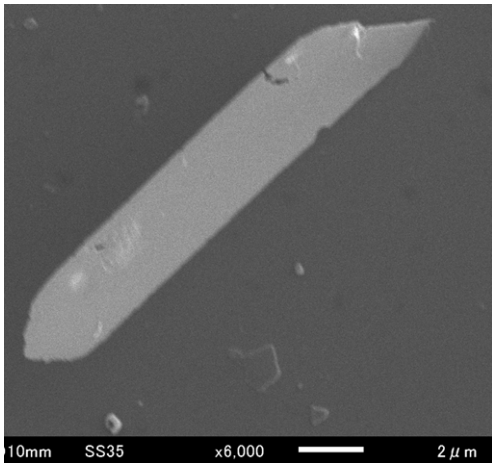


Fig. 1. SEM image of a guanine crystal Plate from goldfish scale.

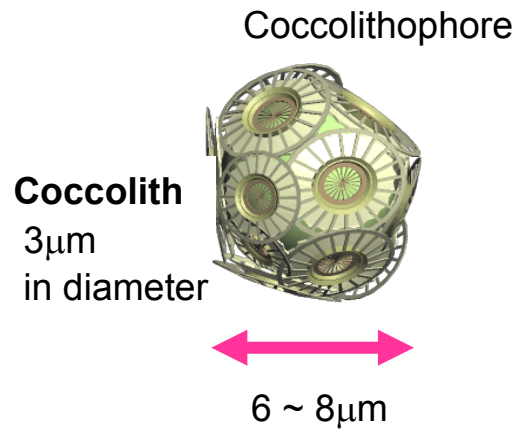


Fig. 2. Illustration of a coccolithophore cell with calcium carbonate crystals discs so called coccolith.

#### Acknowledgements

The author thanks Ms. Mizukawa and Mr. Miyashita for supporting experiments and Prof. Shiraiwa and Ms. Satoh for providing the coccolithophore. This study was supported by JST, PRESTO, 'Creation of Basic Technology for Improved Bioenergy Production through Functional Analysis and Regulation of Algae and Other Aquatic Micro-organisms.

# Single Crystal Structure Analysis of Magnetically Oriented powder Crystal

C.Tsuboi, S. Higuchi, K. Aburaya\*, F. Kimura, M. Maeyama\*, T. Kimura  
(Kyoto Univ., \*Rigaku)

## Introduction

We have been developed Magnetically Oriented Microcrystal Array (MOMA) method to make it possible to carry out single crystal X-ray diffraction analysis from microcrystalline powder. In the method, microcrystals suspended to the UV-curable monomer are three-dimensionally aligned by frequency-modulated rotating magnetic field. Then the obtained alignment is consolidated by the photopolymerization. From thus achieved MOMAs, we have been succeeded in crystal structure analysis for some substances [1] [2]. Though MOMA method is an effective technique, it has some following problems; in a MOMA, the alignment is deteriorated during the consolidation process. In addition, the sample microcrystals cannot be recovered from a MOMA. To overcome these problems, we performed an *in-situ* X-ray diffraction measurement using a 3D Magnetically Oriented Microcrystal Suspension (MOMS) of L-alanine.

## Experiments

A measurement setting of the MOMS technique is schematically shown in **Fig 1**. L-alanine microcrystal suspension was poured into a glass capillary and placed on the rotating unit equipped with a pair of neodymium magnets. Rotating X-ray chopper with 10°-slits was placed between the collimator and the suspension. By using the chopper, it was possible to make specific direction of the rotating MOMS be exposed to the X-ray, realizing the same measurement situation as the 10 degree oscillation angle measurement for the usual single crystal measurement. A total of 22 XRD images of 10° increments from 0° to 220° were achieved.

