Insight into new magnetic recording principle with magnetoelectric writing

M. Sahashi, M. Al-Mahdawi, S. P. Pati, S. Ye, Y. Shiokawa, and T. Nozaki, (Tohoku University)

The recording areal density has continued increasing to nearly 1Tbpsi with Perpendicular Magnetic Recording (PMR). However, it seems that the growth rate of a recording areal density is fairly reduced for the trilemma problem due to particulate magnetic recording principle. Of course, such alternative technologies or methods as energy assisted recording (HAMR, MAMR etc.) have been worked on with energy towards realizing the next generation recording system where they are still based on a particulate magnetic recording principle. Considering a magnetic recording (i.e. head/media system), STT and SOT are not suitable for magnetic recording principle. So in this paper we propose a new magnetic recording principle with voltage effect on magnetization-switching, especially Magnetoelectric Effect of Cr2O3 sesquioxide, that is to say that magnetic bits are written on Cr2O3 antiferromagnetic media by E(electric field) • H(magnetic field) product.

Magnetoelectric (ME) effect has so far been paid attention to be applied to a nonvolatile memory (NVM). Cr2O3 is a typical sesquioxide with ME effect and its antiferromagnetic Neel temperature is TN =307 K, which is higher than RT. A robust isothermal electric control of exchange-bias at RT is actually reported for bulk Cr2O3 single crystal sample when both of electric field E = 0.02 [MV/cm] and magnetic field H = -1.54 [kOe] was applied [1]. But ME effect has not yet been clarified in Cr2O3 thin films because of its large leakage current and imperfect antiferromagnetic-ordering while ME effect like behavior up to 200K is reported to be observed in an ultrathin Cr2O3/Fe2O3 Nano-Oxide Layer (NOL) [2]. When considering the application of ME effect to magnetic recording technology with voltage-controlled magnetization switching, there are some problems except the above issue, which should be resolved. The first is to realize and design an effectually high exchange-bias filed between antiferromagnetic (AFM) Cr2O3 and ferromagnetic (FM) thin film multilayers in the higher temperature range than RT, which means higher Neel temperature (TN) and higher blocking temperature (TB), where the properly low coercive force of FM is also required. The second is to invest FM layer with a perpendicular anisotropy which is thought to be caused by both of the hybridization of FM 3d and O 2p orbitals and the magnetic coupling at the interface between FM and Cr2O3. The third is to confirm ME effect in the thin film Cr2O3 after getting Cr2O3 thin film which shows good electrical properties.

In this paper, electrical and magnetic performances of the thin film Cr2O3/Fe2O3 sesquioxide were investigated. We successfully fabricated the Cr2O3 and Fe2O3 thin films with small leakage current and good magnetic properties. We successfully confirmed ME effect of Cr2O3 thin films (100nm~500nm) and the switching of both exchange bias field and residual magnetization using Co/Cr2O3 exchange bias bilayer with low FM layer coercivity (~20 Oe) structure, shown in Fig.2 under both of ME filed cooling and isothermal process conditions for the first time in the world [3],[4]. In addition, we succeeded in enhancing TM of Fe2O3 higher than 400K by Ir-doping where perpendicular-spin-alignment of Fe2O3 was also confirmed in both of Mossbauer spectroscopy and weak ferromagnetic moment measurement with SQUID magnetometer. These results support our new magnetic recording principle concept with voltage controlled magnetization switching of AFM Cr2O3 thin film above room temperature at the first step. In addition, we also propose low EH product writing with positive exchange coupling in Chromia/Co bilayer system where an induced weak ferromagnetic moment is also observed of antiferromagnetic Chromia. The related experimental

where an induced weak ferromagnetic moment is also observed of antiferromagnetic Chromia. The related experimental results and phenomenologically analytical consideration will be discussed.

This study was partially supported by ImPACT Program led by Council of Science, Technology and Innovation (CSTI), Cabinet Office of Government of Japan, and JST-ALCA Program.

References

[1] X. He, C. Binek et al., Nature Materials, 9 (2010) 579.

- [2] N. Shimomura, T. Nozaki, and M. Sahashi et al, Appl. Phys. Lett. 101,012403 (2012)
- [3] T. Ashida, T. Nozaki, M. Sahashi et al., Appl. Phys. Lett. 104, 152409 (2014).
- [4] T. Ashida, T. Nozaki, M. Sahashi et al., Appl. Phys. Lett. 106, 132407(2015).

-1 -

Characterization of magneto-electric switching energy in Cr₂O₃ antiferromagnetic thin films

M. Al-Mahdawi, S. P. Pati, S. Ye, Y. Shiokawa, T. Nozaki, and M. Sahashi (Tohoku University)

Introduction: Towards applications in voltage-controlled HDD and MRAM, usually the ferromagnetic layer is considered as the "active" media. A possibility of using antiferromagnetic (AFM) media is hindered by the difficulty of controlling and accessing the antiferromagnetic state. Recently, there is a revival in utilizing the magnetoelectric (ME) antiferromagnet Cr_2O_3 , where the electric control of perpendicular exchange-bias in a Cr_2O_3 /Co multilayer system has been realized under the simultaneous application of electric and magnetic fields¹⁻⁴⁾. However, The required energy of the product of electric and magnetic fields (EH) is 2 to 3 orders of magnitude higher in thin-film systems compared with bulk crystals^{1,5)}. In this presentation, we will present the investigation of the origin of this increase, and a novel way to control it.

Experimental procedure: Two samples were used, sample A was a commercial bulk Cr_2O_3 substrate, sample B was a sputter-deposited thin-film sample of the following structure: c-Al₂O₃ sub./Pt 25 nm/Cr₂O₃ 500 nm/Pt 25 nm. The average domain state of Cr_2O_3 was measured by the linear magnetoelectric susceptibility (α) in a SQUID magnetometer. The application of a small electric field (E) results in an induced magnetization (M = α E), and the sign of α indicates the AFM domain state of Cr_2O_3 .

Results and discussions: Figure 1 shows the comparison between the temperature-dependence of α in samples A and B. Except for a small decrease in Neel temperature, the magnitude of α is same and the ME property is intrinsically similar in thin films as to bulk crystals. The increase of EH switching product in thin films is mostly due to the increase of exchange-bias energy density as the thickness becomes reduced orders of magnitude.

Additionally, we surprisingly found a weak magnetization from Cr_2O_3 films, which was coupled to AFM order parameter. This weak magnetization required an additional EH switching energy for single-layer Cr_2O_3 . However, the sign of switching EH energy required to overcome the weak magnetization is opposite to the EH energy required to overcome the exchange-coupling energy with the Co layer. We could design a balance between both, and we could decrease the switching energy 2 orders of magnitude compared to other reports on thin-film Cr_2O_3 .



Fig. 1 Temperature-dependence of α in samples A and B

<u>Acknowledgement</u>: This work was partly funded by ImPACT Program of Council for Science, Technology and Innovation (Cabinet Office, Japan Government).

References

- 1) T. Ashida et al., Appl. Phys. Lett. 104 (2014) 152409.
- 2) K. Toyoki et al., J. Appl. Phys. 117, (2015) 17D902.
- 3) T. Ashida et al., Appl. Phys. Lett. 106, (2015) 132407.
- 4) K. Toyoki et al., Appl. Phys. Lett. 106, (2015) 162404.
- 5) P. Borisov et al., Phys. Rev. Lett. 94, (2005) 117203.

Magnetic field dependence of threshold electric field for switching exchange bias polarity

T. V. A. Nguyen, Y. Shiratsuchi, R. Nakatani

Department of Materials Science and Engineering, Graduate School of Engineering, Osaka University

Electric field control of magnetization in magnetoelectric (ME) insulators plays an important role in spintronic applications owing to various advantages such as the high processing speed and the low power consumption. Antiferromagnetic (AFM) α -Cr₂O₃ is a typical ME material which showed a fascinating exchange bias as coupled with a ferromagnetic layer [1, 2]. The isothermal ME switching of the perpendicular exchange bias in an all-thin-film system was reversibly achieved with the change in polarity of exchange bias from negative-to-positive (N-to-P) and positive-to-negative (P-to-N) by tuning the applied electric field while maintaining the magnetic field [1]. At a temperature, the threshold electric field (E_{th}) at which the polarity of exchange bias is reversed depends on the applied magnetic field [1]. However the study on magnetic field dependence of E_{th} for switching exchange bias polarity, which is indispensable for future spintronic devices, is still insufficient.

In this study, we investigated the isothermal ME switching of perpendicular exchange bias in Cr_2O_3 . Pt/Co/spacer/Cr₂O₃/Pt stacked films were prepared on an α -Al₂O₃ substrate using DC magnetron sputtering system. The isothermal switching of exchange bias was investigated by the anomalous Hall effect (AHE) measurement using a Hall-bar device with a 2-µm-width and a 40-µm-length. At 275 K, the exchange bias field was reversibly switched by reversing the electric field under a fixed magnetic field. Fig. 1 shows the hysteretic electric field dependence of the exchange bias field (left) and remanence ratio (right) under -60 kOe at 275 K. The rectangular hysteresis is in agreement with the isothermal switching of AFM domain state in Cr₂O₃. Fig. 2 shows the magnetic field dependence of E_{th} for switching exchange bias polarity, in which E_{th} was evaluated from the cross point of remanence ratio curve with the horizontal axis for both N-to-P and P-to-N processes. The switching condition, simply expressed by EH_{th} = constant, followed the coherent model [1, 2] in which the ME effect leads to the energy gain for switching exchange bias polarity. The asymmetry of EH_{th} between N-to-P and P-to-N was attributed to the uniaxial nature of magnetic anisotropy of AFM layer and the unidirectional nature of exchange coupling of the FM layer. The detail of the dependence of E_{th} on magnetic field (magnetic field and direction) will be discussed in the presentation.



Fig. 1: Hysteretic electric field dependence of the exchange bias field (left) and remanence ratio (right) under -60 kOe at 275 K.



- 1) X. He et al., Nature Mat. 9, 579, (2010).
- 2) K. Toyoki et al., Appl. Phys. Lett. 106, 162402, (2015).



Fig. 2: Magnetic field dependence of threshold electric field $E_{\rm th}$ for switching exchange bias polarity measured at 275 K.

Al 置換による電気磁気材料 Cr₂O₃ 薄膜の磁気異方性向上

野崎友大、塩川陽平、S. P. Pati、葉術軍、M. Al-Mahdawi、佐橋政司 (東北大学)

Enhanced magnetic anisotropy of magnetoelectric Cr₂O₃ film by Al-doping T. Nozaki, Y. Shiokawa, S. P. Pati, S. Ye, M. Al-Mahdawi, and M. Sahashi (Tohoku University)

<u>序論</u>

電気磁気材料である Cr₂O₃ は電圧による磁化反転を可能とする電気磁気効果デバイス、電圧制御 HDD や MRAM の候補として注目を集めている。近年、Cr₂O₃/Co 薄膜を用いた系で垂直交換バイアスの電界制御が実 現されたことから^{1,2}、実用化がより現実味を帯びてきている。しかし Cr₂O₃/Co 交換結合膜では、Cr₂O₃の磁 気異方性が低い(K_{AF} ~ 2 × 10⁵ erg/cc)ため、特に薄い Cr₂O₃ 薄膜を用いた場合に、交換バイアスのブロッキング 温度がネール温度よりも大幅に下がってしまうことが問題となっている。我々は Cr₂O₃ と同じコランダム構 造を持つ a-Fe₂O₃ 薄膜への Ir 少量置換による垂直磁気異方性の向上に成功しており^{3,4}、本研究では元素置換 による Cr₂O₃ 薄膜の磁気異方性の向上を目指した。

<u>実験方法</u>

膜構成は Al₂O₃ 基板/Pt 25/Cr₂O₃ または Al-doped Cr₂O₃ t_{Cr2O3}/Co 1/Pt 5 (nm)である。(Al 置換)Cr₂O₃ 薄膜は Cr または Al-Cr 合金ターゲットを用い、反応性スパッタ法で作製した。薄膜の Al 組成は XRF により確認した。 Al 5atm%の Al-Cr 合金ターゲットを用いて作製した薄膜の Al 含有量は 3.7atm%程度であった。磁気特性の評価には SQUID 磁力計を用いた。

<u>実験結果</u>

図1に無置換試料およびAI置換試料の交換バイアスの温度依存性を示す。無置換試料ではCr₂O₃薄膜の膜厚が250nmであっても、その小さな磁気異方性と大きな交換バイアスのため、ブロッキング温度は130K程度とネール温度~300Kよりもかなり小さい値となった。それに対して、AI置換試料では、膜厚が同じ程度であるにも関わらず280K程度の大きなブロッキング温度が得られた。さらに、交換バイアスの大きさ自体も無置換試料よりも高い値が得られ、最大で4500Oeを超える巨大な交換バイアスが得られた。Meiklejohn -Beanのモデルによるとブロッキング温度は磁気異方性が大きいほど、また、交換バイアスの大きさが小さいほど大きくなることから、AI置換試料では大幅な磁気異方性の増大が起こっていると考えられる。このような磁気異方性の増大は、電気磁気効果デバイスの熱安定性を確保するためにも不可欠である。



図1 無置換試料および Al 置換試料の 交換バイアスの温度依存性.

<u>謝辞</u>

本研究の一部は内閣府 ImPACT プログラムの支援を受けて行われた。

<u>参考文献</u>

- 1) T. Ashida et al., Appl. Phys. Lett. 104 (2014) 152409.
- 2) T. Ashida et al., Appl. Phys. Lett. 106, (2015) 132407.
- 3) N. Shimomura et al., J. Appl. Phys. 117 (2015) 17C736.
- 4) T. Mitsui *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., **85** (2016) 063601.

Effect of heavy metal doping on the Morin transition of

epitaxial a-Fe₂O₃ (0001) thin films

M. A. Tanaka, K. Mikami, S. Ando and K. Mibu (Nagoya Institute of Technology)

Hematite (a-Fe₂O₃), which is an antiferromagnetic material with high Néel temperature ($T_{\rm N} = 950$ K), is attracting great interest, because this material can be applied for assisting layer of perpendicular magnetic devices, e.g., electric-field-writing-hard-disk drives. In pure a-Fe₂O₃, the Morin transition, which is the antiferromagnetic to weak ferromagnetic transition, occurs at 253 K, so that c-axis oriented a-Fe₂O₃ thin films have the in-plane spin configuration and show weak ferromagnetism at room temperature. Recently, Shimomura *et al.* reported that the Morin transition temperature ($T_{\rm M}$) can be enhanced above 400 K in c-axis oriented a-Fe₂O₃ thin films by doping 1% Ir ¹). The Morin transition can be explained by the competition between magnetic dipolar anisotropy $K_{\rm MD}$ and single ion anisotropy $K_{\rm FS}$. The enhancement of $T_{\rm M}$ is caused by the increase of $K_{\rm FS}$. In this study, we report the heavy-metal-doping effect for Morin transition of c-axis oriented a-Fe₂O₃ thin films.

Heavy metal (Ru, Ir and W) doped a-Fe₂O₃ films of about 80 nm in thickness were deposited on Al₂O₃(0001) substrates by pulsed laser deposition method at various substrate temperatures in background oxygen pressure of 10 Pa. X-ray diffraction (XRD) measurement and conversion electron Mössbauer spectroscopy were performed for these samples at room temperature.

XRD measurement clarified that the growth direction of the heavy-metal-doped a-Fe₂O₃ films on Al₂O₃(0001) substrates was along c-axis. Figure 1 shows the Mössbauer spectra of 5% Ru doped a-Fe₂O₃ films deposited at the substrate temperature of 300°C, 400°C and 500°C. The angle *q* between the average spin direction and the vertical axis of film plane can be estimated by the intensity ratio of the six peaks of the Mössbauer spectra. When the spin direction is perpendicular to the film plane (*q* = 0°), the peaks indicated by the arrows disappear. The results show the peaks indicated by red arrows decrease with increasing growth temperature. The Mössbauer spectra indicated that the spin

direction of 5% Ru doped a-Fe₂O₃ films deposited at the substrate temperature of 300°C is nearly in-plane ($q = 76^{\circ}$) and that the $T_{\rm M}$ is below room temperature, while the spin direction of the 5% Ru doped a-Fe₂O₃ films deposited at the substrate temperature of 500°C is almost perpendicular ($q = 16^{\circ}$) and the $T_{\rm M}$ is higher than room temperature. The spin direction angle of 5% Ru doped a-Fe₂O₃ films deposited at the substrate temperature of 300°C is 31°, indicating that the $T_{\rm M}$ of this sample is near room temperature. These results imply that the lattice location of Ru ions in a-Fe₂O₃ films varies with changing deposition temperature and that the difference of spin-orbit interaction of Ru ions affects the enhancement of $K_{\rm FS}$.

In this presentation, we will also demonstrate the effect of other heavy metal (Ir and W) doping on Morin transition of a-Fe₂O₃ films.

This work was supported by ImPACT "Achieving ultimate Green IT Devices with long usage times without charging" of JST.

Reference

1) N. Shimomura et al., J. Appl. Phys., 117, 17C736 (2015).



Fig. 1 Mössbauer spectra of 5% Ru doped a-Fe₂O₃ films deposited at the substrate temperature of 300°C, 400°C, and 500°C

Challenges toward voltage-torque MRAM

Shinji Yuasa (AIST, Spintronics Research Center)

A magnetic tunnel junction (MTJ) consisting of a thin insulating layer (a tunnel barrier) sandwiched between two ferromagnetic electrodes exhibits the tunnel magnetoresistance (TMR) effect due to spin-dependent electron tunneling. Since the discovery of room-temperature TMR,^{1,2)} MTJs with an amorphous aluminum oxide (Al–O) tunnel barrier, which exhibit magnetoresistance (MR) ratios of several tens percent, have been studied extensively. In 2004, MR ratios of about 200% were obtained for fully epitaxial MTJs with single-crystal MgO(001) tunnel barrier³⁾ and textured MTJs with (001)-oriented MgO tunnel barrier⁴⁾. MTJs with a CoFeB/MgO/CoFeB structure were also developed for practical application.⁵⁾ In the CoFeB/MgO/CoFeB MTJ, a highly textured MgO(001) barrier layer is grown on an amorphous CoFeB bottom electrode layer. By post-annealing the MTJs, the amorphous CoFeB layers are crystallized in bcc(001) structure due to the solid-phase epitaxial growth from the MgO interfaces⁶⁾. Then, the (001)-textured CoFeB/MgO/CoFeB MTJ exhibit giant MR ratios as well as other practical properties such as low resistance-area (RA) product ^{7,8)} and/or interfacial perpendicular magnetic anisotropy (PMA).⁹⁾ Because of the high manufacturability and practical magneto-transport properties, the CoFeB/MgO/CoFeB MTJs are widely used as the read heads of hard disk drives (HDDs), memory cell of non-volatile memory (STT-MRAM) especially with perpendicular magnetization, spin-torque oscillator (STO), and physical random number generator (Spin Dice).^{10,11}

Although the textured CoFeB/MgO/CoFeB MTJs have been very successful, the properties are not sufficient for future device applications. Novel voltage-driven MRAM or voltage-torque MRAM based on voltage-induced dynamic switching¹¹ requires not only very high MR ratio (>>300%) but also very large voltage-control of magnetic anisotropy (VCMA) effect and PMA at the same time.¹² For satisfying these requirements, we need to develop novel MTJs with new materials for barrier and magnetic layers by using epitaxial growth on Si substrate as well as the wafer bonding and three-dimensional integration technologies to integrate the epitaxial MTJs in practical LSI. This paper summarizes challenges toward the voltage-torque MRAM.

This work was supported by the ImPACT Program of the Council for Science, Technology and Innovation.

Reference

- 1) T. Miyazaki and N. Tezuka, J. Magn. Magn. Mater. 139, L231 (1995).
- 2) J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong and R. Meservey, Phys. Rev. Lett. 74, 3273 (1995).
- 3) S Yuasa, T Nagahama, A Fukushima, Y Suzuki and K Ando, Nature Mater. 3, 868 (2004).
- 4) S. S. P. Parkin et al., Nature Mater. 3, 862 (2004).
- 5) D. D. Djayaprawira et al., Appl. Phys. Lett. 86, 092502 (2005).
- 6) S. Yuasa and D. D. Djayaprawira, J. Phys. D: Appl. Phys. 40, R337 (2007).
- 7) K. Tsunekawa et al., Appl. Phys. Lett. 87, 072503 (2005).
- 8) Y. Nagamine et al. Appl. Phys. Lett. 89, 162507 (2006).
- 9) S. Ikeda et al., Nature Mater. 9, 721 (2010).
- 10) A. Fukushima et al., Appl. Phys. Express 6, 083001 (2014)
- 11) Y. Shiota et al., Nature Mater. 11, 39 (2012).
- 12) S. Yuasa et al., IEDM Tech. Dig. 3.1 (2014).

