

Theoretical study on the finite temperature magnetism of rare earth permanent magnets

A. Sakuma¹, D. Miura¹, R. Sasaki¹, and Y. Toga²

⁽¹⁾ Department of Applied Physics, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan;

⁽²⁾ National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba 305-0047, Japan)

1. Introduction

From an industrial viewpoint, magnetic anisotropy is the most important property of ferromagnetic materials. It governs the efficiency of magnetic media in hard disk drive (HDD) devices, permanent magnets in motors and so on. Permanent magnets have strong magnetic anisotropy above room temperature, especially in motors of hybrid and electric vehicles. They are consequently highly desired in terms of addressing energy problem.

In this symposium, we will first overview the general theory for the magnetic anisotropy at finite temperature and show how the magnetic anisotropy constants (MAC) vary as temperature increases.¹⁾ Next, we will discuss on the effects of thermal fluctuation (activation) of magnetization on the reversal (coercive) field, on the basis of magnetic viscosity. Finally, let us show some calculated results for the temperature dependence of MAC of Nd₂Fe₁₄B and mainly discuss the site dependence of the MAC's at around the room temperature.^{2,3)}

2. Theoretical evaluation of the magnetic anisotropy constants at finite temperature

Suppose that the classical Hamiltonian of a magnetic system having the uniaxial anisotropy is given by

$$H = \kappa_1 \sum_i \sin^2 \theta_i + \kappa_2 \sum_i \sin^4 \theta_i + H_{ex} \quad (1)$$

where the first two terms indicate the magnetic anisotropy energy and the last term the exchange energy. Here the constants κ_1 and κ_2 can be expressed through the expansion coefficients of the crystal field energy in terms of the Legendre polynomials $P_l(\cos \theta)$, from which we have $\kappa_1 = -3B_2^0 - 40B_4^0$ and $\kappa_2 = 35B_4^0$ with B_n^0 being the crystal field parameter. The methods to evaluate the temperature dependence of the MAC's are listed as follows:

- 1) to solve the stochastic LLG (Langevin) equation involving the thermally fluctuated field, and derive the MAC's by the magnetization curves for the applied fields parallel and perpendicular to the easy axis.
- 2) to calculate the free energy $F(\Theta, T)$ by performing the Monte-Carlo method with the average magnetization direction of Θ , and derive the n-th MAC's $K_n(T)$ by fitting $F(\Theta, T)$ with $K_1(T) \sin^2 \Theta + K_2(T) \sin^4 \Theta$.
- 3) to express directly the form of MAC's by means of the first order perturbation theory in terms of the anisotropy terms, which gives

$$K_1(T) = c_2 \kappa_1 + (8/7)(c_2 - c_4) \kappa_2, \quad K_2(T) = c_4 \kappa_2, \quad (2)$$

$$c_2 \equiv (1/2) \langle 3 \cos^2 \theta - 1 \rangle_{H_{ex}} = \langle P_2(\cos \theta) \rangle_{H_{ex}}. \quad (3a)$$

$$c_4 \equiv (1/8) \langle 35 \cos^4 \theta - 30 \cos^2 \theta + 3 \rangle_{H_{ex}} = \langle P_4(\cos \theta) \rangle_{H_{ex}} \quad (3b)$$

Note that $K_1(0) = \kappa_1$ and $K_2(0) = \kappa_2$, since $c_i = 1$ when $T = 0$.

Although the method 1) requires much computational time and resource, it is most realistic to reproduce the magnetization curves. To perform the method 2), it is useful to adopt a new technique proposed recently by Asselin et al.⁴⁾ Employing this method, we have successfully

reproduced the temperature dependence of MCA's of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$.³⁾ The method 3) provides us physically transparent form of the MAC's and is the most convenient way to realize the MAC's if one further adopts the mean field approximation for the exchange term. One can understand from eqs. (2) and (3) that $K_1(T)$ ($T > 0$) is determined by κ_1 and κ_2 , and further by H_{ex} through $\langle P_l(\cos \theta) \rangle_{H_{\text{ex}}}$. Additionally, according to the Callen-Callen theory,⁵⁾ one should note the relation $\langle P_l(\cos \theta) \rangle_{H_{\text{ex}}} \approx \langle \cos \theta \rangle_{H_{\text{ex}}}^{l(l+1)/2} = \langle m \rangle_{H_{\text{ex}}}^{l(l+1)/2}$ where $\langle m \rangle_{H_{\text{ex}}} = M(T)/M(0)$. Recently, we have confirmed by using the methods 2) and 3) that the approximate relation $\langle P_l(\cos \theta) \rangle_{H_{\text{ex}}} \approx \langle m \rangle_{H_{\text{ex}}}^{l(l+1)/2}$ holds in the wide range of temperature as far as $k_B T < H_{\text{ex}}$ is satisfied. Thus, the MAC's can be expressed by using $\langle m \rangle_{H_{\text{ex}}} = M(T)/M(0)$ as $K_1(T) = (\kappa_1 + 8/7\kappa_2)\langle m \rangle_{H_{\text{ex}}}^3 - 8/7\kappa_2\langle m \rangle_{H_{\text{ex}}}^{10}$ and $K_2(T) = \kappa_2\langle m \rangle_{H_{\text{ex}}}^{10}$. In Fig. 1, we show the calculated results of the temperature dependence of MAC's of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ based on the above expressions. Here, we input the experimental data of $\langle m \rangle_{H_{\text{ex}}} = M(T)/M(0)$ and took into account for $\sin^6 \theta_i$ term in addition to κ_1 and κ_2 terms. One can recognize that the above expressions can work well for the complex compounds like $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$.

In addition, we should emphasize here that $K_n(T)$ ($T > 0$) is dominated by H_{ex} as well as κ_1 and κ_2 , as mentioned above. This implies that the $K_n(T)$ at surfaces or interfaces exhibit larger decrement with temperature than those inside the bulk. Figure 2 shows the temperature dependence of $K_1(T)$ both for $H_{\text{ex}} = 350$ and 175 in units of kelvin.¹⁾ One can see that the $K_1(T)$ values for $H_{\text{ex}} = 175$ [K] is much smaller than those for $H_{\text{ex}} = 350$ [K] as bulk values, when the temperature is above 200 [K], which leads us to consider that the magnetization reversal takes place by a smaller field at the surfaces or interfaces of grains in magnets.

In the symposium, we will discuss the site dependence of the MAE and the effects of thermal activation on the reversal field in Nd-Fe-Bd.

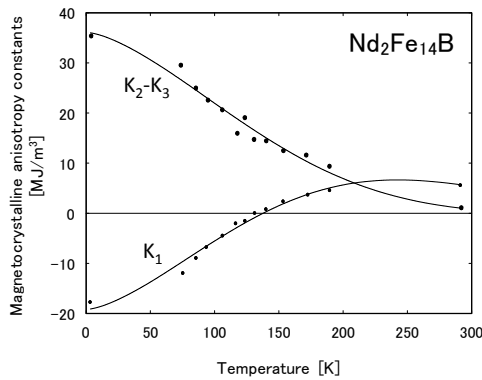


Fig.1 Temperature dependence of K_1 and $K_2 - K_3$ of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$. The dots are the experimental data.⁶⁾

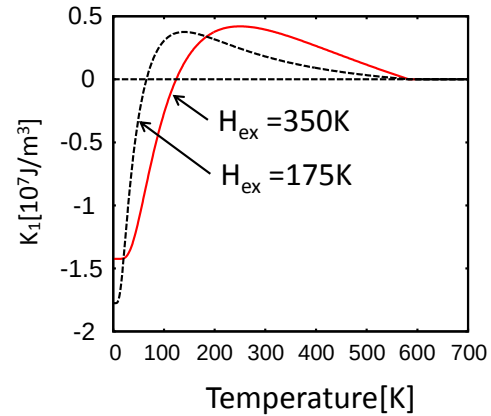


Fig. 2 Temperature dependence of K_1 for the exchange energy $H_{\text{ex}}=350$ and 175 [in units of K] in $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$.

References

- 1) D. Miura, R. Sasaki, and A. Sakuma, Applied Physics Express, **8**, 113003 (2015).
- 2) R. Sasaki, D. Miura, and A. Sakuma, Applied Physics Express, **8**, 043004 (2015).
- 3) Y. Toga, M. Matsumoto, S. Miyashita, H. Akai, S. Doi, T. Miyake, and A. Sakuma, to be submitted.
- 4) P. Asselin, et al., Phys. Rev. B **82**, 054415 (2010).
- 5) E. R. Callen and E. Callen, Phys. Rev. **129**, 578 (1966).
- 6) O. Yamada, et al., J. Magn. Magn. Mater. **54-57**, 585 (1986).

Monte Carlo analysis for finite temperature magnetism of Nd₂Fe₁₄B magnet

Y. Toga^{A,F}, M. Matsumoto^{A,F}, S. Miyashita^{B,F}, H. Akai^{C,F}, S. Doi^{C,F}, T. Miyake^{D,F}, and A. Sakuma^E

^ANational Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba 305-0047, Japan

^BDepartment of Physics, The University of Tokyo, Bunkyo-Ku 113-0033, Japan

^CInstitute for Solid State Physics, The University of Tokyo, Kashiwa 277-8581, Japan

^DNational Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba 305-8568, Japan

^EDepartment of Applied Physics, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

^FElements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials (ESICMM), Japan

Rare earth permanent magnets, particularly Nd-Fe-B, exhibiting strong magnetic performance are attracting considerable attention because of the rapidly growing interest in electric vehicles. The main focus of research in involving these materials is to increase the coercive field H_c and improve the temperature dependence. Recently, Sasaki et al.¹⁾ conducted theoretical studies in the quantitative level on the temperature dependence of magnetic anisotropy for a Nd₂Fe₁₄B bulk system. However, as these theories relied on the mean field approach, they are not enough to include the effects of magnetic inhomogeneities.

Because of the above background, we constructed a realistic classical three-dimensional Heisenberg model using results from first-principles calculations, and investigated the magnetic properties of the Nd₂Fe₁₄B bulk system at finite temperatures. To analyze the finite-temperature magnetic anisotropy, we applied constrained Monte Carlo (C-MC) method²⁾ to the above classical Heisenberg model. The C-MC method fixes the direction of total magnetization, $\mathbf{M}$, in any direction for each MC sampling without external magnetic field. This allows us to calculate the angle θ dependencies of magnetization torque and free energy.

Figure 1 shows the y-direction torque and free energy as a function of magnetization angle θ . We can see that for 100 K and 125 K, the torque (free energy) curve attains a local maximum (minimum) at $\theta \neq 0$, which reflect the spin reorientation of Nd₂Fe₁₄B. In contrast, above $T \geq 200$ K, the local maximum (minimum) disappears and the torque (free energy) curve approaches $\propto \sin 2\theta$ ($\sin^2 \theta$). This behavior implies that the magnetic anisotropy constant K_1^A becomes dominant as the temperature increases.

We also discuss the external magnetic field H_{ext} response of the energy barrier (activation energy) which governs the probability of magnetization reversal via the thermal fluctuation of spins. Figure 2 shows the height of the energy barrier, $\mathcal{F}_B$, when H_{ext} is applied opposite to the z-direction of $\mathbf{M}$. The H_{ext} response of $\mathcal{F}_B$ is generally expressed³⁾ by: $\mathcal{F}_B(H_{\text{ext}}) = \mathcal{F}_B^0(1 - H_{\text{ext}}/H_0)^n$. The exponent n can take various values, such as $n = 2$ for the Stoner–Wohlfarth model and $n = 1$ for the weak domain-wall pinning mechanism.³⁾ The parameters $\mathcal{F}_B^0$, H_0 , and n were obtained by fitting $\mathcal{F}_B(H_{\text{ext}})$ in Fig. 2. We can find that n takes values of less than 2 in the low-temperature region (below the room temperature, $T_R \sim 300$ K) and approaches 2 as the temperature increases. This reflects the fact that the magnetic anisotropy is mainly governed by the K_1^A term in the high-temperature region.

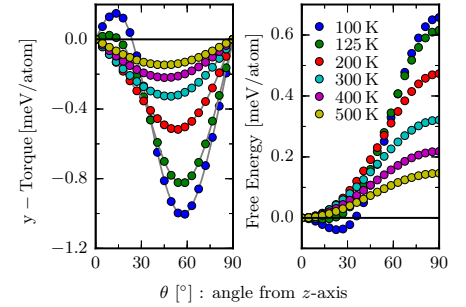


Fig. 1 Angular dependence of torque (left side) and free energy (right side) at each temperature.

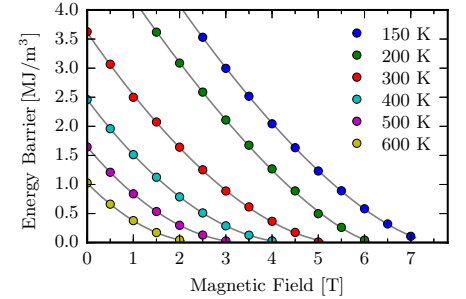


Fig. 2 Height of the energy barrier, $\mathcal{F}_B$, as a function of external magnetic field, H_{ext} , at each temperature.

1) R. Sasaki, D. Miura, and A. Sakuma, Appl. Phys. Express 8, 043004 (2015).

2) P. Asselin, R. F. L. Evans, J. Barker, R. W. Chantrell, R. Yanes, O. Chubykalo-Fesenko, D. Hinzke, and U. Nowak, Phys. Rev. B **82**, 054415 (2010).

3) P. Gaunt, J. Appl. Phys. **59**, 4129 (1986).

希土類永久磁石化合物における交換結合制御による磁気異方性の耐熱性改善

松本宗久, 原嶋庸介*, 三宅隆*, 三俣千春

(物材機構, *産総研)

Exchange-coupling engineering in rare-earth permanent-magnet compounds to improve the high-temperature magnetic anisotropy

M. Matsumoto, Y. Harashima*, T. Miyake*, and C. Mitsumata

(NIMS, *AIST)

1 はじめに

ハイブリッドカー・電気自動車の駆動部に使用される希土類永久磁石は摂氏マイナス40度から摂氏180度(絶対温度 $T = 450\text{K}$)に至るまで十分な磁気性能を発揮できなければならないが、磁石材料の性能を特徴づける残留磁化 M_r と保磁力 H_c において後者の耐熱性が問題になりやすい。その一つの原因は、 $[M_r(T), H_c(T)]$ に対応する物性値 $[M_s(T), K_{u1}(T)]$ (M_s は自発磁化、 K_{u1} は一軸磁気異方性エネルギー) において、 $K_{u1}(T)$ の耐熱性が $M_s(T)$ より弱いことにあり、両者の有限温度スケール関係 $K_{u1}/K_{u1}(0) \propto [M_s(T)/M_s(0)]^\alpha$ が1イオン起源の磁気異方性に対して議論されてきた¹⁾。ここでスケール指数は $\alpha = l(l+1)/2$ とおかれ、 l は結晶場の局所的な対称性(正方晶で $l=2$ 、六方晶で $l=3$ 、立方晶で $l=4$) から決まる。希土類永久磁石は金属材料でもあることから、絶縁体的な1イオン磁気異方性の議論の妥当性は慎重に吟味されなければならない。実際、磁気記録媒体のための金属磁性材料 FePt においては $\alpha \sim 2.1$ であり²⁾、1イオン描像の適用範囲外の磁気異方性発現メカニズムが示唆される。キュリー温度近辺に至るまで磁気異方性の耐熱性を出すためには α ができるだけ小さいことが望ましい。今日の希土類永久磁石の主流をなす Nd-Fe 合金において FePt 類似の耐熱磁気異方性を実現する方向性を検討する。

2 結果および考察

有限温度物性値において最強磁石化合物 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を超えた $\text{NdFe}_{12}\text{N}_x$ ³⁻⁵⁾ に対し、第一原理に基づいてたてたスピン模型から有限温度磁化 $M(T)$ と異方性磁場 $H_a(T)$ を計算した⁶⁾。一軸磁気異方性エネルギーを $K_{u1}(T) \equiv H_a(T)M_s(T)/2$ の関係から見積もり磁化と磁気異方性のスケール特性を解析すると図1(a)のようになる(J_{TT} は第一原理計算から与えられる鉄原子間の交換結合⁶⁾、 J_{RT} は $4f$ - $3d$ 交換結合⁷⁾、 K_{Nd} は Nd の結晶場係数の第一原理計算⁸⁾ から与えられる一軸磁気異方性エネルギー)。交換定数をモデルパラメータとして有限温度磁気物性値の傾向を調べた結果、交換結合の強さに応じて磁化と磁気異方性エネルギーのスケール指数が変化することがわかる。モデルパラメータに依存するスケール指数の傾向をまとめると図1(b)のようになる。特に希土類・鉄間の交換結合が十分に強い場合、FePt 類似の $K_{u1}(T) \sim M(T)^2$ 則が数値的に観測される。スケール指数の下がる傾向は、Fe-Fe 交換結合が固定されているとして Nd-Fe 交換結合を強くするか、あるいは Nd の磁気異方性が固定されているとして Fe-Fe 交換結合を強める方向に見られ、特に前者の影響が甚大である。いずれも Nd の磁気異方性の1イオン性を弱める方向である。 $4f$ 電子の局在性を弱めて基底状態磁気異方性を若干犠牲にすることがあっても、 $4f$ 電子に若干の遍歴性を持たせて周辺の伝導電子との混成を促し、交換相互作用的な磁気異方性を出すことが高温特性改善につながると考えられる。

References

- 1) H. B. Callen and E. Callen, J. Phys. Chem. Solids. **27**, 1271 (1966).
- 2) S. Okamoto, N. Kikuchi, O. Kitakami, T. Miyazaki, Y. Shimada, and K. Fukamichi, Phys. Rev. B **66**, 024413 (2002).
- 3) T. Miyake, K. Terakura, Y. Harashima, H. Kino, and S. Ishibashi, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 043702 (2014).
- 4) Y. Hirayama, Y. K. Takahashi, S. Hirose, and K. Hono, Scr. Mater. **95**, 70 (2015).
- 5) Y. Hirayama, T. Miyake, and K. Hono, JOM **67**, 1344 (2015).
- 6) MM, H. Akai, Y. Harashima, S. Doi, T. Miyake, J. Appl. Phys. in press.
- 7) Nd の電子状態を open core として扱い、Nd の $5d$ 電子と Fe の $3d$ 電子の交換結合を第一原理から与えた上で、局在 $4f$ モーメントのスピ成分と $5d$ バンドのスピ成分が十分に強く結合している(仮に frozen $4f$ - $5d$ 近似と呼ぶ)として $4f$ - $3d$ 交換結合を算出した。
- 8) Y. Harashima, K. Terakura, H. Kino, S. Ishibashi, and T. Miyake, JPS Conf. Proc. **5**, 011021 (2015).

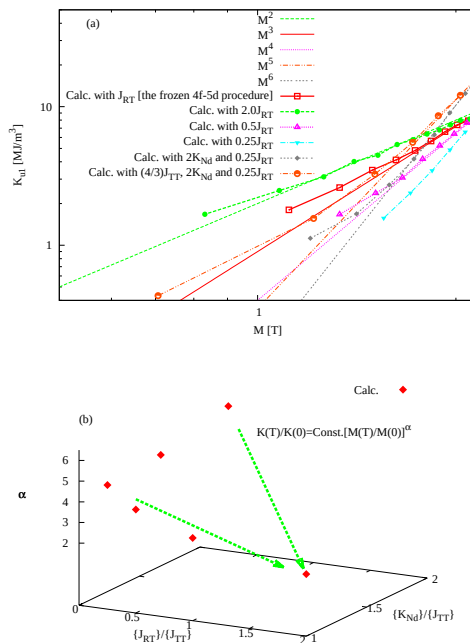


Fig. 1 Finite-temperature scaling of the magnetic anisotropy energy $K_{u1}(T)$ with respect to the magnetization $M(T)$ of NdFe_{12}N within a spin model. (a) Results with several input parameters. (b) Overview of the scaling exponent on a space of the model parameters. The arrows are guides for the eye.

Nd-Fe-B 磁石における磁化反転機構の解析

吉岡匠哉, 土浦宏紀

(東北大学大学院工学研究科, ESICMM)

Analysis of Magnetization Reversal Mechanism in Nd-Fe-B Magnets

Takuya Yoshioka, Hiroki Tsuchiura

(Tohoku University, ESICMM)

緒言

希土類磁石, 特に Nd-Fe-B 磁石の保磁力機構を解明することは, 工業的応用のみならず学術的見地からも極めて重要である. そのためには, 主相と粒界相の磁氣的性質を微視的な立場から明らかにする必要がある. 一方で, 応用上もっとも興味深い保磁力の評価を行うためには, 電子論的計算手法は現在のところ不十分であり, マイクロ磁気学シミュレーションの手法に頼ることになる. したがって, 現時点でとりうる最前の理論的アプローチは, 微視的・電子論的計算から得られた情報を最大限取り入れたマイクロ磁気学シミュレーションモデルを構築し, それを用いて保磁力評価を行うことである. そこで我々は, 各イオンのもつ磁気モーメントをはじめ, Nd サイト, Fe サイトの局所的磁気異方性, Nd-Fe 間および Fe-Fe 間の交換相互作用といった情報を第一原理計算に基づき評価し, Nd₂Fe₁₄B 相を表現する有効スピンモデルを構築した. 本講演では, このモデルを用いて Nd-Fe-B 磁石の有限温度における磁気異方性や保磁力を計算した結果について報告する.

計算手法

希土類永久磁石の結晶磁気異方性は, 主に希土類イオンの 4f 電子に働く結晶電場によってもたらされる. 結晶電場を定めるのは 4f 電子の周囲にある電荷分布であり, これは第一原理計算を用いることにより正確に計算することが出来る. まず, 第一原理計算コード WIEN2k を用いて Nd₂Fe₁₄B の電子状態を解析し, 結晶電場ハミルトニアン H_{CEF} を構築する. 次に, ハミルトニアンに基づく自由エネルギーから有限温度の磁気異方性定数を見積もる. 最後に原子スケールの LLG 方程式に従って保磁力を計算する. ここで各イオン磁気モーメント, Fe 副格子の磁気異方性, 交換相互作用に関しては実験値を援用する.

結果

Nd₂Fe₁₄B における磁化反転プロセスを下図に示す. ここでは(001)表面に Nd イオンが露出している状況を想定している. 本講演では, 実験に対応した界面をもつ微視的スピンモデルを構築し, マイクロ磁気学シミュレーションの結果から保磁力低下の原因について議論する.