## Results & Discussion

The data set was processed in the same way as the single crystal measurement and the crystal and 3D Molecular structure of L-alanine was determined. They showed well agreements with the reported one determined from the single crystal (Fig. 2). *R*1 and *wR*2 were 6.53 and 17.4 %, respectively. RMSD value between the achieved 3D molecular structure and the reported one was 0.0042 Å. From the result, we concluded that this method can be effective and practical way to perform crystal structure analysis.

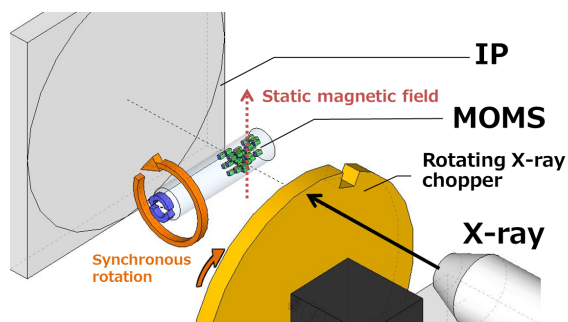


Fig. 1 Schematical image of the measurement setting.

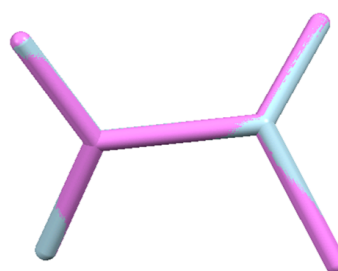


Fig. 2 Comparison of the structure determined in this study (blue) and reported one (pink).

## Reference

- 1) T. Kimura, C. Chang, F. Kimura and M. Maeyama: J. Appl. Crystallogr., 42, 535 (2009).
- 2) F. Kimura, K. Mizutani, B. Mikami and T. Kimura: Cryst. Growth. Des., 11, 12 (2011).

# Influences on the crystallization kinetics of iron-based amorphous alloys under high magnetic fields

R. Onodera, S. Kimura, K. Watanabe, Y. Yokoyama, A. Makino, and K. Koyama\*  
(IMR, Tohoku Univ., \*Grad. School of Sci., and Eng., Kagoshima Univ.)

## **Introduction**

Iron-based amorphous alloys are known as precursor materials of iron-based nano-crystalline alloys, which have excellent soft magnetic properties, such as low coercivity, high permeability and high saturation magnetization. These soft magnetic nano-crystalline alloys are produced by the crystallization of iron-based amorphous alloys, and have a unique texture, which consists of a nano-size bcc-Fe grain with a high volume fraction and an inter-granular amorphous layer. The characteristics of their texture dominate their soft magnetic properties. For instance, the coercivity highly depends on the grain size [1]. For improvement of the soft magnetic properties, therefore, the enhancement of a nucleation rate, the suppression of the grain growth and the stabilization of a residual amorphous phase on the crystallization of bcc-Fe are required. However, the nucleation and grain growth control by a simple thermal treatment and/or the adjustment of chemical composition are hardly to achieve homogeneous texture with ultra-fine grains. Thus, a new method is required for the accurate nano-crystallization control.

Recently, the material processing by applying magnetic fields has been investigated strenuously. A magnetic field is particularly important for the in-field processing of magnetic materials, because of the contribution of the magnetic energy to phase transformation and metallurgical effects. However, there are very few reports that dealt with the crystallization kinetics of amorphous alloys in high magnetic fields, although many studies for other magnetic materials such as steel, nickel and cobalt based alloys, have been reported. The detailed information about the crystallization kinetics in high magnetic fields is necessary for the development of the novel nano-crystallization process, which will achieve accurate control of the grain size and the precipitation of a crystal phase by applying a high magnetic field.

In this study, we have carried out differential thermal analysis (DTA) and magnetization measurements in high magnetic fields, in order to investigate the influence of a high magnetic field for the crystallization kinetics of iron-based amorphous alloys.