Large voltage-controlled magnetic anisotropy change in epitaxial Cr/ultrathin Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions

Takayuki Nozaki¹, Anna Kozioł-Rachwał^{1,2}, Witold Skowroński^{1,2}, Vadym Zayets¹, Yoichi Shiota¹, Shingo Tamaru¹, Hitoshi Kubota¹, Akio Fukushima¹, Shinji Yuasa¹, and Yoshishige Suzuki^{1,3} (1 AIST, Spintronics Research Center, 2 AGH Univ., 3 Osaka Univ.)

Technological development in electric-field control of magnetic properties is strongly demanded to realize novel spintronic devices with ultralow operating power. Voltage-controlled magnetic anisotropy (VCMA) effect in an ultrathin ferromagnetic metal layer^{1), 2)} is the most promising approach, because it can be applied in MgO based magnetic tunnel junction (MTJ). We have demonstrated fast speed response of VCMA effect through the voltage-induced ferromagnetic resonance³⁾ and pulse-voltage induced dynamic magnetization switching⁴⁾ so far. One of the outstanding technical issues in the VCMA effect is the demonstration of scalability. For example, for the development of G-bit class memory applications, high VCMA coefficient of more than 1000 fJ/Vm is required with sufficiently high thermal stability. However, the VCMA effect with high speed response is limited to be about 100 fJ/Vm at present.⁵⁾

In this study, we investigated the VCMA effect in an ultrathin Fe layer sandwiched between epitaxial Cr(001) buffer and MgO(001) barrier layers.⁶⁾ High interface anisotropy energy, $K_{i,0}$ of about 2 mJ/m² was recently demonstrated in Cr/ultrathin Fe/MgO structure,⁷⁾ probably due to the atomically flat interfaces and suppression of surface segregation from the buffer material. We applied this structure in the voltage-driven MTJ and performed systematic investigations on perpendicular magnetic anisotropy (PMA) and VCMA effect through the tunnel magnetoresistance (TMR) properties. Fully epitaxial MTJ of MgO seed (3 nm)/Cr buffer (30 nm)/ultrathin Fe (t_{Fe})/MgO (t_{MgO})/Fe (10 nm)/Ta/Ru were deposited on MgO (001) substrates by molecular beam epitaxy. Here, the ultrathin Fe layer is the voltage-controlled free layer with perpendicular magnetic easy axis and top thick Fe layer is the reference layer with in-plane magnetic easy axis. The PMA energy, K_{PMA} and VCMA properties were evaluated from the normalized TMR curves measured under in-plane magnetic fields with various bias voltage applications. Saturation magnetization value was obtained by SQUID measurement.

High interface anisotropy energy, $K_{i,0}$ of 2.1 mJ/m² was confirmed in our sample. Figure 1 shows an example of applied electric field dependene of surface anisotropy energy, $K_{PMA}t_{Fe}$ for the MTJ with t_{Fe} = 0.45 nm and t_{MgO} = 2.8 nm. We observed large VCMA coefficient of about 400 fJ/Vm under the negative electric field application, while non-linear behavior appeared under the positive direction. In the presentation, we'll discuss the possible origin of the enhanced VCMA effect and non-linearity including the evaluation results of structural analysis at the Cr/ultrathin Fe/MgO interfaces.

This work was partly supported by ImPACT Program of Council for Science, Technology and Innovation, the Strategic AIST integrated R&D program "IMPULSE", and a Grand-in-Aid for Scientific Research (No. 26709046).

Reference

- 1) M. Weisheit et al. Science **315**, 349 (2007).
- 2) T. Maruyama et al. Nature Nanotech. 4, 158 (2009).
- 3) T. Nozaki et al. Nature Phys. 8, 491 (2012).
- 4) Y. Shiota et al. Nature Mater. 11, 39 (2012).
- 5) T. Nozaki et al. Appl. Phys. Exp. 7, 073002 (2014).
- 6) T. Nozaki et al. Phys. Rev. Appl. 5, 044006 (2016).
- 7) J. W. Koo et al. Appl. Phys. Lett. 103, 192401 (2013).



Figure 1 Example of VCMA effect observed in epitaxial Cr/ultrathin Fe/MgO/Fe MTJ with $t_{\rm Fe}$ =0.45 nm and $t_{\rm MgO}$ = 2.8 nm. Perpendicular magnetic anisotropy, $K_{\rm PMA}$ was evaluated from normalized TMR curves and saturation magnetization value measured by SQUID.

Write error rate of voltage-driven dynamic magnetization switching

Yoichi Shiota¹, Takayuki Nozaki¹, Shingo Tamaru¹, Tomohiro Taniguchi¹, Kay Yakushiji¹, Hitoshi Kubota¹,

Akio Fukushima¹, Shinji Yuasa¹, and Yoshishige Suzuki^{1,2}

(1 AIST, Spintronics Research Center, 2 Osaka Univ.)

Voltage-control of magnetic anisotropy [1,2] is a promising technique for ultimate spintronic devices with ultra-low power consumption. To apply the voltage-induced magnetic anisotropy change to the writing process, the dynamic magnetization switching triggered by the sub-ns pulse voltage has been demonstrated. [3,4] One of the important issues for the practical application is the evaluation and improvement of the write error rate (WER). However precise control of the magnetization dynamics is not easy because the proper pulse duration is about 1ns or shorter. In this study, we investigated the WER of voltage-induced dynamic magnetization switching in perpendicularly magnetized magnetic tunnel junctions (p-MTJs). [5]

A film for p-MTJ, consisting of buffer layer / $[Co (0.24 \text{ nm})/Pt (0.16 \text{ nm})]^7$ / Co (0.24 nm) / Ru (0.46 nm) / $[Co (0.24 \text{ nm})/Pt (0.16 \text{ nm})]^5$ / CoB (0.4 nm) / W (0.15 nm) / Co₁₂Fe₆₈B₂₀ (1.0 nm) / MgO barrier / FeB (1.8 nm) / W (2.0 nm) / cap layer, was prepared by using ultra-high vacuum sputtering machine (Canon-Anelva C-7100). The film was annealed at 350°C for 1 hour and micro-fabricated into a 120-nm-diameter p-MTJ. The magnetoresistance ratio and resistance-area product are 101% and 370 $\Omega \cdot \mu m^2$, respectively. We investigated the WER from the 10⁵ repeated events at various conditions of pulse duration and pulse amplitude and external magnetic field.

First, we observed the bidirectional switching and oscillatory behavior of switching probability. These results clearly indicate that the observed switching originates from the voltage-induced magnetic anisotropy change. Figures 1 (a) – (c) show the WER as a function of pulse duration under different conditions of the in-plane magnetic field strength. The minimum of WER, (WER)_{min}, was obtained at the half period of the magnetization precession, which becomes shorter as increasing the in-plane magnetic field. Increase of switching time results in low (WER)_{min} because the effect of thermal agitation becomes negligible. However further increase of an in-plane magnetic field increases the (WER)_{min} of 4×10^{-3} was obtained as shown in Fig. 1 (b). The comparison between the results of the experiment and simulation based on a macro-spin model shows a possibility of ultralow WER (< 10⁻¹⁵).

This work was partly supported by ImPACT Program of Council for Science, Technology and Innovation, and a Grand-in-Aid for Scientific Research (No. 26886017).

Reference

[1] M. Weisheit *et al.*, *Science* **315**, 349 (2007), [2] T. Maruyama *et al.*, *Nature Nanotechnol.* **4**, 158 (2009), [3] Y.
Shiota *et al.*, *Nature Mater.* **11**, 39 (2012), [4] S. Kanai *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 122403 (2012), [5] Y. Shiota *et al.*, *Appl Phys. Express* **9**, 013001 (2016)



Figure 1 Write error rate (WER) as a function of pulse duration under in-plane magnetic fields of (a) 14 mT, (b) 20 mT, and (c) 38 mT. Blue and red curves represent the WER from P to AP state and AP to P state, respectively.

高次の磁気異方性を有する自由層の磁化反転特性

松本利映 *, 荒井礼子 **,*, 湯浅新治 *, 今村裕志 *

(* 産総研, **JST さきがけ)

Magnetization switching property in a free layer having higher-order magnetic anisotropy R. Matsumoto^{*}, H. Arai^{**,*}, S. Yuasa^{*}, and H. Imamura^{*} (*AIST, **JST-PRESTO)

1 はじめに

CPU の SRAM や DRAM を置き換えるための STT-MRAM を開発するためには、その熱耐性 (Δ_0) を 60 以上に保持しつつスピントランスファー・トルク磁化反転の閾値電流密度 (J_{sw}) を 1 MA/cm² 以下に低減させることが求められる. 最近我々は、等しい熱耐性 Δ_0 (=60) で比較した場合、コーン磁化の自由層 (c-FL) は従来の垂直磁化の自由層より閾値電流密度は 22% 小さく磁化反転時間は 56% 短くなることなど、c-FL の優位性を理論的に明らかにしてきた ^{1,2)}. コーン磁化とは、低次の磁気異方性 (その定数を $K_{u1,eff}$ と呼び、反磁場エネルギーを含めたものとする) と高次の磁気異方性 (その定数を K_{u2} と呼ぶ) の競合で発現する磁化状態で、その磁化は面内方向と面直方向の間の方向を向く. コーン磁化にならずとも K_{u2} は J_{sw} 低減に有利であると考えられる. 本研究では、 K_{u2} を有する自由層を利用した STT-MRAM 素子の Δ_0 と J_{sw} を解析的に計算し、その効果を調べた.

本研究で考慮する STT-MRAM 素子を図 1(a) に図示した.参照 層は垂直磁化で,自由層は垂直磁化かコーン磁化である.極角 (θ) は z 軸から測った角度である.正の電流のとき電子 (電気素量を e と する) は自由層から参照層へ流れる.

自由層のエネルギー密度 (ϵ) は次のように書き表される: $\epsilon = K_{u1,eff} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta$. 図 1(b) に磁化状態の $K_{u1,eff}, K_{u2}$ 依存性を示している. $K_{u1,eff} < 0$ かつ $K_{u2} > -(1/2)K_{u1,eff}$ のときにコーン磁化が安定状態となる. $K_{u1,eff} > 0$ のときに垂直磁化が安定状態か準安定状態となる.

 Δ_0 の解析式は ϵ から得られる.図 1(c)の①の領域す なわち [$K_{u1,eff}$ < 0 かつ K_{u2} > $-(1/2)K_{u1,eff}$]のとき Δ_0 = $\left(K_{u1,eff} + K_{u2} + \frac{K_{u1,eff}^2}{4K_{u2}}\right)V/(k_BT)$,②の領域すなわち [$K_{u1,eff}$ > 0 か つ $K_{u2} \ge -(1/2)K_{u1,eff}$]のとき Δ_0 = ($K_{u1,eff} + K_{u2}$) $V/(k_BT)$,③ の領域すなわち [$K_{u1,eff}$ > 0 かつ $K_{u2} \le -(1/2)K_{u1,eff}$]のとき Δ_0 = $\left[-K_{u1,eff}^2/(4K_{u2})\right]V/(k_BT)$ である³⁾.解析式から計算した Δ_0 の $K_{u1,eff}, K_{u2}$ 依存性を図 1(d) に示す. $K_{u1,eff}$ と K_{u2} は大きいほど Δ_0 は大きい.

 J_{sw} の解析式はランダウ-リフシッツ-ギルバート方程式から得られる. 図 1(e) の ① の領域すなわち [$K_{u1,eff} > 0$ かつ $K_{u2} \ge (1/4)K_{u1,eff}$] または [$K_{u1,eff} < 0$ かつ $K_{u2} > -(1/2)K_{u1,eff}$] のとき $J_{sw} = \frac{8}{3\sqrt{6}} \frac{\alpha d|e|}{\hbar P} \sqrt{\frac{(K_{u1,eff} + 2K_{u2})^3}{K_{u2}}}$ であり、 $K_{u1,eff}$ と K_{u2} は大きいほど J_{sw} も大きい. 一方で ② の領域すなわち [$K_{u1,eff} > 0$ かつ $K_{u2} \le (1/4)K_{u1,eff}$] のとき $J_{sw} = 4 \frac{\alpha d|e|}{\hbar P} K_{u1,eff}$ であり、 J_{sw} は $K_{u1,eff}$ のみに 比例する. 解析式から計算した J_{sw} の $K_{u1,eff}$ 、 K_{u2} 依存性を図 1(f) に 示す. 図 1(e), (f) から [$K_{u1,eff} > 0$ かつ 0 < $K_{u2} \le (1/4)K_{u1,eff}$] のと きは、 K_{u2} は Δ_0 の上昇に寄与するものの J_{sw} を上昇させないこと がわかる. Δ_0 を保持させつつ J_{sw} を低減させる観点からはこの領 域が最も有利であると考えられる.

2 結果および考察



Fig. 1 (a) STT-MRAM 素子の模式図. (b): 磁化状態, (c), (d): Δ_0 , (e), (f): J_{sw} の $K_{ul,eff}$, K_{u2} 依存性. (c) と (e) は解析 式の区分を表す.

References

- 1) R. Matsumoto, H. Arai, S. Yuasa, and H. Imamura: Appl. Phys. Express, 8, 063007 (2015).
- 2) R. Matsumoto, H. Arai, S. Yuasa, and H. Imamura: Phys. Rev. B, 92, 140409(R) (2015).
- 3) 本文中の数式における記号の意味は次の通りである: *V* と *d* は自由層の体積と厚さ, *k*_B はボルツマン定数, *T* は絶対温度, *α* はギルバート・ ダンピング定数, *h* はディラック定数, *P* はスピン分極率.

Deep etching microfabrication of perpendicularly magnetized MTJ

Akio Fukushima, Kay Yakushiji, Hitoshi Kubota, Shinji Yuasa (AIST, Spintronics Research Center)

Low damage microfabrication is one of the most importance issue to fabricate higher density magnetic memory devices. Etching process of the pillar part of magnetic tunnel junction (MTJ) is thought to be the main origin of the processing damage. Argon ion beam etching has been used widely to fabricate the pillar part of MTJs because its etching rate is not much sensitive to film materials. Reduction of the beam voltage of Ar ion beam etching is a straight way to decrease the processing damage. Here, we report the deep etching microfabrication using low voltage Ar ion beam etching, and some of the deep etched MTJs show enhancement of coercive field (H_c) and keep thermal activated energy (Δ).

We introduced new fabrication machine which is combining one etching chamber and two deposition chambers. This machine makes possible to etch the pillar of MTJs and then to transfer the deposition chamber without breaking the vacuum. The beam voltage and current of Ar ion beam is set to 150V and 45 mA, respectively. Low resistance perpendicularly-magnetized MTJs [1] were used to estimate the process damage. We prepared a film of perpendicularly-magnetized MTJ, which is consisting of buffer layer / [Co (0.24 nm)/Pt (0.16 nm)]⁹ / Co (0.24 nm) / Ru (0.52 nm) / [Co (0.24 nm)/Pt (0.16 nm)]⁴ / W (0.1 nm) / CoB (0.4 nm) / W (0.1 nm) / FeB (1.1 nm) / MgO barrier / FeB (~2 nm) / MgO cap / cap layer by ultra-high vacuum sputtering machine (Canon-Anelva C-7100). The top of the buffer layer is about 50 nm-thick Ta layer. The film was annealed at 330°C for 1 hour, and then microfabricated into circular MTJs with etching masks of 85, 75, 65 nm diameters. The resistance-area (RA) product of the film was 2.0 Ω ·µm².

Two etching processes are tested; the first is standard etching where the MTJ film was etched down to just top of the buffer layer; and the second is deep etching where the film was over etched into the middle of the buffer layer. The etching depth was monitored by secondary ion mass spectrometer, but we need to care that the etching depth near the pillar tends to be smaller than that of the plane part. The typical etching time for the standard etching is 30 min. and that for the deep etching is about 50 min. After that, the pillar was covered by SiO_2 layer without breaking the vacuum, and then lift-offed the etching mask and made the top electrode.

For both cases, the magnetoresistance (MR) ratios of the MTJs were 110~120% and well coincident. Diameters of the MTJs were estimated from the resistance of parallel state and the RA value. Reduction of the diameter was about 15nm for standard etching and that was about 25 nm for deep etching. We found the deep etched MTJs tend to have larger coercive field (H_c) that standard etched one and those MTJs have relative large thermal activation energy (Δ) where Δ was evaluated from the current dependence to the switching probability [2].

This work was supported by ImPACT Program of Council for Science, Technology and Innovation.

Reference

[1] K. Yakushiji *et al.*, Appl. Phys. Express 6 (2013) 113006, [2] Edited by T. Shinjo, "Nanomagnetims and Spintronics" (1st edition, Elsevier), Authors: Y. Suzuki, A. A. Tulapurkar, and C. Chappert, Chap. 3 (2009).



Figure 1 Relationships between (a) estimated diameter of MTJ and H_c , (b) estimated diameter and Δ , (c) H_c and Δ .

Spintronics devices for nonvolatile VLSI

Hideo Ohno¹⁻⁵

¹ Laboratory for Nanoelectronics and Spintronics, RIEC, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan
 ² Center for Spintronics Integrated Systems, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan
 ³ Center for Innovative Integrated Electronic Systems, Tohoku University, Sendai 980-0845 Japan
 ⁴ Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai, 980-8577 Japan
 ⁵ WPI-Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

Here I review two- and three-terminal nano-spintronics nonvolatile devices for VLSI integration. VLSIs can be made high performance and yet standby-power free by using nonvolatile spintronics devices ¹). The most commonly employed device is magnetic tunnel junction (MTJ), a two-terminal spintronic device that can scale beyond 20 nm with perpendicular CoFeB-MgO ^{2,3)}. I will describe the development of such devices and its performance together with associated materials and physics issues. While two-terminal configuration is suitable for high density applications, three-terminal configuration allows high speed and relaxed VLSI design constraints compared to the two-terminal counterpart. Of particular interest are three-terminal devices that utilize spin-orbit torque (SOT) switching, which does not require an antiferromagnetically aligned pair of magnetic electrodes as in current-induced domain wall motion devices ⁴⁾. On this front, I will discuss high speed operation of an SOT switching device with a target ferromagnetic pillar having an out-of-plane easy axis ⁵⁾ or an in-plane magnetic easy axis collinear with the current flow direction in the underneath heavy-metal ⁶). The magnetization switching is achieved with 500-ps pulses, which is not readily available in two-terminal devices utilizing spin-transfer torque (STT) switching, because STT requires switching current inversely proportional to the switching speed in this speed range. I then report the use of an antiferromagnetic material as a source of spin flow as well as the exchange field. Before, structures for fast SOT switching required a small constant external magnetic field to induce switching, which was an obstacle for application. It has been shown in a (Co/Ni)-multilayer/PtMn structure that one can switch magnetization in the absence of external magnetic field using PtMn as a source of spin⁷), removing this obstacle. I summarize my talk by comparing two- and three-terminal device performance.

This work has been carried out with S. Fukami, H. Sato, F. Matsukura, S. Ikeda, and the CSIS team, and has been supported by the ImPACT Program of CSTI (PM Dr. Masashi Sahashi) and in part by the R&D Project for ICT Key Technology of MEXT.

- 1) H. Ohno, International Electron Device Meeting (IEDM) (invited) 9.4.1 (2010).
- 2) S. Ikeda, et al. Nature Materials, 9, 721 (2010).
- 3) H. Sato, et al. IEDM 2013 and Appl. Phys. Lett. 105, 062403 (2014).
- 4) S. Fukami, et al. IEDM 2013; Nature Comm. 4:2293 doi: 10.1038/ncomms3293 (2013); IEEE Trans. Magn. 50,
- 34106 (2014); Phys. Rev. B 91, 235401 (2015).
- 5) C. Zhang, et al., Appl. Phys. Lett., **107**, 012401 (2015).
- 6) S. Fukami, et al. Nature Nanotechnology, doi:10.1038/nnano2016.29 (2016).
- 7) S. Fukami, et al. Nature Materials, 15, 535 (2016).

Low Power NV-Working Memory and NV-Logic with Spintronics/CMOS Hybrid ULSI Technology

T. Endoh^{1,2,3,4}, H. Koike¹, Y. Ma¹, T. Hanyu^{1,3,4}, S. Ikeda^{1,3,4}, and H. Ohno^{1,3,4,5,6}

¹Center for Innovative Integrated Electronic Systems, Tohoku University, Sendai 980-0845 Japan
 ²Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai, 980-8579 Japan
 ³Center for Spintronics Integrated Systems, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan
 ⁴Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai, 980-8577 Japan
 ⁵Laboratory for Nanoelectronics and Spintronics, RIEC, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan
 ⁶WPI-Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

In information and communication technology (ICT) equipment indispensable for modern society, semiconductor memories occupy the main position of silicon storage, working memories, and logic blocks. Semiconductor memories in ICT equipment normally constitute a pyramid-like structure from cache memory (SRAM), main memory (DRAM) to storage memory (NAND). In such current semiconductor memories, there are two key issues: (1) speed gap between different levels of the memory hierarchy and (2) rapid increase in the power consumption because of the increased density. In order for ICT technology to keep contributing for the world society under the situation, where the more energy-saving is strongly required, it is essential to develop and commercialize LSIs which achieve both reduction of power dissipation and enhancement of speed performance.