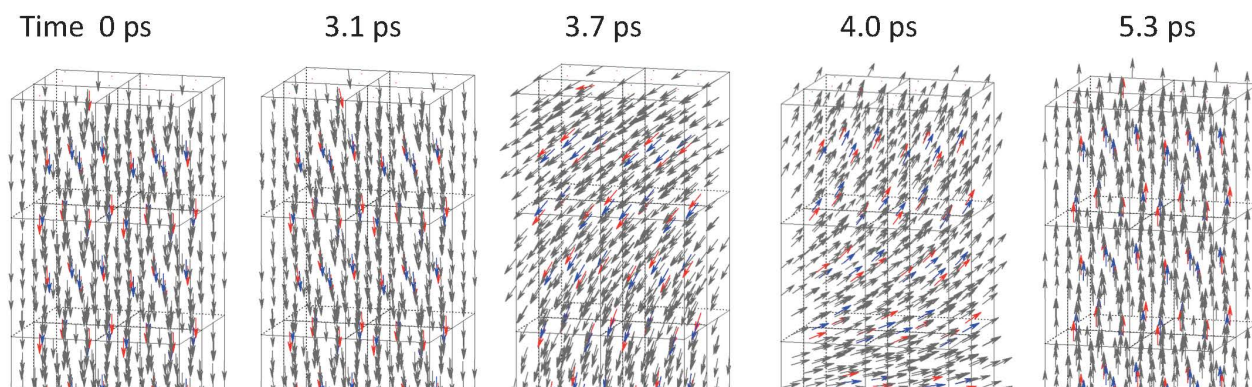


図 磁化反転プロセス

Analyses on magnetization reversal process of Nd-Fe-B hot-deformed magnets

S. Okamoto^{1,2}, T. Yomogita¹, L. Zhang¹, N. Kikuchi¹, O. Kitakami¹,
H. Sepehri-Amin², T. Ohkubo², K. Hono², T. Akiya³, K. Hioki³, and A. Hattori³
(¹Tohoku Univ., ²ESICMM-NIMS, ³Daido Steel)

The magnetization reversal process of a Nd-Fe-B magnet has been long a controversial issue since its discovery. Recently, the importance of this subject becomes more significant because of the growing demands of high performance permanent magnets for electric/hybrid vehicle and generator applications. Since a Nd-Fe-B magnet has a microstructure of the Nd₂Fe₁₄B main phase grain and the intergrain phase, it has been widely accepted that the grain boundary plays a crucial role for the magnetization reversal process. In Nd-Fe-B sintered magnets, however, the grain boundary direction is randomly distributed with respect to the *c*-axis of Nd₂Fe₁₄B phase. On the other hand, a Nd-Fe-B hot-deformed magnet has a microstructure of well aligned platelet Nd₂Fe₁₄B gran, and the grain boundary mostly exists along the directions of parallel and perpendicular to the *c*-axis of Nd₂Fe₁₄B phase. Thus, a Nd-Fe-B hot-deformed magnet is expected to be a model magnet for the analysis of the magnetization reversal process. In this talk, we discuss the magnetization reversal process of the Nd-Fe-B hot-deformed magnets through the magnetic viscosity [1] and the first-order reversal curve (FORC) analyses [2].

The samples used in this study are the Nd-Fe-B hot-deformed magnets with and without the Nd-Cu eutectic alloy grain boundary diffusion process [3]. The former and latter are referred as GBD and HD, respectively. The coercivity H_c of these two samples are quite different, i.e. 2.2 T for GBD and 1.1 T for HD at ambient temperature. Under finite temperature, the magnetization reversal takes place through the thermal activation process against the energy barrier $E_b(H)$. $E_b(H)$ is usually expressed as $E_b(H) = E_0(1 - H/H_0)^n$, where H is the magnetic field, E_0 the energy barrier height at $H = 0$, n the constant depending on the magnetization reversal mode; $n = 1$ for domain wall pinning and $n = 1.5 \sim 2$ for nucleation or coherent rotation. Recently we proposed the method to determine these energy barrier parameters from the magnetic viscosity measurement [1]. Fig. 1 shows the value of n for HD and GBD magnets as a function of temperature. Surprisingly, the value of n almost keeps to be 1 irrespective of temperature and samples whereas H_c varies significantly with temperature and samples. This fact indicates that the domain wall pinning is the major magnetization reversal process at $H \approx H_c$. Fig. 2 shows the FORC diagrams of HD and GBD samples. For this experiment, the samples are shaped into long rods of $3 \times 0.5 \times 0.5$ mm³ in order to reduce the demagnetization factor N_z . Both the FORC diagrams of HD and GBD exhibit simple Gaussian patterns with narrow distributions. From these results, we may conclude that the effect of local demagnetization field which has been frequently discussed is negligibly small, and the coercivity distributions are also very small. This work was partially supported by ESICMM

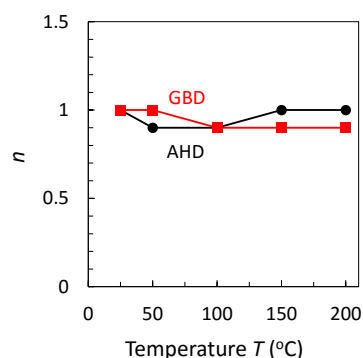


Fig. 1 Power index n of energy barrier function as a function of temperature.

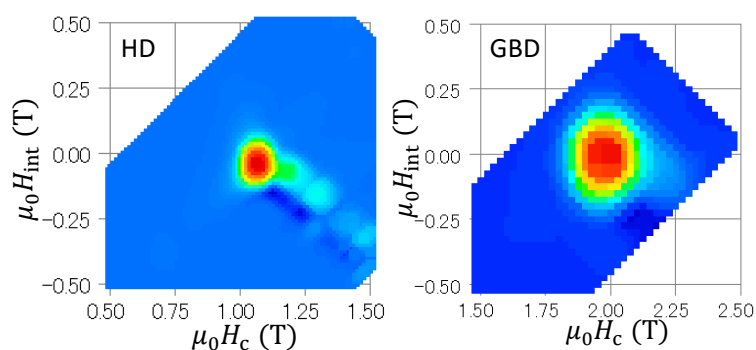


Fig. 2 FORC diagrams of HD and GBD samples at ambient temperature.

References

- [1] S. Okamoto et al., J. Appl. Phys. **118**, 223903 (2015), [2] T. Yomoita et al., submitted to proceedings of PEP2016,
- [3] T. Akiya et al., Scr. Mater. **81**, 48 (2014).

確率的 Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式による $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁石の原子論的モデルにおける磁化反転ダイナミクス

西野正理¹、宮下精二²

(¹ 物材機構、² 東大院理)

Dynamics of magnetization reversal in atomistic models of $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ magnets by the Stochastic Landau-Lifshitz-Gilbert equation

Masamichi Nishino¹ and Seiji Miyashita²

(¹NIMS, ²Univ. of Tokyo)

イントロダクション

Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式は、磁化ダイナミクスを記述する基礎方程式である。マイクロマグネティクスにおいては、しばしば連続体モデルによる LLG シミュレーションが行われるが、我々は結晶格子上の各原子がもつ磁気モーメントを考慮して磁氣的相互作用をモデル化する原子論的な立場からの LLG 法によるダイナミクスを調べている[1,2]。この方法の長所は微視的に磁化反転ダイナミクスを調べることが出来る点にある。一方、連続体で有利な大きな系の取り扱いには困難が生じる。LLG 方程式そのままでは温度による効果を記述できない。我々は LLG 方程式に stochastic noise を導入することにより、不均一磁化系への温度効果を正確に取り込んだ方法論を得て[1]、磁化反転における核生成や depinning 機構などについて研究を進めている。ここでは、この Stochastic Landau-Lifshitz-Gilbert (SLLG)法による不均一磁化系のダイナミクスへの適用と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁石系のモデル系へ適用して得られた磁化の動的特性について報告する。

磁化ダイナミクス

熱平衡を実現するダイナミクスにおいて、SLLG 方程式の緩和定数とノイズの大きさの選び方に任意性があり、揺動散逸関係を満たす限り平衡状態に漸近するが、その選択によってダイナミクスには一般に相違が現われることが分かっている[1]。この事に注意して、Nd-Fe-B 系の原子論的スピンモデルに対して、SLLG 法による有限温度のダイナミクスシミュレーションを行った。赤井らによる第一原理計算から見積もったパラメータを用いることで、Nd-Fe-B 系固有の磁化反転や自発磁化などの物性に関して、定性的のみならず定量的な解析が可能となった。まず、SLLG 法での定常状態は熱平衡状態であるが、この手法を用いて熱平衡状態のシミュレーションを行い、モンテカルロ計算で得た値と比べて一致することを確認した。そして、実験値に近い転移温度の見積もりや磁気再配列転移の特徴を再現することが出来た。また、Nd-Fe-B の一辺 10 ユニットセル程度の境界条件の異なるいくつかの系に対して、磁化反転ダイナミクスのシミュレーションを行った。その結果、Nd サイトの磁化反転がしやすいことや、境界条件により反転の様子が変わることなどが分かった(図 1)。またドメインウォール幅は 2~3 ユニットセル程度の大きさ(400K)を持つことや(図 2)、核生成的な反転過程が現われる事が観察された。また、ドメインは必ずしも c 軸方向に成長しやすいのではなく、条件により異なる成長の可能性が観察された。

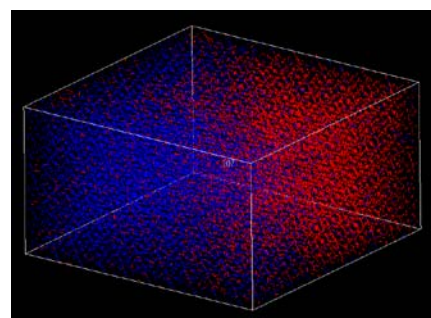


図 1 磁化反転の様子
(open boundary)

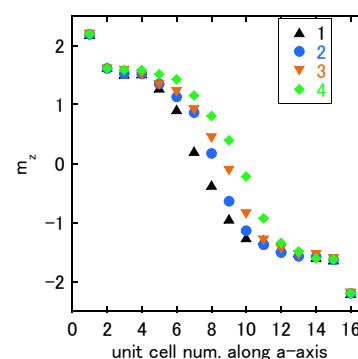


図 2 ドメインウォール幅

参考文献

- 1) M. Nishino and S. Miyashita, Phys. Rev. B. 91, 134411 (2015).
- 2) S. Mohakud, S. Andraus, M. Nishino, A. Sakuma, S. Miyashita, arXiv:1602.03285

Influence of microchemistry and interface structure of cell boundary phase on the coercivity of $\text{Sm}(\text{Co}_{0.78}\text{Fe}_{0.10}\text{Cu}_{0.09}\text{Zr}_{0.03})_{7.19}$ sintered magnets

H. Sepehri-Amin¹, J. Thielsch², T. Ohkubo¹, J. Fischbacher³, T. Schrefl³,
O. Gutfleisch⁴, and K. Hono¹

¹National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

²IFW Dresden, Institute for Metallic Materials, P.O. Box 270116, D-01171 Dresden, Germany

³Center for Integrated Sensor Systems, Danube University Krems, Austria

⁴Materialwissenschaft, Technische Universität Darmstadt, D-64287 Darmstadt, Germany

Excellent hard magnetic properties of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ -type sintered magnets at elevated temperature make them the only choice for the applications above 300°C. However, the coercivity of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ -type permanent magnets strongly depends on the cooling rate from aging temperature of ~850°C; No coercivity for rapidly quenched sample while the coercivity is enhanced to ~2.0 T after slow cooling [1]. This has been correlated to the Cu content and its distribution in the cell boundary phase [2]. Questions raise here; does just small increase of Cu in the cell boundary phase substantially enhances coercivity or are there other microstructural features influencing the coercivity of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ -type permanent magnets? In this work, we have revisited the microstructure of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ -type sintered magnets with different coercivity levels and discussed the coercivity mechanism by employing finite element micromagnetic simulations to answer to these open questions.

Commercial $\text{Sm}(\text{Co}_{0.784}\text{Fe}_{0.100}\text{Cu}_{0.088}\text{Zr}_{0.028})_{7.19}$ sintered magnets with two different heat treatment conditions, one quenched rapidly and the other slowly cooled from 850°C were studied. The magnetic properties of the samples were measured using a SQUID-VSM. Microstructure of the samples were analyzed using SEM/FIB (Carl Zeiss 1540EsB), TEM (Titan G2 80-200)) and 3DAP. Influence of the microchemistry of the cell boundary phase to its pinning strength was studied using micromagnetic simulations.

The sample slowly cooled down from 850°C showed the high coercivity of 2.6 T, while coercivity of the quenched sample was only 0.14 T. Figure 1 (a) and (b) show high resolution STEM-HAADF images obtained from the quenched and slowly cooled samples respectively. $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ matrix phase, SmCo_5 cell boundary phase, and Z-phase are observed in the microstructure. Unlike the quenched sample, $\text{SmCo}_5/\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ interface is sharp and smooth in the slowly cooled sample. Figure 1 (c) and (d) show 3D atom maps of Sm and Cu and their composition profiles obtained from the two different cell boundaries of the quenched and slowly cooled samples. Enrichment of 8.6 at. % of Cu and 7.7 at. % Fe was found in the cell boundary of the quenched sample while the SmCo_5 cell boundary phase of slowly cooled down sample contains 15.4 at. % of Cu and 3.0 at. % Fe. In addition, the distribution of Cu broader than that of Sm was found in the cell boundary of the quenched sample. Micromagnetic simulations showed that the enrichment of Fe in the cell boundary and the broad distribution of Cu results in a smaller gradient of K_1 through the 2:17/1:5 interface, which decreases the pinning strength of the cell boundary phase. This explains the low coercivity in the quenched sample.

[1] D. Goll, *et al.* Appl. Phys. Letters 76 (2000) 1054-1056. [2] X. Y. Xiong, *et al.* Acta Mater. 52 (2004) 737-748.

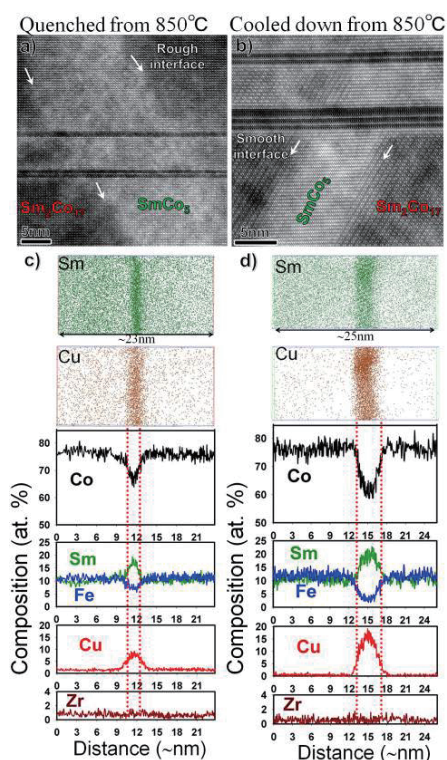


Fig. 1. (a) and (b) STEM-HAADF image and (c) and (d) 3DAP atom maps of Sm and Cu and calculated composition profile obtained from the $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ -type magnets quenched and slowly cooled down from aging temperature of 850°C.

ネオジムボンド磁石の結晶粒表層の劣化と粒界相が磁気特性に及ぼす影響

赤城文子、酒井佑輔、本蔵義信*
(工学院大、*マグネデザイン)

Effects of deterioration of grain surface-layer and grain boundary on magnetic property for neodymium permanent magnet

F. Akagi, Y. Sakai, Y. Honkura*
(Kogakuin Univ., *Magnedesign)

はじめに

近年、環境への配慮や資源の枯渇問題から、より効率の高いモータの需要が高まっている。ネオジムボンド磁石は形状自由度が高く、小型化・軽量化に優れているが、角形性及び保磁力が焼結磁石より劣る¹⁾。前回の報告では、1つの結晶粒を小さなセルに分割してMHループを求め、それが、複数個集まったものとして相加平均を求め、結晶粒表層の劣化（磁気異方性の劣化）や主相の磁気異方性の分散が保磁力及び角形性を劣化させることを示した²⁾。しかし、結晶粒間の交換相互作用や静磁界は考慮していなかった。本研究では、これらを考慮し、結晶粒表層の劣化と粒界相がMHループに及ぼす影響を検討した結果を報告する。

計算方法

計算は磁界シミュレータ EXAMAG を用いた³⁾。本プログラムでは、有限要素法を用いて Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式 (LLG 方程式) を解き、媒体の磁化を求める。Fig. 1 に計算に用いた永久磁石のモデルを示す。1つの結晶粒は $40 \times 40 \times 40 \text{ nm}^3$ とし、結晶粒界幅は 2 nm、結晶粒表層の劣化層の幅は 2 nm とした。結晶粒の飽和磁化は 1.61 T、粒界相は 0.805 T とした。交換結合定数は、結晶粒及び結晶粒と粒界相間が $1.00 \times 10^{-11} \text{ [J/m]}$ 、粒界相は $6.25 \times 10^{-12} \text{ [J/m]}$ とした。結晶粒の主相の異方性磁界は 6077 [kA/m] とし、表層劣化層の異方性磁界は主相の 10% とした。また、粒界相内は軟磁性として、異方性磁界は 1 [kA/m] とした。MHループは容易軸角度を Fig. 1 の +y 軸方向から +x 軸方向に 10° ずつ増加させて求めた。

計算結果

Fig. 2 は結晶粒表層の劣化の有無と、粒界相が非磁性か軟磁性かの違いによる保磁力の容易軸角度依存性の比較結果である。図より、表層の劣化が無い場合、粒界相が非磁性である理想的な場合に比べ、粒界相が軟磁性であれば、保磁力は劣化するが、実測⁵⁾に比べると保磁力は非常に高く Stoner-Wholfarth 型の容易軸角度依存性を示す⁴⁾。一方、表層に劣化層がある場合は、粒界相の磁性、非磁性に対する保磁力の差は小さい。更に、両者ともに、保磁力は実測に近い値となる。即ち、保磁力は表層の劣化層に大きく依存する。

参考文献

- 1) Y. Honkura, Proceeding of the 19th International Workshop on Rare Earth Permanent Magnets and Their Application, Beijing, China, p. 231, 2006.
- 2) F. Akagi and Y. Honkura, The 39th Annual Conference on MAGNETICS in Japan, Symposium 09A-1, 2015.
- 3) Fujitsu Japan - 富士通 <http://pr.fujitsu.com/jp/news/2013/12/10.html>.
- 4) 上原裕二、第3回岩崎コンファレンス、2014.
- 5) <http://www.magfine.net/magfine/images/MAGFINE%20CATALOG%20A4%20ENG%20BACK.pdf>.

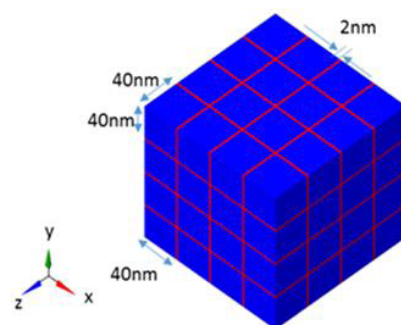


Fig. 1 Permanent magnet model.

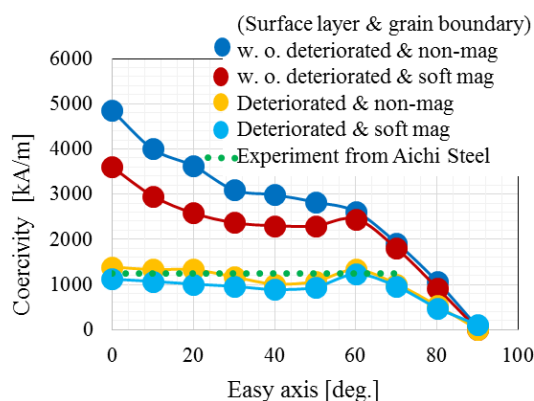


Fig. 2 Easy axis dependence of coercivity.

局所領域の面内/垂直磁化成分同時測定 Kerr 効果測定装置の開発

小田切 雄介、柳沢 栄二、目黒 栄、斉藤 伸* (ネオアーク株式会社、*東北大学)

MO Kerr effect sensing system for simultaneous detection of local magnetization components
along perpendicular/ in-plane to the film plane

Y. Odagiri, E. Yanagisawa, S. Meguro, S. Saito* (Neoark Corporation, **Tohoku University)

はじめに 軟磁性ナノドットおよび細線は、現在精力的に研究が進められている MRAM¹⁾ やスピントロニクス素子に代表される次世代磁気デバイスを構成する主要材料である。これらのデバイスは磁性材料の形状異方性を考慮して設計がなされるが、成膜時の誘導磁気異方性や加工プロセスの不完全性等により、面内・垂直磁化過程に予期せぬ磁気履歴が生じ、所望の特性を導出できない場合があるため、簡便かつ高感度に面内/垂直方向の磁化成分を分離できる局所磁気履歴曲線評価装置に対する需要が高まっていた。可視光レーザによる磁気光学効果を用いる測定は、原理的には波長程度の空間分解能を実現できると考えられ、またその検出原理により試料の非破壊性、評価の簡便性、高速性を併せ持つことから前記需要に相応するものである。我々はこれまで、レーザ特有の雑音に対する対策すなわち、発振モードの安定化およびコヒーレンシーの低下等を実現する装置設計指針ならびに極微量の磁気光学信号を高感度・高速に検出する装置設計について確立してきたが、面内/垂直磁化成分を分離する評価技術については取り組んでいなかった。本講演では、顕微鏡対物レンズを用いて Kerr 効果検出の空間高分解能化と検出高感度化とを両立した装置を用い、斜光入射磁気光学効果測定に縦カー効果と極カー効果が重畳することを利用してこれらを分離して計測可能な磁気履歴曲線評価装置 (μ -MOKE, μ -SMOKE) を開発したので報告する。

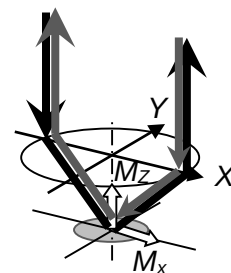


Fig. 1 Schematics of magnetization direction detection.

測定原理 Fig. 1 に今回検討した斜光入射光学系の対物レンズと試料周りの光軸の概略図を示す。同一入射面で正・逆両方向からレーザ光を入射させる場合、面内成分に起因する磁気光学信号は逆相となる一方、垂直磁化成分に起因する信号は同相となる。したがってこれらの信号を加算/減算処理することにより、垂直方向および面内方向成分の磁気履歴曲線を同時に、かつ分離測定可能となる¹⁻²⁾。

実験結果 Fig. 2 に本手法で計測した GdFeCo 薄膜の磁気履歴曲線を示す。垂直磁化成分に起因する信号が得られている一方で面内磁化成分の信号は検出されておらず、本試料が垂直磁化膜であることがわかる。FeTaN 薄膜の磁気履歴曲線では (Fig. 3) 面内磁化成分に起因する信号のみが検出されており、この試料が面内磁化膜であることがわかる。これらに対し Fig. 4 に示す FeCoTaZr 薄膜では、面内磁化成分の他に垂直磁化成分も検出されており、本試料では成膜時に何らかの垂直磁気異方性が発現したことが示唆される。

謝辞 本研究の一部は平成 26 年度補正ものづくり・商業・サービス革新補助金を受けて実施された。

参考文献 1) T. Nagai et al., *IEEE Trans. Magn.*, **39**, (2003). 2) S. Meguro et al., *IEEE Trans. Magn.*, **46**, 7aF-10 (2010).

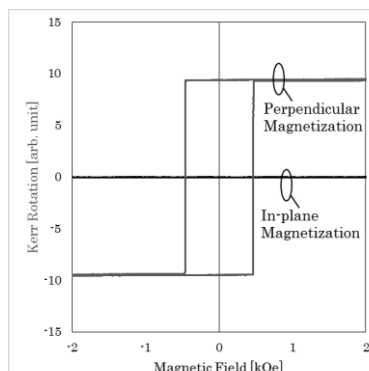


Fig. 2 Hysteresises for a GdFeCo film with applying field along perpendicular to the film plane.

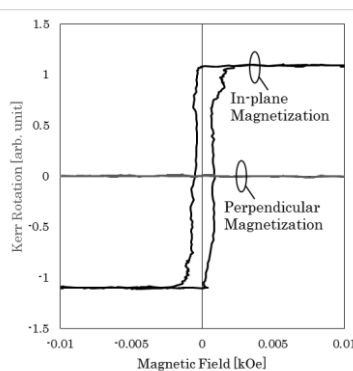


Fig. 3 Hysteresises for a FeTaN film with applying field parallel to the film plane.

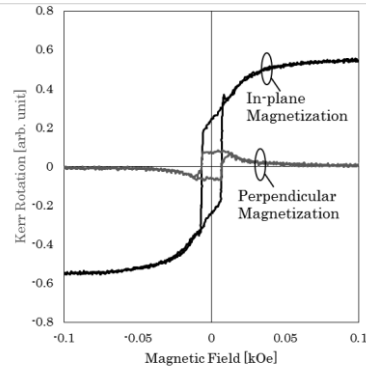


Fig. 4 Hysteresises for a FeCoTaZr film with applying field parallel to the film plane.