## **Experimental detail**

Fe<sub>83.3</sub>Si<sub>4.2</sub>B<sub>12.5</sub> amorphous alloy, studied in this work, is the basic composition of Fe<sub>83.3</sub>Si<sub>4</sub>B<sub>8</sub>P<sub>4</sub>Cu<sub>0.7</sub> hetero-amorphous alloy, in which the nano-crystallization occurs by annealing. The sample ribbon was prepared by single-roll melt spinning with 3 mm in width and 27-29 μm in thickness. The DTA measurements in high magnetic fields were carried out at temperatures ranging from R.T. to 900 K in applied magnetic fields up to  $B = 20$  T [2]. Magnetization measurements were carried out using a high field vibrating sample magnetometer (HF-VSM). The heating rate is 10 K/min for DTA and 5 K/min for magnetization measurements. The sample space was evacuated to  $\sim 10^{-3}$  Pa by a turbo-molecular pump system during the measurements. The structure of crystal phases was determined by X-ray diffraction.

## **Results and Discussion**

Figure 1(a) shows the DTA curve at 0 T. Two exothermic peaks due to the crystallization reactions are observed. The first peak indicates the crystallization of bcc-Fe(Si) and the second peak the crystallization of iron-boron compounds such as Fe<sub>2</sub>B and Fe<sub>3</sub>B. The first and second crystallization temperatures, which are determined from the onset of the exothermic peaks, are  $T_{x1} = 706$  K and  $T_{x2} = 795$  K, respectively. Figure 1(b) shows the magnetic field dependence of the first crystallization peak up to  $B = 20$  T. The crystallization peak of bcc-Fe(Si) shifts toward a lower temperature side under high magnetic fields, whereas the second crystallization peak shifts toward a higher side. The first

crystallization temperature is decreased by 10 K and the second one is increased by 4 K at 20 T, compared with those at 0 T.

Figure 2 shows the magnetic field dependence of the growth curve of bcc-Fe(Si) at 660 K, which is obtained by isothermal magnetization measurements at 0.5 T and 10 T. The growth curve at 10 T shows abrupt time evolution, compared with that at 0.5 T. The magnetic field effect on the growth rate is discussed in terms of the elapsed time,  $\tau_{0.5}$ , which is defined as the time where the crystallization fraction,  $x(\tau)$  attains  $x = 0.5$ .  $\tau_{0.5}$  is decreased from 3.0 ksec at 0.5 T to 1.8 ksec at  $B = 10$  T. This result suggests that the growth rate of the crystallization reaction increases under high magnetic fields. In this first crystallization reaction, ferromagnetic bcc-Fe crystallizes from paramagnetic amorphous matrix. Thus, the crystal phase gains larger magnetic energy, compared with the amorphous phase. Therefore, the gain of the magnetic energy decreases the activation energy required for the nucleation of the crystal phase. It is considered that the enhancement of the growth rate is caused by the increase of the nucleation rate due to decreasing of the activation energy by the magnetic field. We expect that the enhancement of the nucleation leads to the increase of the volume fraction of bcc-Fe(Si) with a small grain size, which results in the improvement of the saturation magnetization.

### Conclusion

The crystallization kinetics of  $\text{Fe}_{83.3}\text{Si}_{4.2}\text{B}_{12.5}$  amorphous alloy in high magnetic fields has been investigated by the DTA and magnetization measurements. In the DTA, the crystallization peak of bcc-Fe(Si) shifts toward a lower temperature side by applying magnetic fields. In the magnetization measurements, the growth curves of bcc-Fe(Si) were obtained by isothermal measurements. The growth curve at 10 T shows the acceleration of crystal growth, compared with that at 0.5 T. These magnetic field effects indicate that the nucleation of bcc-Fe(Si) is enhanced under high magnetic fields.

### References

- [1] G. Herzer: *Scr. Metall. Mater.*, 33, 1741 (1995).
- [2] R. Onodera, S. Kimura, K. Watanabe, Y. Yokoyama, A. Makino and K. Koyama: *J. Alloy. Comp.*, 604, 8 (2014).