In this invited talk, it is reviewed material and STT-MRAM device technology including the basics of MTJ device. Especially, our recent development results of spintronics LSIs are reviewed. We discuss STT-MRAM including the fast differential type STT-MRAM and the high-density 1T1MTJ type STT-MRAM, and then move onto MTJ based Nonvolatile (NV-) Logic LSIs. From these results, it is shown that STT-MRAM will solve both issues of speed gap and power consumption simultaneously. Next, from the background mentioned above, the directionality of the revolution in the semiconductor memory hierarchy structure is discussed. The realization of this revolution with STT-MRAMs is introduced. It is shown that our developed 1Mbit STT-MRAM fabricated with 90 nm CMOS and 70nm MTJ process, achieves Read/Write performance of 1.5nsec / 2.1nsec which is sufficient for cache memory application. Next, we show ultra-high speed 1Mbit STT-MRAM with developed differential type STT-MRAM cell (twin 1T-1MTJ cell technology), which achieves the read latency of 500 psec. Finally, NV-logic as one of application technology of leading edge memory technology is shown. It is discussed that power of MPU and Associative Processor for Image Pattern Recognition is extremely suppressed with spintronics based NV-logic technique

This work was supported in part by CIES's Industrial Affiliation on STT -MRAM Program, R&D Project for ICT Technology of MEXT, ImPACT Program of CSTI, and ACCEL Program under JST.

<u>Reference</u>

- 1) T. Endoh, et al. 2011 IEDM, pp.75-78, 2011.
- 2) T. Endoh, et al. Symposia on VLSI Circuits, pp89-90, 2012, (Invited)
- 3) T. Endoh, 2013 VLSI Technology Short Course of 2013 Symposium on VLSI, June 2013 (Invited)
- 4) T. Endoh, CMOS Emerging Technologies Research, MINATEC, 2014 (Invited)
- 5) H. Koike, et al. Jpn. J. Appl. Phys. 54, 04DE08, March 2015.
- 6) T. Endoh, 2016 MRS Spring Meeting & Exhibit, EP11.1.08, 2016 (Invited)
- 7) Y. Ma, et al., Japanese Journal of Applied Physics(JJAP),55(4S), 2016
- 8) H. Koike, et al., 2016 International Memory workshop, May 2016
- 9) T. Endoh et al., IEEE Journal on Emerging and Selected Topics in Circuit and Systems (JESCAS), 2016

Three-terminal spintronics devices with spin-orbit torque induced switching for ultra-low power and high-performance integrated circuits

S. Fukami¹⁻⁴, C. Zhang¹, S. DuttaGupta¹, A. Kurenkov¹, T. Anekawa¹, A. Ohkawara¹, and H. Ohno¹⁻⁵

¹ Laboratory for Nanoelectronics and Spintronics, RIEC, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan
 ² Center for Spintronics Integrated Systems, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan
 ³ Center for Innovative Integrated Electronic Systems, Tohoku University, Sendai 980-0845 Japan
 ⁴ Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai, 980-8577 Japan
 ⁵ WPI-Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577 Japan

Spintronics memory devices with three-terminal configuration are suitable for high-speed and high-reliability applications compared with the devices with two-terminal configuration, owing to their separated current paths between the read and write operations ¹⁾. Spin-orbit torque (SOT)-induced magnetization switching ^{2,3)} is a promising scheme for the write operation of the three-terminal devices. Here we show our recent studies on the SOT-induced switching which open new possibilities of the devices and integrated circuit technologies.

The previous studies on the SOT switching build on either of two structures, both of which have the magnetic easy axis of the free layer directing orthogonal to the current: perpendicular to the plane ²⁾ or in-plane and orthogonal to the channel current ³⁾. We have recently shown the third switching scheme with the easy axis collinear with the current ⁴⁾. The current-induced switching originating from the SOT with Slonczewski-like symmetry has been observed in a three-terminal device with the new structure, where a Ta/CoFeB/MgO-based stack is used. Importantly, this scheme can serve as a useful tool to investigate the physics of SOT-induced switching ⁴⁾ as well as an attractive option for the application to the integrated circuits ⁵⁾. In the presentation, we show that the new scheme allows us to unambiguously discuss the factors that determine the SOT switching current density and the difference in the dynamics between the SOT and conventional spin-transfer-torque induced magnetization switching. We also show reliable switching achieved by current pulses with the duration of 500 ps and amplitude of 1.9×10^{11} A/m²; this feature is highly promising for high-performance integrated circuits.

This work is partly supported by ImPACT Program of CSTI, R&D Project for ICT Key Technology of MEXT, and JSPS KAKENHI 15K13964 and 15J04691.

<u>Reference</u>

- 1) S. Fukami M. Yamanouchi, S. Ikeda, and H. Ohno, IEEE Trans. Magn., 50, 3401006 (2014).
- 2) I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella *et al.*, Nature **476**, 189 (2011).
- 3) L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Science 336, 555 (2012).
- 4) S. Fukami, T. Anekawa, C. Zhang, and H. Ohno, Nature Nanotech., doi: 10.1038/nnano2016.29 (2016).
- 5) S. Fukami, T. Anekawa, A. Ohkawara, C. Zhang, and H. Ohno, 2016 Symp. on VLSI Tech., Dig. Tech. Pap., T6-5 (2016).

Room temperature growth of ultrathin ordered Mn-Ga films

•K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, A. Sugihara, T. Miyazaki, and S. Mizukami WPI Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

L1₀-MnGa alloy films have a large perpendicular magnetic anisotropy and small damping constant¹⁾ and it is potentially attractive for Spin-transfer-torque magnetoresistive random access memory (STT-MRAM) applications. Growth of ultrathin Mn-Ga films, whose thickness is usually less than 3 nm, is required for STT-switching, whereas it has been difficult.²⁻⁵⁾ Here we demonstrate the growth of ultrathin MnGa films with

thickness down to 1 nm by using paramagnetic CoGa buffer layer having CsCl-type crystal structure. All the samples were prepared by a ultrahigh vacuum (UHV) magnetron sputtering system.

The sample stacking structure is MgO(001) substrate/Cr (40)nm)/CoGa nm)/MnGa (30) $(t_{MnGa}=1-5)/Mg$ (0.4) /MgO (5). The Cr and CoGa buffer layers were deposited at room temperature and subsequently annealed at 700 and 500°C, respectively. The MnGa layer was deposited on the CoGa buffer layer at room temperature and not annealed. The out-of-plane polar Kerr loops for these films are shown in Fig. 1. The loops with squareness close to unity are observed even at t_{MnGa} = 1 nm.⁶ Figure 2 shows a cross-sectional image of CoGa/MnGa/MgO layers measured by a high-angle annular dark-field scanning transmission electron microscopy (HAADF-STEM). The atomically flat interfaces and well-ordered crystalline structure of the MnGa layer was observed.⁷⁾ These results indicate that the CoGa buffer layer is a promising candidate for growth of ultrathin film of Mn-based alloys. We will also discuss the spin-dependent transport properties.

This work was supported in part by NEDO, ImPACT program "Achieving ultimate Green IT Devices with long usage times without charging", and Asahi glass foundations.

Reference

- 1) S. Mizukami et al, Phys. Rev. Lett. 106, 117201 (2011).
- 2) F. Wu et al., IEEE Trans. Magn. 46, 1863 (2010).
- 3) A. Kohler et al., Appl. Phys. Lett. **103**, 162406(2013).
- 4) M. Li, X. Jiang, et al., Appl. Phys. Lett. 103, 032410 (2013).
- 5) Y. H. Zheng et al., J. Appl. Phys. 115, 043902 (2014).
- 6) K.Z. Suzuki et al., Jpn. J. Appl. Phys. (RC) 55, 010305 (2016).
- 7) K.Z. Suzuki et al. submitted, 2016.



Fig. 1 Out-of-plane hysteresis curves for the ultrathin MnGa films with different thickness measured by polar magneto-optical Kerr effect.



Fig.2 The cross-sectional HAADF-STEM image of the CoGa/MnGa/MgO layers. Right cartoon is the schematic for the corresponding to the atomic structures.

Ultrafast Dynamics and Control of the Spin Systems using Terahertz Magnetic Field

M. Nakajima¹, T. Kurihara¹, H. Watanabe², and T. Suemoto³

¹Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan ²Graduate School of Frontier Biosciences, Osaka University, Suita, Osaka 565-0871 Japan ³Toyota Physical and Chemical Research Institute, 41-1 Yokomichi Nagakute, Aichi 480-1192, Japan **e-mail:** nakajima-m@ile.osaka-u.ac.jp

Terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS) based on femtosecond laser has become an established method for studying low-energy excitation dynamics. Especially, the usage of the magnetic field component of THz radiation was recognized as a powerful tool for investigating spin dynamics via magnetic dipole interaction. Up to now, we have demonstrated the applicability of this method to study spin states and dynamics in picosecond region for various materials [1-5]. This presentation aims to giving a brief overview of the study of spin manipulation with THz magnetic fields we have pursued so far, focusing mainly at the coherent spin manipulation in ferro-[1] and weak ferromagnets [2,3]. Specifically, here we show the capability of plasmonically-enhanced intense THz magnetic nearfield to coherent control of macroscopic magnetization in weak ferromagnet ErFeO₃ during spin reorientation phase transition (SRPT), which opens new route for the future spintronics devices.

The ever-growing demand for high speed spintronics devices propelled extensive searches of spinmanipulation methods based on ultrafast optical techniques, attempting to control the coherent spin dynamics and macroscopic magnetic order. Recent advancements in the THz time-domain spectroscopy techniques enabled direct visualization of ultrafast spin dynamics in the picosecond time scales. As the photon energy of THz region lies far below that of most electronic transitions, in this frequency region the magnetic field component of the THz pulse can directly access magnetic-dipole transition of electron spins without supplying excess heat into the system. In this presentation, we demonstrate some of our recent achievements of coherent control of macroscopic magnetization in spin systems using such THz magnetic fields. It is based on the plasmonic enhancement of magnetic fields in the nearfield region to locally amplify the spin precession motion, and the usage of an intrinsically magnetic fluctuation-sensitive process of SRPT.

The ErFeO₃ (001) single crystal, which is a canted antiferromagnet, was used as a sample. It shows SRPT between 85 and 96 K accompanying continuous orientation change of magnetization from *a*-axis to *c*-axis at low and high temperatures, respectively. The THz pulse with peak electric field up to 300 kV/cm were generated from LiNbO₃ crystal by the pulse front tilting method and used to pump a split-ring-resonator (SRR) structure fabricated on the sample surface. The spectral amplitude of the THz magnetic field was enhanced by over an order of magnitude by the SRR with a dimension of 200 x 200 μ m² [4], to drive spin precession motion around the SRPT temperature (T=84K), which was probed by near-infrared (NIR) Faraday rotation. At the moment of spin precession we apply an NIR pulse to heat up the sample above SRPT

temperature into the high-temperature phase. As a result of symmetry breaking of the directionality of SRPT caused by THzinduced spin precession, we succeeded in generating almost uniformly magnetized states in the final state, with its direction selectable by controlling the arrival timing of the heating pulse relative to the THz pulse (Fig.1). The final magnetization is over 80 % of saturation value. Our results indicate that even the small-amplitude spin precession can induce macroscopic change of spin order by utilizing phase transition process, extending the potential of THz application to controlling magnetic domains picoseconds timewithin and subwavelength spatial resolution.



Fig. 1 Typical temporal evolution of out-of-plane magnetization measured by THz-pump optical Faraday probe experiment: Heating pulses arrive 57 ps (red) and 65 ps (blue) after THz irradiation at t = 0 ps. Black dotted curve shows spin precession without heating pulse.

References

- [1] M. Nakajima, A. Namai, S. Ohkoshi, T. Suemoto, Optics Express 18, 18260 (2010).
 [2] K. Yamaguchi, M. Nakajima, and T. Suemoto, Phys. Rev. Lett. 105, 237201 (2010).
 [3] K. Yamaguchi, *et al.*, Phys. Rev. Lett. 110, 137204 (2013).
- [4] T. Kurihara, et al., Phys. Rev. B 90, 144408 (2014).
- [5] K. Yamaguchi, et al., Phys. Rev. B 92, 064404 (2015).

Optical-switching of second harmonic light in chiral photomagnet

Hiroko Tokoro,^{1,2} and Shin-ichi Ohkoshi²

¹ Division of Materials Science, Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8573, Japan, ² Department of Chemistry, School of Science, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033, Japan

To control the physical properties and functionalities of materials via optical stimulation is an attractive issue. Spin-crossover phenomenon has been extensively studied because it realizes temperature-, pressure-, or photo-switching of the physical properties and functionalities. In particular, photo-switching from the low-spin (LS) state to the high-spin (HS) state, which is known as light-induced excited spin-state trapping (LIESST), is effective for optical control. Up to date, we have reported various unique photomagnetic mateirals using cyano-bridged bimetallic assemblies.^{1,2} For example, we have reported an iron-octacyanoniobate metal complex, $Fe_2[Nb(CN)_8] \cdot (4-pyridinealdoxime)_8 \cdot 2H_2O$ and a photo-induced ferromagnetism originated by LIESST effect for the first time.³ In this work, we synthesize a new 3-dimensional chiral cyano-bridged bimetallic assembly of iron-octacyanoniobate, (\pm) -Fe₂[Nb(CN)_8](4-bromopyridine)_8 \cdot 2H_2O (1),⁴ and firstly observed spin-crossover-induced second harmonic generation (MSHG) effect.

Cyano-bridged FeNb bimetallic assembly of **1** has a chiral structure in the *I*4₁22 space group (Fig.1). The temperature (*T*) dependence of the molar magnetic susceptibility (χ_M) shows a thermal phase transition between the high-temperature (HT) phase and the low-temperature (LT) phase. The transition temperatures from the HT to LT ($T_{1/21}$) and from the LT to HT ($T_{1/21}$) are 112 K and 124 K, respectively. The UV-vis absorption spectra exhibits optical absorptions at 430 nm and 560 nm, which are assigned to ${}^{1}A_{1} \rightarrow {}^{1}T_{2}$ and ${}^{1}A_{1} \rightarrow {}^{1}T_{1}$ transitions on the Fe^{II}_{LS} site, respectively. Therefore, the transition from the HT to LT in the $\chi_M T-T$ plot is due to spin-crossover from Fe^{II}_{HS} (S = 2) to Fe^{II}_{LS} (S = 0).

Photomagnetic effect of 1 was investigated. Irradiating the LT phase with 473-nm light at 2 K produces large spontaneous magnetization. (Hereafter, called PI-1.) The magnetization (M) versus T curve shows a Curie temperature ($T_{\rm C}$) of 15 K. The saturation magnetization ($M_{\rm s}$) at 5 T is 7.6 $\mu_{\rm B}$, close to the expected $M_{\rm s}$ value of 7.8 $\mu_{\rm B}$ due to ferrimagnetic coupling between Nb^{IV} (S = 1/2) and the photo-produced Fe^{II}_{HS} (S = 2). UV-vis spectrum and Mössbauer spectrum indicated that the observed bulk magnetization is due to the light-induced spin-crossover from Fe^{II}LS to Fe^{II}HS, i.e., LIESST effect. Next, we investigated the optical-switching effect on MSHG. Prior to irradiation, SHG for the LT phase of the paramagnetic state was measured. The SH intensity versus analyzer rotation angle (θ) plot shows that θ_{max} is 0° at $\pm H_0$, which is similar to the θ dependence of the SH intensity observed at 80 K. In the PI-1 phase, which is produced by LIESST effect with 473-nm light irradiation, θ_{max} at + H_0 is +88 ± 3° (Fig. 2). In contrast, at - H_0 , θ_{max} is -86 ± 4°. In the PI-2 phase, produced by Reverse-LIESST effect with 785-nm light irradiation, the θ_{max} values are returned to $+3 \pm 1^{\circ}$ and $-3 \pm 1^{\circ}$ at $+H_0$ and $-H_0$, respectively. In the present system, LIESST and Reverse-LIESST effects





Fig. 2 Optical switching of the polarization plane of the output SH light between the PI-1 and PI-2 phases.

control the polarization plane of the output SH light. The photo-reversibility was confirmed by alternative irradiation of 473-nm light and 785-nm light, which showed photo-reversible change in the SH intensity at $\theta = 0^{\circ}$.

Reference

H. Tokoro and S. Ohkoshi, Dalton Trans., **40** (2011) 6825. 2) H. Tokoro and S. Ohkoshi, Bull. Chem. Soc. Jpn., **88** (2015) 227. 3) S. Ohkoshi, K. Imoto, Y. Tsunobuchi, S. Takano, H. Tokoro, Nature Chem., **3** (2011) 564. 4) S. Ohkoshi, S. Takano, K. Imoto, M. Yoshikiyo, A. Namai, H. Tokoro, Nature Photon., **8** (2014) 65.

Ultrafast optical excitation of magnetic materials

Naoki Ogawa

Emergent Photodynamics Research Unit, RIKEN CEMS, Wako, Saitama 351-0198, Japan

The field of ultrafast opto-spintronics has emerged with a pioneering work on ferromagnetic Ni¹⁾. As one of the recent topics, we introduce our time-resolved spectroscopic studies on topological spin textures.

Magnetic skyrmions, spin vortices of topological origin, have been identified in several magnetic materials and at interfaces²⁾. Their lateral extent depends on the magnetic interactions involved; some chiral magnets with the Dzyaloshinskii-Moriya interaction produce skyrmions with the size of 1-200 nm, which are suitable for magnetic information devices. These skyrmions show various emergent electromagnetic interactions, such as topological and Skyrmion Hall effects²⁾, and can be driven under an extremely small charge current or by magnons. The optical response/control of this nano-magnetic structure, in an ultrafast manner, will be of practical importance.

We report real-time dynamics of skyrmions in an insulating ferrimagnet $Cu_2OSeO_3^{(3)}$, studied by all-optical spin-wave spectroscopy. The spins in the helical, conical, and skyrmion phases were excited by the impulsive magnetic field of the inverse Faraday effect⁴⁾ at non-absorbing photon energies, and subsequent precessional relaxations were detected through conventional magneto-optics. Clear dispersions of the helimagnon were observed, which was accompanied by a transition into the skyrmion phase when sweeping temperature and magnetic field. In the skyrmion phase, three collective excitations were identified, distinct from those in the surrounding conical phases (Fig. 1). These spin dynamics can be readily assigned to the clockwise/counter-clockwise rotations and breathing modes of the skyrmion crystal.

In addition to identifying the dynamics of topological spin textures, we are able to infer the spatial propagation and interaction of the magnetic excitations in these nano-magnetic spin structures by using variety of optical/microscopy techniques. As an example, we demonstrate an optical-drive of magnetic bubbles, which can be topologically equivalent to the skyrmion. In this case, magnetoelastic waves, coupled propagations of magnon and phonon, were photoexcited in iron garnet films. These magnetic excitations were found to interact with magnetic domains and domain walls more efficiently when the domain wall has steeper curvature⁵ (Fig. 2).

If time allows, we will also discuss the spin-polarized photocurrent generation in ferromagnetic topological insulators, in which the mass-gap in the Dirac dispersion can be controlled by an external magnetic field.

Reference

- 1) E. Beaurepaire et al., Phys. Rev. Lett. 76, 4250 (1996).
- 2) N. Nagaosa and Y. Tokura, Nature Nanotechnol. 8, 899 (2013).
- 3) N. Ogawa, S. Seki, and Y. Tokura, Sci. Rep. 5, 9552 (2015).
- 4) A. Kirilyuk, A.V. Kimel, and T. Rasing, Rev. Mod. Phys. 82, 2731 (2010).
- 5) N. Ogawa et al., Proc. Natl, Acad. Sci. 112, 8977 (2015).



Fig.1 Spin precessions in skyrmion crystal phase.

Fig.2 Optically-excited magnetoelastic wave.

Photoinduecd spin-state dynamics in thin film of perovskite cobalt oxide investigated by time-resolved x-ray diffraction

Ryo Fukaya

(Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Tsukuba 305-0801, Japan)

Research on macroscopic quantum systems, which involve interplays among charge, spin, and orbital degrees of freedom, is important in condensed matter physics because it can lead to the emergence of unique optical, magnetic, elastic, and thermoelectric phenomena. The phase transition caused by optical stimulation is called photoinduced phase transition (PIPT) and has been of current interest during the past decades. With time-resolved techniques by using femto- and picosecond pulsed lights, it is possible not only to observe the dynamics of the electronic interactions among the degrees of freedom but to control the electronic, magnetic, and orbital order on an ultrafast timescale.