交番磁気力顕微鏡の高分解能化に向けた磁場中熱処理による高感度 FeCoSiB 系非晶質ソフト磁性探針の開発

赤石悠輔, K. Srinivasa Rao, 江川元太, 吉村哲, 齊藤準

(秋田大学)

Development of high-sensitive amorphous FeCoSiB soft magnetic tip by magnetic field annealing for high resolution alternating magnetic force microscopy

Y. Akaishi, K. Srinivasa Rao, G. Egawa, S. Yoshimura, H. Saito

(Akita Univ.)

はじめに 近年、磁気力顕微鏡においては高密度磁気記録媒体等の進展により空間分解能の向上が強く求められている。我々は分解能の向上に有効となる試料表面近傍での磁場検出が可能な、交番磁気力顕微鏡 (Alternating Magnetic Force Microscope; A-MFM) を開発し、昨年、良好なソフト磁気特性と高い飽和磁化を有する FeCoSiB 系非晶質ソフト磁性探針の先鋭化を図ることで、垂直磁気記録媒体の磁区観察において、5nm 以下の分解能が安定して得られることを報告した。ここで探針の先鋭化には、先鋭な Si 探針母材を回転させながら、スパッタリング法を用いて磁性膜を探針の側面方向から成膜することが有効であった。一方、FeCoSiB 系非晶質合金は Co 系非晶質合金と異なり、磁歪を組成調整によりゼロにできないので、ソフト磁気特性向上の観点から歪取り熱処理が有効と考えられる。また熱処理中の磁場印加により誘導磁気異方性の付与が可能であるので、探針先端の磁化状態を制御できる可能性がある。本研究では、FeCoSiB 系非晶質合金探針について磁場中熱処理を行い、磁場中熱処理の効果を A-MFM 観察により検討した結果を報告する。

方法 FeCoSiB 非晶質ソフト磁性探針を、先端がピラミッド形状の Si 探針にターゲット組成が $\text{Fe}_{56}\text{Co}_{24}\text{Si}_{10}\text{B}_{10}$ の磁性膜を種々の膜厚でスパッタリング法を用いて成膜した後に、磁場中熱処理を施して作製した。熱処理温度は 150~250 °C の範囲で変化させた。磁場は探針のピラミッド形状先端の長手方向 (探針を磁気力顕微鏡にセットしたときに観察面に垂直方向に対応) に印加し、その最大値は 2 kOe である。A-MFM は市販の走査型プローブ顕微鏡 (L-Trace II, 日立ハイテクサイエンス製) に、小型フェライトコア (交流磁場源)、PLL (周波数復調器)、ロックインアンプを加えて構成した。観察試料には CoCrPt-SiO₂ 垂直磁気記録媒体を用い、探針試料間距離を 2~3 nm にして直流磁場観察を行った。探針に印加した交流磁場の周波数は 89 Hz とし、振幅は 50~200 Oe の範囲で変化させた。

結果 磁場中熱処理を施した FeCoSiB 非晶質探針を用いて 500 kfcu の磁気記録ビットを A-MFM 観察した。ここで磁場中熱処理条件は、印加磁場 2 kOe、保持温度 200°C、保持時間 2 h である。Fig.1 に磁性膜厚が 15, 25, 30 nm、交流磁場振幅が 50, 200 Oe のときの直流磁場像を一例として示す。これまで試作したソフト磁性探針 (ゼロ磁歪のパーマロイ探針や CoZrNb 系非晶質探針) では磁性膜厚や交流磁場の増加に伴い信号強度が増加するのに対して、磁場中冷却した FeCoSiB 非晶質探針では磁性膜厚が増加すると記録ビットが不鮮明になり計測感度が減少していることがわかる。図で最も計測感度が高い磁性膜厚 15nm では、図(a)に見るように 50 Oe においても記録ビットが観察できており、観察に要する交流磁場値を低減できることがわかる。これらの挙動の原因として、磁性探針先端の磁性膜の磁化状態が磁場中熱処理や磁歪効果による誘導磁気異方性の影響で変化していることを考えている。講演では、空間分解能向上の可能性を探るために、さらに磁性膜厚の小さな探針を含めて、磁場中熱処理条件が磁性探針の感度と分解能に及ぼす影響の詳細を報告するとともに、低磁性膜厚で計測感度が向上した原因を考察する。

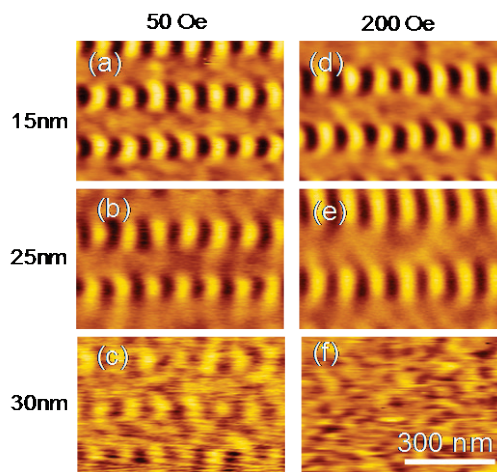


Fig. 1 A-MFM images measured by magnetic field annealed FeCoSiB tips with magnetic film thickness of 15, 25, 30 nm at AC magnetic field of 50 and 200 Oe, respectively.

参考文献 1) K. S. Rao 他, 第 39 回日本磁気学会学術講演概要集, 8pD-3 (2015).

超常磁性探針を用いた交番磁気力顕微鏡による永久磁石の破断面の磁気イメージング手法の開発

曹永澤, 江川元太, 吉村哲, 齊藤準
(秋田大学)

Development of magnetic imaging for fractured surface of permanent magnets
by alternating magnetic force microscopy with superparamagnetic tip

Y. Cao, G. Egawa, S. Yoshimura, H. Saito
(Akita Univ.)

はじめに 現在、磁区観察に広く用いられている磁気力顕微鏡の観察対象である磁性材料については、従来の表面平滑な磁性薄膜の他に、近年、バルク材料である永久磁石において、機械研磨を施さずに粒界で破断させた面（破断面）での磁区観察が求められている。その背景として、希土類磁石の磁区観察において、機械研磨した面では、内部の結晶粒と比較して磁化反転が弱い磁場で起こるのに対して、破断面では磁化反転がバルク体と同等の磁場で起こることが、放射光を用いた走査型軟X線 MCD 顕微鏡の観察¹⁾により報告されていることがある。本発表では、永久磁石の破断面等の表面凹凸の大きな試料における磁区観察を、磁気力顕微鏡により実現することを目的として、我々が開発を進めている超常磁性探針を用いた交番磁気力顕微鏡（Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM）を用いて、フェライト磁石の破断面の観察を行った結果を報告する。

方法 A-MFM は機械的に励振させた磁性探針に対して、交流磁場印加により探針磁化を周期的に変化させることで発生する探針試料間の交番磁気力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用して、探針振動信号を周波数復調後にロックイン検出して試料からの直流磁場を計測する。

A-MFM では超常磁性探針を用いることで、計測磁場方向を交流磁場の印加方向に一致させた直流磁場の計測を行うことができる。本研究では A-MFM を市販のプロブ顕微鏡（日立ハイテクサイエンス製、L-trace II）の試料ステージの下に交流電磁石を設置して構成し、交流磁場を試料ステージに垂直方向に印加して、直上の超常磁性探針（ $\text{Gd}_2\text{O}_3\text{-FeCo}$ 等）を励磁し、Sr フェライト異方性焼結磁石（結晶粒径：約 $1\mu\text{m}$ 、保磁力：約 3.0 kOe ）の破断面を大気雰囲気中で観察した。

結果 Fig. 1 に消磁状態の c 面（磁化方向が面に垂直）の破断面において超常磁性探針を用いた A-MFM により観察した、(a)表面形状像、計測磁場方向が紙面に垂直方向の(b)垂直磁場像およびそのラインプロファイル[(d)], (c)磁場極性像およびそのラインプロファイル[(e)]を示す。表面の凹凸は約 $1.5\mu\text{m}$ であり、通常の磁気力顕微鏡では磁区の識別が困難であったが、A-MFM では表面の結晶粒の形状を反映した明瞭な磁区構造が垂直磁場像で観察され、磁場極性像では垂直磁場の上向き/下向き（表面磁極の極性）が明瞭に識別できる。これらのラインプロファイルに見るように、垂直磁場の強度がゼロになる垂直磁場の上向き/下向きの境界で、位相が 180° 変化しており、表面凹凸が大きいにもかかわらず、磁区構造が明瞭に観察できることがわかる。破断面で磁区観察ができるのは、超常磁性探針が磁場の計測方向である探針の真下からの垂直磁場を主に捉えているためと推察される。講演では、試料からの直流磁場計測の詳細に加えて、試料の磁化が交流磁場で可逆的に変化する箇所が発生する交番磁気力を利用した、試料からの交流磁場のイメージング結果についても報告する。測定試料は日立金属(株)様からご提供いただきました。

参考文献 1) 中村哲也, 小谷佳範, 広沢哲, 第 39 回日本磁気学会学術講演概要集 10pA-1, 2015.

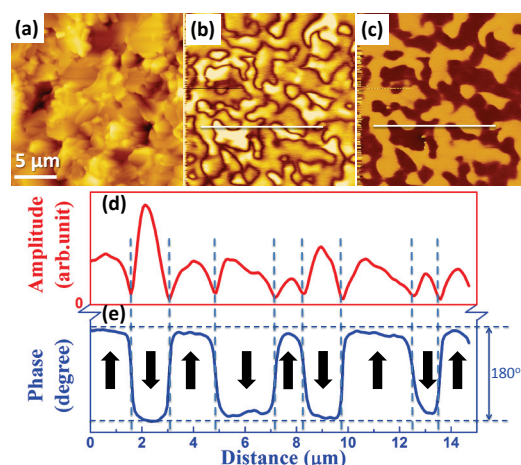


Fig.1 (a) topographic image, (b) perpendicular magnetic field image, (c) polarity image of magnetic field for fractured surface of sintered Sr ferrite magnet. (d) and (e) are the line profile of (b) and (c), respectively.

磁場分布のカラーイメージング用

磁気光学イメージングプレートの開発

長久保洋介, 劉琦, 婁庚健, 石橋隆幸
(長岡技科大)

Development of MO imaging plate for colour imaging.

Y. Nagakubo, Q. Liu, G. Lou, and T. Ishibashi
(Nagaoka Univ. of Tech.)

1. はじめに

磁気光学イメージングプレートを用いた磁気光学イメージングは、磁場分布をリアルタイムで可視化可能な優れた磁気イメージング技術である。しかし、磁場分布は光の強度分布として計測されるため、画像を見ただけで磁場の方向およびその大きさを知ることは困難であった。そこで本研究では、磁場分布をカラーでイメージングすることにより、色によって磁場の値を識別する技術を開発した。本発表では、高濃度 Bi 置換磁性ガーネットを用いた磁気光学イメージングプレートの性能指数の評価と磁気光学イメージングの磁場分布のカラー表示およびその定量化について報告する。

2. 実験方法

Bi 置換 Nd 系磁性ガーネット膜は、有機金属分解法(MOD法)を用いて作製した。ガラス基板上に下地層として $\text{Nd}_2\text{Bi}_1\text{Fe}_4\text{Ga}_1\text{O}_{12}$ (膜厚:90 nm) を作製し、その上に $\text{NdBi}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (膜厚:470 nm) の薄膜を作製した^{1,2)}。 $\text{NdBi}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜は、下地層と同様に、塗布から仮焼成までを 5 回繰り返した後に本焼成(600-700°C, 3 hour)を行うプロセスを 3 回繰り返した。最後に、反射膜として銀薄膜をガーネット膜の上に堆積させた。カラーイメージングでは、5W の白色パワーLED と偏光子および検光子(駿河精機:S342-D-550)を用いた。また、検光子を透過した光のスペクトルを光学分光器(Ocean Optics:USB2000+)を用いて測定した。

3. 結果と考察

Fig. 1 に本焼成温度の異なる試料の性能指数 $Q = \theta_K \cdot T$ [deg.] を波長に対してプロットしたグラフを Fig. 1 に示す。ここで、 θ_K は反射膜をつけた後のカー回転角、 T は透過率である。本焼成温度が 640~660°C の場合に 600 nm 付近で高い性能指数が得られた。磁気イメージングプレートと白色 LED 光源を用いて、市販のフェライト磁石の磁場分布を計測した結果を Fig.2 に示す。あらかじめ磁場と色の関係を校正しておいたカラーバー(Fig. 2)との比較により磁場の大きさも識別できることがわかる。

参考文献

- 1) 劉琦他, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 08pB-2
- 2) G. Lou et al., J. Appl. Phys., **117**, 17A749 (2015).

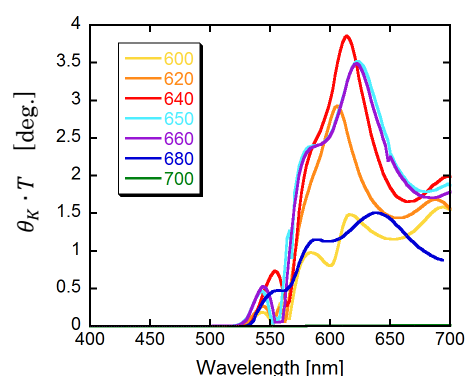


Fig. 1 Figure of merit of MO imaging plates using NdBiFeO films annealed at 600-700°C.

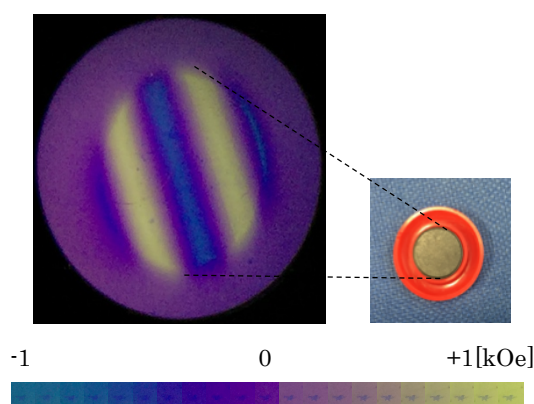


Fig. 2 An MO image of a ferrite magnet and colour bar indicating magnetic field.

走査型透過 X 線顕微鏡による永久磁石材料の XMCD 顕微分光

上野哲朗^{1,2,3}, 橋本愛², 武市泰男², 小野寛太^{2,3}
(¹物材機構, ²KEK, ³ESICMM)

XMCD micro-spectroscopy of a permanent magnet using a scanning transmission X-ray microscope
Tetsuro Ueno^{1,2,3}, Ai Hashimoto², Yasuo Takeichi², and Kanta Ono^{2,3}
(¹NIMS, ²KEK, ³ESICMM)

はじめに

永久磁石材料の開発、高機能化において磁気モーメントや希土類イオンの価数などの電子状態の情報は重要であると考えられる。しかしながら、永久磁石材料は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 磁石のように実用材料としては多結晶体であること、また $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ のように粉末試料しか得られないということがある。そのため単結晶試料を用いた精密な電子状態評価実験が困難である。本研究では、微細加工法による単結晶試料の抽出と、集光した放射光 X 線を用いて局所的な X 線スペクトルが測定可能な装置である走査型透過 X 線顕微鏡 (STXM) を組み合わせて、実用永久磁石材料の電子状態評価を行った。

実験方法

試料には市販の 1-5 系サマリウムコバルト磁石を用いた。化学組成は $\text{Sm}_{0.5}\text{Pr}_{0.4}\text{Gd}_{0.1}\text{Co}_5$ であった。1000°C で熱消磁した後、収束イオンビーム加工装置による微細加工によって単結晶試料を切り出した。XMCD 顕微分光実験は高エネルギー加速器研究機構・放射光科学研究施設(PF) BL-13A に設置された走査型透過 X 線顕微鏡(STXM) [1]を用いて行った。Sm、Pr、Gd の各 $M_{4,5}$ 吸収端、Co $L_{2,3}$ 吸収端において X 線エネルギーをスキャンしながら STXM 像を取得し、X 線吸収スペクトルおよび XMCD スペクトルを得た。

実験結果

Fig. 1 に円偏光 X 線を用いて Co L_3 吸収端で測定した STXM 像を示す。迷路状磁区がコントラストとして現れることがわかる。

Fig. 2 に STXM 像の X 線エネルギースキャンにより取得した Sm $M_{4,5}$ XAS 及び XMCD スペクトルを示す。各 XAS スペクトル (μ_+ と μ_-) は STXM 像で逆向きに磁化しているピクセルでの強度をエネルギー毎に積算することで得た。これらの差分から XMCD スペクトル ($\mu_+ - \mu_-$) を得た。XMCD スペクトルに磁気光学総和則を適用して軌道磁気モーメント L とスピン磁気モーメント S の比を求めたところ $L/S \sim 2$ となり、フント則から導かれる 3 価 Sm イオン Sm^{3+} の軌道・スピン比 $L/S = 2$ とほぼ一致することがわかった。

参考文献

[1] Y. Takeichi *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.*, **87**, 013704 (2016).

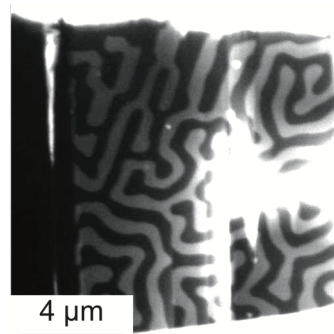


Fig. 1. STXM image at the Co L_3 edge.

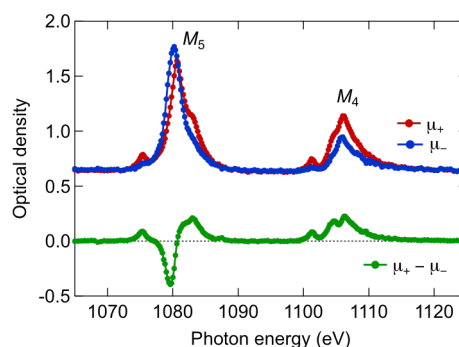


Fig. 2. Sm $M_{4,5}$ XAS (μ_+ and μ_-) and XMCD ($\mu_+ - \mu_-$) spectra.

Surface segregation of Pt in L1₀-FePt nano-grains

H. Sepehri-Amin¹, H. Iwama², T. Shima², and K. Hono¹

¹National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

²Faculty of Engineering, Tohoku Gakuin University, Tagajo 985-8537, Japan

Heat assisted magnetic recording (HAMR) is the most promising candidate for the next generation high-density hard disk drives (HDDs). To increase the areal density to higher than 2 Tbit/in², L1₀-FePt granular media with a grain size of 4-6 nm is needed. However, the reduction of FePt grain size results in the reduction of the degree of L1₀ order [1], which causes the distribution of K_u in the FePt-C granular media with 4-6 nm grain size. This has been attributed to the existence of surface segregation of Pt, which deviates the stoichiometry composition of core region of L1₀-FePt grains [2,3]. A question raises here whether or not the chemical compositions of films can influence the surface segregation of L1₀-FePt grains. In this work, we have studied the influence of Fe concentration of L1₀-FePt grains to the surface segregation and the degree of L1₀ order.

FePt films with thickness of 8 nm was DC magnetron sputtered on single-crystalline MgO (001) substrate at the substrate temperature of 725°C. The input power for Pt target was kept constant at 16 W while the input powder of Fe target was varied from 30 W to 32 W to fabricate samples with Fe-lean, stoichiometric, and Fe-rich compositions. The magnetic properties of the samples were measured using a SQUID-VSM and the microstructures were characterized using an aberration corrected TEM (Titan G2 80-200)).

The Fe-lean sample showed a coercivity of 5.9 T while the Fe-rich sample showed slightly lower coercivity of 5.6 T. Figure 1 (a) and (b) show high resolution STEM-HAADF images obtained from the L1₀-FePt grains of the films with Fe-lean and Fe-rich compositions. In the STEM-HAADF images, the atomic columns with a brighter contrast correspond to Pt rich columns. Figure 1 (c) and (d) show STEM-EDS maps of Fe (green) and Pt (red) obtained from the surface of FePt grains for the Fe-rich and Fe-lean samples. The composition profiles obtained from line scans from the surface to the center of the grains are shown in Fig. 1 (e) and (f). STEM-EDS results show that Pt atoms enriches at the surface of L1₀-FePt grains which is due to surface segregation of Pt regardless of the composition of the film. The segregation of Pt to the surface region is to reduce the surface energy of the grains. How to suppress the surface segregation of Pt will be addressed.

[1] Y. K. Takahashi *et al.* J. Appl. Phys. 95 (2004) 2690.

[2] B. Yang *et al.* Scripta Mater. 53 (2005) 417. [3] T. Seki *et al.* Appl. Phys. Letters 82 (2003) 2461.

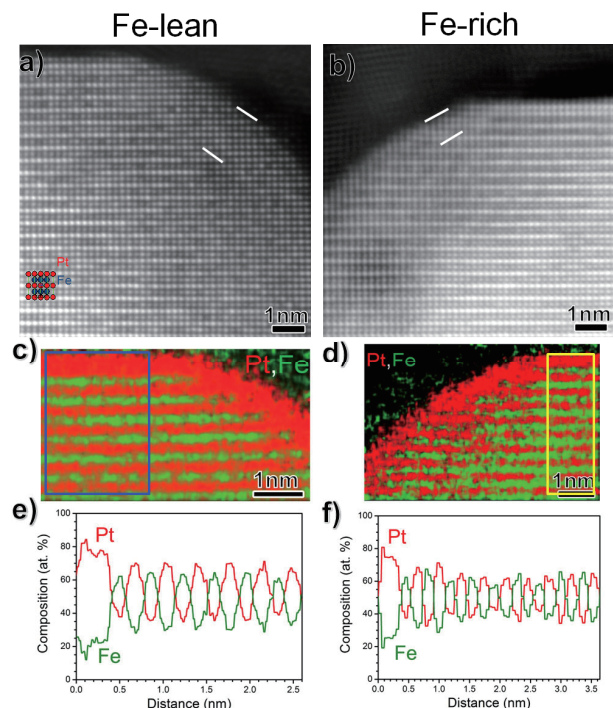


Fig. 1. (a) and (b) STEM-HAADF image, (c) and (d) STEM-EDS maps of Fe (green) and Pt (red), (e) and (f) EDS line profile calculated from selected lines shown in (c) and (d) obtained from the L1₀-FePt grains with Fe-lean and Fe-rich comp

ナノ構造下地上への高密度 1_0 -FePt 孤立磁性微粒子群形成 における下地ナノシリカ粒子径分散依存性

牧野哲也¹⁾, 平賀俊光¹⁾, 塚本新²⁾

日本大学大学院理工学研究科¹⁾, 日本大学理工学部²⁾

Silica particle diameter deviation dependency of high density

isolated 1_0 -FePt grains on nano structured under layer

Tetsuya Makino¹⁾, Toshimitsu Hiraga, Arata Tsukamoto²⁾

Graduate School of Science and Technology Nihon Univ.¹⁾, College of Science and Technology, Nihon Univ.²⁾

1. はじめに

超高密度磁気記録媒体等への応用を想定し, 我々は熱酸化 Si 基板上へ製膜した Pt / Fe 薄膜への急速昇降温熱処理による孤立 1_0 -FePt ナノ磁性微粒子群の形成¹⁾を報告している. また, FePt 粒子数密度の向上, 平均粒径の減少の方法としてシリカ粒子(平均粒径約 18 nm)の自己集積化現象を利用し作製したナノ凹凸基板 (Self-Assembled Silica Particle: SASP)を用いる手法²⁾を提案している. 更なる高密度化を目的とし, 大量化学合成により作製された平均粒径約 10 nm の典型的シリカ粒子からなる SASP 基板利用において粒径分散を評価した結果約 2.4 nm と比較的大きく FePt 粒子形成過程への影響が懸念された. 本報告では SASP 構造の不均一性に注目しシリカ粒径分散を意図的に変え形成した FePt 粒子群の評価からシリカ粒径分散の寄与を検討した.