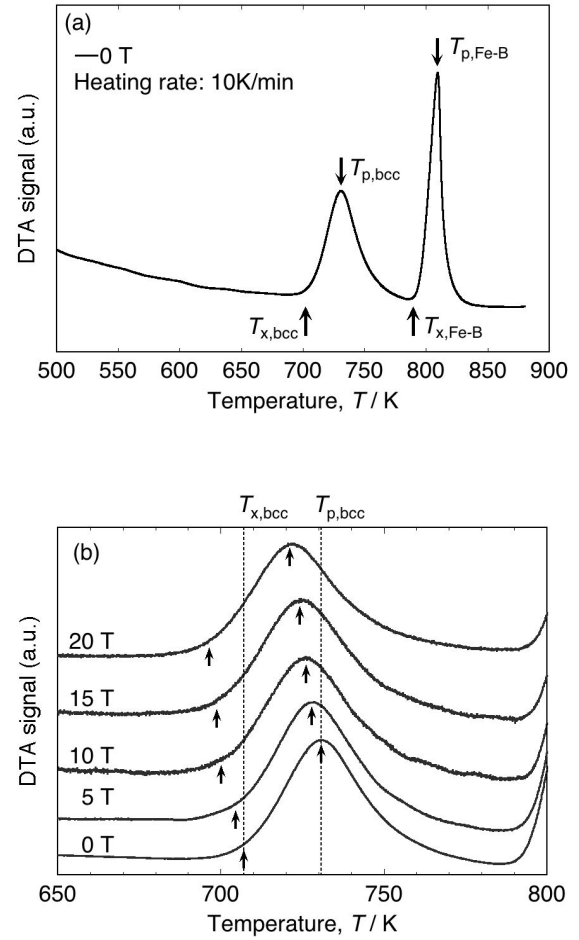


Fig.1 (a) DTA curve of  $\text{Fe}_{83.3}\text{Si}_{4.2}\text{B}_{12.5}$  amorphous alloy at 0 T. (b) Magnetic field dependence of the first crystallization peak in fields up to 20 T.

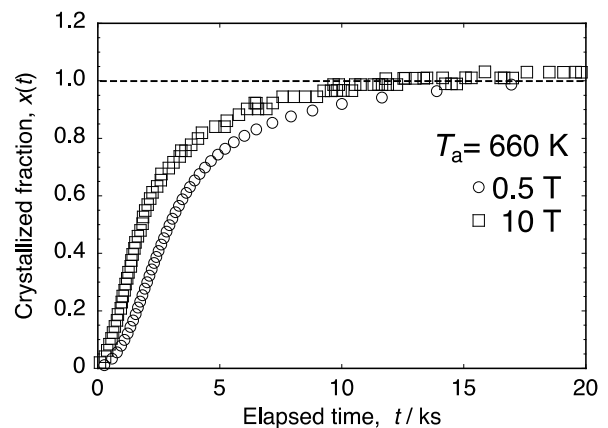


Fig.2 Magnetic field dependence of the growth curve of bcc-Fe(Si) at 660 K.

# Development of new in-field analytical system and synthesis of ferromagnetic materials under high magnetic fields

Keiichi Koyama

(Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University)

Magnetic field is one of the key thermodynamic parameters such as temperature and pressure for controlling the equilibrium of condensed matters [1]. Therefore, in order to discover and develop a new material, magnetic field effects on the magnetic phase transition, chemical reaction, solidification, etc. have been studied using high field magnets all over the world. However, it is very difficult to observe these phenomena in high temperature and high magnetic fields over 20 T using commercial equipment. In general, magnetic energy is quite small compared to thermal energy. For example, the magnetic energy of an electron spin with one Bohr magneton ( $\mu_B$ ) under a magnetic field  $B$  of 1 T corresponds to the temperature  $T$  of 0.67 K [1]. This is a reason why high magnetic fields are needed for examining the magnetic field effects on materials over room temperature.