Perovskite-type cobalt oxides showing spin-crossover phenomenon have been regarded as promising materials exhibiting novel PIPT phenomena [1-3]. The LaCoO₃ containing the nominally trivalent Co ion (Co³⁺) is a typical spin-crossover system and may take three different spin state: the low-spin (LS) state (t_{2g}^{6} , S = 0), intermediate-spin (IS) state ($t_{2g}^{5}e_{g}^{1}$, S = 1), and high-spin (HS) state ($t_{2g}^{4}e_{g}^{2}$, S = 2). The spin-crossover transition from nonmagnetic LS ground state to paramagnetic HS and/or IS states occurs with increasing temperature around 90 K. The recent research has revealed that the magnetic properties and the Co-3*d* orbital ordering can be tuned by the epitaxial strains [4,5]. In this study, we investigated the photoinduced state in an epitaxial thin film of LaCoO₃. To identify the transient structural change correlated with the spin states directly, we measured a time-resolved x-ray diffraction at PF-AR NW14A.

The single crystalline film (60 nm thick) of LaCoO₃ was fabricated on the (LaAlO₃)_{0.3}(SrAl_{0.5}Ta_{0.5}O₃)_{0.7} (LSAT) substrate with (110) orientation by pulsed laser deposition, which exhibits the strain induced spontaneous magnetization ($T_c = 94$ K) and the lattice distortion with Co-3*d* orbital ordering below 124 K [4]. Figure 1(a) shows the (620) fundamental reflection profiles in LaCoO₃. The peak, which shows a single-peak feature at 120 K, splits into two at 80

K. The peak splitting is ascribed to the lattice distortion with Co-3*d* orbital ordering [4]. Figure 1(b) shows the difference peak profile between before and after photoexcitation at 80 K, obtained by an optical-pump and x-ray-probe technique. The x-ray pulse duration is 100 ps and the photon energy of the optical pump pulse is 3.10 eV with the second harmonics of the fundamental Ti:sapphire regenerative amplified pulse (photon energy: 1.55 eV, pulse duration: 120 fs, and repetition rate: 1 kHz). The shape of the difference peak profile indicates that the two peaks are changed toward the single-peak feature. This result suggests the structural change due to the photoinduced melting of the orbital order. In this talk, we will also present the transient reflectivity change reflecting the change of the spin state, measured by femtosecond time-resolved reflection spectroscopy, and discuss the PIPT in terms of the spin-structural dynamics.

Reference

- 1) Y. Okimoto et al., Phys. Rev. Lett. 103, 027402 (2009).
- 2) Y. Okimoto et al., Phys. Rev. B 84 121102(R) (2011).
- Y. Okimoto, R. Fukaya *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 82 074721 (2013).
- 4) J. Fujioka et al., Phys. Rev. Lett. 111, 027206 (2013).
- 5) J. Fujioka et al., Phys. Rev. B 92, 195115 (2015).



Fig. 1(a) X-ray diffraction profiles of (620) fundamental reflection along (110) direction at 80 K and 120 K. (b) Differential profile of fundamental reflection before and after photoexcitation (150 ps) at 80 K.

Magnetic dynamics study by soft X-ray photoemission electron microscopy

Takuo Ohkochi Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI)

By combining synchrotron radiation soft X-rays with Photoemission electron microscopy (PEEM), contrast maps based on X-ray absorption fine structures (XAFS) as well as X-ray magnetic circular/linear dichroism (XMCD/XMLD) can be obtained with the spatial resolution in the order of 10-100 nm.

In SPring-8, we possess two PEEM machines. While a spectroscopic photoemission/low-energy electron microscope (SPELEEMIII, ELMITEC GmbH) equipped in BL17SU beamline is widely used for electronic- or magnetic-states analysis of a variety of materials, taking advantage of high spatial resolution and various measurement functions (e.g. nano-XAS, micro-XPS and micro-LEED), a compact and versatile PEEM (PEEMSPECTOR, ELMITEC GmbH) in BL25SU plays an effective role in time-resolved imaging by pump-probe method (time resolution 50-100 ps). So far, we have performed dynamics analysis of magnetic vortex cores excited by pulses or radiofrequencies^{1,2}, ultrafast magnetization switching dynamics under the excitation by femtosecond laser pulses³, and so on. Particularly in magnetic dynamics of ferrimagnetic GdFeCo films by pulsed laser excitation, we discovered giant propagating spin waves whose gyration angle reaching $\pm 20^{\circ}$, given that the damping parameter of the magnetizations is suppressed and gyrotropic motion lasts long (that is to say, under the condition not appropriate for "ultrafast" magnetization switching)(Fig.1). These spin waves are suggested to be created as a consequence of strong spin-phonon coupling and further analysis is now in progress.

We are also developing new measurement systems for advanced spectroscopic and dynamics studies. For example, a prototype of complete co-axial sample cartridge for PEEM showed transmission capacity up to 5 GHz. This system is expected to be utilized for e.g. domain wall dynamics analysis or element-selective nano-FMR.

In this talk, principle of time-resolved PEEM using synchrotron radiation soft X-rays and examples of utilization researches as well as recent status of system development will be reviewed.



Fig.1 Time resolved Gd_M₅-edge XMCD-PEEM images of GdFeCo films promptly after pulsed laser excitation. (a) swift magnetization reversal (condition of strong precession damping) and (b) long-range spin wave propagation (prolonged spin gyration).

References

- 1) K. Arai et al. Jpn. J. Appl. Phys. 50 (2011) 053001.
- 2) T. Ohkochi et al. Jpn. J. Appl. Phys. 51 (2012) 128001.
- 3) T. Ohkochi et al. Jpn. J. Appl. Phys. 51 (2012) 073001.

Ultrafast dynamics studied by time-resolved x-ray diffraction

Hiroki Wadati

(Institute for Solid State Physics, University of Tokyo)

Control of magnetic states by optical excitations in magnetically ordered materials has attracted considerable attention since the demonstration of ultrafast demagnetization in Ni within 1 ps, explored by time-resolved magneto optical Kerr effect studies 1). For this study, we chose time-resolved x-ray measurements to study ultrafast spin dynamics in transition-metal oxides.

X-rays from synchrotron radiation (SR) have time structures related to the SR pulse width of several 10 ps. X-ray free electron laser (XFEL) creates intense ultra-short (fs) x-ray pulses, enabling much more detailed study of the dynamics of the materials. We performed a time-resolved x-ray diffraction and scattering study in a pump-probe setup by using XFEL in LCLS (USA) and by using SR in BESSY (Germany). The pump light is Ti:sapphire laser (800 nm), and the probe is XFEL or SR.

Figure 1 (a) shows the time evolution of the intensity of the superlattice re ection (2 1/2 0) in charge and orbital ordered $Pr_{0.5}Ca_{0.5}MnO_3$ thin films 2). One can see clear oscillations, which correspond to the frequency of coherent phonons. Figure 1 (b) shows the time-resolved x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) intensity in ferromagnetic BaFeO₃ thin films, showing rather slow demagnetization of ~ 100 ps 3), but this time scale was much faster in higher-fluence regions, suggesting photoinduced insulator-metal transitions.

This work has been performed in collaboration with P. Beaud, U. Staub, T. Tsuyama, N. Pontius, C. Schussler-Langeheine, M. Nakamura, S. Chakraverty, H. Y. Hwang, M. Kawasaki, and Y. Tokura, and has been supported by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan (X-ray Free Electron Laser Priority Strategy Program).



Figure 1: (a) Time evolution of the normalized diffracted x-ray intensity for the (2 1/2 0) reflection in $Pr_{0.5}Ca_{0.5}MnO_3$ thin films taken at 6.53 keV (off resonance). This superlattice peak is sensitive to the structural atomic motion. (b) Time evolution of the XMCD intensity in BaFeO₃ thin films taken at 710 eV (Fe $2p_{3/2}$ edge).

Reference

- 1) E. Beaurepaire et al., Phys. Rev. Lett. 76, 4250 (1996).
- 2) P. Beaud, <u>H. Wadati et al.</u>, Nat. Mater. 13, 923 (2014).
- 3) T. Tsuyama, <u>H. Wadati et al.</u>, arXiv:1511.03365v1.

水平方向からの磁場を用いた柔軟鋼板の磁気浮上装置 (浮上支持力に関する実験的検討)

小田吉帆、木田将寛、鈴木稔樹、成田正敬、加藤英晃 (東海大学)

Electromagnetic levitation system for flexible steel plate using magnetic field from horizontal direction (Experimental consideration on suspension force for levitation) Y. Oda, M. Kida, T. Suzuki, T. Narita, H. Kato (Tokai Univ.)

<u>緒言</u>

薄鋼板は工業製品に広く用いられるが、搬送工程ではローラの接触によるメッキ不良や表面品質の劣化が 生じる。この問題の解決方法として磁気浮上を用いた非接触支持技術が検討されている¹⁾。著者らは支持方 向だけでなく水平方向に電磁石を設置し、位置決め制御を行うことで安定した非接触搬送を行う手法を提案 している²⁾。このとき水平方向からの磁場のみによって鋼板が浮上する支持力を得られることを電磁界解析 により確認している³⁾。しかし解析的に確認している鋼板に発生する支持力について実験的な検証は未だ行 えていない。そこで本報告は板厚 0.19 mm の薄鋼板に対して有限要素法を用いた電磁界解析と実験から鋼板 に加わる浮上支持力を求め、水平方向からの磁場を用いた柔軟鋼板の磁気浮上装置に関する基礎的な検討を 行った。

<u>水平方向から磁場を加えた際の吸引力</u>

鋼板に発生する鉛直方向の吸引力 f_z について解析と実験から求める。Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。幅 100 mm、長さ 200 mm、板厚 0.19 mm の薄鋼板 (SS400)の長さ方向の一端を固定し、その自由端のエッジ部 にフェライトコア表面が 5 mm となるように電磁石を設置した。鋼板に発生する鉛直方向の支持力 f_z は、非

接触変位センサより得られた鋼板のたわみ量から算出した。 電磁石に流す定常電流 I_x は 0.3 A から 2.0 A まで 0.1 A 刻み で変化させた。このとき鋼板のたわみを非接触変位センサ を用いて測定した。また電磁界解析ソフト JMAG を用いて 同様のモデルを作成し、 f_z を算出した。

解析と実験から得られた定常電流 I_x と鉛直方向の支持力 f_z の関係を Fig. 2 に示す。解析値と実験値は非常によい一 致を示し $I_x=0.7$ A 以下では I_x の変化に対し f_z は大きく変化 することが分かった。

<u>結言</u>

水平方向から磁場を加えた際に鋼板に発生する支持力に ついて解析と実験から比較検討を行った。今後は得られた 実験結果を基に装置を作製し浮上実験を行う予定である。

- F. Kubota et. al., Proceedings of IECON 2013 39th Annual Conference of the IEEE, (2013), 3439-3444.
- 2) 押野谷他, 日本機械学会論文集 C 編, 68-69, (2002), 1428-1434.
- 成田他,第23回 MAGDA コンファレンス講演論文集, (2014), 123-128.



Fig. 1 Experimental apparatus for electromagnetic suspension.



Fig. 2 Relation between steady current and suspension force.

柔軟鋼板の湾曲浮上制御(湾曲鋼板の弾性振動に関する基礎的検討)

多田誠、米澤暉、丸森宏樹、成田正敬、加藤英晃 (東海大学)

Bending levitation control for flexible steel plate (Fundamental consideration on elastic vibration of bending steel plate) M. Tada, H. Yonezawa, H. Marumori, T. Narita, H. Kato

(Tokai Univ.)

<u>はじめに</u>

近年、磁気浮上技術の応用による非接触搬送に関する 検討が盛んに行われている^{1,2)}。当研究グループは、こ れまでに板厚 0.30 mm 鋼板を用いた磁気浮上に関する 検討を行い、その実現性を確認している³⁾。また、さら に薄い鋼板を対象とする場合には鋼板を塑性変形しな い範囲で曲げた状態で浮上させることを提案し、安定し た浮上状態の実現を確認している⁴⁾。本研究では更なる 浮上性能の向上を目指す新システム構築の前段階とし て、鋼板に生じる振動のメカニズムに関して部分的に剛 性を高めた鋼板を用いて実験的に検証した。

浮上実験

Fig. 1 に装置の概略図を示す。浮上対象は長さ 800 mm、 幅 600 mm、厚さ 0.18 mm の長方形亜鉛めっき鋼板とす る。鋼板を 5 箇所の電磁石により非接触支持するために、 鋼板の変位を 5 個の渦電流式非接触変位センサにより 検出する。浮上中の鋼板に生じる振動メカニズムを特定 するために厚さ 0.20 mm のポリ塩化製シールを鋼板に 貼付し剛性を部分的に高め、制振性能の比較検討を行っ た。シールは Fig. 2 に示すように(a)鋼板短手方向端部お よび(b)短手方向中央部に貼付して電磁石曲げ角度 15 °で浮上を行った。

結果および考察

Fig. 3 に振動の抑制効果として浮上鋼板と電磁石表面 との平衡浮上位置からの変位の時刻歴およびスペクト ルを示す。スペクトルに着目すると(b)では 50~100 Hz 付近高周波の振動が抑制されていることがわかる。

- 1) 松島他, 日本 AEM 学会誌, 21-2, (2013), 296-301.
- 2) 広瀬他, 電気学会論文誌 D, 133-5, (2013), 536-542.
- 打野谷他,日本機械学会論文集C編,62-95,(1996), 127-133.
- 丸森他,日本機械学会論文集,81-823,(2015), 14-00471.









Fig. 3 Bending levitation result with seal patterns.

水平方向からの磁場が磁気浮上搬送鋼板に与える影響 (浮上特性に関する基礎的研究)

木田将寛、成田正敬、加藤英晃、森山裕幸 (東海大学)

Effect of a magnetic field from the horizontal direction on a magnetically levitated transport steel plate (Fundamental study on the levitation characteristics)

M. Kida, T. Narita, H. Kato, H. Moriyama

(Tokai Univ.)

<u>はじめに</u>

薄鋼板の製造工程では、ローラーとの接触による表面品質 の劣化が問題であるが、その解決策として電磁力による鋼板 の浮上・搬送制御が提案されている^{1,2)}。著者らはこれまでに 浮上中の鋼板形状を差分法により求め、エッジに印加した磁 場による鋼板のたわみ抑制効果について検討している³⁾。し かし、水平方向からエッジ部に設置した電磁石が磁気浮上搬 送中の鋼板の浮上性能に与える影響については、未だ十分な 検討が行えていない。そこで本研究では板厚 0.18 mm の薄鋼 板を対象とし、水平方向からの磁場が非接触搬送時に与える 影響を実験的に検証する。

<u>実験装置</u>

磁気浮上システムの概略を Fig.1 に示す。浮上対象は長さ 800 mm、幅 600 mm、厚さ 0.18 mm の長方形亜鉛めっき鋼板 (材質 SS400)とする。鋼板をアルミフレーム製装置内に設 置した 5 か所のペアの電磁石を用いて非接触支持するため に、鋼板の変位を5 個の渦電流式非接触変位センサにより検 出し、非接触位置決め制御する。鋼板水平方向(x 方向)の 位置決めは Fig.1 に示した通り、電磁石を鋼板端部の相対す る二辺に対向するように4 か所配置し、レーザ式センサを利 用することによって水平方向の変位を非接触計測する。

搬送実験

搬送される磁気浮上鋼板に対して水平方向から印加する 磁場の変化が浮上性能にどのような影響を与えるのか検証

するため、最適制御理論より求めた浮上用ゲインを用いて搬送実験を行った。搬送装置が静止している状態 から加速度 0.49 m/s²にて搬送を開始し、速度 0.6 m/s に達した時点で等速にて搬送、その後減速、停止という 条件で行った。制御点にて測定した鋼板の水平方向の変位の時刻歴波形を Fig. 2 に示す。このとき、水平方 向電磁石に印加する定常電流値を(a) 0.025 A と(b) 0.4 A とした。同図より、定常電流値 0.025 A に対し、 定常電流値 0.4 A にて鋼板の水平方向の最大振幅値が抑制されることが確認できた。このことより、水平方向 からの磁場が薄鋼板の安定した搬送に効果があることが確認できた。

- 1) 川田他, 第2回電磁力関連のダイナミックスシンポジウム, (1990), 59-62.
- 2) 押野谷他, 日本機械学会論文集 C 編, 56-531(1990), 2911-2918.
- 3) 成田他, 第 22 回 MAGDA コンファレンス講演論文集, (2013), 71-72.







Fig. 2 Time histories of displacement of the steel plate in horizontal direction.

電磁石による走行磁性体の非接触案内 (FEM を用いた電磁石配置に関する基礎的検討)

川崎謙太、成田正敬、加藤英晃、森山裕幸 (東海大学)

Noncontact guide for traveling elastic steel plate using electromagnets (Fundamental consideration on electromagnets placement using FEM) K. Kawasaki, T. Narita, H. Kato, H. Moriyama (Tokai Univ.)

<u>はじめに</u>

製鉄所における連続鋼板製造ラインは長さ数 km にも及び、その間連続鋼板はロールにより接触支持搬送 されている。この様なロールによる連続鋼板の搬送ラインにおいて、鋼板とロールの接触による表面品質劣 化などの問題が多数存在する。この問題を解決するため、当研究グループでは走行する連続鋼板のエッジ近 傍に電磁力を印加することにより、鋼板の振動を抑制する非接触エッジ制御を検討している¹⁾。また、連続 鋼板が進行方向を変更しながら走行する部分に対する非接触案内を実施し、その有効性を確認している²⁾。 しかし、電磁石配置位置など最適な案内路の設計手法は確立されていない。本報告では、走行中の鋼板の応 力静的構造に着目し、解析結果からループ部分の最適な非接触案内路を設計するための基礎的検討を行った。

<u>走行中の鋼板の応力解析</u>

本研究では、吊り下がっている鋼板の解析モデルに張力³を与 えて静的構造解析を行った。解析は静的構造解析ソフトである ANSYS Workbench Mechanical を用いた。解析により得られたミ ーゼス応力の分布を Fig. 1 に示す。走行時の鋼板はループ形状部 の下部に張力の影響を受けて応力が高くなる位置が得られた。

走行実験の結果および考察

解析より得られた応力の高い箇所に電磁石を集中的に設置した走行実験を行い、鋼板の面外方向の変位を測定標準偏差から振動抑制効果の評価を行った。本報告ではループ形状部分の入り口と中間と出口(0°90°180°)に電磁石を配置した案内路

(A)と連続鋼板のループ形状部の下部に集中的(20°90° 160°)に電磁石を配置した案内路(B)を用意し、鋼板の走行 速度を1000 m/minとした。各案内路を用いた走行鋼板の変位標 準偏差をFig.2に示す。それぞれの結果を比較すると、電磁石を ループ形状部分下部に集中的に配置した案内路(B)の方が(A) と比較して変位標準偏差が減少していることが確認できた。

以上の結果から解析により得られた応力の高い箇所に電磁石 を集中的に設置することで走行中の安定性が高い案内路が得ら れることがわかった。

- 1) 柏原他, 日本 AEM 学会誌, 11-4, (2003), 235-241.
- 2) 川崎他, 第27回「電磁力関連のダイナミクス」シンポジウム, (2015), 52-53.
- 3) ベルト伝動技術懇話会,新版 ベルト伝動・精密搬送実用設計,養賢堂,(2006),21-25.



永久磁石を用いた薄鋼板のハイブリッド磁気浮上システムにおける 最適配置(水平方向の磁場に関する基礎的検討)

鈴木稔樹、成田正敬、加藤英晃、森山裕幸 (東海大学)

Optimal placement of permanent magnet in hybrid magnetic levitation system for thin steel plate (Fundamental considerations on effect of magnetic field from horizontal direction) T. Suzuki, T. Narita, H. Kato, H. Moriyama (Tokai Univ.)

<u>はじめに</u>

薄鋼板は搬送工程において通常ローラによる接触搬送が行われ、ローラの接触による傷やめっき不良など 表面品質の劣化が問題となっている。この問題を解決するため磁気浮上による非接触支持に関する検討が盛 んに行われている¹⁾。当研究グループでは、電磁石を設置していない部分に永久磁石を設置し、これらの磁 力を浮上安定化のために有効利用したハイブリッド磁気浮上搬送システムを提案している²⁾。一方、浮上方 向のみを制御する従来のシステムを用いて鋼板の非接触搬送を行った場合、加減速時に生じる慣性力によっ て浮上中の鋼板が横滑りし、落下する可能性が考えられる。そのため、これまでに著者らは浮上方向に加え 水平方向に電磁石を設置し、位置決め制御を行うことで磁気浮上搬送に成功している³⁾。本報告はハイブリ ッド磁気浮上システムに水平方向の位置決め制御を加え、水平方向から磁場を変化させた場合における板厚 0.24 mmの鋼板のたわみを抑制する永久磁石の最適配置探索に関する検討を行った。

<u>ハイブリッド磁気浮上システム</u>

浮上対象である長さ 800 mm、幅 600 mm、板厚 0.24 mm の長方形 亜鉛めっき鋼板(材質 SS400)上方の 5 ヶ所に電磁石ユニット、電 磁石ユニットの周囲に複数のフェライト磁石、水平方向位置決め制 御を加えた鋼板水平方向の位置決めは、電磁石を鋼板端部の相対す る二辺に対向するように 4 か所配置し、水平方向の変位、速度、電 磁石コイル電流をフィードバックし、定常電流 I_xを加えて鋼板の端 部が各電磁石表面から 5 mm の距離を保つように制御を行う。

遺伝的アルゴリズムによる探索結果

 $I_x = 0.1 A および 0.5 A の条件で遺伝的アルゴリズムを用いた永久 磁石の最適配置探索を行った。探索によって得られた各定常電流値 における永久磁石配置を Fig. 1(a), (b)に示す。今後は本報告で得ら れた配置を用いて浮上実験を行い、たわみ抑制効果、浮上安定性に ついて検討を行っていく予定である。$

<u>参考文献</u>

- T. Mizuno et. al., Mechanical Engineering Journal, 3-2, (2016), 15-00687.
- 小村他,第28回電磁力関連のダイナミクスシンポジウム講演論 文集,(2016),232-233.
- 3) 押野谷他, 日本機械学会 C 編, 67-661, (2001), 2855-2862.
- (2015), 53-54.