2. 実験内容

SASP 基板は粒径 10 nm シリカ粒子(粒径分散約 2.4 nm)のみ用いた基板 (I) と, シリカ粒径分散による寄与を検討するため粒径 10 nm シリカに粒径 4.5 nm シリカ粒子を混合(質量比 1 : 1, 想定粒径分散約 4.1 nm)させた基板 (II) をディップコート法により作製した. これらの SASP 基板上へ DC マグネトロンスパッタリング法により, $Pt_{62}(0.83 \text{ nm}) / Fe_{38}(1.05 \text{ nm}) / \text{sub.}$ にて成膜した. これらの薄膜に対し, 昇温速度約 20 °C/sec, 目標到達温度 600 °C の熱処理を行い, その後窒素導入による急速冷却を行った. 作製した FePt 粒子の形状観察に走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM), 結晶構造解析に X 線回折装置(X-Ray Diffraction: XRD), 磁気特性評価に超伝導量子干渉素子型磁束計(Superconducting Quantum Interference Device Vibrating Sample Magnetometer: SQUID VSM)を用いた. 基板 (I), (II), 表面平坦熱酸化 Si 基板上³⁾の FePt 粒子群における XRD プロファイルを Fig.1 に, 膜面垂直方向の磁化特性および保磁力(H_c)を Fig.2 に, 粒子数密度(N_p), 平均粒径(D_a), 粒径偏差(StD)を Table 1 に, 示す. Fig. 1 より (I) のみ 24° 付近の 1_0 構造由来の超格子ピークを観察し, Fig.2 より, (I), (II)共に保磁力が 20 kOe であるため, 主として高保磁力特性を有する FePt 微粒子群の形成を確認した. Table 1 より熱酸化 Si 基板に対して SASP 基板 (I), (II)上ではいずれも N_p 向上, D_a 減少を確認し, (II)に対しシリカ粒径分散の少ない(I)では N_p 向上, D_a 減少を確認した. よって, SASP 基板に用いるシリカ粒子径を低分散化することで高粒子数密度かつ高保磁力の 1_0 -FePt 磁性微粒子群の作製が期待できる.

3. 謝辞

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構及び文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業(S1311020)の助成により行った.

参考文献

- 1) Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: Jpn. J. Appl. Phys. 43, 12, 8040 (2004)
- 2) A. Itoh, A. Tsukamoto, J. Magn. Soc. Jpn., 33, 507 (2009)
- 3) M. Imazato, A. Ogasawara, A. Tsukamoto, "Book of Abstract -20th ICM.", p. 1493(2015)

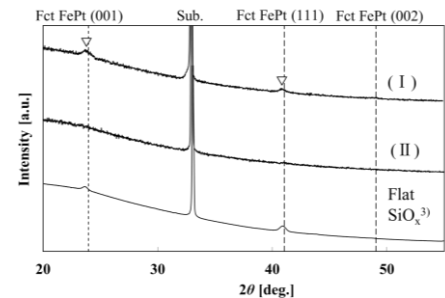


Fig.1 XRD profiles for FePt grains with (I), (II), and Flat SiO_x .

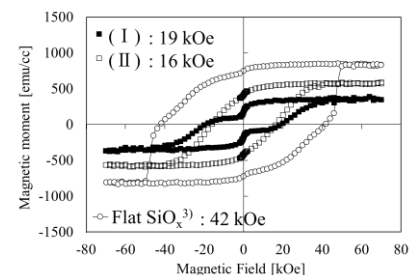


Fig.2 Magnetization curves FePt grains with (I), (II), and Flat SiO_x , measured by SQUID VSM at room-temperature.

Table 1 Average FePt grain diameter (D_a), areal density of grains (N_p), standard deviation of D_a (StD) on (I), (II), and Flat SiO_x .

	N_p (T bpsi)	D_a (nm)	StD (nm)
(I)	0.40	14.1	2.5
(II)	0.29	17.3	2.5
Flat SiO_x ³⁾	0.22	18.4	3.0

ランプ加熱高速 FeCuPt 微粒子形成における Si 基板の加熱寄与

田中万裕¹⁾, 塚本新²⁾日本大学大学院理工学研究科¹⁾, 日本大学理工学部²⁾

The role of heating of Si substrate in rapid fabrication FeCuPt nano grains by lamp annealing

Masahiro Tanaka¹⁾, Arata Tsukamoto²⁾Graduate School of Science and Technology Nihon University, Japan¹⁾College of Science and Technology, Nihon University, Japan²⁾

はじめに

高密度磁気記録媒体の作製には磁性粒子の微細化と高密度化が重要である。我々はこれまで、数 nm 厚の Pt/Fe, Pt/Cu/Fe 多層薄膜にハロゲンランプ光を用いた急速昇降温熱処理(Rapid Thermal Annealing & Rapid Cooling Process :RTA)のみによる孤立ナノ微粒子の形成につき報告してきた^{1,2)}。初期積層膜厚の減少(1~4nm)により、微粒子化は可能であるが粒子形成と RTA 条件の相関が大きく変化することが課題であった。微粒子化に寄与する加熱要素として金属薄膜自身の加熱および熱酸化 Si 基板の光吸収による熱効果が考えられる。本報告では、これらの熱寄与度の膜厚依存性に注目し、総積層膜厚 1.88nm の FeCuPt 薄膜を成膜した熱酸化 Si 基板に対し、熱処理面のみを変えて FeCuPt 微粒子群形成における RTA プロセス依存性の検討を行った。

実験方法

DC マグネトロンスパッタ法を用いて、14 mm 四方の熱酸化 Si 基板上に Cu(0.41 nm), Fe(0.67 nm), Pt(0.87 nm)の順で成膜を行った。高真空チャンバー中で集光したハロゲンランプ光により、500°C 以上まで約 120°C/sec.にて昇温し、直後素導入にて急速冷却を行った。複数の熱酸化片面研磨 Si 基板に対し、研磨面側に成膜を行い、Fig. 1 に示すように(a)成膜面側に RTA, (b)基板背面から RTA を施した[以後、条件(a),(b)とする]。作製した FeCuPt 微粒子の観察には走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope : SEM)を用いた。結晶構造解析に X 線回折装置(X-Ray diffraction : XRD)を用いた。

結果

Fig. 2(a)~(b-1,2)に形成した微粒子の表面 SEM 像を示す。いずれの熱処理条件においても FeCuPt 微粒子群の形成を確認した[Fig. 2 (a),(b-1)]。条件(b)の基板では端部より約 2 mm の領域で粒子が結合した様相も確認した[Fig. 2 (b-2)]。Table 1 に SEM 像より得られた基板中央付近における形成粒子の平均粒径(D_a), 形成粒子数密度(N_p), 粒形分散(S_tD)を示す。(a),(b)の基板においても、平均粒形 20nm 以下の孤立したナノ微粒子群の形成を確認した。Fig. 3 に XRD プロファイルを示す。いずれの熱処理面においても $L1_0$ -FePt(111)ピークが観測された。上記の結果より、Si 基板の光吸収による熱効果のみによる(b)の加熱条件でも(a)条件と同様な微粒子群の作製および規則合金化が可能であることを示している。また、光照射時の背面温度測定より(a),(b)はほぼ同等の加熱プロファイルであった。ハロゲンランプ光を用いた熱処理において、本実験に用いた膜構成(1.88 nm 厚)では、Si 基板の光吸収による熱効果が主加熱要因であることを明らかとした。当日は金属膜厚を変化して同様の実験を行った結果の報告も行う。

謝辞

本研究の一部は情報ストレージ研究推進機構の助成および文部科学省私立大学戦略的研究基盤支援事業 (S1311020) の助成により行ったものである。

参考文献

- 1) Y. Itoh, T. Aoyagi, A. Tsukamoto, K. Nakagawa, A. Itoh and T. Katayama: Jpn. J. Appl. Phys., 43, 8040-8043 (2004).
- 2) J. Tsukioka, T. Ubana, A. Tsukamoto, and A. Itoh: J. Magn. Soc. Jpn., 38, 143-146 (2014).

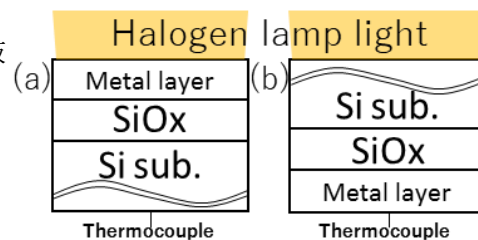


Fig.1 RTA conditions.

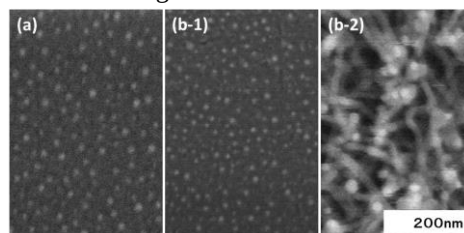


Fig.2 SEM planer view of FeCuPt grains on SiOx/Si substrate.

Table 1 Average grain diameter(D_a), Standard deviation of diameter(S_tD), areal density of grains(N_p) for isolated FeCuPt grains.

	D_a (nm)	S_tD (nm)	N_p (T particle /inch ²)
Condition (a)	19.5	2.4	0.38
Condition (b)	13.1	1.9	0.66

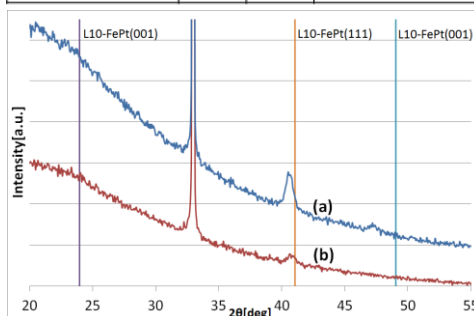


Fig.3 XRD Profile for isolated FeCuPt grains with condition (a) and (b).

単結晶基板上に形成した FePt 合金膜の構造に及ぼすキャップ層の影響

中村将大¹・落合亮真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)

Influence of Cap-Layer on the Structure of FePt Alloy Thin Films Formed on Single-Crystal Substrates

Masahiro Nakamura¹, Ryoma Ochiai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2}, Masaaki Futamoto¹,

Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

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

はじめに $L1_0$ 構造を持つ FePt 規則合金は 6.6×10^7 erg/cm³ の K_u を持つため、この薄膜は磁気記録媒体や MRAM などの応用に向けて研究されている。薄膜応用では磁化容易軸である c 軸を膜面垂直方向に制御する必要がある。FePt 膜より大きな格子定数を持つ(001)基板との格子不整合により生ずる面内方向の引張応力を利用することが有効であると考えられている¹⁻³。これまで、我々は MgO(001)基板との格子不整合による応力に加え、MgO キャップ層を導入して界面で発生する応力を重畳させて FePt 膜の結晶配向制御を試みてきた³。本研究では、格子定数の異なる複数種の単結晶基板上に FePt 膜を形成し、MgO キャップ層の有無が $L1_0$ -FePt 合金膜の結晶配向と規則度に及ぼす影響を調べた。

実験方法 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用いた。基板として、MgO, MgAl₂O₄, SrTiO₃(001)単結晶を用いた。基板温度 200 °C で 10 nm 厚の FePt 膜を堆積させ、不規則構造 (A1) の FePt(001)単結晶膜を形成した。このとき、各基板格子に対する Al-FePt(001)の不整合は、それぞれ、-9.8%, -5.5%, -2.0%となる。Al-FePt 膜上に基板温度 200 °C で 2 nm 厚の MgO キャップ層をヘテロエピタキシャル成長させ、その後、 $L1_0$ 相への規則化促進のため、600 °C での熱処理を施した。また、同様な方法で、キャップ層無しの試料も作製した。構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁気特性評価には VSM を用いた。

実験結果 MgO, MgAl₂O₄, SrTiO₃基板上に形成したキャップ層が無い FePt 膜の面外および面内 XRD パターンを Fig. 1(a)-(c) に示す。いずれの膜に対しても、面外パターンでは、FePt 膜からの基本反射に加え、FePt(001)超格子反射が観察されており、 $L1_0$ 相へ規則化していることが分かる。また、面内パターンにおいても、低強度ではあるが FePt(001)超格子反射が現れており、膜中に c 軸が面内に向いた $L1_0(100)$ および (010) バリエントが僅かに混在していることが分かる。Fig. 1(d)-(f) にキャップ層有りの試料の XRD パターンを示す。格子不整合が最大の MgO 基板の場合、面内 FePt(001) 反射が観察されておらず、 c 軸が面内に向いた $L1_0(001)$ 結晶のみになるような配向制御が実現されている。また、MgAl₂O₄ および SrTiO₃ 基板の場合、面内 FePt(001) 反射が現れているが、キャップ層無しの試料に比べ、反射強度が低下しており、面内バリエントの体積比率が減少していることが分かる。Fig. 2 に格子定数比 c/a および規則度 S の格子不整合依存性を示す。不整合の絶対値の増加に伴い、正方晶の c/a が減少傾向になり、規則化も促進されていることが分かる。また、キャップ層の導入により、不整合の効果がより顕著になっていることが分かる。

参考文献

- 1) K. F. Dong, H. H. Li, and J. S. Chen: *J. Appl. Phys.*, **113**, 233904 (2013).
- 2) A. Hotta, T. Ono, M. Hatayama, K. Tsumura, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17B712 (2014).
- 3) M. Ohtake, A. Itabashi, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 167 (2015).

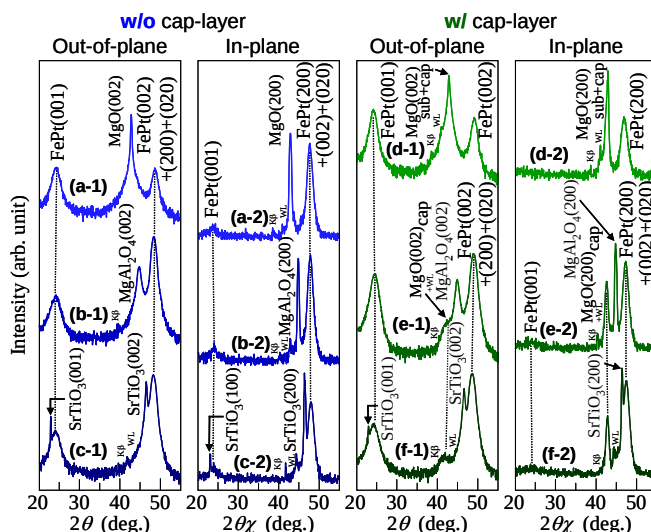


Fig. 1 (a-1)–(f-1) Out-of-plane and (a-2)–(f-2) in-plane XRD patterns of FePt films (a)–(c) without and (d)–(f) with MgO cap-layers deposited on [(a), (d)] MgO, [(b), (e)] MgAl₂O₄, and [(c), (f)] SrTiO₃ substrates.

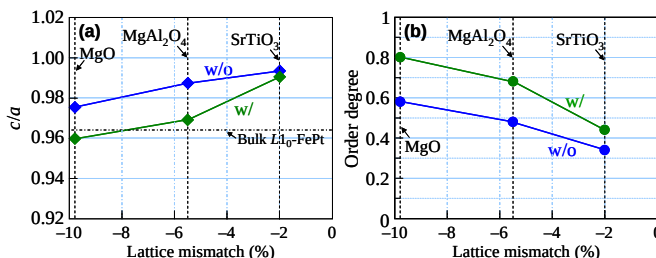


Fig. 2 Effects of lattice mismatch on (a) c/a and (b) order degree of FePt film with and without MgO cap-layer.

FePd 合金薄膜の構造に及ぼす基板との格子不整合の影響

中村将大¹・落合亮真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)

Influence of Lattice Mismatch with Substrate on the Structure of FePd Alloy Thin Film

Masahiro Nakamura¹, Ryoma Ochiai¹, Mitsuru Ohtake^{1,2}, Masaaki Futamoto¹,

Fumiyoshi Kirino³, and Nobuyuki Inaba⁴

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

はじめに FePt や FePd 合金は立方晶 ($A1$) および正方晶 ($L1_0$) 構造をとり, $L1_0$ 構造の状態で 10^7 erg/cm³ オーダーの K_u を示す. そのため, 膜面垂直に磁化容易軸 ($[001]$ 方位) が向くように規則化させた合金膜は磁気記録媒体や MRAM などへの応用に向けて研究されている. 立方晶(001)基板に対する $L1_0$ (001)膜の格子不整合 (ミスマッチ) は $[(a_{L1_0} - a_{\text{sub}}) / a_{\text{sub}}] \times 100$ で表される. 負のミスマッチを持つ基板の上にエピタキシャル薄膜成長すると, 膜には面内方向に引張応力が働き, その結果, 面内格子が膨張し, 正方晶膜が形成されやすくなることが推察される. 最近, MgO, MgAl₂O₄, SrTiO₃(001)基板を用いることにより, 格子不整合が FePt 膜の構造や磁気特性に及ぼす影響が報告されつつある¹⁻³⁾. 本研究では, 種々の立方晶(001)単結晶基板の上に FePd 膜を形成し, 格子不整合が膜構造に及ぼす影響について調べた.

実験方法 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用いた. 基板材料として, MgO, MgAl₂O₄, SrTiO₃, (LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂AlTaO₃)_{0.7}, LaAlO₃を用い, それぞれの基板に対する $L1_0$ -FePd(001)格子のミスマッチは, -9.1%, -4.9%, -1.4%, -0.4%, +1.6%である. 基板の上に RT~600 °C の基板温度で 10 nm 厚の FePd 膜を形成した. 構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁気特性評価には VSM を用いた.

実験結果 Fig. 1に一連の基板の上に600 °Cで形成した FePd膜のRHEEDパターンを示す. 全ての基板で, ストリーク状の回折パターンが観察されており, FePd膜がエピタキシャル成長していることが分かる. 面外XRDパターンにおけるFePd(001)超格子とFePd(002)基本反射の強度比から算出した規則度と格子不整合の関係をFig. 2に示す. 格子不整合が増大するほどFePd膜の規則度が増大する傾向がある. 負のミスマッチの値が最も大きなMgO (-9.1%)で規則度0.53となっており, 飽和傾向も認められる. 以上のことから, 負の格子不整合により $L1_0$ 相への規則化が促進されていることが分かる.

参考文献

- 1) K. F. Dong, H. H. Li, and J. S. Chen: *J. Appl. Phys.*, **113**, 233904 (2013).
- 2) A. Hotta, T. Ono, M. Hatayama, K. Tsumura, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17B712 (2014).
- 3) M. Nakamura, R. Ochiai, M. Ohtake, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: 8th Joint European Magnetism Symposium (JEMS 2016).

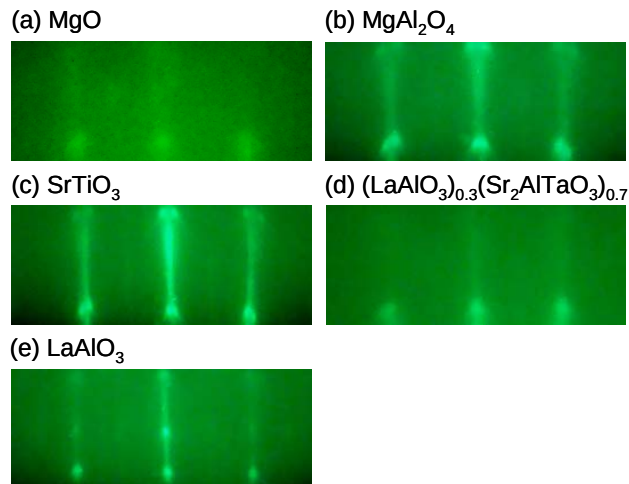


Fig. 1 RHEED patterns observed for FePd films deposited on (a) MgO, (b) MgAl₂O₄, (c) SrTiO₃, (d) (LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂AlTaO₃)_{0.7}, and (e) LaAlO₃ substrates at 600 °C.

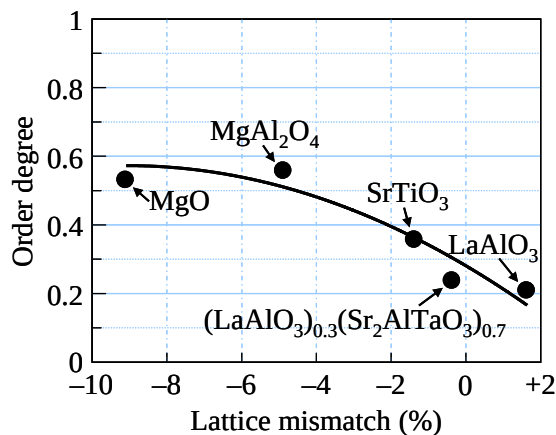


Fig. 2 Lattice mismatch dependence of order degree of FePd film.

Effect of CrB insertion on the (001) texture of MgO seed layer and magnetic properties of FePt-C HAMR media

J. Wang¹, Y.K. Takahashi¹, K. Yakushiji², H. Sepehri-Amin¹, H. Kubota², K. Hono¹

¹ National Institute for Materials Science, 1-2-1, Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan

² National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan

L1₀-ordered FePt-C granular films are considered to be the most promising candidates for heat-assisted magnetic recording (HAMR) media for the recording density higher than 1.5 Tbit/in². For practical applications as HAMR media, the FePt-C granular structure has to be optimized with excellent alignment of the c-axis normal to the film plane on polycrystalline MgO seed layer. Therefore it is essential to have a strong (001)-texture in the MgO seed layer with a smooth surface. In our previous work¹⁾, we demonstrated well-isolated FePt-C granular films with high $\mu_0 H_c$ on polycrystalline MgO underlayers. However, poor (001)-textures of polycrystalline MgO seed layers result in serious mis-orientations of FePt grains, causing large in-plane components in the magnetization curve, which will lead poor SNR²⁾. Here, we show that with the insertion of a 2-nm-thick CrB layer between a heat sink and a MgO seed layer, the texture and the surface roughness of the MgO seed layer are significantly improved, thereby reducing the in-plane component in a subsequently deposited FePt-C granular layer.

6-nm-thick FePt-28vol.% C films were deposited by DC co-sputtering using FePt and C targets at 600°C under 0.48Pa Ar on a MgO (100) substrate (Sample A), glass/ NiTa (100 nm)/ MgO (10 nm) seed layer (Sample B), and glass/ NiTa (100 nm)/ CrB (2 nm)/MgO (10 nm) seed layer with a CrB insertion (Sample C). The MgO seed layers were RF sputter deposited under an Ar pressure of 5.2 Pa at room temperature (RT) using a MgO target.

Figure 1 shows the MgO (002) rocking curves of sample B and C. The insertion of a CrB layer obviously improved the (001)-texture of the MgO layer, which is indicated by the smaller FWHM value of the MgO (002) rocking curve (5.6° to 3.9°). The insertion of a CrB layer improves the roughness of the MgO seed layer from R_a value of 0.28 to 0.14 nm. The MH curves of the FePt-C layers grown on these two kinds of seed layers are shown in Fig. 2. Without the CrB layer (Fig. 2 a), the loops show small kink at zero field, and an open in-plane loop, indicating large in-plane components. In our previous work²⁾, such large in-plane components were due to significant mis-orientation of FePt grains originated from mis-aligned MgO grains in a seed layer. With much improved (001)-texture and surface roughness of the MgO seed layer by the insertion of the CrB layer, sample C (Fig. 2 b) presents loops without kink, narrowed in-plane loop and reduced remanence ratio ($M_{r\parallel} / M_{r\perp}$) which are critical for signal-to-noise ratio of magnetic recording. In summary, the insertion of a thin CrB buffer layer on amorphous NiTa heat sink layer improves the (001)-texture and roughness of the MgO seed layer, which lead to the reduction in the in-plane component of the FePt-C recording layer.