On the other hand, some magnetic materials have a large magnetic moment that interacts with one another by the exchange interaction. In this case, the phase transition of the magnetic materials can be observed by applying magnetic fields in the vicinity of room temperature. Indeed, some ferromagnetic materials show the large magnetocaloric effect or the magnetic field-induced strain, accompanied by a magnetic field-induced first-order phase transition at room temperature. These materials have been studied as a candidate of magnetic refrigerants or magnetic actuator materials, all over the world. One of the ferromagnetic materials that have a large magnetic moment  $m$  and show a first-order phase transition over room temperature is an MnBi compound.

In order to study magnetic field effects on equilibrium states of Bi-Mn binary system and other ferromagnetic materials, we have developed high-field differential thermal analysis (HF-DTA) equipment for utilization in a high field magnet with 30 mm bore [2]. We have reported magnetic field effects on the peritectic decomposition and composition states of a MnBi magnetic material in fields up to 45 T by using hybrid magnets [3].

Figure 1 shows phase diagram of MnBi [2,3]. The decomposition temperature ( $\text{MnBi} \rightarrow \text{Mn}_{1.08}\text{Bi} + \text{liquid phase}$ : 632 K at zero field)  $T_t$  was found to increase linearly at a rate of  $2 \text{ K T}^{-1}$  in fields up to 18 T and to deviate from that linear increase above 20 T. In addition, the peritectic temperature ( $\text{Mn}_{1.08}\text{Bi} \rightarrow \text{Mn} + \text{liquid}$ : 721 K at zero field)  $T_m$  was slightly increased by applying a magnetic field. At a magnetic field of 45 T,  $T_t$  and  $T_m$  reached 714 K and 726 K, respectively. Furthermore, the magnetocaloric effect of MnBi was observed in 11.5-45 T in the vicinity of 689 K, showing that a field-induced composition process occurs [3]. The behaviour of  $T_t$  and  $T_m$  for MnBi and  $\text{Mn}_{1.08}\text{Bi}$  under high magnetic fields could be discussed on the basis of mean field theory [2]. Obtained results indicate that we can generally control the equilibrium state of magnetic materials by steady magnetic fields.

Figure 2 shows the equilibrium diagrams of Bi-Mn binary system at a zero field (a) and 18 T (b) [4, 5]. The symbols and lines were obtained by the HF-DTA [4] and calculations [5], respectively. Here, calculated Bi-Mn equilibrium diagrams in high magnetic

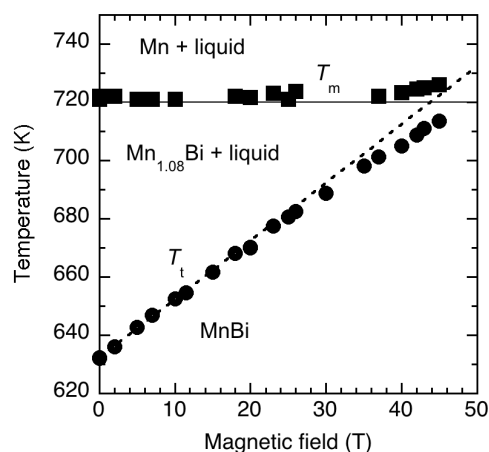


Fig.1. Phase diagram of MnBi [2,3]. The dashed line indicates the extrapolation calculated by using the least-squares method with data for  $B \leq 14$  T. The solid horizontal line at 720 K is a guide to the eyes.

fields were numerically investigated by the Computer Coupling of Phase Diagram (CALPHAD) method with including a mean field calculation for magnetic energy. For a zero field (Fig.2 (a)),  $T_{p1}$  ( $T_t$ )  $T_{p2}$  ( $T_m$ ) and  $T_E$  were determined to be 632 K, 721 K, and 538 K, respectively. When magnetic field of 18 T was applied,  $T_{p1}$  increases and reaches 667 K, whereas  $T_E$  seems to be independent of magnetic fields. Therefore, the area of MnBi + liquid extends out, whereas  $Mn_{1.08}Bi$  + liquid becomes narrow with applying a magnetic field of 18 T. Recently, we pointed out that the parabolic relationship for  $T_{p2}$  ( $T_m$ )- $B$  is mainly dominated by the magnetic properties of paramagnetic  $Mn_{1.08}Bi$  [2]. The calculated results were good agreement with the experimental results.