(b)Steady current $I_x = 0.5$ A

Fig. 1 Placement of permanent magnets.

アルミニウムリング引上げのための交流アンペール力の生成

大路貴久,須田一輝, 飴井賢治,作井正昭 (富山大学) Generation of Ac Ampere force for pulling up an aluminum ring T. Ohji, K. Suda, K. Amei, M. Sakui (Univ. of Toyama)

<u>はじめに</u>

磁気浮上の一方式である交流誘導式では、アルミニウム(AI)等の非磁性金属(浮上対象物)と交流電磁 石との間に準定常な反発力が生じる。このとき交流電磁石の上方に浮上対象物を配置し、自重に逆らうよう に反発力を発生させることで非接触浮上状態が得られる。筆者らの提案する交流アンペール式磁気浮上では、 従来の交流誘導式で生じる誘導反発力に加え、金属内の誘導電流に対し外部磁束を印加することで交流アン ペール力が生成される⁽¹⁾。交流電磁石を上方に配置し、浮上対象物をその下方に配置した場合、下向きの誘

導反発力と浮上対象物の自重の和よりも大きな上向きの交流アンペール力を生成できれば、浮上対象物の引上げ動作が可能となる。本稿では、Alリングを浮上対象物とし、Al リングに誘導電流および交流アンペール力を生成するための装置を試作し、Alリングの引上げ動作試験を行った。

実験装置と引上げ試験

Fig.1は実験装置の写真である。中央上部には誘導電流発 生用の交流電磁石(EM1)が設置されており、パンケーキ コイルと継鉄で構成されている。また、周囲には6個の交 流電磁石(EM2)が設置されている。EM1とEM2に囲ま れた空間内でAlリング([¢]120 mm×[¢]110 mm×5[']mm,24g)の 引上げ試験を行う。EM1に対するEM2の励磁電流位相差 を任意に設定できるように2台の交流電源で別回線による 回路を構築する。Fig.2は各部の相対位置を示しており、 Alリング上面とパンケーキコイル表面とのギャップをd [mm]とする。

Fig. 3 は d = 10 mm を 初期位置としたときの Al リングの引上げ動作結果を示す。各電磁石の励磁電流,周波数は 3A_{max}, 120 Hz とし, EM1 の励磁完了後に EM2 をステップ状,ランプ状 (3 種)に励磁した。図より全ての場合でスペーサに接触 (<math>d = 5.5 mm)しており,過渡的な跳ね上がりに よるものではなく連続的な引上げ力による浮上であること が確認できる。なお、d = 8.0 mm付近の段差は、リングの ある一カ所から順次引上げられたためである。

<u>まとめ</u>

Al リングに対し準定常的な交流アンペール力を生成す るための装置を製作し、非磁性金属の安定的な引上げ動作 が可能であることを示した。今後は対象物の形状や質量の 制約を減らすとともに引上げ機構の最適化を図る。

本研究は科研費(25289014)助成を受けて実施した。

<u>参考文献</u>

1) T. Ohji, et al., J. Mater. Process. Tech., 181, pp. 40-43 (2007)



Fig. 1 Arrangement of EMs and an Al ring.







Fig. 3 Experimental results of magnetic pullingup of Al ring.

電動工具用 SR モータの高速回転化に関する検討

熊坂悠也,中村健二,一ノ倉 理 (東北大学)

Consideration of Higher-Speed of SR Motor for Electric Power Tools Y. Kumasaka, K. Nakamura, O. Ichinokura (Tohoku University)

はじめに

先に筆者らは、スイッチトリラクタンス(SR)モ ータの電動工具への応用を目的として、現状の電動工 具に使用されている永久磁石(PM)モータと同体格 のSRモータを設計・試作し、ほぼ同等の性能が得ら れることを明らかにした¹⁾。本稿では、SRモータの 特長を生かし、現状のPMモータよりもさらに高速回 転化したSRモータの特性について、有限要素法(FEM) を用いて検討を行ったので報告する。

高速回転 SR モータの諸元と解析結果

Fig. 1 に,検討に用いた SR モータの諸元を示す。 この SR モータは,実際の電動工具に用いられている PM モータと同体格,同ギャップ長である。以下の検 討では,SR モータの回転速度を PM モータの約 2.1 倍とした。したがって,現状の PM モータに用いられ ている機械式の減速ギヤのギヤ比が 9 であるのに対 して,SR モータのギヤ比は 20 とした。また,SR モ ータの回転数が 2 倍以上になり,鉄損の増大が想定さ れるため,鉄心材料は 6.5%SiFe とした。

Fig. 2 に、ギヤ比で換算したトルク対速度特性を示 す。この図を見るとほぼ同等の特性が得られているこ とがわかる。Fig. 3 は、巻線電流密度に対する換算ト ルクの比較である。同体格、同ギャップ長の SR モー タであっても、高速回転化することで、減速後のトル クは PM モータを上回ることがわかる。Fig. 4 に、銅 損と鉄損の計算値を示す。高速回転化したことで鉄損 の増加が懸念されたが、低損失材料である 6.5% SiFe を採用したことで、PM モータよりも鉄損が低く抑え られたことがわかる。



Gap length :	0.5 mm
Axial length:	10.15 mm
Core material :	6.5%SiFe
Exciting voltage :	20V
Winding space factor :	24.00%

Fig. 1 Specifications of a high speed SR motor.



Fig. 2 Comparison of torque versus speed characteristic.



Fig. 3 Comparison of winding current density versus torque characteristic.



Fig. 4 Comparison of torque versus copper loss, iron loss characteristics.

参考文献

1) K. Nakamura, Y. Kumasaka, K. Isobe, O. Ichinokura, The papers of Technical Meeting on Rotating Machinery, IEEJ, RM-15-146 (2015).

波力発電用リニア発電機の制御に関する検討

紙屋 大輝,後藤 博樹,一ノ倉 理

(東北大学)

A Study of Control of Linear Generator for Wave Power Generation

D. Kamiya, H.Goto, O. Ichinokura

(Tohoku University)

はじめに

近年,再生可能エネルギーへの注目が高まる中,周 囲を海で囲まれている日本においては,波力発電は 次世代エネルギーとして特に重要といえる。しかし, 波力発電設備は海中に設置されることから高い保守 性が必要であることや他の発電方式に比べ設備が大 型化し,発電コストが高いことから,いまだ商用化 には至っていない。波力発電にはいくつかの方式が あるが,筆者らはリニア発電機を用いたポイント・ アブソーバ式波力発電装置に着目した。本方式は機 械的な変換機が不要であることから,機械損失を減 少でき,保守性にも優れるが,実用化にはさらなる 高出力密度化が求められる。本稿では,制御手法に 注目し,実際に制御装置を試作して模擬実験を行う ことで検討を行った。

検討した発電制御方式

本方式における概要図を Fig.1 に示す。発電機制御 の手法として、波と発電機の運動を共振させること で機械的振動を大きくする共振制御が提案されてき たが、機械共振による大きな運動や、大電流が流れ ることによる発電機損失の増加などの欠点が明らか になった。そこで、これらの欠点を解決するため、 電気工学におけるインピーダンスマッチングの発想 に基づく ACL 制御(Approximate Complex-conjugate control considering generator copper Losses)が提案さ れた¹⁾。この制御法は、共振制御では考慮していな かった発電機損失を考慮し、電気出力を最大化する 意図に基づいて系を共振状態から遠ざける。

これら2つの制御方式について Fig.2 に示す実験 装置を用いて、模擬実験を行った。Fig.3(a)に入力波 周期 0.57s 時の変位波形を示す。共振制御時の変位 振幅が ACL 制御時よりも大きくなっていることが わかる。これは、共振制御時は波と発電機が機械共 振状態となっているためと考えられる。Fig.3(b)に発 電電力波形を示す。それぞれの平均出力は共振制御 が-1.2W, ACL 制御が 8.9W となった。振幅自体は共 振制御が大きいものの,負の方向への振幅が大きく、 その平均値は負となっていることがわかる。これは、 浮体と入力波を共振させるために必要な発電機推力 が大きく、銅損が過大となったためと考えられる。 ACL 制御時の発電電力波形は若干負の値になるタ イミングがあるものの、その大きさは共振制御ほど 大きくなく、平均発電電力は共振制御時より大きく なっていることが了解される。

なお,本成果は,国立研究開発法人新エネルギー・ 産業技術総合開発機構(NEDO)の委託業務の結 果得られたものである。



Fig. 1 Overview figure of wave generation







<u>参考文献</u>

 Villa Jaén, Antonio, Agustín García-Santana, and Dan El Montoya-Andrade: International Transactions on Electrical Energy Systems, Vol.24, No.6, pp.875-890 (2014)

磁性鉄粉まで考慮した圧粉磁心の電磁界解析に関する検討

増井出、中村健二、一ノ倉理(東北大学)

Electromagnetic Field Analysis for Soft Magnetic Composite considering Magnetic Particles Izuru Masui, Kenji Nakamura, Osamu Ichinokura

asui, Kenji Nakamura, Osamu Iem

(Tohoku University)

1. はじめに

圧粉磁心は磁性鉄粉に絶縁被膜を施し、圧縮成 型した磁性体であり、コア形状の自由度が高く、 高周波鉄損が小さいなどの特長を有する。圧粉磁 心の高性能化には、飽和磁束密度を高めながら、 鉄損を低減することが必須であり、そのためには、 磁性鉄粉の粒子径を小さく、かつ絶縁被膜の厚さ を極力薄くするとともに、高い圧力で圧縮成型す ることで、鉄粉の充填率を上げることが必要不可 欠である。しかしながら、極端に絶縁被膜を薄く すると、被膜不良によって磁性鉄粉同士が直接接 触する、あるいは被膜に導電性の不純物が入り込 む等によって、磁性鉄粉間に渦電流が流れるなど の問題が生じる。

そこで本稿では,磁性鉄粉のサイズや絶縁被膜 の厚さ,抵抗率などを勘案した圧粉磁心の最適設 計法の確立を目的として,圧粉磁心内の磁性鉄粉 まで考慮した電磁界解析について検討を行ったの で報告する。

2. 磁性鉄粉を考慮した電磁界解析

有限要素法(FEM)を用いて、圧粉磁心内の磁 性鉄粉に流れる渦電流を解析するためには、非常 に微細な磁性鉄粉を要素分割する必要がある。本 稿では、Fig. 1 に示すように、磁性鉄粉 1 つの大 きさを一辺 140 μm の立方体と仮定し、これを縦 6 個、横 6 個に等間隔に並べたモデルについて、渦 電流の解析を行った。Fig. 2 に 3 次元 FEM モデル を示す。電磁界分布の対称性から 1/4 モデルを用 いて、渦電流損失の解析を行った。なお、磁性鉄 粉間の絶縁被膜の厚さは 0.7 μm とし、被膜の抵抗 率は Fig. 3 のリングコア試料を四端子法で測定し た抵抗値から 23.2 mΩ·m と試算した。

Fig. 4 に,単位体積当たりの渦電流損失の計算 値と実測値を示す。この図を見ると,被膜の実効 的な抵抗率を考慮することによって,精度の高い 損失算定ができることが了解される。



Fig. 1 Analysis model of SMC including magnetic particle.



Fig. 2 3-D FEM model.



Fig. 3 Specifications of a ring core of SMC.



RNAによる100 kVA級重ね巻型3相一体可変インダクタの設計試作

中村健二,山田雄太,大日向 敬*,有松健司*, 山田 真**,瀧口雅也**,小島武彦**,一ノ倉 理 (東北大学,*東北電力,**富士電機)

Design and Prototyping of 100 kVA Concentric-Winding type Three-Phase Variable Inductor

based on Reluctance Network Analysis

K. Nakamura, Y. Yamada, T. Ohinata*, K. Arimatsu*,

M. Yamada**, M. Takiguchi**, T. Kojima**, O. Ichinokura

(Tohoku University, *Tohoku Electric Power Co., Inc., **Fuji Electric Co., Inc.)

はじめに

先に筆者らは,直流制御巻線と交流主巻線を重ね て磁脚に施した重ね巻型3相一体可変インダクタを 提案し,良好な特性を有することを明らかにした¹⁾。 本稿では,リラクタンスネットワーク解析(RNA) に基づき,6.6 kV - 100 kVA 級の実証器の解析設計と 試作試験を行ったので報告する。

RNA による 100kVA 器の解析設計・試作試験

Fig. 1 に、重ね巻型3相一体可変インダクタの基本構成を示す。RNAモデルの導出に際しては、まず解析対象である磁心を、Fig. 2 に示すように複数の要素に分割し、各分割要素を3次元の単位磁気回路で表す。ここで、図中の磁気抵抗は分割要素の寸法と材料の B-H曲線から求めることができる。

Fig. 3 に, RNA を用いて設計した 100 kVA 級の実 証器の諸元を示す。Fig. 4 に無効電力制御特性の比 較を示す。この図を見ると,実証器は線形かつ連続 的に無効電力を制御可能であり,設計通りの制御量 が得られていることがわかる。Fig. 5 は,定格換算 した出力電流の歪み率である。なお,実証実験では 電源電圧の歪み等に由来する第3 調波成分が含まれ ていたことから,これを除いた結果についても併せ て同図中に示す。この図を見ると,実証器の歪み率 は全制御範囲で 5%以下の目標を達成できたことが わかる。また,このような高圧大容量器についても, RNA により十分な精度で設計可能であることが明 らかになった。なお,本研究はJST研究成果展開事 業 A-STEP の支援を受け行った。

参考文献

1) K. Nakamura, et al., IEEE Trans. Magn., 51 8402104 (2015)



Fig. 1 Basic configuration of a concentric-winding type three-phase variable inductor.



Fig. 2 RNA model of the concentric-winding type three-phase variable inductor.



Fig. 3 Specifications of 6.6 kV - 100 kVA concentric-winding type three-phase variable inductor.







RNA によるフェライト磁石モータの減磁解析に関する考察

吉田征弘,門間大樹,田島克文 (秋田大学)

A Consideration of Demagnetizing Analysis of Ferrite Magnet Motor Based on RNA Y.Yoshida, D.Momma, K.Tajima

(Akita Univ.)

はじめに

フェライト磁石は外部磁界によって減磁しやすい ため、フェライト磁石モータの設計には減磁を考慮 した解析が必要になる.筆者らは、リラクタンスネ ットワーク解析(RNA)を用いた永久磁石モータの 損失算定について検討を進めているが¹⁾、外部磁界 による減磁を考慮したモータの解析手法は未だ確立 されていない.そこで本稿では、RNA 用いた表面磁 石形(SPM)フェライト磁石モータの減磁解析手法 を示し、有限要素解析(FEA)による算定結果と比 較を行うことで、その妥当性について検討を行った ので報告する.

RNA によるフェライト磁石モータの減磁解析

Fig.1 に検討に用いた SPM モータの形状と諸元を 示す. 永久磁石にはフェライト磁石を用い, 巻線は 分布巻で,磁極ピッチが 6, コイルピッチが 5 の短 節巻であり, 1 スロットあたり 100 ターン施されて いる.

Fig.2 に SPM モータの RNA モデルの一部を示す. エアギャップから回転子にかけては磁束分布が複雑 になるため,周方向に1度ずつ等間隔で分割する. また,磁石の減磁には分布が生じるため,磁石は径 方向に3分割している.外部磁界によって磁石の磁 束密度がクニック点を下回ると,RNA モデルにおけ る磁石の起磁力を減磁率に応じて低下させることで 減磁したときのモータ特性を計算する.

導出した RNA モデルを用いて,定格電流である 4.0A に対して 9.5 A の電流を流して磁石を減磁させ たときと,減磁していない状態で定格電流を流した ときのトルクを計算し,FEA のトルク波形計算結果 と比較した.Fig.3 (a) に減磁前のトルク波形を,同 図 (b) に減磁後のトルク波形を示す.これらの図を みると,RNA で計算した減磁前後のトルク波形は FEA の計算結果と概ね一致しているのがわかる.平 均トルクは減磁前が 1.30 N·m で,減磁すると 1.22 N·m に低下しており,FEA の計算結果との差は 2 % 以内であった.



Number of slots	24
Number of poles	4
Number of widing turns/slot	100
Stack length	30 mm
Core materials	Relative permeability $\mu_s = 3000$
Permanent magnet materials	Ferrite (SSR-420)





Fig.3 Comparison of torque waveform between before and after demagnetization.

参考文献

 Y. Yoshida, K. Nakamura, O. Ichinokura, Katsubumi Tajima, IEEJ Journal of Industry Applications, Vol. 3, No. 6, pp.422-427 (2014)

RNA に基づく DC-DC コンバータ用トランス巻線の 渦電流損推定に関する考察

樋渡拓也,田島克文,吉田征弘

(秋田大学)

Consideration of estimation for eddy current loss of transformer windings in the DC-DC converter based on RNA T.Hiwatashi, K.Tajima, Y.Yoshida (Akita Univ.)

<u>はじめに</u>

筆者らは、DC-DC コンバータにおけるトランス巻 線の漏れ磁束によって生じる渦電流損の推定につい て検討を進めている¹⁾。本稿では、RNA (Reluctance Network Analysis)を用いた角柱銅線に生じる渦電流 損の推定手法を示し、三次元有限要素解析 (3D-FEA)による解析結果と比較を行うことで、その 有用性について検討を行ったので報告する。

<u>提案する RNA モデル</u>

Fig.1(a)に解析対象の形状と寸法を示す。断面が 30mm × 20mm の C 型のフェライトコアに,巻線に 見立てた 2.0mm × 2.0mm × 20mm の角柱銅線が合計 6 本挟まれており,コアには各 10 ターンのコイルが 施されている。同図(b)には同図(a)の赤枠線で示すコ アギャップ間の RNA における要素分割を示す。角 柱銅線は高周波時の表皮効果を考慮するため, x 方 向に 10 分割, y 方向に 8 分割している。

Fig.2 に提案モデルの概略図を示す。図中の R_{mcore}, R_{mgap}, R_{mcopper}はそれぞれコア,ギャップ,角柱銅線 の磁気抵抗を表しており, R_{mLcoil}, R_{mLgap}はそれぞれ 励磁コイル,ギャップの漏れ磁気抵抗を表している。 角柱銅線で生じる渦電流は鎖交磁束を考慮して赤線 で示す電気回路で計算し,磁気回路中において逆向 きの起磁力として与えた。

正弦波電流 4 A_{rms} で励磁した時の角柱銅線におけ る周波数-渦電流損特性の解析結果を Fig.3 に示す。 RNA および 3D-FEA それぞれにおいて 3 周期計算を 行った。同図から分かるように両者は良好に一致し ており,表皮効果が現れる周波数帯域においても RNA では巻線の渦電流損がおおよそ推定できる可 能性があることが示された。



Fig.1 Shape and division of analytical model.



Fig.2 Schematics of proposed model.





参考文献

1) 樋渡,田島,吉田, 電学研資 MAG-16-035(2016)

表面酸化鉄系メタルコンポジット磁心トランスの試作と

フライバックコンバータへの応用

佐藤紘介***, 杉村佳奈子**, 佐藤敏郎**, 曽根原誠** (*長野県工業技術総合センター, **信州大)

Fabrication of surface-oxidized Fe-based metal composite transformer

and its application to the flyback-type dc-dc converter

K. Sato*'**, K. Sugimura**, T. Sato**, M. Sonehara**

(*Nagano Prefecture General Industrial Technology Center, **Shinshu univ.)

<u>はじめに</u>

近年、SiC/GaN パワーデバイスの開発が盛んに行われており、低損失かつ MHz 高周波スイッチング動作が 可能であるという特長から、DC-DC コンバータのさらなる小型化・高効率化が期待されている.筆者らは、 MHz 動作 DC-DC コンバータへ適用するため、表面酸化処理を施した 1.6µm 径のカルボニル鉄粉とエポキシ 樹脂からなる複合材料(以下、表面酸化 CIP/Epoxy)を用いてインダクタを試作し、GaN-HEMT モジュールを用 いた 18V 入力、5V・2A 出力を電源定格とした 1MHz 動作 Buck コンバータへ適用することで、最大約 95% の電力変換効率が得られることを報告した¹⁾.