Reference

- 1) A. Perumal, Y. K. Takahashi, and K. Hono, Appl. Phys. Express 1, (2008) 101301.
- 2) J. Wang, S. Hata, Y.K. Takahashi, H. Sepehri-Amin, B. Varaprasad, T. Schrefl, K. Hono, Acta Mat., 91 (2015) 41

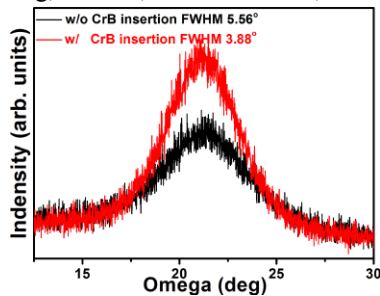


Fig. 1 MgO (002) rocking curves of films with (B) and without (C) CrB insertion layer.

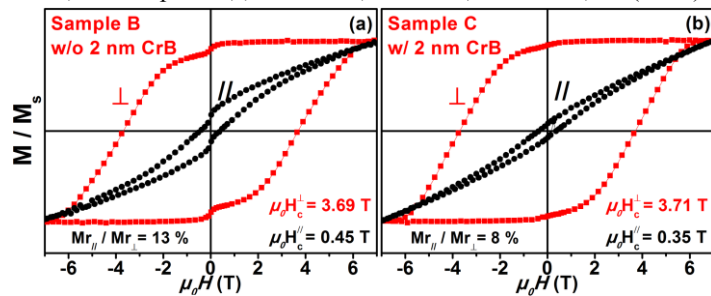


Fig. 2 M-H curves of sample B without 2 nm CrB (a) and sample C with 2 nm CrB insertion layer (b).

スピントルク発振素子と記録媒体の共鳴的相互作用： 磁気共鳴を用いた読み出し方法

金尾太郎、首藤浩文、工藤究、永澤鶴美、山岸道長、水島公一、佐藤利江
(東芝研究開発センター)

Resonant interaction between spin-torque oscillator and recording media:

Micromagnetic study of readout method using magnetic resonance

T. Kanao, H. Suto, K. Kudo, T. Nagasawa, M. Yamagishi, K. Mizushima, and R. Sato

(Corporate Research & Development Center, Toshiba Corporation)

はじめに

多層の記録層をもつ三次元磁気記録^{1,2)}のための読み出し方法として、スピントルク発振素子(spin-torque oscillator, STO)と記録層の共鳴を利用した共鳴読み出しが提案されている³⁾。共鳴読み出しでは、STO から発生した高周波磁場が記録層に加えらる。この高周波磁場の周波数が記録層の共鳴周波数に近いとき記録層に磁化振動が励起される。その影響を受け STO の発振が変化することを利用して記録層の磁化方向を読み出す。本研究ではマイクロマグネティックシミュレーションを用いて共鳴読み出しのための STO と記録層の構成を検討した。

共鳴読み出し用 STO と記録層

Figure 1 に今回シミュレーションをおこなった STO と記録層(recording layer, RL)の形状と磁化および磁場の配置を示す。STO は垂直自由層・面内固定層からなるとした。この型の STO では面外発振により振幅の大きな高周波磁場が発生する。また、この型の STO では大きな電氣的信号出力が得られるため⁴⁾、再生に有利になる。STO には面直方向に電流 I と外部磁場 H_x が加えられている。記録層は垂直磁気異方性をもち、反強磁性的に結合したソフト層とハード層からなるとした。この構造により漏れ磁場を小さく抑えることができる。ソフト層は STO の発振周波数と近い共鳴周波数をもち、STO と相互作用する。ハード層は十分高い共鳴周波数をもち、熱安定性を保つ。記録層のとり 2 つの磁化配置“down”, “up” (Fig. 1 右図)の共鳴周波数が異なるように z 方向に磁場 $H_z = 0.2$ kOeを加えている。 H_z は STO にも加わるとした。

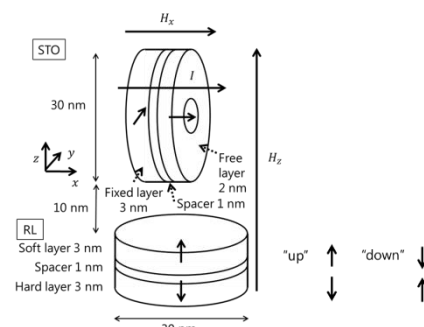


Fig. 1. STO and recording layer (RL).

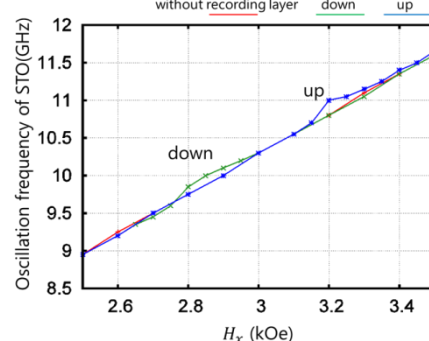


Fig. 2. Oscillation frequency of STO plotted against H_x .

結果

Figure 2 に STO の発振周波数の外部磁場 H_x 依存性を、記録層なしの場合、および down または up の磁化配置の記録層がある場合について示す。記録層のないとき STO の発振周波数は H_x を大きくするに従って単調に増加する。down または up の磁化配置の記録層がある場合には、それぞれ異なる H_x で、記録層なしの場合から発振周波数がシフトする。これは STO と記録層がそれぞれの磁化配置に対して選択的に共鳴したことを示している³⁾。以上からこの構成により記録層の磁化方向が共鳴読み出しによって判別できることを確認した。講演では磁化振動波形やその過渡応答についても報告する。

参考文献

- 1) S. Okamoto et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 353001 (2015).
 - 2) H. Suto et al., Phys. Rev. Appl. **5**, 014003 (2016).
 - 3) H. Suto et al., Nanotechnology **25**, 245501 (2014).
 - 4) H. Kubota et al., Appl. Phys. Express **6**, 103003 (2013).
- 本研究は科学技術振興機構(JST)の研究成果展開事業「戦略的イノベーション創出推進プログラム(S-イノベ)」の支援によっておこなわれた。

マイクロ波磁界中における垂直磁化 ECC ナノドットの磁化振動励起と磁化反転：ダイオード効果を用いた解析

首藤 浩文, 永澤 鶴美, 工藤 究, 金尾 太郎, 水島 公一, 佐藤 利江
(東芝研究開発センター)

Magnetization Excitation and Switching of a Perpendicularly Magnetized ECC Nanodot in a Microwave Magnetic Field: Analysis Using Diode Effect

H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, T. Kanao, K. Mizushima, and R. Sato
(Corporate Research & Development Center, Toshiba Corp.)

はじめに

マイクロ波磁界を印加し磁化振動を励起することにより磁化反転をアシストするマイクロ波アシスト磁化反転が、次世代の高密度磁気記録における書き込み技術として注目されている[1-3]. 本研究では, MR 素子にマイクロ波信号を印加することによって直流電圧が現れるダイオード効果[4]を利用して, マイクロ波磁界中の垂直磁化ナノドットの磁化振動の解析を行った. マイクロ波磁界の周波数 (f_{rf}) と FMR 周波数が一致する条件において, 磁化振動のコーン角にピークが現れた. マイクロ波磁界強度を上げるにつれ, このピークは大きくなるとともに, 非線形性によりピーク位置がシフトした. また, 磁化振動が励起され磁化反転に至るアシスト磁化反転の挙動を観察した.

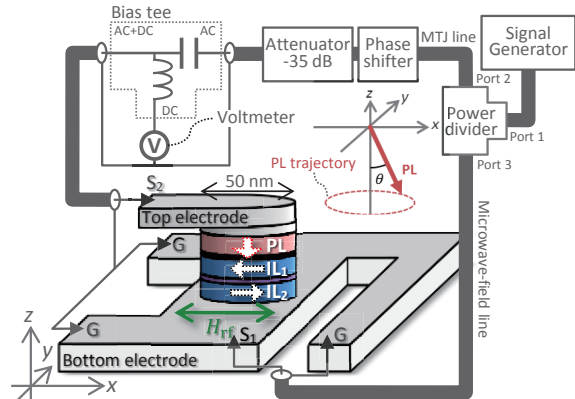


Fig. 1. Sample configuration and experimental setup.

ダイオード測定の手法と結果

Fig. 1 に, 素子構造と実験セットアップを示す. 解析対象の垂直磁化膜 (図中 PL) の磁化振動は, 面内磁化膜 (図中 IL₁, IL₂) との MgO トンネルバリアを介した MR 効果を通して, 素子抵抗を変化させる. 信号発生器からのマイクロ波信号は 2 つに分岐され, 一方は電流磁界によるマイクロ波磁界を発生させるために用いられ, もう一方は素子に印加される. 磁化振動励起による素子抵抗の変化と印加マイクロ波信号とが同期することにより, ダイオード電圧が発生する. PL は, 垂直磁化膜である Co/Pt 多層膜と, 面内磁化膜である CoFeB とを積層し, 磁氣的に結合させた exchange-coupled composite (ECC) 構造になっており, PL 全体としては垂直磁化膜になっている. Fig. 2(a)に, $f_{rf} = 12.95$ GHz における, ダイオード効果から見積もった PL 磁化振動のコーン角 (図中 θ) の垂直方向磁界 (H_z) 依存性を示す. $H_z = +500$ Oe 付近において FMR ピークが現れた. コーン角は, 励起マイクロ波磁界の強度を上げるにつれ, 大きくなると共に, そのピーク位置が $+H_z$ 方向にシフトした. このシフトは, 垂直磁気異方性を持つシングルスピンモデルから予想される向きとは逆であり, PL の ECC 構造を反映したモデルを用いたシミュレーションによって, 再現された[Fig. 2(b)]. この解析結果は, マイクロ波磁界印加によって PL 内の磁化がねじれ, 面内磁化膜部分の磁化振動が優先的に励起されることを示唆しており, 面内磁化膜部分の磁化振動が優先的に励起される結果, 面内磁化膜に特有の挙動 (FMR ピークの $+H_z$ 方向へのシフト) が現れる. $f_{rf} = 8.95$ GHz における測定では, コーン角が広がり磁化反転に至る様子が観察された[Fig. 2(c)].

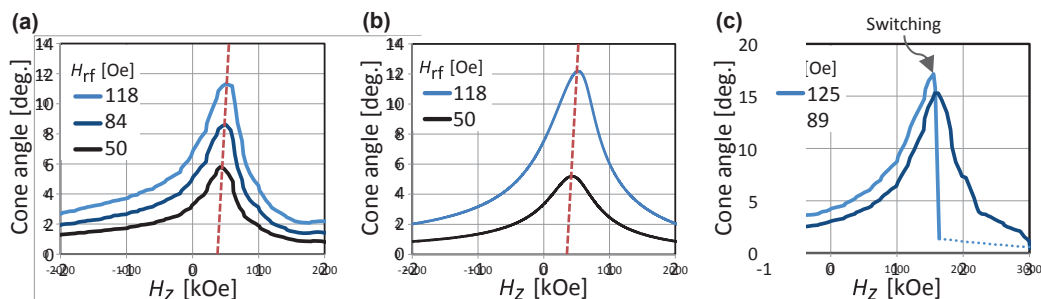


Fig. 2. (a) Experimental results for $f_{rf} = 12.95$ GHz. (b) Corresponding simulation results. Broken lines are eye-guides showing the shift of the peak positions. (c) H_z dependence of the PL cone angle for $f_{rf} = 8.95$ GHz. The abrupt decrease at $H_z = 1600$ Oe reflects magnetization switching of PL.

参考文献 [1] J.-G. Zhu, et al., IEEE Trans. Magn. **44**, 125 (2008). [2] S. Okamoto, et al., Phys. Rev. Lett. **109**, 237209 (2012). [3] H. Suto, et al., Phys. Rev. Applied **5**, 014003 (2016). [4] A. A. Tulpurkar, et al., Nature **438**, 339 (2005).

本研究は科学技術振興機構(JST)の研究成果展開事業「戦略的イノベーション創出推進プログラム(S-イノベ)」の支援によっておこなわれた.

Magnetization switching of a ferrimagnetic amorphous Gd-Fe-Co single dot under an assistance of rf field

Y. M. Lu, S. Okamoto, N. Kikuchi, B. Lao, Y. Kusanagi, and O. Kitakami

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Microwave assisted magnetic recording (MAMR) [1], which consists of microwave assisted magnetization switching (MAS) and an rf field generator of spin torque oscillator (STO), is one of the prospective ultra-high density recording technologies. Based on MAMR technology, a multilevel recording scheme and an antiferromagnetically coupled (AFC) media has been proposed to further enhance the recording density [2-4]. For these technologies, it is very important to control the dipole interaction between adjacent bits and the interlayer antiferromagnetic coupling. A ferrimagnetic alloy such as amorphous Gd-Fe-Co is a possible candidate material due to its very low saturation magnetization and very good controllability of magnetic properties by changing the composition of Gd and (Fe-Co). Moreover, AFC media is easily obtained by simply stacking Gd-rich and (Fe-Co)-rich layers. But so far, there has been no report on MAS experiment using a ferrimagnetic material. In this work, we have examined the MAS behaviors of a Gd-Fe-Co single dot with the diameter down to sub-micro scale. The sample structure is MgO sub./Pt(25 nm)/Ta(1 nm)/Gd-Fe-Co(10 nm)/Ta(3 nm). The Pt/Ta underlayer is used as an electrode for anomalous Hall effect (AHE) measurement. Gd-Fe-Co layer is patterned into a dot, and Au stripline is fabricated just above the dot with an insertion of an insulating layer.

Figure 1 shows representative AHE curves of the Gd-Fe-Co dot with the diameter of 1 μm . The AHE curve exhibits that the switching field H_{sw} in the absence of the rf field is around 310 Oe, which is much smaller than the effective anisotropy field of 1 kOe. Under the assistance of rf fields with the amplitude of 130 Oe, H_{sw} significantly decreases without changing the shape of AHE curve. Figure 2 shows the frequency dependence of H_{sw} . H_{sw} monotonically decreases with the rf frequency and takes a minimum of 110 Oe at $f = 3.5$ GHz, indicating 61% of switching field reduction.

Reference

[1] J-G. Zhu *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 125 (2008). [2] S. Okamoto *et al.*, *J. Appl. Phys.* **48**, 353001 (2015). [3] T. Yang *et al.*, *J. Appl. Phys.* **114**, 213901 (2013). [4] H. Suto *et al.*, *J. Appl. Phys.* **5**, 014003 (2016).

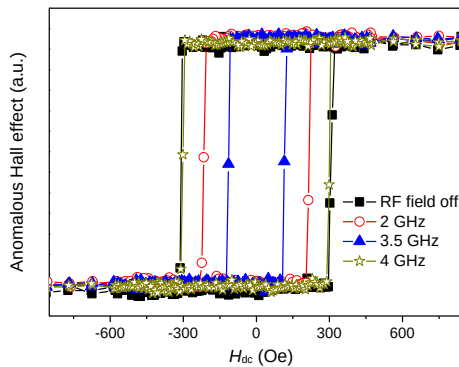


FIG. 1. Normalized AHE curves with and without the rf field application for a perpendicularly magnetized Gd-Fe-Co single dot.

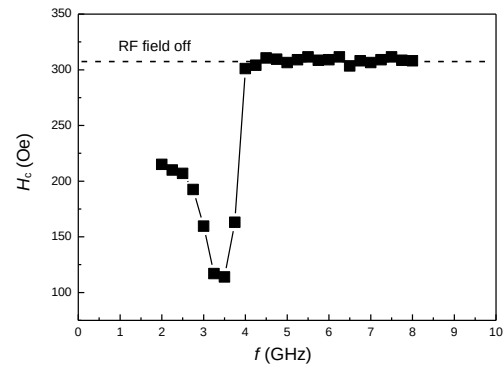


FIG. 2. The switching field of Gd-Fe-Co dot as a function of rf frequency.

MAMR 用 SIL-FGL-SIL 3 層構造 STO のマイクロマグ解析

金井靖、板垣諒、吉田和悦¹、Simon J. Greaves²、村岡裕明²
(新潟工科大、¹工学院大、²東北大)

Micromagnetic analysis of tri-layered STO comprising SIL-FGL-SIL for MAMR

Y. Kanai, R. Itagaki, K. Yoshida¹, S. J. Greaves², H. Muraoka²
(Niigata Inst. of Tech.,¹Kogakuin Univ.,²Tohoku Univ.)

はじめに

高周波アシスト磁気記録(MAMR)方式は、高周波発振素子(STO)から発生する高周波磁界を主磁極からの記録磁界に重畳し、高異方性媒体への記録を容易にする¹⁾。STOはMAMRにおいて最も重要な構成要素であり、安定した発振と強い発振磁界のほかに、発振を誘起する最適な注入電流密度(J_{opt})が低いことも求められる。ここでは、 J_{opt} の低減を目的として高周波発振層 (FGL)の両側をスピン注入層 (SIL)ではさんだ3層構造²⁾のSTOのマイクロマグネティック解析を行ったので報告する。

計算モデルと計算条件

Fig.1に示すようにFGLの両側をSILではさんだ3層構造STOを考える。SIL1は反射のスピントルクを、SIL2は透過のスピントルクをFGLに加える。Table 1にSTOの諸元を示す。マイクロマグネティック解析には富士通製 EXAMAG v. 2.1 を用いた。

計算結果

外部磁界(H_{apl})を1 GHz、20 kOe_{pp}としたとき、3層構造STOの発振の様子をFig.2に示す。発振が持続する最低の注入電流密度(J_{sus})は 1.0×10^8 A/cm²、FGLが膜面内で回転する最適な電流(J_{opt})は 2.5×10^8 A/cm²であった。SIL1は H_k が高くて発振したが、SIL2は H_k が高いと発振しなかった。また、SIL1、SIL2ともに高い飽和磁化($4\pi M_s$)の材料は好ましくなかった。従来の2層構造STOは高い H_k のSIL1による反射のスピントルクのみを利用しており、 $H_k = 20$ kOeのとき $J_{sus} = 1.0 \times 10^8$ A/cm²、 $J_{opt} = 3.0 \times 10^8$ A/cm²であった。2層構造STOのSIL1が軟磁性材料³⁾のとき $J_{sus} = 1.0 \times 10^8$ A/cm²であったが、FGLは膜面内で安定に回転しなかった。一方、透過のスピントルクのみを利用する2層構造STOでは $J_{sus} = 1.0 \times 10^8$ A/cm²、 $J_{opt} = 3.0 \times 10^8$ A/cm²であった。

謝辞 本研究の一部は科学技術振興会科学研究費補助金(基盤研究(c)課題番号16K06321)および情報ストレージ研究推進機構(ASRC, Japan)の補助金によった。

参考文献

- 1) J.-G. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang: *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, no. 1, pp. 125- 131 (2008).
- 2) J.-G. Zhu: *MMM-Intermag Joint Conf.*, AB-11(2016).
- 3) J.-G. Zhu: *MMM Conf.*, AC-13(2014).

Fig. 2 Oscillation state of tri-layered STO. (Top) FGL, (middle) SIL1, and (bottom) SIL2. $J = 1.0 \times 10^8$ A/cm².

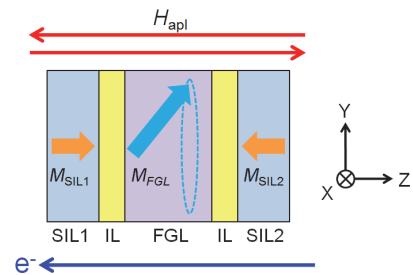
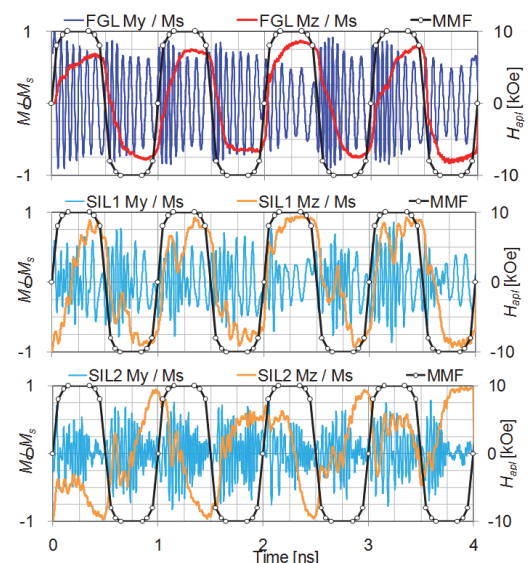


Fig.1 Arrangement of tri-layered STO.

Table1 Calculation specifications of FGL and SILs.

	FGL	SIL1	SIL2
$4\pi M_s$	20 kG	8 kG	8kG
H_k	31.4 Oe	31.4 Oe	31.4 Oe
α	0.02	0.02	0.02
Exchange, A	2.5×10^{-6} erg/cm	1.0×10^{-6} erg/cm	1.0×10^{-6} erg/cm
Thickness	10 nm	2 nm	2 nm
$P_o = 0.5$, Width $\times$ height = 30 nm $\times$ 30 nm, Inter layer thickness = 2 nm each			



Half-metallic Heusler compounds: Spin-dependent transport properties in thin films and magnetoresistive devices

Y. Sakuraba, T. M. Nakatani, Y. K. Takahashi, T. Furubayashi, T. T. Sasaki, Y. Miura, and K. Hono
National Institute for Materials Science (NIMS), Sengen 1-2-1, Tsukuba, Ibaraki, Japan

History of half-metallic materials started more than 30 years ago from the first prediction of half-metallicity in NiMnSb by Groot et al.[1] Although nearly 100% spin-polarization at room temperature (RT) has never been observed so far in magnetoresistive devices via spin-dependent transport measurements, there is still large expectation in various spintronic applications with half-metals because large spin-polarization without using tunnelling spin-filter effect is beneficial to realize high performance spintronic devices with very low device resistance. Recent extensive studies on current-perpendicular-to-plane giant magnetoresistive (CPP-GMR) devices using half-metallic Co-based full Heusler compounds successfully demonstrated large enhancement of magnetoresistance at RT with small RA below $0.1\Omega\mu\text{m}^2$ due to high spin-polarization of Co-based full Heusler compounds. Large MR ratio over 30% at RT has been reported in fully-epitaxial CPP-GMR devices with Co-based Heusler such as Co_2MnSi , $\text{Co}_2\text{FeGa}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$ (CFGG) and $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.4}\text{Mn}_{0.6}\text{Si}$ [2-4], which is one order of magnitude larger than CPP-GMR with general 3d transition metals (Figure 1). We have recently fabricated fully-epitaxial CPP-GMR devices CFGG/Ag/CFGG with very thin NiAl insertion to CFGG/Ag interfaces and observed surprisingly large MR ratios of 82% at RT and 285% at 10 K[5]. This enhancement by inserting thin NiAl seems to be related with good electronic band matching between NiAl and CFGG electrode, but careful analysis beyond the framework of diffusive transport model is necessary because the thickness of inserted NiAl is just 0.21 nm which is shorter than mean free path. On the other hand, the effect of chemical disordering of Heusler on spin-polarization of conduction electron have been carefully analysed in our recent study via AMR effect and anomalous XRD measurement in SPring-8.[6,7] Our studies clearly confirmed the importance to suppress Co antisite by optimizing the composition ratio in Heusler film/electrode for obtaining large spin-polarization. The progress of recent study and future prospect of half-metallic Heusler compounds will be presented.