The gain of the magnetic energy part ( $E_M = -mB$ ) in the free energy plays an important role in the effect of magnetic field on phase transition and reaction of magnetic materials. Recently, we found that magnetic field enhanced a solid-solid reaction for form of ferromagnetic MnBi from nonmagnetic Bismuth and Manganese [6]. In addition,  $c$ -axis of the hexagonal structure of MnBi was oriented parallel to the magnetic field direction. Using this effect, we developed a new solid-state reaction sintering method under high magnetic fields for synthesizing permanent magnet [6].

Furthermore, recently, we have developed an in-situ observation system with DTA under high magnetic fields up to 10 T. We expect that the equipment will be one of the key analytical systems, in order to study magnetic field effect on the magnetic phase transition, chemical reaction, solidification, etc.

In this presentation, recent results of magnetic field effects for the ferromagnetic MnBi and Fe-C steel and our new analytical system utilized in high magnetic fields will be presented.

## References

- [1] Magneto-Science: Magnetic Field Effects on Materials: Fundamental and Applications. (Yamaguchi, M & Tanimoto, Y.) (Kodansha-Springer, Japan, 2006).
- [2] Y. Mitsui, Y. Ikehara, K. Watanabe, E.S. Choi, E.C. Palm and K. Koyama, "Thermal analysis on MnBi in high magnetic fields up to 45 T", J. Korean Phys. Soc. 62 (2013) 1769.
- [3] K. Koyama, Y. Mitsui, E. S. Choi, Y. Ikehara, E. C. Palm, and K. Watanabe, J. Alloys Comp., 509, (2011) L78.
- [4] Y. Mitsui, K. Koyama and K. Watanabe, Mater. Trans. 54, (2013) 242.
- [5] Y. Mitsui, K. Oikawa, K. Koyama and K. Watanabe, J. Alloy. Comp., 577, (2013) 315.
- [6] Y. Mitsui, R.Y. Umetsu, K. Koyama and K. Watanabe, submitted to J. Alloy. Comp.

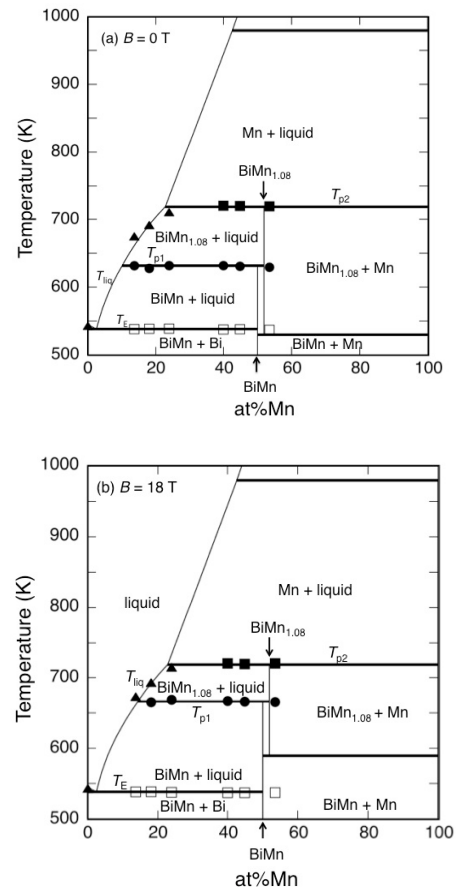


Fig.2. Equilibrium diagrams of Bi-Mn binary system at a zero field (a) and at 18 T (b). The symbols and lines indicate the experimental [4] and calculated results [5], respectively.