本稿では、表面酸化 CIP/Epoxy 磁心トランスを試作し、AC アダプタ等に多用されている方式であるフライ バックコンバータへ適用した結果について報告する.

<u>実験方法</u>

トランスの巻線には、70µm 厚、5mm 幅の銅張ポリイミドフィルムを用い、1 次巻線と2 次巻線の配置の異なる2種類を試作した.比透磁率の低い表面酸化 CIP/Epoxy 磁心でも励磁インダクタンスを高めるため、Fig.1 に示すように巻線をコア中に埋め込む構造とした. Fig.2 に評価に用いたフライバックコンバータの回路図を示す.48V入力、12V・5A 出力を電源定格とし、スイッチング周波数は400kHz とした.比較のためインダクタンスおよび結合係数の値を概ね一致させた Mn-Zn フェライトを用いたトランスについても評価を行った.

<u>実験結果</u>

Fig.3 に電力変換効率を示す. 効率は 1.2A~1.3A 出力時に最大となり約 89%が得られている. 軽負荷時は 結合係数の低い巻線 A のトランスの方が効率は高い. これは, こちらの方が等価直列抵抗が低いためである と考えられる. 一方, 重負荷時においては, 漏れインダクタンスに蓄積され 2 次側に伝達されないエネルギ 一の影響が大きくなるため, 結合係数が良い巻線 B のトランスの方が高効率になることがわかる.

参考文献

1) 上野,他;平成28年電気学会全国大会,2-097, p.118(2016).



-34-

第三元素を添加した Fe/Ni 薄膜の規則化現象

田代 敬之¹、水口 将輝¹、小金澤 智之²、鈴木 英伸¹、三浦 良雄³、辻川 雅人¹、
 白井 正文¹、高梨 弘毅¹
 (¹東北大、² 高輝度光科学研究セ、³京都工芸繊維大)

Chemical ordering of Fe/Ni films with third-elements

T. Y. Tashiro, M. Mizuguchi, T. Koganezawa, H. Suzuki, Y. Miura, M. Tsujikawa, M. Shirai, and K. Takanashi (¹Tohoku Univ., ²JASRI/SPring-8, ³Kyoto Inst. of Tech.)

はじめに

高い磁気異方性(K_u)を有する材料は、永久磁石や記録媒体などへの応用が期待されるため、以前から盛ん に研究されている。しかしながら、資源に乏しい我が国の現状を鑑みると安価かつ豊富な元素によって構成 される材料であることが望ましく、元素戦略的な取り組みが行われている。我々は、安価な Fe と Ni により 構成される L1₀-FeNi 規則合金に着目している。この材料は、バルクで比較的高い K_u (~1.3×10⁷ erg/cc)を発現 することが知られている [1]。しかしながら、規則-不規則変態温度が 320 °C と非常に低いため[2]、通常の 熱処理による作製は困難であり、中性子照射や MBE 法などの限られた方法でのみ作製されている[3]。この 低い規則-不規則変態温度は、L1₀-A1 相間の形成エネルギーの差が小さいことに起因しているとされる。我々 は第三元素の添加により形成エネルギーを変調させる手法に着目した。遷移金属元素の添加について第一原 理計算を行なったところ、Ti, V, Al によって Fe を置換することにより形成エネルギーの差が増大することが 分かった。そこで、本研究では Fe と Ni を交互に積層させる際に Fe と同時に添加元素 Ti あるいは V を添加 し、その際の規則-不規則変態温度の変化と磁気特性について調査した。

<u>実験方法</u>

試料は、超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いて Fe-Ti(V)と Ni を MgO(001)基板上に交互にス パッタし、真空中で熱処理を行った。Ti(V)の添加量を0,1.5,3,5 at%とし、熱処理温度および時間を200-500 °C、 1-20 時間に変化させた。作製した Fe-Ti(V)/Ni 多層膜について、電子線マイクロアナライザー(EPMA)、振動 試料型磁力計(VSM)、X線回折(XRD)、原子間力顕微鏡(AFM)により組成、磁気特性、結晶構造、表面形態を それぞれ評価した。通常の XRD では、L1₀相に由来して現れる微弱な超格子ピークを観測することが困難な ため、SPring-8 の高輝度放射光を利用し、入射エネルギーを Fe-K 吸収端に合わせて異常分散効果を利用した XRD 測定を行った。

実験結果

MgO(001)単結晶基板上に Fe_{50-x}Ti_x (x=0, 3, 5 at%)と Ni を約 0.3 nm ずつ交互に積層した膜厚 15 nm の試料に ついて熱処理(200-500 °C)を行った。In-plane XRD 測定を行ったところ、450 °C で熱処理された[Fe₄₇Ti₃/Ni₅₀] 試料においても、 $L1_0$ 規則相に基づく超格子回折線が観測された。この時の規則度 S を算出したところ 0.1 程 度得られていることが分かった。これは、Ti の添加によって規則-不規則変態温度が上昇したことを示唆する 結果である。一方、V を添加した試料においては、超格子ピークが観測されず、規則-不規則変態温度の上昇 は確認されなかった。

本研究の一部は、文部科学省推進プロジェクト元素戦略磁性材料研究拠点の支援により行われた。

- [1] J. Pauleve et al., J. Appl. Phys., 39 (1968) 989.
- [2] K. B. Reuter et al., Metall. Trans. A, 20A (1989) 719.
- [3] T. Kojima et al., Jpn. J. Appl. Phys., 52 (2012) 010204.

Co/Ni エピタキシャル人工格子における磁気異方性とダンピング

関剛斎¹、島田淳平¹、飯浜賢志¹、辻川雅人¹、小金澤智之²、塩田明弘¹、田代敬之¹、周偉男¹、 菊池直登¹、水上成美¹、白井正文¹、高梨弘毅¹ (¹東北大、²高輝度光科学研究セ)

Magnetic Anisotropy and Damping for Co / Ni Epitaxial Superlattices

T. Seki¹, J. Shimada¹, S. Iihama¹, M. Tsujikawa¹, T. Koganezawa², A. Shioda¹, T. Y. Tashiro¹, W. Zhou¹, N. Kikuchi¹, S. Mizukami¹, M. Shirai¹, and K. Takanashi¹ (¹Tohoku Univ., ²JASRI)

はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) は、記憶セルの超高集積化、高速かつ低消費電力動作、さらに高 信頼性を実現できるアプリケーションとして期待されている。MRAM の構成要素となる磁気記憶素子には、 磁化の熱安定性を担保するための高い一軸磁気異方性エネルギー(K_u)と、低電流密度で磁化反転させるための 低いダンピング定数(α)という両方の特性が要求される。一般的に、高 K_u 材料には Pt などの貴金属や希土類 元素が用いられており、大きなスピン軌道相互作用に起因して α が増大してしまうことが懸念される。加えて、 資源枯渇の問題を考慮すると、貴金属や希土類元素といった希少元素を用いずに高 K_u 且つ低 α を実現するこ とが課題となる。そこで、本研究では 3*d* 遷移金属のみから成る Co-Ni 合金に着目し、原子層レベルで積層制 御した Co / Ni 人工格子を作製することで高 K_u と低 α の実現を目指した。Ni 層厚を変化させた試料を用い、 Ni 層厚が構造および磁気特性に与える影響を系統的に調べた。得られた実験結果を第一原理計算と比較する ことで、(111)配向した Co / Ni 人工格子における垂直磁気異方性の発現機構を議論し、高 K_u と低 α に向けた材 料設計の指針を検討した。

実験結果

分子線エピタキシー法を用いて、サファイア a 面単結晶基板および熱酸化シリコン基板上に V / Au 下地層 を成長させた後に、Ni 層および Co 層を交互に積層させて人工格子を作製した。ここで、Co 層厚を 1 原子層 に固定し、Ni 層の原子層数(x)を変化させた。本研究では、0.20 nm が 1 原子層に相当する。X 線回折(XRD) および放射光(SR)-XRD により構造解析を行い、表面形態評価に反射高速電子線回折(RHEED)および原子間力 顕微鏡(AFM)を用いた。磁気特性の評価には、振動試料型磁束計(VSM)、超伝導量子干渉素子(SQUID)、およ び磁気光学カー効果(MOKE)を用い、ダンピング定数は時間分解(TR)-MOKE を用いて評価した。

サファイア基板上において V/Au 下地層を用いることで、垂直磁化を有するエピタキシャル成長した Co/ Ni 人工格子が作製された。一方、熱酸化シリコン基板上では面内無配向のテクスチャー薄膜となった¹⁾。エ ピタキシャル薄膜とテクスチャー薄膜の K_u および α を比較したところ、すべての Ni 層厚においてエピタキシ ャル薄膜はテクスチャー薄膜よりも高い K_u かつ低い α を示した。実験および第一原理計算で得られた K_u の Ni 層厚依存性では、いずれも x=2 において K_u が最大値を示し、実験と計算が定性的に一致した。さらに、 K_u と α の関係性について調べたところ、本研究においては明瞭な相関が見られなかった。このことは、Co/Ni エピタキシャル人工格子が、高 K_u と低 α を同時に実現できるスピントロニクス材料になりうることを示唆し ている。

参考文献

1) A. Shioda, T. Seki, J. Shimada, and K. Takanashi, J. Appl. Phys. 117, 17C726-1-4 (2015).

Pt/[Tb/Co]_n多層細線の電流誘起磁壁移動における Pt 層の効果

黒川雄一郎、粟野博之 (豊田工業大学)

Role of Pt layer for current induced domain wall motion in Pt/[Tb/Co]_n multilayered wire Yuichiro Kurokawa and Hiroyuki Awano (Toyota Technological Institute)

序論

電流による磁壁の駆動は、レーストラックメモリをはじめとした新規な磁気メモリや論理素子への応用が 期待されるスピントロニクスの新しい研究分野である。これまでの研究で、我々のグループでは Tb/Co 多層 細線では希土類層に起因した大きなスピンオービットトルクが存在する可能性をしめした。¹⁾ この研究では Tb/Co 磁性細線を用いて主に磁壁の電流駆動におけるジャロシンスキー守谷相互作用(DMI)の起源に注目し て実験を行った。

実験方法

試料の成膜はスパッタリング装置を用いて行った。[Tb/Co], 多層膜を積層し、2 nm-Pt 層を多層膜上部また は下部に堆積した。試料の細線への加工は電子ビームリソグラフィーとリフトオフ法を用いて行った。加工 した細線の幅は 3µm である。この細線に 100ns のパルス幅を持つパルス電流を印加することで電流誘起磁壁 移動を観察した。電流誘起磁壁移動はカー効果顕微鏡を用いて観察した。また、細線長手方向へ磁場を印加 した場合の電流駆動の磁壁速度の変化から DMI 有効磁場を見積もった。

実験結果

上部に Pt 層を積層した [Tb/Co]_n多層膜(n=4-6)の電流 誘起磁壁移動を観察したとこ ろ、全ての試料で磁壁が電流方 向へ移動することが分かった。 これは、スピンオービットトル クによって磁壁が駆動されて いることを示している。また、 これらの試料に面内方向への磁 場を印加し、DMI 有効磁場を見



Fig. 1 Velocity (ν) of domain wall in [Tb/Co]₅ wires with Pt (a) cap layer and (b) under layer as a function of longitudinal in-plane magnetic field (H_x).

積もったところ、磁性層の膜厚が大きくなるにしたがって、DMI 有効磁場が減少することが分かった。図1 にPt 層を[Tb/Co]5のそれぞれ上部、下部に挿入した試料の面内磁場に対する磁壁速度の変化の図を示す。図 によると、磁壁速度の変化は up-down 磁壁と down-up 磁壁で異なる磁場依存性を持ち、かつ、それは Pt 層を 下部層として用いた場合と上部層として用いた場合で反対の磁場依存性を示すことが分かった。これらの結 果は、[Tb/Co]nの電流誘起磁壁移動では Pt 層由来の DMI が強く働いていることを示唆する。また、これらの 結果から DMI 定数を求めたところ従来の膜に対して十分の一程度の値になり、Tb/Co 多層細線では DMI 定 数が小さくても磁壁移動に対して十分に寄与していることが分かった。

謝辞

本研究は私立大学戦略的研究基盤形成支援事業:ミクロ・メソ構造制御による革新的グリーン電子素 子・材料技術の基盤形成(2014-2019) および科研費 No.26630137 (2014-2016)の支援を受けて行ったも のです。

参考文献

1) Do Bang, J. Yu, X. Qiu, Y. Wang, H. Awano, A. Manchon and H. Yang, Phys. Rev. B 93, 174424 (2016).

Fe₃O₄(110)/非磁性金属/Fe 系多層膜における

飽和磁場の非磁性金属層膜厚に対する依存性

大森圭太¹、川井智博¹、柳瀬隆²、島田敏宏²、長浜太郎² (北大院総合化学院¹、北大院工学研究院²)

Dependence of saturation field on non-magnetic (NM) metal layer thickness in Fe₃O₄(110)/NM metal/Fe systems

K. Omori¹, T. Kawai¹, T. Yanase², T. Shimada², T. Nagahama²

(Hokkaido Univ. of Graduate school of Chemical Sciences and Enguneering¹,

Hokkaido Univ. of Graduate Faculty of Engineering²)

<u>はじめに</u>

非磁性層を介して強磁性層間に働く層間交換結合(Interlayer Exchange Coupling: IEC)は、多層膜をデバイス へ応用する際に重要な要素となる。Fe/Crのような金属系多層膜においては、IECが非磁性層膜厚に応じて振 動的に変化することが知られており[1]、この現象については理論的な解釈がなされている。しかし、強磁性 層に金属酸化物を用いた多層膜における IEC の有無や非磁性層膜厚との関係には未だ不明な点が残っている。

本研究室川井らの研究により、 $Fe_3O_4(110)/Cr/Fe 系多層膜においては Cr 層が厚くなるにしたがって Fe の飽$ $和磁場(<math>H_s$)が増大することが明らかとなった。この現象の解明には未だ至っていない。そこで本研究では、 $Fe_3O_4(110)/Cr/Fe 系多層膜の間に MgO を挿入した Fe_3O_4(110)/MgO/Cr/Fe 系多層膜、および Cr を Pt に変えた$ $<math>Fe_3O_4(110)/Pt/Fe 系多層膜における H_s の膜厚依存性を調べ、Fe_3O_4(110)/Cr/Fe 系多層膜の場合と比較すること$ を目的として行った。

<u>実験方法</u>

試料は分子線エピタキシー(MBE)法により作成した。 膜構成は MgO(110)/NiO(5 nm)/Fe₃O₄(60 nm)/MgO(2 nm)/Cr(0~10 nm)/Fe(5 nm)/Al₂O₃(2 nm)および MgO(110)/NiO(5 nm)/Fe₃O₄(60 nm)/Pt(0~10 nm)/Fe(5 nm)/Al₂O₃(2 nm)である。Cr および Pt 層はリニアシャッターを動かしながら蒸着することで 0~10 nm の傾斜をつけた。反射高速電子線回折(RHEED)を用いて各製膜層の表面を観察し、XRD によって構造解析を行った。磁化過程は磁気光学カー効果(MOKE)によって測定し、H_sが非磁性層膜厚に対してどのように変化するのか調べた。

<u>実験結果</u>

MOKE 測定によって得られたヒステリシス曲線か ら $H_s を読み取り、非磁性層膜厚(t)に対してプロット$ した(Fig. 1)。Fe₃O₄/MgO/Cr/Fe 系多層膜においては $Fe₃O₄/Cr/Fe 系多層膜の場合と同様に、広い範囲で<math>H_s$ の上昇が見られた。Fe₃O₄/MgO/Cr/Fe 系多層膜では間 の MgO 層によって強磁性層間の電子的な相関は断ち 切られている。したがって、Fe₃O₄/Cr/Fe 系多層膜にお ける H_s の上昇は電子的な相互作用以外の要因による ものだと考えられる。

Fe₃O₄/Pt/Fe 系多層膜においては Fe₃O₄/Cr/Fe 系多層 膜の場合とは異なり、Pt 層が厚くなるにつれて H_s は ほぼ一定の値に近づいた。さらに、垂直磁気異方性を もつ Co/Pt 系多層膜の場合と同じような H_s の振動的な 変化[2]が見られた。



Fig. 1 Saturation field (*H_s*) of Fe₃O₄/Cr/Fe, Fe₃O₄/MgO/Cr/Fe and Fe₃O₄/Pt/Fe for non-magnetic layer thickness (*t*).

参考文献

[1] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, Phys. Rev. Lett. 64, 2304 (1990).

[2] J. W. Knepper and F. Y. Yang, *Phys. Rev. B* 71, 224403(2005).

エピタキシャル成長した磁性フィボナッチ多層膜の強磁性共鳴

諏訪 智巳, 児玉 俊之, 吉田 明弘, 冨田 知志, 細糸 信好, 柳 久雄 (奈良先端大物質)

Ferromagnetic resonance of epitaxially-grown magnetic Fibonacci multilayers

Tomomi Suwa, Toshiyuki Kodama, Akihiro Yoshida, Satoshi Tomita, Nobuyoshi Hosoito, Hisao Yanagi (Graduate School of Materials Science, Nara Institute of Science and Technology)

はじめに

近年、相互作用を人工構造によって制御し、天然物では得られない物性を実現するメタ物質に注目が集ま っている。なかでも一次元メタ物質(多層膜)は、相互作用がシンプルでかつ作製が容易であるため研究し やすい。特に並進対称性と時間反転対称性が同時に破れた、非周期/準周期系磁性多層膜は特異な磁気特性を 示す理論計算の結果が報告されており興味深い¹⁾。しかしながらこのような多層膜の実験に関する報告はほ とんどない。よって今回我々は、自然界の様々な場面で登場するフィボナッチ数列を利用して非周期系磁性 多層膜(磁性フィボナッチ多層膜)を実現し、強磁性共鳴を調べたので報告する。

実験結果と考察

高真空多元電子線蒸着装置を用いて、単結晶 MgO(100)基板上に多層膜をエピタキシャル成長させた。本稿では元素記号の次の数字は膜厚(Å)を意味する。まずシード層 Fe5、次にバッファー層 Au200 を積層した。各層成膜後に反射高速電子線回折(RHEED)を用いて Fe5/Au200 の(100)面のエピタキシャル成長を確認した。その上に周期多層膜では[Fe5/Au30]₁₃を成膜した。これに対しフィボナッチ多層膜では、30Åをフィボナッチ数列の値で割った Au 層と Fe5 を積層した [Fe5/Au30/Fe5/Au30/Fe5/Au3/Fe5/Au6/Fe5/Au4/Fe5/Au2]₂Fe5/Au30 を

成膜した。多層膜成膜後にも RHEED でエピタキシャル成長を 確認した。

電子スピン共鳴 (ESR) 装置(JEOL JES-FA100)を用いて多層 膜の ESR スペクトルを測定した。図(a)に周期多層膜の、図(b) にフィボナッチ多層膜の ESR スペクトルの印加磁場方向依存 性を示す。膜の面直方向をθ=0°、180°とし、面内方向をθ=90° とした。周期多層膜では各角度で単一の共鳴信号が確認され た。印加磁場を面内方向 (θ=90°) に向けると共鳴信号は低磁 場側にシフトした。この共鳴信号は、Fe 層でのスピンの一斉 歳差運動によるキッテルモードの強磁性共鳴に起因すると考 えられる。これに対して、フィボナッチ多層膜では複数の共 鳴信号が見られる。更に印加磁場角度を変化させた場合のシ フト量も大きい。講演ではこれらの共鳴信号の起源について 議論する。

参考文献

1) L. D. Machado et al., Phys. Rev. B 85, 224416 (2012).



(a)周期多層膜(b)フィボナッチ多層膜のESR スペクトル

Fe/Pd 薄膜の磁気特性に Pd 層の量子井戸状態が与える影響

櫻木俊輔,中原翔太,餅原耕佑,沢田正博*,佐藤徹哉

(慶大,*広大)

Effect of quantum-well states in Pd layer on magnetic properties of Fe/Pd films S. Sakuragi, S. Nakahara, K. Mochihara, M. Sawada*, and T. Sato (Keio Univ., *Hiroshima Univ.)