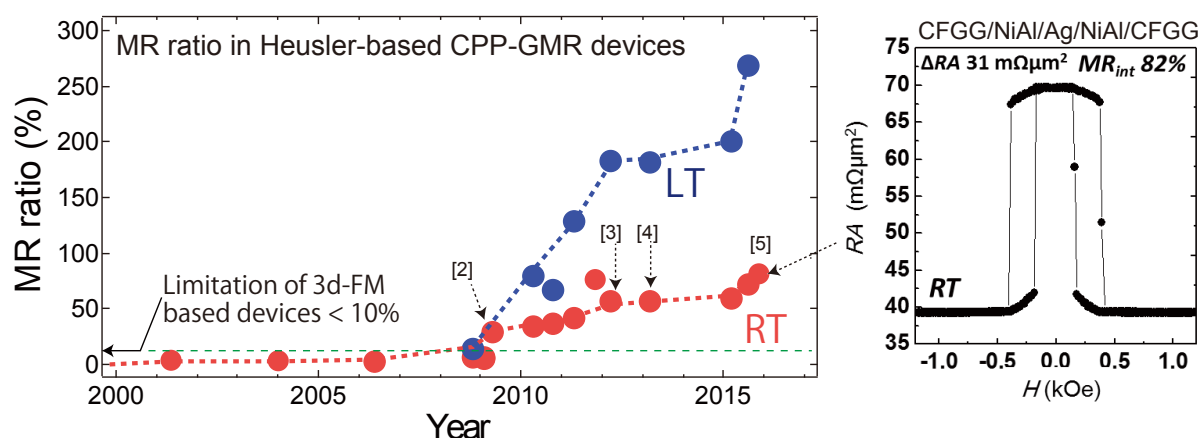


Figure 1. The progress of MR property in CPP-GMR with half-metallic full-Heusler electrodes. Left figure shows MR curve at RT in CFGG/NiAl/Ag/NiAl/CFGG CPP-GMR device[5].

- [1] R.A. de Groot, et al, Phys. Rev. Lett. 50, 2024 (1983).
- [2] T. Iwase, Y. Sakuraba, et al., Appl. Phys. Express 2, 063003 (2009)
- [3] Y. Sakuraba, M. Ueda, Y. Miura, K. Takanashi et al., Appl. Phys. Lett. 101, 252408 (2012)
- [4] S. Li, Y. K. Takanashi, T. Furubayashi, K. Hono, Appl. Phys. Lett. 103, 042405 (2013).
- [5] J. W. Jung, Y. Sakuraba, et al., Appl. Phys. Lett. 108, 102408 (2016).
- [6] Y. Sakuraba, S. Kokado, et al., Appl. Phys. Lett. 104, 172407 (2014).
- [7] S. Li, Y. Sakuraba et al., Appl. Phys. Lett. 108, 122404 (2016).

Development of High-Resolution TMR Sensor Device for Application of Bio-Magnetic Field Measurement

J. Jono², K. Fujiwara¹, M. Oogane¹, M. Tsuchida² and Y. Ando¹

¹Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai, Japan

²KONICA MINOLTA, INC., Tokyo, Japan

Bio-magnetic field applications have been expected for many years to the functional diagnosis of a human body. A diagnostic device with superconducting coil to diagnose epilepsy is an application example¹⁾. High-sensitive magnetic sensors which operate at room temperature without liquid Helium have been expected as next-generation magnetic sensors in order to expand the scope of application of bio-magnetic field measurement devices.

We are developing Tunneling Magneto Resistance (TMR) sensors with the aim of bio-magnetic field measurement and have developed a sensor device which can detect tens of pico Tesla of magnetic cardiac field (MCG) in low frequency band (Fig.1)

Noise reduction of TMR sensor device is important as same as improvement of the response to the magnetic field of the TMR sensor to obtain high magnetic field resolution. Therefore, Magnetic tunnel junctions (MTJs) coupled to soft magnetic layer for high magnetic sensitivity were connected series and parallel to reduce noise of the MTJs. 150% TMR ratio and about 5 Oe anisotropy field (H_k) near saturation range of magnetic property were observed with the arrayed MTJs (Fig.2). In addition, low noise analog amplifier especially in low frequency band was developed to reduce system noise. (Fig.3)

We are studying to apply more high magnetic responsive materials to the sensor device for detecting bio-magnetic field of brain in the near future²⁾ (Fig.4).

Acknowledgment

This work was supported by S-Innovation program, Japan Science and Technology Agency (JST).

Reference

- 1) R. Sakuraba et al., Clinical Neurophysiology, 127 (2016) 179-186
- 2) D. Kato et al., Applied Physics Express, 6 (2013) 103004

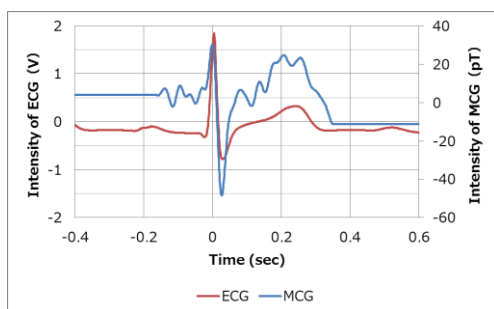


Fig. 1. Waveform of MCG and ECG

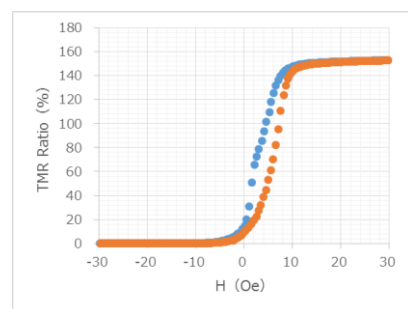


Fig. 2. R-H curve of MTJs with NiFe

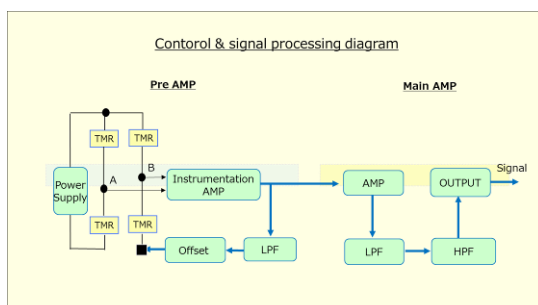


Fig. 3. Circuit block diagram

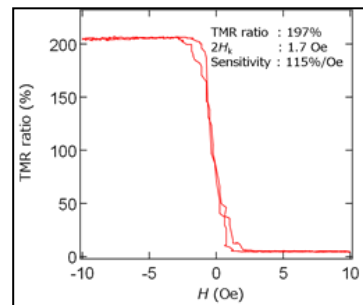


Fig. 4. R-H curve of MTJ with CoFeSiB

Evolution of synchronization in spin torque oscillators

S. Tsunegi, K. Yakushiji, A. Fukushima, S. Yuasa, and H. Kubota
(AIST, Spintronics Research Center, Tsukuba, Japan)

Spin-torque oscillator (STO)¹⁾ has attracted much interest from a viewpoint of application to a nano-scale oscillator because of the wide range frequency tunability and high compatibility with semiconductor CMOS circuits. For the practical use, a lot of work has been done to improve emission power and narrow linewidth of emission spectrum. The studies so far have been conducted from mainly two aspects. The one is material development for STO devices such as MgO barrier and suitable free layers. The other is system development using a magnetic or electric interaction between multiple STOs or between an STO and external rf signals.

In the first approach, we carried out serial studies with STOs developed using MgO-based magnetic tunnel junctions (MTJs), resulted in the emission power increase up to 0.1 μW .²⁾ The power increase was a dramatic leap from a few pW reported in the initial GMR based STO¹⁾. Recent studies have revealed that STOs having perpendicularly magnetized free layer³⁾ and sombrero-type free layer⁴⁾ exhibit further increased emission power up to a few μW (Table I). Furthermore, quite recently, an emission power over 10 μW has been achieved in a vortex-type STO with a narrow linewidth of 100 kHz.^{5,6)} The value of 10 μW is as large as that of commercial crystal oscillators.

In the second approach, S. Kaka⁷⁾ and F. B. Mancoff⁸⁾ demonstrated the reduction of linewidth in two-point-contact STOs in 2005. They realized the synchronization between STOs' precession, where precession frequencies drew each other through spin-wave and dipole-dipole interactions. W. H. Rippard demonstrated electrical synchronization of STO precession to a large rf current injected from an external signal source.⁹⁾ In this case the synchronization was induced by rf spin torque. However, in the early stage of synchronization investigation, it was impossible to realize the electrical synchronization among STOs because of very low emission powers generated by the STOs.

Table I Several types of STOs and its features.

Type	Sombrero ⁴⁾		Perpendicularly Magnetized free layer ³⁾	Vortex ^{5,6)}	
Size	4 μm		120 nm (250 nm)	300 nm	
Power μW	2.4	0.1	0.5 (2.0)	1.4	3.4
Frequency GHz	4	11	6 (7.0)	0.23	0.48
Q factor (freq./linewidth)	330	3200	130 (2300)	6400	210
Features	High power, high Q		Small, high power	High Q, Low frequency	

It is at the very moment that the two approaches are merged. As mentioned, the recent progress of the STO performance has enabled the electrical synchronization among STOs. Indeed, we demonstrated the self-synchronization in a vortex-STO,¹⁰⁾ where the vortex gyration was synchronized to rf currents generated by the STO itself.^{11,12)} In such system, the phase difference between the STO and the reinjected rf current gives remarkable influence on the gyrotropic motion of the vortex. The fact indicates that the phase difference is essential to the electrical mutual synchronization as theory predicted.¹³⁾ By taking account of the effect of the phase difference, we have finally demonstrated the electrical mutual synchronization among STOs. The emission power and linewidth were successfully improved as shown in Fig. 1.^{14,15)} In the presentation, we report our latest results on the vortex-STOs as well as their electrical mutual synchronization.

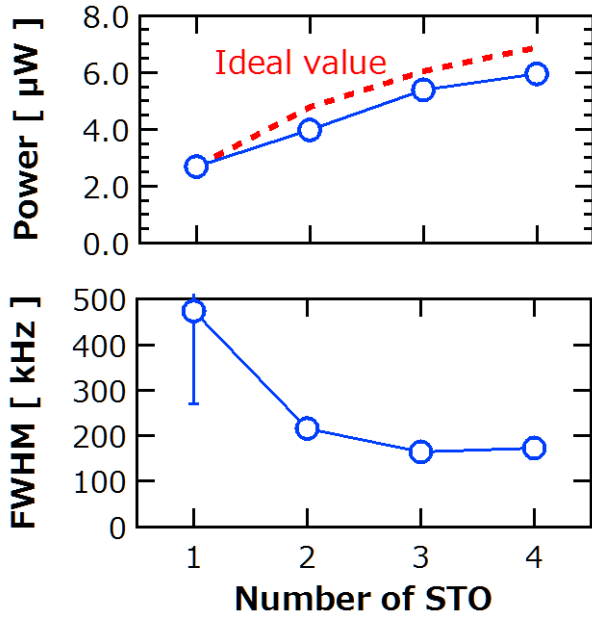


Figure 1 The STO number dependence of emission power and linewidth.

<Reference>

- 1) S. I. Kiselev, et. al, Nature 425, 380 (2003).
- 2) A. M. Deac, et. al., Nat. Phys. 4, 803 (2008).
- 3) H. Kubota, et. al., Appl. Phys. Express 6, 103003 (2013).
- 4) H. Maehara, et. al., Appl. Phys. Express 6, 113005 (2013).
- 5) S. Tsunegi, et. al., Appl. Phys. Express 7, 063009 (2014)
- 6) S. Tsunegi, to be submitted
- 7) S. Kaka, et. al., Nature 437, 389 (2005).
- 8) F. B. Mancoff, et. al., Nature 437, 393 (2005)
- 9) W. H. Rippard, et. al., Phys. Rev. Lett. 95, 067203 (2005)
- 10) G. Khalsa, et. al., Appl. Phys. Lett. 106, 242402 (2015)
- 11) S. Tsunegi, et. al., Sci. Rep.. (to be published).
- 12) S. Tsunegi, et. al., The 13th MMM-Intermag (2016)
- 13) Y. Zhou, et. al., J. Appl. Phys. Lett. 101, 09A510 (2007)
- 14) R. Lebrun, et. al., arXiv:1601.01247
- 15) S. Tsunegi, et. al., The 63rd JSAP Spring Meeting (2016)

Spin Torque Oscillations in Giant Magnetoresistance Devices with Heusler Alloys

T. Yamamoto¹, T. Seki^{1,2,3}, and K. Takanashi^{1,3}

¹ Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

² PRESTO, Japan Science and Technology Agency, Saitama 322-0012, Japan

³ Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

A spin-polarized current flowing through a ferromagnet exerts torque on the magnetization. This quantum-mechanical torque, called spin-transfer torque (STT), offers novel methodologies to manipulate the static direction and/or the dynamical motion by an electric current. A spin torque oscillator (STO) [1] is a nano-sized oscillator which utilizes the magnetization dynamics excited by the STT as a source of the microwave emission. According to the device structure and/or the underlying phenomena of the conversion process from the magnetization dynamics to microwave, STOs can be categorized into several types, *e.g.* current-perpendicular-to-plane (CPP) giant magnetoresistance (GMR) STOs, magnetic tunnel junction (MTJ) STOs, and spin-Hall STOs. Since the output power of an STO scales with the magnetoresistance of the device, MgO-based MTJ-STOs have a great advantage in the achievement of large output power owing to the huge tunnel magnetoresistance. Nevertheless, the absence of the tunneling current in GMR-STOs would contribute to a reduction of the shot noise, and thus would be potentially advantageous to realize extremely high oscillation quality factor.

In order to overcome the disadvantage of GMR-STOs, namely, the low output power of the spin torque oscillation, we have developed Heusler alloy-based GMR-STOs including nanopillar STOs [2] and point-contact STOs [3]. Through these studies we demonstrated that the utilization of highly spin-polarized Heusler alloys is promising to realize high power in GMR-STOs. Also, these studies reminded us of the importance of the control of the magnetization dynamics with dealing with the non-uniform effective field in the oscillating layer arising from the magnetocrystalline anisotropy and the Oersted field; the existence of non-uniform effective field prevents the excitation of coherent magnetization dynamics, and that results in low oscillation quality factor.

As the application of magnetic vortex dynamics has been intensively studied by several groups, it is useful to enhance the oscillation quality factor of STOs [4]. In addition to the high spin-polarization, $\text{Co}_2(\text{Fe,Mn})\text{Si}$ (CFMS) alloys exhibit soft magnetic properties, and that allows us to effectively control the magnetization configuration via microfabrication. Indeed, the direct observation of magnetic vortex formation was reported for epitaxially-grown CFMS discs [5]. Then we fabricated GMR-STOs using CFMS vortices as shown in Fig. 1. The GMR-STO consists of a 30-nm-thick and 240-nm-diameter CFMS vortex oscillating layer and a 20-nm-thick CFMS reference layer separated by a 5-nm-thick Ag spacer layer. Figure 2 shows a representative frequency-domain power spectrum obtained from our GMR-STO with a Co_2MnSi vortex. Here output power of 3.5 nW as well as high oscillation quality factor of 5400 were achieved. The output power was further improved by optimizing the Fe-Mn composition of CFMS, and the output power exceeding 10 nW was achieved even in the all-metallic STOs. Moreover, the estimated radii of the vortex core trajectories reached about 75% of the actual radii of the CFMS oscillating layers. These experimental results indicate the potential of the highly spin-polarized Heusler alloys for the development of high performance GMR-STOs.

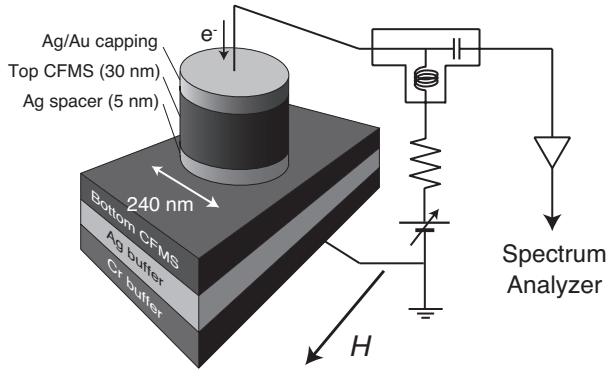


Fig. 1 Schematic illustration of the micro fabricated GMR-STO with a CFMS vortex along with the measurement circuit used for the microwave measurement.

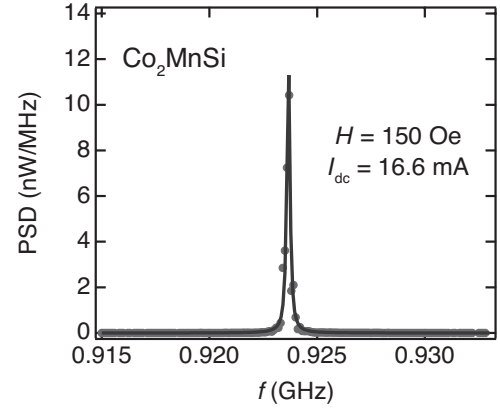


Fig. 2 Power spectrum obtained from a GMR-STO with a Co_2MnSi vortex.

Acknowledgments

We acknowledge S. Tunegi (Japan National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)) and T. Chiba (Tohoku University) for fruitful discussions. This work was supported by Division For Interdisciplinary Advanced Research and Education (DIARE), Tohoku University, and the Japan Society for the Promotion Science (JSPS) Research Fellowship for Young Scientist.

References

- 1) S. I. Kiselev *et al.*, Nature, **425** (2003) 380.
- 2) T. Seki *et al.*, Appl. Phys. Lett., **105** (2014) 092406.
- 3) T. Yamamoto *et al.*, Appl. Phys. Lett., **106**, (2015) 092406.
- 4) V. S. Pribiag *et al.*, Nat. Phys., **3** (2007) 498.
- 5) T. Yamamoto *et al.*, Appl. Phys. Lett., **108**, (2016) 152402.

Spin injection, transport and detection technology in ferromagnet/MgO/Si devices

Yoshiaki Saito, Mizue Ishikawa, Tiwari Ajay, Hideyuki Sugiyama and Tomoaki Inokuchi
(Toshiba Corporation, 1, Komukai-Toshiba, Kawasaki, 212-8582, Japan)

Spin metal-oxide semiconductor field-effect transistors (spin-FETs) [1, 2], whose source and drain electrodes consist of ferromagnetic materials, are expected to lead to a new logic-in-memory architecture. Recently, many studies of silicon (Si) spintronics for realizing the spin-FETs have been reported because of the observation of room-temperature spin signals in Si. [3-9,12,13] However, in order to realize the spin-FETs, it is necessary to improve injection and detection efficiencies of electrical spin in semiconductors [10-13]. We have been observing spin accumulation signals in Si with relatively long spin relaxation time by measuring three-terminal and four-terminal Hanle signals for CoFe/MgO/ n^+ -Si(100) and Heusler $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{MgO}/n^+\text{-Si}(100)$ devices [4, 7-13], and observing local magnetoresistance (MR) and nonlocal (NL)-MR signals up to room temperature. [9, 11-13] However, the estimated spin polarization using standard spin diffusion theory was a small value of ~ 0.16 . [8, 9, 11] The spin polarization in n^+ -Si estimated by other groups using standard spin diffusion theory has also exhibited small values, for example: ~ 0.05 for Fe/MgO/ n^+ -Si at 8 K [6] and ~ 0.15 for CoFe/ n^+ -Si devices at room temperature. [5] It is therefore necessary to improve the spin polarization (spin injection and detection efficiency) in Si to achieve large spin signals in Si. Recently, we have been succeeded in improving the spin polarization in Si. [12, 13] The estimated spin polarization (P) and spin life time (τ) are $P \sim 40\%$ and $\tau \sim 1$ nsec, respectively at room temperature. The large spin injection and detection efficiency into Si and relatively long spin relaxation time even at room temperature and spin signals at room temperature along with its robustness up to 400°C are observed.

In this invited talk, we review the recent progress and our current status of Ferromagnet/MgO/ n^+ -Si junction technology for increasing the spin signals in Si. This work was partly supported by ImPACT Program of Council for Science, Technology and Innovation (Cabinet Office, Government of Japan) and Grant-in-Aid for Scientific Research from JSPS.

References

- [1] S. Sugahara *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2307 (2004).
- [2] Y. Saito *et al.*, *Thin Solid Films* **519**, 8266 (2011).
- [3] S. P. Dash *et al.*, *Nature (London)* **462**, 491 (2009).
- [4] M. Ishikawa *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 252404 (2012).
- [5] K. Hamaya *et al.*, *J. Appl. Phys.* **113**, 17C501 (2013).
- [6] T. Suzuki *et al.*, *Appl. Phys. Express* **4**, 023003 (2011).
- [7] H. Sugiyama *et al.*, *Solid State Commun.*, **190**, 49 (2014).
- [8] M. Ishikawa, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **114**, 243904 (2013).
- [9] Y. Saito *et al.*, *J. Appl. Phys.* **115**, 17C514 (2014).
- [10] T. Inokuchi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 232401 (2014).
- [11] Y. Saito *et al.*, *J. Appl. Phys.* **117**, 17C707 (2015).
- [12] M. Ishikawa, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 092402 (2015).
- [13] T. Ajay, *et al.*, to be presented at SSDM 2016 conference.

Recent Progress in Silicon-based Spintronics Devices

Hayato Koike¹, Yuichiro Ando², Shinji Miwa³, Yoshishige Suzuki³, Masashi Shiraishi²

¹ Technology HQ, TDK Corporation, Chiba 272-8558, Japan

² Department of Electronic Science and Engineering, Kyoto University, Kyoto 615-8510, Japan

³ Graduate School of Engineering Science, Osaka University, Osaka 560-8531, Japan

Spin-dependent transport phenomena in semiconductor have been attracting much attention from both the fundamental and the practical points of view. The devices based on such phenomena have a possibility to archive continuous performance improvement of conventional ICT devices. Among them, spin-MOSFETs¹⁾ are expected as one of the promising candidates for beyond-CMOS devices. Even in the case of spin MOSFETs, silicon is attractive as a channel material because it has the advantage in terms of good spin coherence (= weak spin-orbit interaction).

To realize silicon-based spintronics devices, it is necessary to perform a series of processes consisting of "spin injection, spin transport (modulation), spin detection" in electrical method. For investigation of these spin related properties, multi-terminal lateral spin valve (LSV) devices are extremely useful. It is widely recognized it should be demonstrated completely by spin-valve effect measurement and Hanle effect measurement, using nonlocal (4-terminal) and local (2-terminal) geometries.

Especially in recent years, remarkable progresses have been made in the field of silicon-based spintronics. First example is the observation of spin output signal at room temperature. It has already been reported by several research groups^{2), 3), 4)} and most of them have utilized FM/MgO/*n*-Si system (= ferromagnetic metal electrode, MgO barrier and *n*-type degenerate silicon channel). Second example is the modulation of the spin output signal by the gate voltage application at room temperature.^{5) 6)} It has been achieved in FM/MgO/*n*-Si (*n*-type non-degenerate silicon channel) system with back-gate electrode of SOI structure. These progresses have led to the further understanding of fundamental spin related physics, such as spin drift effect, and the further improvement of spin output voltage (over 1 mV).⁷⁾

Although silicon spintronics devices have advanced steadily for practical application, technological issues to be solved still are abound. Among them, improvement of spin injection efficiency is strongly desirable. In order to overcome these issues, even now research and development of silicon-based spintronics devices have been carried out energetically.