1 はじめに

3d 遷移金属/(Pd・Pt) 界面には非常に強い磁気異方性が生じるため、磁気メモリへの応用を目指した研究が古くから行われている。最近では、(Pd・Pt) 層への電場印加により 3d 遷移金属/(Pd・Pt) の磁気異方性が変調可能であることが報告されており、界面に生じる特異な磁気特性を制御するための指針が立ちつつある¹⁾。本研究では Pd 中の量子井戸状態をプローブとして用いることで²⁾、3d 遷移金属/Pd における界面磁性の外場による変調を電子論の観点から議論することを試みた。

2 実験方法

HiSOR BL-14 において、フルエピタキシャルな Fe(3 原子層)/Pd(4-15 原子層)/Cu(100) を作製し、in-situ にて X 線吸収分光 (XAS) 測定および X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行った。BL-14 準備槽において超高真空中で Cu(100) 単結晶基板をスパッ タ・アニールした後、基板上にエピタキシャル Pd 勾配膜および Fe を 3 原子層蒸着することで、Fe/Pd エピタキシャル薄膜を 作製した。Fig. 1 に、試料の低速電子線回折像を示す。4 回対称のスポットが観測されており、Fe がエピタキシャルに成長し ていることが分かった。作製した試料を BL-14 測定槽に移動し、全電子収量法により Pd M 吸収端および Fe L 吸収端における XAS/XMCD の Pd 膜厚依存性を調べた。

3 実験結果

Fig. 2 に、Fe/Pd における Pd M_3 吸収端の XAS 強度の Pd 膜厚依存性を示す。Pd 膜厚が 8-9 原子層付近にて、XAS 強度がピークを示すことが分かった。本試料における Fe 層の磁気特性を、Fe の L 吸収端における XMCD 測定により評価した。 L_3 吸収端 ピークトップにおける磁場磁化曲線の測定から、Fe が面内磁気異方性を有していたことが分かった。加えて、Fe の磁気異方性の 大きさの Pd 膜厚依存性を調べたところ、Pd の XAS 強度が強まるにつれて Fe の面内磁気異方性が小さくなることが分かった。

XAS のホワイトラインの強度は、非専有準位数を反映する。よって、Fig. 2 は Pd の 4d 状態の非専有準位数が Pd 膜厚に依存 して変化したことを示唆する。これは、Pd の d 電子量子井戸状態が特定の膜厚においてフェルミエネルギー付近に量子井戸バン ドを形成したことより説明される。Pd 層の非専有準位数の変化は Fe 界面の電子数に影響を与えるため、それに起因して Fe 層の 磁気異方性に変化が生じることが予想される³⁾。加えて、Pd の量子井戸バンドが d_{エパ} 軌道より形成されることから、フェルミエ ネルギー付近の電子軌道に偏りが生じ、Fe 層の磁気異方性が変化した可能性を考慮する必要がある^{4,5)}。講演では、Pd の量子井 戸状態に起因した Fe の磁気異方性の変化について詳細を議論する。



Fig. 1 LEED image



Fig. 2 Pd M_3 XAS intensity

References

- 1) Y. Hibino, T. Koyama, A. Obinata, K. Miwa, S. Ono, and D. Chiba: APEX 8, 113002 (2015).
- 2) S. Sakuragi, et al.: Phys. Rev. B 90, 054411 (2014).
- 3) H. Shima K. Oikawa, A. Fujita, K. Fukamichi, K. Ishida, and A. Sakuma: Phys. Rev. B 70, 224408 (2004).
- 4) S. Manna, P. L. Gastelois, M. Dabrowski, P. Kuswik, M. Cina, M. Przybylski, and J. Kirschner: Phys. Rev. B 87, 134401 (2013).
- 5) P. V. Ong, N. Kioussis, P. K. Amiri, J. G Alzate, K. L. Wang, G. P. Carman, J. Hu, and R. Wu: Phys. Rev. B 89, 094422 (2014)

TbFeCo 薄膜の組成と磁気特性に対する酸化の影響

原 亮介、諏訪部 永将、森田 昂暉、小林 政信、安川 雪子 (千葉工業大学)

Influence of film oxidation on composition and magnetic property in TbFeCo thin films R. Hara, N. Suwabe, K. Morita, M. Kobayashi, and Y. Yasukawa

(Chiba Institute of Technology)

<u>背景</u>

TbFeCo は優れた磁気カー効果を有しており、我々は磁気カー効果を利用した超高感度磁気センサの開発を 目指している。磁気センサの開発には、±10°以上のカー回転角に加え優れた垂直磁気異方性の発現が必須で ある。しかし Tb は非常に酸化しやすく[1]、安定した垂直磁化膜の作製には様々な実験パラメータの厳密制 御が必要である。そこで本研究では、TbFeCo 薄膜の酸化の抑制に注目し、検討を行った。本研究ではターゲ ットや Tb チップの清浄さと、薄膜組成および磁気特性の相関について評価したので報告する。

実験方法

Tb:Fe:Co = 22:66:12 at%の TbFeCo 合金ターゲット上に Tb チップを配置した複合ターゲット方式で、DC マ グネトロンスパッタ法により成膜を行った。ターゲット面積当たりのスパッタパワーを 0.12 W/cm²とし、膜 厚 65 nm の試料を作製した。振動試料型磁力計(VSM)を用いて室温における磁気特性を評価した。また、蛍 光 X 線(XRF)で薄膜の組成を定量し、X 線光電子分光法(XPS)で薄膜の深さ方向の組成の定量と化学結合状態 を評価した。

<u>実験結果</u>

プレスパッタ時のガス圧、成膜時のガス圧を共に 3m Torr とし、プレスパッタ時間 60 分、成膜時間約 20 分で作製した試料の膜面垂直方向の磁気特性を Fig.1 に示す。試料は垂直磁気異方性を示し、垂直方向では約 6.4 kOe の保磁力が観察された。また、Fig.2 は 3m Torr で施したプレスパッタ時間に対する薄膜中の Tb 量お

よび垂直方向の保磁力を示す。Tb 量は約 25.5 at%で一定で あったが、保磁力はプレスパッタ時間が 60 分以上になる と約 6 kOe で飽和した。プレスパッタ時間が 20 分までの 試料は、ターゲットと Tb チップ表面の酸化膜の清浄が不 十分であり、これが成膜時に膜中に混入し、酸化 Tb が薄 膜に含有したため保磁力が相対的に低かったと考えられ る。一方でプレスパッタ時間 60 分以上の試料に見られる 保磁力の飽和は、ターゲットとチップの酸化膜の清浄が十 分であることを示唆する。これは XPS による薄膜深さ方 向の組成分析結果とも一致する。以上から、プレスパッタ による薄膜原料の十分な清浄が、試料の垂直磁気異方性の 発現に寄与したと考えられる[2]。

<u>謝辞</u>

本研究は科学研究費補助金の支援を受けた。また本研究 の一部は文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム 事業の支援により、東京大学で実施された。

<u>参考文献</u>

- M. Mochida, T. Suzuki, IEEE Trans. Magn., 38, (2002) 2096-2098.
- M. Tofizur Rahman, *et al.*, IEEE Trans. Magn., **41**, (2005) 2568-2570.



Fig.1 Perpendicular hysteresis loop of TbFeCo Film deposited at 3m Torr for 3 min. Pre-sputtering was performed 3 m Torr for 60 min before sputtering.



Fig.2 Tb contents and perpendicular coercivity values of TbFeCo films as a function of pre-sputtering time carried out 3m Torr.

EASA 法で成膜した磁性金属を内包するメソポーラスシリカ薄膜のバイアス電場の効果

市村明雄、榮岩哲二

(信州大学大学院 理工学系研究科 情報工学専攻)

Effect of bias bias voltage to mesoporous silica including magnetic metal formed by EASA method

Akio Ichimura, Tetsuji Haeiwa

(Faculty of Engineering, Graduate School of Science and Engineering, Shinshu Univ.)

はじめに

磁性ナノワイヤや磁性ナノアレイ細線は、高感度磁気センサ材料として期待されており、一般にはリソグラフィー技術 による表面加工によって研究されている。一方、界面活性剤の集合体を鋳型として形成されるメソポーラス材料の細孔を 利用することで、リソグラフィーでは困難な数 nm 径の太さの磁性ナノワイヤの規則配列が実現できると期待されている。 A.Walcarius[1]らは EASA 法により表面に細口を有するメソポーラス薄膜が成膜されることを報告している。我々は同方 法による垂直配向メソポーラス薄膜を磁性ナノワイヤ合成の鋳型として利用することを試みているが、初期成長層に細 孔を持たないスポンジ層が存在することが細孔内への磁性金属の充填を妨げていることが分かった。

本研究では、EASA法によるメソポーラス薄膜の合成に先立ち、基板にバイアス電場を印加することで初期成長層の細 孔率の向上を試みたので報告する。

実験方法

基板には Cu を真空蒸着したガラス基板及び低抵抗シリコンウェハー基板を用いた。界面活性剤には STAC(トリメチ ルステアリルアンモニウムクロリド)を用いた。成膜の 60 秒前に、外部の SUS 板と基板との間に、外部電源を用いて 0-500V の範囲のバイアス電圧を印加した。メソポーラスシリカ薄膜の成膜にはポテンショスタットを用い、銀-塩化銀参照 電極に対し、-1.0V の電位を印加してメソポーラスシリカ薄膜を成膜した。成膜したメソポーラスシリカ薄膜は FE-SEM を用いて表面構造を観察し、磁化特性は試料振動型磁力計を用いて評価した。

実験結果

Figl にバイアス電圧 100V を印加した際の SEM 像を示す。赤線で囲った部分にはメソ孔が確認されず、スポンジ層であると考えられる。SEM 像から、スポンジ層を除いた領域の割合を細孔率とし、バイアス電場依存性を評価した。

Fig2 に細孔率のバイアス電圧依存性を示す。バイアス電圧 0V の時 35.1%であった。細孔率は、バイアス電圧 100V で 最大 90.2%となり、それ以上の電圧では電圧の上昇とともに減少することが分かった。バイアス電圧を印加することによ って、前駆体溶液内の STAC の陽イオンが基板付近に引き寄せられ、無バイアスに比べ STAC 濃度が増加し、自己組織化 率を高め、細孔率が上がったと考えられる。

Fig3 にCoパルスめっきをしたメソポーラスシリカ薄膜の磁化曲線を示す。ヒステリシスの無い常磁性的な磁化曲線となった。Coは微粒子状態で孤立・分散しているものと思われる。Coによる磁化が確認できたが、現状ではCoによる磁化がごく僅かであるため、めっき条件について更に検討する必要がある。







Fig1. Image of SEM

Fig2. Relationship of bias voltage and ratio of meso pore area



謝辞

本研究は<u>JSPS 科研費 15K05982</u>の助成を受けたものです。

参考文献

[1] A.Goux, M.Etienne, E.Aubert, C.Lecomte, J.Ghanbaja, A.Walcarius. Master. 21, 731-741,(2009).

MgO(001)基板上に形成した Fe-Co-B 合金薄膜の 構造と磁気特性

芹澤伽那¹・落合亮真¹・中村将大¹・川井哲郎¹・大竹充^{1,2}・二本正昭¹・桐野文良³・稲葉信幸⁴ (¹中央大,²工学院大,³東京藝大,⁴山形大)

Structure and Magnetic Properties of Fe-Co-B Alloy Thin Films Deposited on MgO(001) Substrates

Kana Serizawa¹, Ryoma Ochiai¹, Masahiro Nakamura¹, Tetsuroh Kawai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2},

Masaaki Futamoto¹, Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

(¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ., ³Tokyo Univ. Arts, ⁴Yamagata Univ.)

はじめに Fe-Co-B 合金は代表的な軟磁性材料であ り、その薄膜は磁気ヘッドやTMR センサーで用いら れ、MRAM 電極層材料としても検討されている. 高 M_s を示すFeとCoの組成が7:3付近の(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{100-x}B_x (at. %)膜は形成温度やB組成に依存してbcc結晶 と非晶質で構造が変化することが知られている¹⁾.し かしながら、これらの条件が膜構造および磁気特性 に及ぼす影響について系統的に調べた報告は殆どな い.本研究では、MgO(001)基板上に(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{100-x}B_x 膜を、基板温度を室温(RT)から600°C,B組成を x=0から15 at.%の範囲で変化させて形成し、構造と 磁気特性を調べた.

<u>実験方法</u> 膜形成には超高真空 RF マグネトロンス パッタリング装置を使用し,基板上に 40 nm 厚の (Fe_{0.7}Co_{0.3})_{100-x}B_x (x = 0-15 at. %) 膜を形成した.構造 評価には RHEED および XRD,表面形態観察には AFM,磁化曲線測定には VSM,磁歪測定には片持ち 梁法を用いた.

実験結果 Fig. 1 に基板温度を変えて形成した (Fe_{0.7}Co_{0.3})₉₅B₅膜の RHEED パターンを示す. RT から 600 ℃ で形成した全ての薄膜から, Fig. 1(a)に指数表 示した回折点が観察された. この結果から, 薄膜は 基板に対していずれもエピタキシャル成長している ことが分かる. 結晶方位関係は,

Fe-Co-B(001)[110] || MgO(001)[100]

であった.このとき, Fe-Co-B(001)格子は, MgO(001) 格子に対して 45°回転した方位関係で形成されてお り,格子不整合は-4%となる.Fig.2に面外および面 内 XRD パターンを示す.面外パターンでは Fe-Co-B 膜からの(002)反射,面内パターンでは(200)反射が観 察されている.これらの反射から面外格子定数 c お よび面内格子定数 a を算出し,その比 c/a を求めた. Fig.3に c/a の基板温度依存性を示す.RT で形成した 場合,基板との格子不整合によりもたらされる応力 により Fe-Co-B 格子が歪んでいるが,基板温度の上昇 に伴い,緩和される傾向が認められる.当日は B 組 成が構造と磁気特性に及ぼす影響についても報告す る.

参考文献

1) S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. M. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno: *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 082508 (2008).



Fig. 1 RHEED patterns observed for $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ films deposited on MgO(001) substrates at (a) RT, (b) 200 °C, (c) 400 °C, and (d) 600 °C. The incident electron beam is parallel to MgO[100].



Fig. 2 (a-1)–(c-1) Out-of-plane and (a-2)–(c-2) in-plane XRD patterns of $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ films deposited on MgO(001) substrates at (a) RT, (b) 400 °C, and (c) 600 <u>°</u>C. The scattering vector of in-plane XRD is parallel to MgO[110].



Fig. 3 Effect of substrate temperature on the c/a ratio of $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ film.

fcc-Co(001)単結晶薄膜の磁歪挙動

川井哲郎¹·大竹充^{1,2}·二本正昭¹ (¹中央大,²工学院大) Magnetostrictive Behavior of fcc-Co(001) Single-Crystal Films Tetsuroh Kawai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2}, Masaaki Futamoto¹ (¹Chuo Univ., ²Kogakuin Univ.)

<u>はじめに</u>

スパッタや分子線エピタキシーで作製した Co 薄膜には準安定相である fcc 相が存在する¹⁾. その結晶磁気 異方性など基本的な磁気特性が報告されており²⁾,安定相である hcp-Co とは異なった特性を示すことが知ら れている.しかし, fcc-Co 膜の磁歪挙動については詳細な報告がない.本研究では MgO 単結晶基板上に fcc-Co(001)単結晶薄膜を作製し,回転磁場中でその磁歪挙動を調べた.

<u>実験方法</u>

超高真空 RF マグネトロンスパッタ装置により MgO(001)単結 晶基板上に Pd および Cu を下地層として厚さ 500 nm の Co 薄膜 を基板温度 300 ℃ で作製した. 試料の構成は MgO(001)/Pd(5 nm)/Cu(10 nm)/Co(500 nm)である.下地層は基板と Co 膜の格子不 整合を緩和するように選んだ. RHEED と XRD により作製した Co 膜がエピタキシャル成長した fcc(001)単結晶膜であることを 確認した.磁化曲線は VSM で,磁歪は片持ち梁法で最大 1.2 kOe の回転磁場中で測定した.磁歪算出に使用するヤング率とポアソ ン比については単結晶の弾性の異方性を考慮した計算値を用い た.

実験結果と考察

fcc-Co 膜のエピタキシャル成長方位関係は fcc-Co(001)[100] || MgO(001)[100] であった. Fig. 1 に磁化曲線を示す. 磁化容易軸 が<110>で困難軸が<100>である 4 回対称結晶磁気異方性を示し, 異方性磁場は 0.6 kOe 程度である. Fig. 2 に回転磁場中の磁歪測定 結果を示す. 磁歪の観察方向は[100]である. 出力波形は三角波状 で磁場が大きくなるにつれてその振幅は大きくなり,異方性磁場 を超える 0.9 kOe 付近で飽和に近づく. 出力が三角波状となるの は困難軸方向で磁歪を観察した時の特徴であり,磁場の方向と磁 化の方向とが一致しないためであり,修正一斉回転モデルで説明 出来る³⁾. 飽和した振幅から磁歪定数 λ_{100} を算出すると $\lambda_{100}=60\times10^{-6}$ となった. 磁歪の正負は出力の位相から判断した. fcc-Ni-Co 合金の λ_{100} は Co リッチ側で大きな正磁歪を示すことが 知られており⁴⁾, fcc-Co 膜の λ_{100} もその傾向を保っていると考え られる. また,第一原理計算でも fcc-Co の λ_{100} が大きな正の値を 持つことが報告されており⁵⁾,本実験結果と一致する.

<u>参考文献</u>

- 1) D. Weller et al., Phys. Rev. Lett. 72, 2097 (1994).
- 2) M. J. M. Pires et al., J. Magn. Magn. Mater. 323, 789 (2011).
- 3) T. Kawai et al., J. Magn. Soc. Jpn., 39, 181 (2015).
- 4) S. Kadowaki and M. Takahashi, J. Phys. Soc. Jpn. 18, 279 (1994).
- 5) R. Q. Wu et al., J. Magn. Magn. Mater. 177-181, 1216 (1998).



Fig. 1 Magnetization curves measured for fcc-Co(001) single-crystal film.



Fig. 2 Magnetostrictive behavior measured for fcc-Co(001) single-crystal film along fcc[100] under various magnetic fields.

Fe, Coを用いた誘導透過干渉フィルタのファラデー回転特性

宮本光教***、久保利哉*、花田貴拓**、井原敬人**、佐藤敏郎**、曽根原誠** (*シチズンファインデバイス株式会社,**信州大学)

Faraday effect of Induced transmission filter with Fe, Co films M. Miyamoto* **, T. Kubo*, T. Hanada**, H. Ihara**, T. Sato**, M. Sonehara** (*Citizen Finedevice Co.,Ltd., **Shinsyu University)

<u>はじめに</u>

Fe、Coをはじめとする強磁性体は、極めて大きな磁気光学効果を持つ材料として古くから知られている。しかし、金属特有の極めて強い光吸収によって、特に透過光の利用は困難である。もし透過光を利用する場合は極薄膜として光路上に配置すべきであるが、薄膜を空間あるいは光学的に透明な媒質中に配置することを考えた場合、通常、透明媒体の屈折率は強磁性体のそれよりも圧倒的に小さく、その屈折率差から強い反射光が生じる。より多くの透過光を利用するデバイスにとっては反射光を抑制し透過光の利用効率を上げることが重要である。過去にも磁性体と誘電体膜を多層膜とした例が見られる¹⁾。本稿では、強磁性体と誘導透過干渉を併用した場合の光学特性とファラデー回転特性について示す。

<u>実験方法</u>

石英基板上に構造式:(H/L)₂/H/M/H(L/H)₂(H:Ta₂O₅, L:SiO₂, M:Fe,Co)で表される DMD 型の誘導透過干 渉フィルタを IAD 蒸着(Ion Assisted Deposition)によって形成した。ここで、H,Lの物質およびその積層 数は磁性体 M と光路媒質である石英(n=1.46)とのアドミッタンス値が最小となるように理論計算から 求め、決定した。このように形成された試料を光ファイバーで構成されたファラデー回転評価装置にて、 λ=1550nmの光源を用いて測定した。

実験結果

Fig.1 に磁性層として Fe を用いた場合の誘導透過干渉フィルタ の分光特性を示す。本構造において、磁性層 Fe の両側に隣接し た多層膜の石英基板(n=1.46)に対するアドミッタンス値は1.32 と なり、その反射損失は0.247%である。このように反射損失を極 めて小さくした結果、設計波長 λ c=1550nm におけるピーク透過 率は、理論計算から得られたポテンシャル透過率と良く一致した。 作製した磁性多層膜を用いて測定されたファラデー回転特性を Fig.2 に示す。磁性層として Fe65nm および Co50nm を用いた場合 のファラデー回転角はそれぞれ 1.22deg.、1.21deg.(@10kOe)であ った。これは印加磁場 10 k Oe における磁化率と磁性体が磁気飽 和した際のファラデー回転角文献値²から計算された値に対し て Fe は小さく、Co は大きい結果であった。

通常、磁性層を単体で配置した場合、膜内の多重反射によって 磁性層の膜厚とファラデー回転角は線形の比例関係に無い。今回 作製した多層膜のように、隣接した媒質に対してアドミッタンス 値を最小とした構造においては、磁性層の膜厚に対するファラデ 一回転角は常に線形の比例関係を持つ。

<u>参考文献</u>

- M.Inoue, K.Matsumoto, K.I.Arai, T.Fujii, M.Abe : J.Magn.Magn.Mat., 196-197(1999)611-613
- 2) K.H.Clemens, J.Jaumann : Zeitschrift für Physik., 173, 135-148(1963)





5pE - 12

高エネルギーイオン照射によるグラフェンへのヘテロ原子ドーピング

圓谷 志郎, 水口 将輝*, 渡邊 英雄**, 楢本 洋, 境 誠司 (量子科学技術研究開発機構, *東北大学金属材料研究所, **九州大学応用力学研究所) Heteroatom doping into graphene by high energy ion irradiation Shiro Entani, Masaki Mizuguchi*, Hideo Watanabe**, Hiroshi Naramoto, Seiji Sakai (QuBS QST, *IMR Tohoku Univ., **RIAM Kyushu Univ.)