Reference

- 1) S. Sugahara and M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. 84, 2307 (2004)
- 2) T. Suzuki et al., Appl. Phys. Express 4, 023003 (2011).
- 3) T. Sasaki et al., Appl. Phys. Lett. 104, 052404 (2014).
- 4) Y. Saito et al., J. Appl. Phys. 115, 17C514 (2014).
- 5) T. Sasaki et al., Phys. Rev. Applied 2, 034005 (2014).
- 6) T. Tahara et al., Appl. Phys. Express 8, 113004 (2015).
- 7) T. Tahara et al., Phys. Rev. B 93, 214406 (2016)

微小磁場下におけるアモルファス CoFeSiB 電極

強磁性トンネル接合の磁気抵抗特性

加藤 大樹, 大兼 幹彦, 藤原 耕輔, 荒井 雄貴, 城野 純一*, 永沼 博, 土田 匡章*, 安藤 康夫
(東北大院工, コニカミノルタ*)

Tunnel Magneto-resistance Properties in Magnetic Tunnel Junctions with Amorphous CoFeSiB Electrode
in Low Magnetic Field

D. Kato, M. Oogane, K. Fujiwara, Y. Arai, J. Jono*, H. Naganuma, M. Tsuchida*, and Y. Ando
(Tohoku Univ., Konicaminolta*)

背景

微小な生体磁場 ($< 10^{-6}$ Oe) を計測することにより、病気の早期診断や高次機能解明が可能になる。近年、強磁性トンネル接合 (MTJ) 素子の高感度化により、室温で生体磁場計測が可能な MTJ センサの開発が積極的に行われている¹⁾。これまでにアモルファス CoFeSiB をフリー層に用いた MTJ 素子において、115%/Oe の世界最高の磁場感度(=TMR 比/ $2H_k$, H_k : 異方性磁場)が得られているが²⁾、詳細なセンサ特性評価は行われていなかった。本研究では、CoFeSiB 電極 MTJ 素子の微小磁場下における磁気抵抗特性の評価を行った。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用い、熱酸化膜付シリコン基板上に MTJ 薄膜を作製した。MTJ の膜構成は Si, SiO₂ subs./Buffer/Co_{70.5}Fe_{4.5}Si₁₅B₁₀ (100)/Ru (0.4)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (3)/MgO (1.45, 2.5)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀ (3)/Pin/Cap (in nm)である。フォトリソグラフィ法により 4 端子 MTJ 素子を形成した。二度の磁場中熱処理により磁化容易軸が直交した磁場センサ型 MTJ を作製した。直流磁場下における磁気抵抗特性を四端子法により測定した。3.3Hz の交流磁場下におけるシグナル電圧、および、0.1 – 10 Hz の低周波領域のノイズ特性評価をブリッジ回路により測定した。

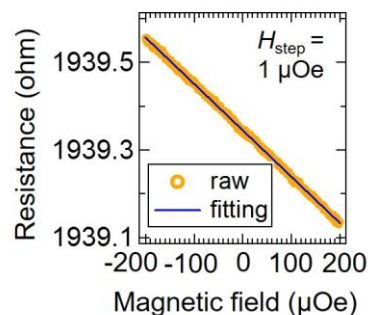


Fig.1 Magneto-resistance curve in low field region

実験結果

Fig. 1 に直流磁場範囲 200 μ Oe の磁気抵抗曲線を示す。ヒステリシスは観測されず、外部磁場に対してリニアな特性を有していることが分かる。Fig. 2 にシグナル電圧の交流磁場振幅依存性を示す。振幅に対してリニアに出力が変化している領域が磁場を検出できていることを示している。直線とノイズ電圧の交点である、最小検出可能磁場は 2×10^{-4} Oe であった。この値は 100×100 個程度の MTJ 素子の集積化により、心臓磁場を検出可能な性能である。本講演では、シグナル電圧およびノイズ特性の外部磁場依存性についても議論する予定である。

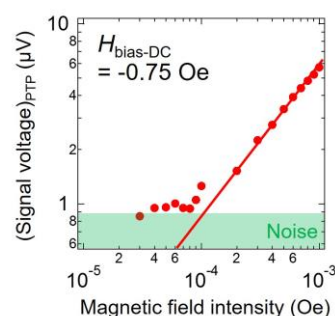


Fig. 2 External magnetic field dependence of signal voltage

謝辞

本研究は JST 戦略イノベーション創出推進プログラム(S-イノベ)、東北大学国際集積エレクトロニクス研究開発センター、JSPS 特別研究員奨励費(課題番号:15J02067)の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) 東北大学プレスリリース、2015 年 7 月 23 日, 2) D. Kato *et al.*, 第 39 回日本磁気学会学術講演会 (2015)

強磁性トンネル接合における室温巨大磁気キャパシタンス効果

海住英生、武井将志、三澤貴浩、長浜太郎*、西井準治、Gang Xiao**
(北大電子研、*北大工、**ブラウン大学)

Room temperature large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions

H. Kaiju, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama*, J. Nishii and G. Xiao**
(Hokkaido Univ. RIES, *Hokkaido Univ. Eng., **Brown Univ. Rhys.)

はじめに

近年、スピントロニクス材料・デバイスにおける磁気キャパシタンス (MC) 効果は、交流スピンドイナミクスに関する新たな学術的知見を与えられる一方、高感度磁気センサー、高周波磁気インピーダンス素子への応用も期待されていることから国内外で大きな注目を集めている[1-5]。中でも、強磁性トンネル接合 (MTJ) は、興味深い交流スピンドイナミクスを示すと同時に、室温にて 50% 程度の大きなトンネル磁気キャパシタンス (TMC) 効果を示す。しかしながら、TMC 効果のメカニズムには不明な点が多く、また、TMC 比は、トンネル磁気抵抗 (TMR) 比の最大値 (~600%) と比較しても、一桁程度小さい。そこで、本研究では、TMC 効果のメカニズムを明らかにするとともに、TMC 比の向上を目指すことを目的とした。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化 Si 基板上に Ta/Co₅₀Fe₅₀/IrMn/Co₅₀Fe₅₀/Ru/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/MgO/Co₄₀Fe₄₀B₂₀/Ta/Ru から構成される MTJ を作製した。強磁性層 Co₄₀Fe₄₀B₂₀ の膜厚は 3 nm、絶縁層 MgO の膜厚は 2 nm とした。微細加工にはフォトリソグラフィとイオンミリング法を用いた。接合面積は 1800 μm^2 とした。TMC および TMR 効果の測定には、室温磁場中交流 4 端子法を用いた。測定周波数帯域は 80–1MHz、交流振幅電圧は 0.26 mV_{rms}、最大印加磁場は 1.4 kOe とした。

実験結果

図 1 に TMC 効果の周波数依存性を示す。200 Hz 付近で TMC 比が最大値 (=155%) を示す。これは TMC 比の従来値 (~50%) を大きく超える。また、TMR 比は周波数に依存せず 108% であったため、TMC 比は TMR 比よりも大きくなることも明らかになった。図 2 に TMC 比と磁化平行・反平行状態でのキャパシタンス $C_{P(AP)}$ の周波数特性を示す。実験結果は Debye-Fröhlich モデルを用いた計算結果 (実線) と良い一致を示した。すなわち、磁場により MTJ の磁化配置が変化すると、絶縁層をトンネルするキャリアの緩和時間が変化し、これにより動的誘電分極が変化する。この誘電分極の変化がキャパシタンスの変化となる[6]。講演ではより詳細な実験・計算結果を報告する。

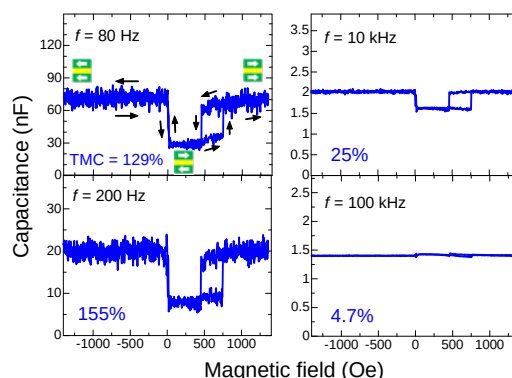


図 1: MTJ における TMC 効果

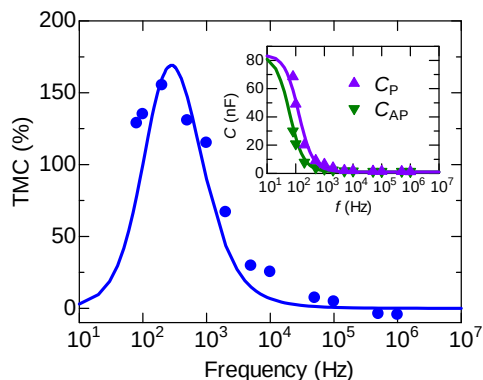


図 2: TMC 比と $C_{P(AP)}$ の周波数特性

参考文献

- [1] H. Kaiju et al.: *J. Appl. Phys.* **91**, 7430 (2002). [2] P. Padhan et al.: *Appl. Phys. Lett.* **90**, 142105 (2007).
[3] N. Kobayashi et al.: *Nat. Commun.* **5**, 4417 (2014). [4] J.-Y. Hong et al.: *SPIN* **4**, 1440015 (2014).
[5] T.-H. Lee et al.: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015). [6] H. Kaiju et al.: *Appl. Phys. Lett.* **107**, 132405 (2015).

Fe₃O₄ 電極と MgO バリアを用いたトンネル磁気抵抗素子の作製

山本雄太、佐々木駿、柳瀬隆*、島田敏宏*、長浜太郎*

(北大院総合化学院、*北大院工学研究院)

Fabrication of tunnel magnetoresistance devices using Fe₃O₄ electrode
and MgO barrier

Y. Yamamoto, S. Sasaki, T. Yanase*, T. Shimada*, T. Nagahama*

(Hokkaido Univ. of Graduate School of Chemical Science and Engineering,

*Hokkaido Univ. of Graduate Faculty of Engineering)

はじめに

Fe₃O₄は、理論的にフェルミ面近傍で-100%のスピンの分極率を示すハーフメタルという性質を持つと予測されており、Fe₃O₄を電極材料として用いたトンネル接合において大きな負の TMR 効果を得ることが期待されている。しかし、今のところ、期待されたほど大きな TMR 効果が得られていない。過去に Fe₃O₄ 電極と Al₂O₃ バリアを用いた接合において-12%の TMR 比が得られたという報告¹⁾があるが、Fe₃O₄のスピンの分極率から考えると、十分大きな値とは言えない。一方で Fe(100)電極を用いた接合においてバリアを Al₂O₃ から MgO に変えることで飛躍的な TMR 比の増大がなされている。そこで本研究では、Fe₃O₄/MgO/Fe のトンネル磁気抵抗素子を作製し、電氣的、磁氣的の評価を試みた。

実験方法

本研究では、到達真空度 1.0×10^{-7} Pa の超高真空中で MBE 法を用いて製膜を行った。作製した接合の構造は、MgO(100)基板/MgO/NiO/Fe₃O₄/MgO/Fe/Au とした。製膜後の結晶性の評価には RHEED を用いた。電氣的、磁氣的特性の評価をするために、フォトリソグラフィ、Ar イオンミリング、スパッタを用いて微細加工を行い、素子を作製した。作製した素子を用いて I-V 測定や磁気抵抗効果の測定を行った。

実験結果

Fe₃O₄層は基板温度 300℃、O₂雰囲気下で反応性蒸着を行い、600℃、O₂雰囲気下で 30 分間アニールを行った。MgO バリア層は室温、O₂雰囲気下で反応性蒸着を行い、その後、150℃で 30 分間アニールを行った。RHEED からは、Fe₃O₄、MgO ともにストリークを示しており、平坦性の良い膜が得られた。微細加工後の素子の磁気抵抗効果の測定から 80K において-47%の TMR 効果が得られた (Fig.1)。また、TMR 比の温度依存性から低温になるにつれて、TMR 比の増大が確認された (Fig.2)。

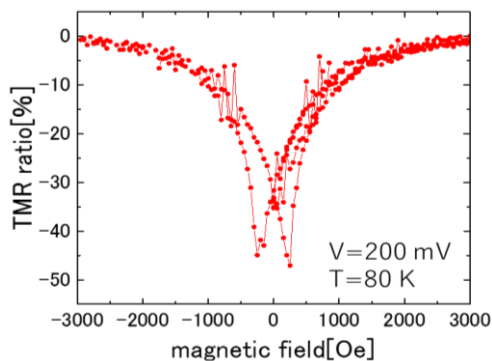


Fig.1 TMR observed for Fe₃O₄ MTJs

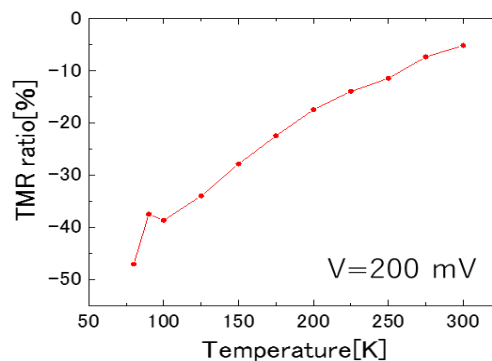


Fig.2 Temperature dependence of TMR ratio

参考文献

- 1) T. Nagahama et al., Appl. Phys. Lett. **105** (2014) 102410

強磁性絶縁体を用いた MTJ における MR 効果

左手宏毅，本多周太，伊藤博介
(関西大学システム理工学部)

MR effect in MTJ with ferromagnetic insulator

K. Sate, S. Honda, and H. Itoh

(Department of Pure and Applied Physics, Kansai University)

はじめに

現在 MR 素子に使われている強磁性金属(FM)/非磁性絶縁体(NI)/強磁性金属(FM)の3層構造では、高密度化すなわち微細化の際に書き込み電流が増加してしまうという問題点を抱えている。この解決策の一つとして強磁性絶縁体によるスピントリカ効果を利用した素子が提案されている。本研究では強磁性金属(FM)/非磁性金属(NM)/強磁性絶縁体(FI)/非磁性金属(NM)の4層構造を考える。この素子においても MR 効果が発現することを示し、応用上有利となる材料や構造の条件を明らかにすることを本研究の目的とする。

モデルと計算方法

本研究ではエピタキシャルに接合されている、すなわち乱れが無い4層構造 FM/NM/FI/NM を考える。この構造に対して3次元量子井戸型ポテンシャルのモデルを適用する。今回は FM と NM 部分が Fe/Cr の特徴を再現するようにポテンシャルを設定した。このモデルにおいて3次元シュレディンガー方程式を解析的に解くことで透過率に対する表式を求め、ランダウアー公式を用いて FM と FI の磁化が平行と反平行の場合のコンダクタンス G_p, G_{ap} を求めた。この際必要となる波数についての積分はコンピュータで数値計算した。また、MR 比を $MR=1-G_{ap}/G_p$ と定義した。

計算結果

NM 膜厚と MR 比の関係を Fig.1 に示す。MR 効果が発現し、NM 膜厚の増加とともに MR 比が振動している。その振動周期は NM のフェルミ波長の2分の1になっており、MR 比の振動は NM 内での干渉効果によって生じていると考えられる。次に従来の3層構造 FM/NI/FM 及び本研究の4層構造における絶縁体膜厚と MR 比の関係を Fig.2 に示す。ここで4層構造の NM 膜厚は各 FI 膜厚に対して MR 比が最大となる膜厚を選択した。4層構造においては FI の膜厚の増加とともに MR 比の最大値が増加した。また、FI 膜厚が 1nm 以上では MR 比の最大値は従来の3層構造 FM/NI/FM の MR 比より大きくなることが明らかとなった。

以上の結果から、今回の4層構造で FI および NM の膜厚を適切に選択することで、従来の3層構造を超える MR 比が得られると結論付けることが出来る。さらに、NM の材料としてフェルミ波長の長い物質を用いることで、NM 膜厚のばらつきによる MR 比のばらつきを抑制できると考えられる。

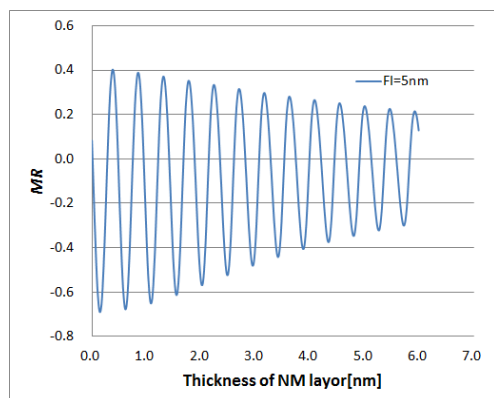


Fig.1 MR ratio vs NM thickness

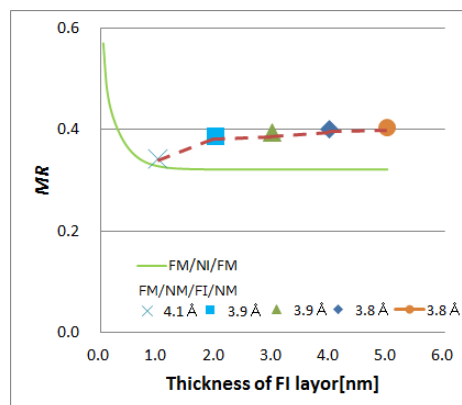


Fig.2 MR ratio vs FI thickness
calculated for various NM thickness

Magnetic alignment: method and its applications to structure analyses

T. Kimura

Graduate School of Agriculture, Kyoto University, Kyoto 606-8502, Japan

Diamagnetic and paramagnetic (commonly called non-magnetic) materials do respond to external magnetic fields though their response is very small compared to that of ferromagnetic materials. If these materials have magnetic anisotropy, like crystals, we can make them align by magnetic fields. Under static magnetic fields, their easy axis aligns parallel to the applied field, while under rotating magnetic fields, their hard axis aligns parallel to the axis of the field rotation. By combining static and rotating magnetic fields, the easy and hard axes are aligned simultaneously (biaxial alignment). This alignment can occur to biaxial crystals (triclinic, monoclinic, and orthorhombic).

The magnetic alignment competes with thermal fluctuations. It is necessary to overcome the thermal fluctuations that the anisotropic magnetic energy should largely exceed the thermal energy. This condition is typically satisfied for microcrystals of ca. μm sizes exposed to ca. 10-T magnetic field although these parameters strongly depends on the magnetic anisotropy of microcrystals under consideration and what level of alignment we want to achieve. There are various types of combinations of static and rotating magnetic fields (modulated magnetic fields¹⁻⁶) to produce biaxial alignment of superconducting materials,^{2,5} ceramics,⁴ inorganic crystals,⁷ organic,⁸ and protein^{9,10} crystals. Aligned specimens are prepared by mixing microcrystalline powders in liquid matrix to obtain a suspension and subjecting the suspension to modulated magnetic fields, followed by consolidation of the matrix to obtain polymer composites in which microcrystals are 3-dimensionally oriented. We call this composite magnetically oriented microcrystal array (MOMA) (Fig. 1). Actually, it is difficult to produce modulated magnetic fields; instead, a suspension is rotated in a modulated manner in a static magnetic field.

Biaxial alignments of microcrystals are useful in various areas of science and technology. Among them, we have applied the magnetic alignment to X-ray diffraction and solid state NMR measurements.¹¹ Due to the 3-dimensional microcrystal alignment, MOMAs can exhibit X-ray diffraction that is equivalent to that obtained from a real single crystal of the same compound. This means that we can perform single crystal X-ray structure analyses from microcrystalline powders (Fig. 1). Powders are conventionally analyzed by the powder method that is complicated and indirect compared to the single crystal method. The MOMA method is of great help when one wants to perform single crystal analyses but lacks in large single crystals. MOMAs might be much more useful for neutron diffraction measurements because mm-size single crystals are required there.

Solid-state NMR is a powerful means to understand the electron distribution around specific atoms under consideration. This information is obtained through chemical shift tensors for these atoms. In conventional CP (cross polarization) / MAS (magic angle spinning) solid-state NMR, where microcrystalline powders are used, only the average of three principal values is obtained. There are several advanced pulse techniques used to determine the individual principal values, but the determination of principal axes is yet difficult. If large single crystals are available, the principal axes are determined by using single-crystal solid-state NMR technique. We have demonstrated that MOMAs can work instead of large single crystals and determined the principal axes of ^{13}C and ^{31}P from microcrystalline powders.^{12, 13}

We have also developed MOMS (magnetically oriented microcrystal suspension) method, by which single crystal X-ray measurements can be performed in-situ, without solidifying the matrix suspending liquid.

Reference

- 1) M. Yamaguchi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **52** (2013) 013003.
- 2) M. Yamaki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **51** (2012) 010107.
- 3) N. Nakatsuka *et al.*, J. Phys.:Conf. Ser., **165** (2009) 012021.
- 4) T. Fukushima *et al.*, Appl. Phys. Express, **1** (2008) 111701.
- 5) M. Yoshino *et al.*, Langmuir, **22** (2006) 3464.
- 6) J.-Y. Genoud *et al.*, Supercond. Sci. Technol., **12** (1999) 663.
- 7) T. Kimura *et al.*, J. Appl. Crystallogr., **42** (2009) 535.
- 8) F. Kimura *et al.*, CrystEngComm, **16** (2014) 6630.
- 9) S. Tsukui *et al.*, J. Appl. Crystallogr., **49** (2016) 457.
- 10) F. Kimura *et al.*, Cryst. Growth Des., **11** (2011), 12.
- 11) T. Kimura, “Advances in Organic Crystal Chemistry”, Springer, (2015), Chap. 9 (pp.167-186).
- 12) R. Kusumi *et al.*, J. Magn. Reson., **223** (2012) 68.
- 13) R. Kusumi *et al.*, Cryst. Growth Des., **15** (2015) 718.

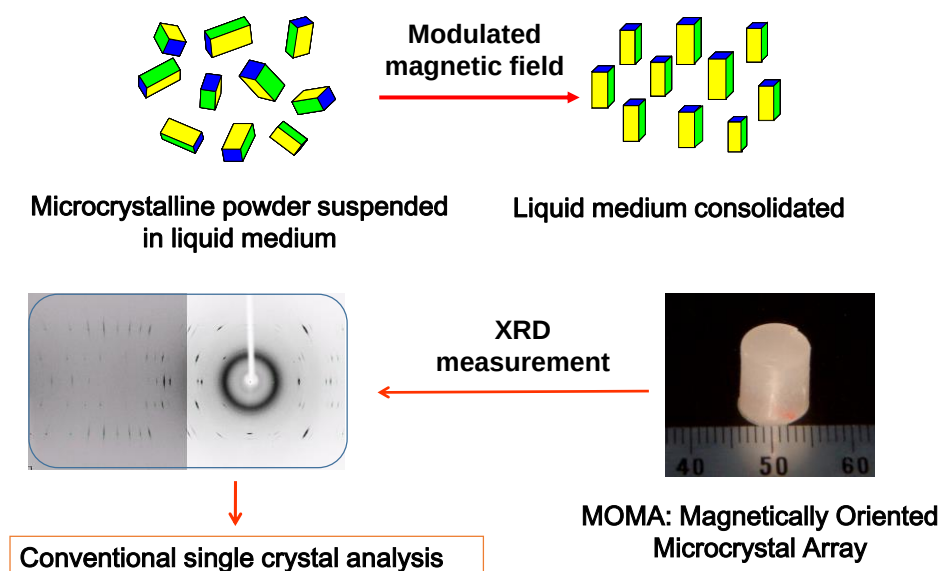


Fig. 1 Schematic of preparation of MOMA (magnetically oriented microcrystal array) and its X-ray diffraction from which the crystal structure is determined by using conventional single crystal analyses.

Liquid Crystal Electrochemical Polymerization under Magnetic Field

Hiromasa Goto

(Division of Materials Science, Faculty of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba)

Liquid crystal electro-polymerization

Optically active conjugated polymers were prepared by electrochemical polymerization of achiral monomers in a cholesteric liquid crystal (CLC) electrolyte solution [1,2]. The polymer films thus synthesized exhibited circular dichroism (CD). This method can be referred to as "chiral electrochemical polymerization".