<u>はじめに</u>

グラフェンはスピン散乱の要因であるスピン-軌道相互作用が小さく、無機半導体を超えるキャリア移動度 を示すことから、理想的なスピントロニクス・エレクトロニクス材料として注目されている。一方でグラフ ェンは、半金属的な電気伝導特性を示すことから、素子応用を実現するためには、バンドギャップの導入の 必要性が指摘されている。有効な方法の一つにグラフェンへのヘテロ原子ドーピングがある。化学的手法を 用いたフッ素原子等のグラフェンへのドーピングが報告されているが、同手法ではドープ可能な原子種が限 定されることに加えて位置選択的なドーピングが困難であるという問題がある。本研究では、化学的手法に かわる新たなグラフェンのヘテロ原子ドーピング法となる高エネルギーイオン照射によるドーピング法の開 発を行った。

実験方法

Cu 箔に成長させたグラフェン上にヘテロ原子層を 作製した(図1)。ヘテロ原子層には3原子層の六方晶 窒化ホウ素(h-BN)または100nmの膜厚のLiFを用い た。真空中において同ヘテロ界面に高エネルギーイオ ン(2.4 MeV⁶³Cu²⁺)を照射した。イオン照射後の電子 状態や原子構造を顕微ラマン分光および C K 吸収端 XAFSにより評価した。

実験結果

図2にイオン照射後の*h*-BN/グラフェンの ラマンスペクトルを示す。G バンド(1580 cm⁻¹)の半値幅が増大するとともに,Dバン ド(1350 cm⁻¹)があらわれたことから,グ ラフェン中の欠陥の導入が明らかになった。 さらに 2200 cm-1 付近に CN 結合由来 (v(C=N))のピークが観察された。同ピー ク強度は照射量の増大に伴い増大すること が分かった。これらのことから,イオン照 射によって窒素原子がグラフェン中に化学 結合を形成することが明らかになった。同 ヘテロ原子ドーピングは,電子励起相互作 用が支配的なエネルギー領域(数 MeV)の イオンビームをグラフェンに照射すること によって,電子励起後の緩和過程で空間的



図 1: 高エネルギーイオン照射によるグラフ ェンへのヘテロ原子ドーピングの概念図。



図 2: *h*-BN/グラフェンヘテロ構造へのイオン照射後のラ マン分光スペクトル。(a)照射によって D バンドおよび v(C=N)由来のピークがあらわれる。(b)照射量の増大に伴 いv(C=N)ピークの強度が増大している。

に近接し同様に励起状態にあるヘテロ原子(*h*-BN 層中の窒素原子)との間で結合の組換えが生じることに起因していると考えられる。講演では、LiF/グラフェンへのイオン照射によるフッ素原子のドーピングについても議論する予定である。

MgAl₂O₄(001)基板上にエピタキシャル成長した

NiFe2O4薄膜のカチオン分布

松本光玄, 久松裕季, 井上順一郎, Sonia Sharmin, 喜多英治, 柳原英人 (筑波大物工)

Cation distribution in NiFe₂O₄ epitaxial thin films grown on MgAl₂O₄(001) M. Matsumoto, Y. Hisamatsu, J. Inoue, S. Sharmin, E. Kita, and H. Yanagihara (Institute of Applied Physics, University of Tsukuba)

はじめに

正方歪を導入した CoFe₂O₄ 薄膜に現れる一軸磁気異方性は、Co²⁺イオンの t_{2g}軌道を考慮した 1 イオンモデ ルにより理解することが出来る. 基板との格子不整合に伴い正方歪が導入された後も t_{2g}軌道の縮退が残るた めに軌道角運動量が活性となって、その結果スピン軌道相互作用を通じて磁気異方性が現れる. [1] カチオン の電子状態がもたらす磁気異方性への影響を明らかにするために、電子数が一つ多い Ni²⁺を有する NiFe₂O₄(NFO) について調べたところ、大きな負の一軸磁気異方性やバルクよりも大きな飽和磁化を示すとい う特異な現象が生じることを報告した. [2] そこで今回、これらの現象を理解するために、MgAl₂O₄(MAO)(001) 基板上にエピタキシャル成長した NFO 薄膜のカチオンの電子状態および、逆サイト欠陥 (ASD) の有無につ いて調べた.

<u>実験方法</u>

基板には、1200℃で6時間の熱処理を行なうことで、表面にステップ-テラス構造を持たせた単結晶 MAO(001)を用いた.試料作製プロセスとしては、ターゲットにNiFe合金(1:2 atm 比)を、反応性ガスとして O₂を用いた反応性スパッタリングを用いて成膜を行った.膜厚の異なる試料を作製し、X線回折法を用いた 結晶構造評価、磁化測定、磁気トルク測定による磁気特性評価を行った.さらにKEK 放射光科学研究施設 PF の BL-4C において X線異常分散法を用いた X線回折評価を行うことで、カチオン分布の評価を行なった.

<u>実験結果</u>

Fig. 1 に *t* = 4 nm における試料の X 線異常分散法における結果を示 す. NFO (202) 面並びに NFO (2-22) 面における回折強度は, Feの K 吸収端近傍で強度信号の低下が見られた. (202) 面は, A サイト原子と 酸素,一方 (2-22) 面は B サイト原子と酸素がそれぞれ結晶構造因子 に寄与することから,結果として A サイト, B サイトに共に Fe イ オンが含まれていることが分かる. 続いて, NFO(2-22) 面における 回折強度は、NiのK吸収端近傍において、大きく変化しているこ とから, B サイトには Ni イオンが含まれていることが分かる. 一 方で,NFO(202) 面の回折強度でも,僅かな変化が見られた.そこ で Ni による吸収の影響を評価するために、下地基板である MAO(202) 付近において回折線のエネルギー依存性を測定したとこ ろ, NFO(202) 面のスペクトルと同様に Ni の K 吸収端付近で, 僅か に強度信号の低減が確認された.このことから、この強度の減衰は、 回折時の異常分散に伴うものではなく,吸収によるものであると理解 できる. したがって A サイトには殆ど Ni イオンが含まれておらず, ASD は生じていないと考えられる.



Fig. 1 t = 4 nm における X 線異常分散スペクトル

参考文献

[1] J. Inoue et al., Mater. Res. Express 1, 046106 (2014) [2] M. Matsumoto et al, 第 39 回日本磁気学会講演

Mo_xFe_{3-x}O₄(001)薄膜の作製と磁気特性

久松裕季, Sonia Sharmin, 柳原英人 (筑波大) Growth and magnetic properties of Mo_xFe_{3-x}O₄(001) thin films Y. Hisamatsu, S. Sharmin, H. Yanagihara (Univ. of Tsukuba)

目的

MoFe₂O₄は高い電気伝導性を示すことからスピントロニクスへの応用が期待される物質である¹⁾.しかし, その飽和磁化 M_sは A-site と B-site の磁気モーメントから求めた概算値よりも非常に小さい値を示すことが報 告されている²⁾.これは Mo イオンのスピン状態やスピン配列の分散,組成比のズレ等が関係していると言わ れているが詳細はわかっていない.本研究ではこの磁化の減少は磁気弾性効果によって復活した軌道角運動 量がスピンと打ち消し合うために生じていると考え,歪みを導入した Mo_xFe_{3-x}O₄ (MFO)の単結晶薄膜を作製 することでこれを明らかにすることを試みた.

実験方法

二元同時反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により MgO(001)基板上に MFO を作製した. 基板温度 は 300℃とし, Fe, 及び Mo の純金属ターゲットを使用して Ar + O₂ 雰囲気中で成膜を行った. このとき, Fe ターゲットの投入電力 P_{Fe} を 100 W に固定し, Mo ターゲットの投入電力 P_{Mo} を変化させることで組成比の制 御を試みた. 作製した試料に対して反射高速電子線回折 (RHEED) を用いた表面結晶構造の評価, X 線逆格 子マップ測定 (RSM) を用いた歪み評価および振動試料型磁束計 (VSM) を用いた室温および 100 K での磁 化曲線の測定を行った.

実験結果

Fig. 1 に(a) MgO(001)および(b) $P_{Mo}=30$ W で作製した Mo_xFe_{3-x}O₄/MgO(001)の RHEED 像を示す. 成膜後の RHEED 像 は P_{Mo} の値によらず(b)に示すような明瞭なストリークパターン を示した. さらに、菊池線が現れていることから、平滑で結晶性 が高い事が示唆される. また、新たに MgO の 2 倍の格子定数に 対応するストリークが現れており、これからスピネル型結晶構 造の形成が示唆される.

Fig. 2 に M_s と P_{Mo} の関係を示す. Mo の含有量は P_{Mo} に依存すると考えられることから,組成が Fe₃O₄ から MoFe₂O₄ へと近づくに連れて M_s が小さくなっていると言える. M_s の値は室温と100 K でほとんど変化していないため,ネール温度は室温よりも十分に高いと考えられる.

講演当日は上記に加え,格子歪みの評価とより詳細な組成比の評価に基づき,MFOの磁気特性について議論する.

参考文献

- M. P. Gupta *et al.*, J. Phys. C: Solid State Phys. **12**, 2401–2409 (1979).
- 2) M. Abe *et al.*, J. Phys. Soc. Japan **31**, 940–940 (1971).



Fig. 1 RHEED images of (a) MgO(001), and (b) Mo_xFe_{3-x}O₄/MgO(001) (*P*_{Mo}=30 W).



Fig. 2 RF-power of Mo target dependence of saturation magnetization of $Mo_xFe_{3-x}O_4$.

緩衝層膜によるコバルトフェライト薄膜の歪制御

小野田浩成,久松裕季,井上順一郎,Sonia Sharmin,喜多英治,柳原英人 (筑波大学)

Control of epitaxial strain in cobalt-ferrite thin films by various buffer layers H. Onoda, Y. Hisamatsu, J. Inoue, S. Sharmin, E. Kita, and H. Yanagihara (Univ. of Tsukuba)

<u>はじめに</u>

MgO(001)上に成膜したコバルトフェライト(Co_xFe_{3-x}O₄: CFO)膜はバルクとは異なる一軸性の磁気異方性を示し、その大きさは14.7 Merg/cm³にも達する¹⁾. CFO/MgO 薄膜における垂直磁気異方性は、基板との格子不整合(+0.47%)による磁気弾性効果によって生じると理解されている²⁾. その発現機構の理解を深めるため、現象論の範囲を超えて微視的な(電子論的な)観点から理解を進めているところである³⁾. 電子論的な解釈に定量性を与えるためにも、広い範囲で格子歪を変化させその結果誘起される磁気異方性を評価することが不可欠である. そこで本研究では、MgO と比して格子定数の大きい NbN および

Mg_{0.7}Ca_{0.3}O(MCO)を緩衝層として導入し、その上に成膜した CFO 薄膜の特性を調べ、歪をパラメータとして磁気異方性の変化を実験的に調べることを試みた.

<u>方法</u>

MgO 単結晶基板上に反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により NbN 薄膜と MCO 薄膜を作製した. 成膜温度は 600℃とし、それぞれ Nb 純金属ターゲットと MgO-CaO(7:3)焼結体ターゲットを使用して成 膜を行った. CFO 薄膜は CoFe 合金ターゲットを使用して反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により 作製した. 成膜温度は 500℃とし、Ar + O₂ 雰囲気中で成膜を行った. 作製した試料は、反射高速電子線回 折法 (RHEED) による表面構造の観察、X 線回折法 (XRD) による格子定数と結晶構造の評価、および磁 気特性の評価を行った.

<u>実験結果</u>

Fig.1に(a)NbN(001)と(b) MCO(001)の RHEED 像を示す. NbN では、(a)のように明瞭なストリークパターンが現れていることから平坦性の良い膜が得られたと言える. MCO においても、(b)のようにストリークパターンであることから平坦性の良い膜であることが言える. しかし、 MCO のストリークの線幅は広く、結晶面は配向しているものの格子歪も大きいものと考えられる. これは、MgO と MCO の格子不整合が大きく、格子緩和が起こる過程で格子面間隔が連続的に変化していることが原因だと考えられる. 格子不整合の緩和が起こると、それ以降は格子に歪みが生じなくなるため、緩衝層の膜厚を厚くすることで RHEED 像は改善されると考えられる. Fig.2 に(a)NbN と(b)MCO 上に成膜した CFO(001)の RHEED 像を示す. NbN 上に成膜した CFO 薄膜は、(a)のようにハローパターンとなっていることから、試料表面はアモルファス状で、

原子配列が揃っていないことが分かる. MCO 上に成膜した CFO 薄膜 は、(b)のように MCO の 2 倍の格子定数に対応するストリークが現れて おり、これはスピネル型結晶構造を示唆しており、CFO 薄膜のエピタ キシャル成長に成功したと言える. しかし、MCO 上に成膜した CFO 薄 膜の in-plane 測定を行った結果から、CFO 薄膜の面内の格子定数がバル クの値より小さく面内圧縮歪みが導入されていることが示唆され、磁化 曲線の結果から、面内磁化膜であること分かった. 組成の異なる MCO 薄膜を作製して結晶構造の評価を行うなど MCO 薄膜についてさらなる 解析が必要である.

参考文献

- 1) T. Niizeki et al., J. Appl. Phys. 103, 162407 (2013).
- 2) J. Inoue *et al.*, IEEE Trans. Mag. 49, 3269 (2013).
- 3) J. Inoue et al., Mater. Res. Express 1, 046106 (2014).



Fig. 1 RHEED images of various buffer layer (a) NbN (001)/MgO (b) MCO (001)/MgO



Fig. 2 RHEED images of Co ferrite (001) grown on (a) NbN (001), (b) MCO (001)

反応性スパッタリング法による

Fe3-xO4 (001)成膜時の RHEED 振動の観察

小島泰介 田結荘健 Sonia Sharmin 柳原英人 (筑波大学 物理工学域)

Observation of RHEED oscillation of Fe_{3-x}O₄ (001) thin films deposited by reactive sputtering technique T. Ojima, T. Tainosho, S. Sharmin and H. Yanagihara (Inst. of Appl. Phys., Univ. of Tsukuba)

<u>はじめに</u>

磁気材料の薄膜に広く用いられている物理蒸着法(PVD)として、分子線エピタキシー(MBE)法やパルス レーザーデポジション(PLD)法、スパッタリング法などが挙げられる。薄膜材料、基板、成膜条件が整うこ とで、MBE 法や PLD 法では、膜が一原子層ずつ成長する層状成長をすることが知られており、これに対応 して反射高速電子線回折(RHEED)の鏡面反射成分の強度変化が観察される。一般にスッパリング法では、膜 の形成初期段階は島状であり、この島が大きくなることで膜厚が増加するため、薄膜の平坦性は低く層状成 長は難しいと考えられてきた[1]。我々の研究グループでは、反応性スパッタリング法により平坦性の高く、 バルクの磁気特性に近いFe₃O₄(マグネタイト)やγ-Fe₂O₃(マグへマイト)の成膜に成功している[2]。そこで、 成膜中の反射高速電子線回折(RHEED)の強度変化を測定することで、反応性スパッタリング法における薄膜 成長の過程を調べた。

<u>実験方法</u>

反応性スパッタリング法により MgO(001)基板上に酸素流量を変えることでFe₃O₄とγ-Fe₂O₃をそれぞれ成 膜した。基板温度は 300℃、ターゲットには Fe を用いて Ar+O₂雰囲気中で成膜を行った。成膜中、膜の <100>方向から電子線を入射しながら、RHEED の強度変化を測定した。また、作成した試料に対して、X線 反射率測定法(XRR)により膜厚を測定した。

<u>実験結果</u>

Fig. 1 に(a)MgO(001)、(b) Fe₃O₄(001)の RHEED 像を示 す。明瞭なストリークと菊池線が表れていることか ら、平坦性の高いエピタキシャル膜であることが示唆 される。Fig. 2 にFe₃O₄成膜中の RHEED 強度の推移を示 す。真空蒸着法による原子レベルでの層状成長に特徴 的な強度振動が本実験でも観測された。周期は7.6秒 で、これがFe₃O₄の一分子層(:≈2.10Å)の積層に相当す ると仮定すると、成膜レートは0.276Å/sとなり、 XRR 測定より求めた成膜レート 0.282 Å/s とよく一致 する。また、γ-Fe₂O₃の成膜中、周期 43.9 秒の RHEED 振動が観測された。これより求められた成膜 レートは 0.0476Å/s であり、XRR 測定より求めた 0.0486Å/sとよく一致する。以上の結果より、反応性 スパッタリング法による Fe3-xO4 (001) 膜の成長過程 は、層状成長であることが確認された。講演当日は上 記に加え、より詳細な振動の傾向について議論する。 参考文献

[1]金原粲:スパッタリング現象(1984)東京大学出版 [2] H. Yanagihara et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 47 (2014) 129501



Fig. 1 RHEED images of (a)MgO(001) and (b) $Fe_3O_4(001)$



Fig. 2 Time dependent RHEED intensity corresponding to the square area of Fig. 1 (b).

Topotactic phase transformation of spinel Fe₃O₄ to FeO with rock salt structure via ion irradiation

Yang Liu¹, Yuki Hisamatsu¹, Sonia Sharmin¹, Daiki Oshima², Takeshi Kato², Satoshi Iwata², Eiji Kita¹ and Hideto Yanagihara¹.

(1.Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, 2. Nagoya Unversity)

Introduction

An interesting topic of recent study is how spinel materials, such as MgAl₂O₄, MgGa₂O₄ and MgIn₂O₄¹, are affected by ion implantation, a technique which can change a material's fundamental properties. However, hardly any investigation has been carried out on irradiated spinel ferrite materials. In a previous study, we investigated the effect of Kr ion implantation on the epitaxial growth $CoFe_2O_4$ thin films, and found that the magnetization decreased due to ion irradiation causing a structural transformation from spinel to rock salt type. However, the mechanism of topotactic reaction in epitaxial films was not well explained. In this study, we focus on prototype spinel Fe₃O₄ thin films and investigate the structural transformation from spinel to rock salt via Kr ion implantation.

Experiment

 Fe_3O_4 thin films were fabricated on MgO (001) single crystal substrates by reactive RF sputtering. The substrate temperature was kept at 300 °C. Kr ions were accelerated in a conventional ion implantation system in Nanotechnology Platform. The acceleration was set at 30 keV and the ion dosage was controlled at 5×10^{15} ions/cm². An annular 25% ⁵⁷Fe enriched tablet placed on a natural Fe sputtering target was custom-made in order to perform room temperature conversion electron Mössbauer spectroscopy (CEMS). The structure transformation was measured by X-ray diffraction at beamline BL-4C of the Photon Factory, KEK, while the magnetization was measured by vibrating sample magnetometer (VSM) at room temperature.

Results

Figure 1 and Figure 2 show the result of the $(0 \ 0 \ l)$ scan, which defined with MgO lattice, of sample after 5×10^{15} ions/cm² ion irradiation. In Fig.1, the intensity of strongest peak (partial shown) indicates the reflection of the substrate, MgO (0 0 2). The protuberant part on the right side of MgO (0 0 2) peak, shown by the arrow represents the thin film. From the lattice constant value, we estimated that the thin film observed is Fe₃O₄ (0 0 4). In Fig. 2, the reflection of the MgO (0 0 2) substrate is also observed as the peak of strongest intensity, the arrow indicating the slight swell on the left side of the MgO (0 0 2) peak (shown by the arrow) indicates the presence of FeO (0 0 2) thin film, as estimated from lattice constant.

From these results we understand that after ion irradiation, the spinel structure of Fe_3O_4 changes to the rock salt structure of FeO. However, some Fe_3O_4 remains. In other words, the structural transformation is partial, both Fe_3O_4 and FeO can be observed in the irradiated sample. We consider that this incomplete change is due to ion irradiation not being enough to affect all parts of the thick Fe_3O_4 thin film. To solve this issue, we will fabricate thinner films of about 15 nm thickness.



Fig. 1. The result of the $(0 \ 0 \ l)$ defined with MgO lattice, which shows Fe₃O₄ $(0 \ 0 \ 4)$ after 5×10^{15} ions/cm² ion irradiation.



Fig. 2. The result of the reciprocal lattice indexes defined with MgO lattice, which shows FeO (0 0 2) thin film after 5×10^{15} ions/cm² ion irradiation.

1) B.P. Uberuga et al., Nat. Commun., 6 (2015)