In the present report, the chiral electrochemical polymerization of thiophene derivatives by using CLC electrolyte containing cholesteric derivatives as chiral inducer was carried out. The surface morphology of the polymers was confirmed with polarizing optical microscopy observations. The polymers show not only electrochromism (Figure 1) but also "chiral electrochromism". Change in the optical rotation of the polymer depends on the redox conditions. The ellipticity of this polymer is also found to exhibit hysteresis with redox cycle. The results indicate that the optical rotation of chiral polymer can be tuned through electric field by electrochemical method.

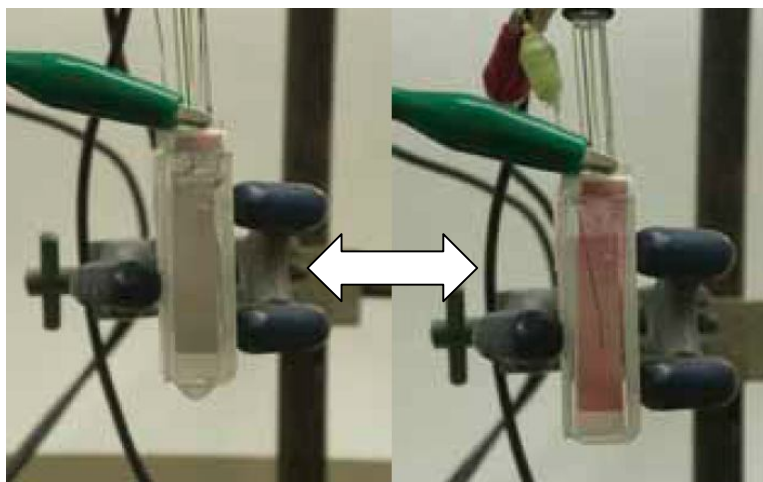


Figure 1. Electrochemical doping (oxidization) and dedoping (reduction) of the chiral polymer film in 0.1 M TBAP/acetonitrile solution. Left: +1.2 V, right: 0 V.

Electro-polymerization in liquid crystal under magnetic field

Liquid crystal can be oriented along the magnetic field. Oriented liquid crystal prepared by magnetic field provides oriented chemical reaction field. In this case, the liquid crystal electrolyte solution plays a role of uniaxial polymerization environment. Resultant polymers synthesized in the oriented liquid crystal show uniaxial oriented form confirmed with scanning electron microscopy (Figure 2). Polarized absorption spectra of the polymers thus prepared demonstrated anisotropy. Furthermore, "linear polarized electrochromism phenomenon" was found [2]. The polymer shows electrochromism by application of voltage, which change the color with linear dichroism.

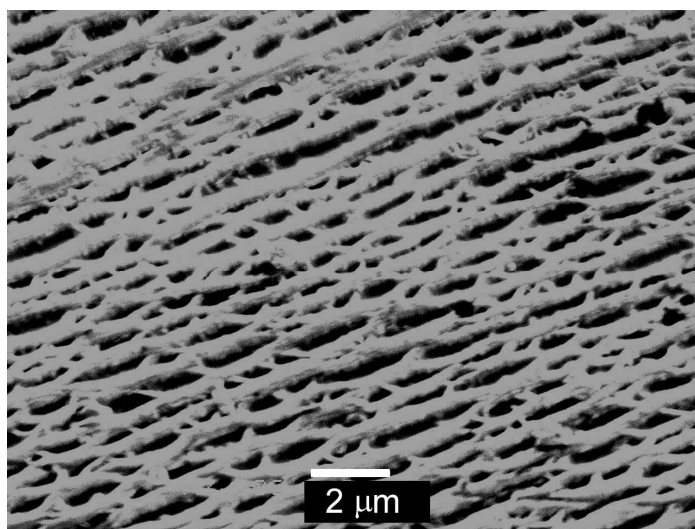


Figure 2. Scanning electron microscopy (SEM) image of the polymer prepared with liquid crystal electrochemical polymerization under magnetic field.

References

- [1] Goto, H. *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 98, 253901.
- [2] Goto, H; Nimori, S. *J. Mater. Chem.*, **2010**, 20, 1891–1898

Control of crystallographic orientation in bulk ceramics by colloidal processing in a high magnetic field

Tohru S. SUZUKI

National Institute for Materials Science, Tsukuba, 305-0047, Japan

Tailoring the crystallographic orientation in ceramics is very useful for improving their properties. Many researchers have reported that the textured ceramics were produced by the Templated Grain Growth method (TGG), hot forging, one directional extrusion, etc. In this presentation, a magnetic field is shown to be very effective in controlling the crystallographic orientation in bulk ceramics. We reported that the colloidal processing in a strong magnetic field was able to control the crystallographic orientation even in diamagnetic ceramics. In this process, a strong magnetic field is applied to the particles in a stable suspension. The particles were rotated to an angle minimizing the system energy by a magnetic torque generated from the interaction between the magnetic anisotropy and the applied magnetic field. In this processing, dispersion of powders in a suspension is necessary to effective work of a magnetic field, because large interaction between the agglomerated particles restrains the powder in a suspension from rotating by a magnetic field. Colloidal processing was used for particle dispersion in this study because of developing for consolidating fine particles to avoid heterogeneous agglomerates by electrostatic repulsion due to surface charge.

In the case of Al_2O_3 , SiC and LiCoO_2 , the c -axis of hexagonal crystal structure aligned parallel to the magnetic field. The thermal conductivity parallel to the c -axis was higher than that perpendicular to the c -axis in textured SiC . In the case of AlN , ZnO and Si_3N_4 , we confirmed that the a -axis aligned parallel to the magnetic field. The rotating magnetic field was used to control the development of the c -axis orientation in order to improve the thermal conductivity.

If the orientation axes of platelet particles aligned due to a geometrical effect and a magnetic field are different, the multi-dimensional orientation can be controlled by simultaneous use of both the effects, and control of the elaborate microstructure will be expected. Figure 1 shows that the pole figure in $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ prepared by slip casting in a magnetic field with platelet particles. The $\{001\}$ pole figure on T plane perpendicular to the casting direction and parallel to the magnetic field shows a very strong spot at the center, which indicates that the c -axis was aligned parallel to the casting direction. The $\{100\}$ pole figure exhibits a couple of strong spots at the points of 90° from the center along the latitude line. The $\langle 100 \rangle$ texture was aligned parallel to the magnetic field. Since the c -axis and the $\langle 100 \rangle$ axis orientation can be simultaneously controlled.

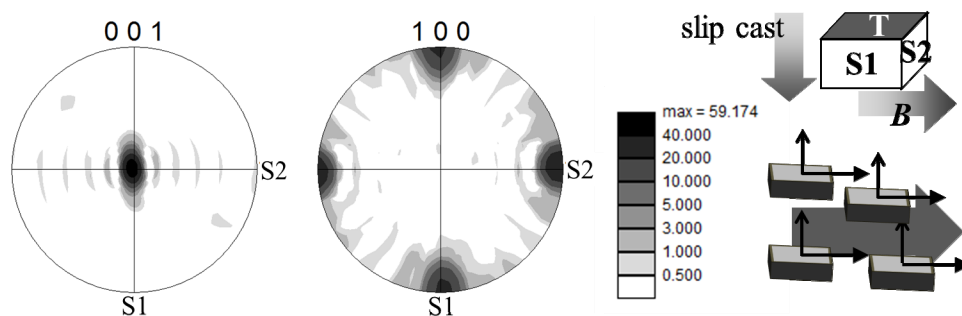


Fig. 1 Pole figure on T plane perpendicular to the slip casting direction in $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ prepared by slip casting in a magnetic field with platelet particles.

Reference

- 1) T. S. Suzuki, Y. Miwa, S. Kawada, M. Kimura, T. Uchikoshi and Y. Sakka, J. Am. Ceram. Soc., **96** (2013) 1085.
- 2) H. Yamada, T. S. Suzuki, T. Uchikoshi, M. Hozumi, T. Saito, Y. Sakka, APL MATERIALS, **1** (2013) 042110.

Micro-domain control toward new lasers

Takunori Taira
(Institute for Molecular Science)

The solid-state lasers and nonlinear optics have contributed to broadening the new horizon in quantum electronics, owing to their high-brightness nature of giant pulses under Q-switching and mode locking¹⁾. Moreover, their cutting edges are expected from the field of high-energy physics (i.e., laser fusion/laser ignition, laser accelerator, and vacuum decay) to precise measurement, laser-based material processing, and laser ignitions (i.e., engine ignition and fusion ignition). On the other hand, its development has long been a materials-limited. In this talk, we'd like to review the recent progress of **Micro Solid-State Photonics** with regard to high performance microchip lasers based on the micro-domain structure and boundary-controlled materials^{2,3)}. The past decade has witnessed a veritable revolution in the types and performance levels of solid-state lasers, largely due to development of micro-domain engineered new optical materials, such as the transparent laser ceramics. Especially, the naturally bonded composite Nd:YAG/Cr:YAG ceramics contributes sub-ns giant pulse generation. These progress of YAG ceramics enabled multi-megawatt microchip lasers, sub-PW/sr-cm² brightness and sub-ZK brightness temperature. “The world first laser ignited car” has been demonstrated by it⁴⁾ (Fig. 1). And furthermore, we'd like to discuss the next generation of high-brightness lasers based on the aligned anisotropic ceramics by RE³⁺-ion, such as Yb:FAP ceramics. The fabrication of laser-grade anisotropic ceramics by a conventional sintering process is not possible owing to optical scattering at randomly oriented grain boundaries. We have demonstrated the first realization of transparent anisotropic ceramics by using a new crystal orientation process based on large magnetic anisotropy induced by 4f electrons (Fig. 2). By slip casting in a 1.4 T magnetic field and subsequent heat treatments, we could successfully fabricate laser-grade calcium fluorapatite ceramics, and its laser oscillation to complete the laser ceramics map as shown in Fig. 3^{3,5,6)}. These compact lasers can provide the extreme giant-power by using micro solid-state photonics, so to speak “**Giant Micro-photonics**”^{1,2)}.

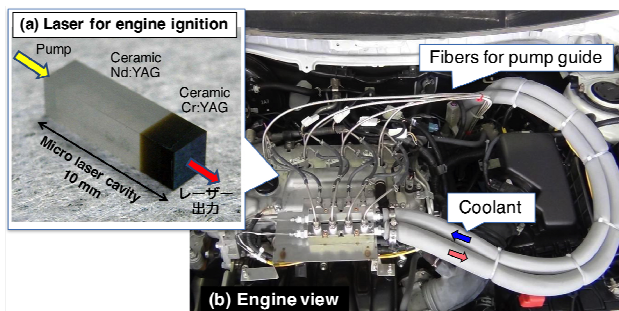


Fig.1. The world first laser ignition engine car by the giant pulse micro laser in Nd:YAG/Cr:YAG transparent laser ceramics.

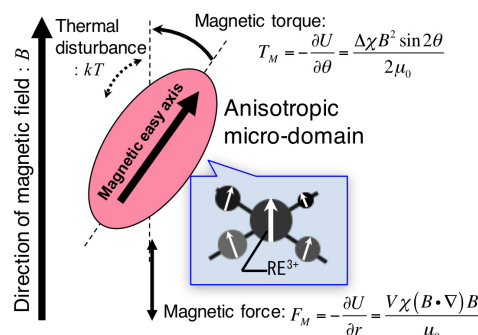


Fig.2. Schematic of the RE-assisted magnetic orientation method for fabrication of RE-doped anisotropic laser ceramics

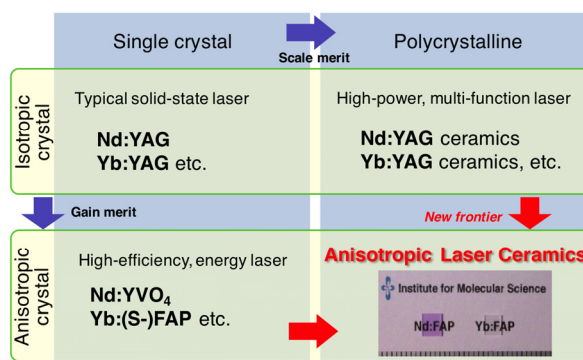


Fig.3. Progress map of solid-state lasers from isotropic single crystals to anisotropic laser ceramics.

Reference

- 1) T. Taira, T. Y. Fan, and G. Huber, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron., **21**, 0200303 (2015).
- 2) T. Taira, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron., **13**, 798 (2007).
- 3) T. Taira, Opt. Mater. Express, **1**, 1040 (2011).
- 4) T. Taira, et al., The 1st Laser Ignition Conference (LIC'13), Yokohama, Japan, April 23-25, LIC3-1 (2013).
- 5) J. Akiyama, Y. Sato, and T. Taira, Appl. Phys. Express, **4**, 022703 (2011)
- 6) Y.Sato, M. Arzakantsyan, J. Akiyama, and T. Taira, Optical Materials Express **4**, 2006 (2014).

Crystal alignment by imposing a magnetic field during solidification

IWAI Kazuhiko¹ and HAGIO Takeshi²

¹ Faculty of Engineering, HOKKAIDO University, Sapporo, 060-8628, Japan

² Formerly, Graduate School of Engineering, HOKKAIDO University, Sapporo, 060-8628, Japan

Present, Center for Social Contribution and Collaboration, Nagoya Institute of Technology, 466-8555, Japan

Alignment of crystals having an anisotropic unit cell structure can enhance anisotropy of physical, chemical and/or biological properties, and thus a lot of investigations on the crystal alignment have been done for many industrial applications. One of the crystal alignment methods is imposition of a magnetic field on the crystals under the condition that they can rotate to reduce magnetization energy. In this presentation, improvement of thermoelectric property of higher manganese silicide having a chemical formula of $\text{MnSi}_{1.73}$ synthesized by solidification under the imposition of the static magnetic field¹⁾ and a suitable condition for crystal alignment during solidification^{2, 3)} are mentioned. .

Pure manganese and silicon were prepared as raw materials, and they were mixed with a molar ratio of 1:1.8. The mixture was heated under argon atmosphere using an induction heating system for its complete melting to over 1773K which is higher than melting points of silicon of 1700K and manganese of 1517K, for its complete melting and it was subsequently homogenized by holding the sample at 1523K which was higher than its liquidus temperature of 1435K. Then it was cooled for synthesis of $\text{MnSi}_{1.73}$ by the solidification under the controlled cooling rate of 2.5K/minute until 423K. The magnetic field parallel to gravitational direction was imposed on the sample from 1523K till 1273K in which the sample completely changed from liquid to solid because its liquidus and eutectic temperatures are 1435K and 1415K, respectively. After the sample reached room temperature, it was cut for evaluation of precipitated phase, degree of crystal alignment and thermoelectric properties. The primary composed phase in the samples with and without the magnetic field was $\text{MnSi}_{1.73}$ phase. The averaged angle between the (001) crystallographic plane of $\text{MnSi}_{1.73}$ crystals and the plane perpendicular to the magnetic field direction was 85.9 degrees in the case with the magnetic field while that was 48.1 degrees in the case without the magnetic field. This indicated that most of its c-axis was aligned perpendicular to the magnetic field direction in the sample solidified with the magnetic field. Therefore, the magnetic field imposition during the solidification introduced the crystal aligned structure. The electrical conductivity in the direction parallel to the magnetic field solidified with the magnetic field was three times larger than that solidified without the magnetic field while the Seebeck coefficient solidified with the magnetic field was 10% lower than that solidified without the magnetic field. As the result, the power factor solidified with the magnetic field was about two times larger than that solidified without the magnetic field.

For crystal alignment by imposing a magnetic field during solidification, an environment in which crystals can rotate to reduce magnetization energy is required. Solidification starts from a wall when the wall temperature is lower than the bulk temperature. This is popular in casting processes. However, dendrites grown from a wall can not rotate. Thus solids floating in a liquid is essential for crystal aligned structure formation by imposing the magnetic field. For this purpose, not only a magnetic field but also an electrical current were introduced and model experiments have been done using low temperature melting point alloys^{2, 3)}. The simultaneous imposition of the static magnetic field and the electrical current in the initial stage of the solidification can break dendrites into pieces and the sequential static magnetic field imposition make them to reduce the magnetization energy.

References

- 1) YAMAUCHI Kazushige *et al.*, Japanese Journal of Applied Physics, **54**(2015) 117102.
- 2) M. USUI *et al.*, ISIJ International, **47**(2007) 1613
- 3) IWAI Kazuhiko, *et al.*, ISIJ International, **50**(2010) 1950

Effect on unsteady flow on a particle orientation process in rotating container under high magnetic field

Tsutomu Ando¹, Noriyuki Hirota², Mao Inoue¹ and Ryota Jonishi²

¹ College of Industrial Technology, Nihon University, Narashino 275-8575, Japan

² National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Because of recent development of superconducting magnet, attention has been given to magnetic alignment. This technique aims at improvement of physical properties by controlling the direction of particles and crystals. When a particle with magnetic anisotropy is applied a rotating magnetic field, the smallest axis of magnetic susceptibility is aligned to the axis of rotation. In current studies, a container with particles which are dispersed in solvent is rotated in a static magnetic field in order to apply a rotating magnetic field. When a container with liquid is started to rotate or stopped, unsteady flow occurs in the suspension. Therefore, we have simulated unsteady flow of the suspension in a rotating container by CFD and examined the effect of the unsteady flow on the magnetic orientation process through numerical simulation¹⁾.

This study considered the flow of fluid in a cylindrical container filled with liquid without particles and assumed axisymmetric flow. The size of the container is $r_0 = h = 20$ mm, the angular velocity of the container is $\Omega = 2\pi$ rad/s and the solvent is water. Figure 1 shows the streamline in a rotating container at $t = 1$ s from the start of rotation. This result indicates that the flow occurs in vertical section of a rotating container. Next, we investigated the effect of the flow on an oriented rod-like particle under rotating magnetic field $\mathbf{B}$. We assumed polyethylene fiber²⁾ with a diameter d and a length l and anisotropic susceptibility $\Delta\chi < 0$, as shown in Figure 2. In case of continuous rotating magnetic field, a rod-like particle is finally aligned parallel to the axis of rotation because the unsteady flow disappears as time goes by. However, in case of modulated rotation magnetic field^{3), 4)}, the unsteady flow occurs each time the angular velocity is modulated. As a result of this, an oriented rod-like particle will always be affected by the unsteady flow.

Reference

- 1) M. Inoue, T. Ando, N. Hirota, The 75th JSAP Autumn Meeting (2014) 18p-A24-15.
- 2) T. Kimura, M. Yamato, W. Koshimizu, M. Koike, and T. Kawai, *Langmuir* **16** (2000) 858.
- 3) T. Kimura, F. Kimura, and M. Yoshino, *Langmuir* **22** (2006) 3464.
- 4) S. Horii, S. Okuhira, M. Yamaki, K. Kishio, J. Shimoyama, and T. Doi, *J. Appl. Phys.* **115** (2014) 113908.

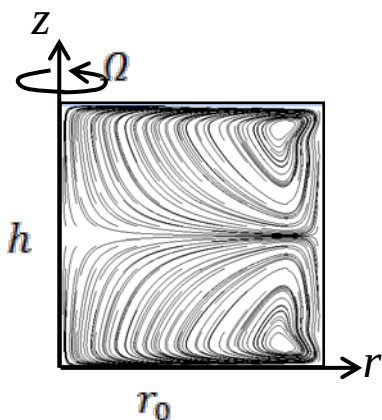


Fig. 1 The streamline in a rotating container at $t = 1$ s.

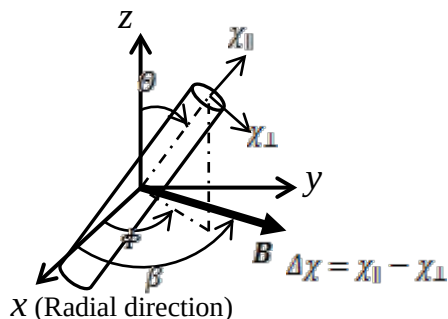


Fig.2 An axisymmetrical particle.

Measurement and control of biological microcrystals by magnetic field and light

Masakazu Iwasaka
(Hiroshima University)

In animal kingdom, there should be huge number of unrevealed functions of biological materials. Biochemical functions of these materials attracted many researchers and the results of research have already been provided to an industry. In contrast, physical properties, such as magnetic and optical property, of the biological materials are less clarified. One of the mechanism of magnetic field effects is magnetic orientation. The magnetic orientation can be observed in diamagnetic materials as well as strong magnetic materials. The required conditions for rotating the diamagnetic materials are distinct diamagnetic anisotropy and diamagnetic torque energy exceeding the thermal agitation in room temperature. Microcrystals are one of the candidates of dia-magnetically controllable target by utilizing a conventional magnetic fields (less than 500 mT).

At present, some kinds of biogenic microcrystals were found to be magnetic field responsible even though they did not contain effective amount of para- or strong- magnetic materials. A biogenic crystal containing guanine, which is produced in iridophore of fish skin, is biochemically designed to act as a *bio-reflector*, and it was revealed that the guanine crystals in many species of fish are distinctly responsible to the magnetic fields of more than 100 mT ~ 200 mT. The newly discovered light reflecting anisotropy in the guanine crystals enabled the detection of magnetic rotation [1]. Recently, as a kind of biomimetic approach, we are investigating guanine crystals in deep sea fishes, as shown in Fig. 1, those should have an effective light control mechanism which might be useful for our industry.

The guanine has relatively high reflective index (~1.8) and can obtain distinct diamagnetic anisotropy when they form a platelet. We can expect same kind of light reflecting control by magnetic fields in other type of biogenic crystal. For example, coccolith disk, a calcium carbonate crystal generated in the phytoplankton *E. huxleyi* oriented under the magnetic fields [2].

The introducing magnetic study on biogenic microcrystals can provide a new control method for tunable color control.



Fig. 1. Silver shining in a deep sea fish.

Reference

- 1) Magnetic control of the light reflection anisotropy in a biogenic micro-guanine crystal platelet, M. Iwasaka, Y Mizukawa, N Roberts, Langmuir, 2016 Jan 12;32(1):180-7. doi: 10.1021/acs.langmuir.5b03522.
- 2) Light intensity modulation by coccoliths of *Emiliania huxleyi* as a micro-photo-regulator, Y Mizukawa, Y Miyashita, M Satoh, Y Shiraiwa, M Iwasaka, Scientific reports 5, 13577 (2015); doi :10.1038/srep13577

界面スピン軌道相互作用誘起の Fe 超薄膜の垂直磁気異方性の変化

山本真吾^A、山本航平^A、田久保耕^A、福田憲吾^B、大島大輝^C、
加藤剛志^B、岩田聡^C、和達大樹^A、松田巖^A
(東大物性研^A、名古屋大工^B、名古屋大未来材料・システム研究所^C)

Study of perpendicular magnetic anisotropy change of Fe ultrathin
film induced by interfacial spin-orbit interaction

Sh. Yamamoto^A, K. Yamamoto^A, K. Takubo^A, K. Fukuta^B, D. Oshima^C,
T. Kato^B, S. Iwata^C, H. Wadati^A, I. Matsuda^A

(^AISSP Univ. of Tokyo, ^BNagoya Univ., ^CNagoya Univ. IMASS)

はじめに

スピントロニクス分野においてデバイスの高密度・集積化のために、面直磁化膜が注目を集めている。しかし垂直磁気異方性(Perpendicular Magnetic Anisotropy: PMA)の発現に関して、詳細な理論での解釈が完全にはなされていない。これまで PMA やその電場依存性は、界面へのドーピングの効果から説明がなされてきた[1]。それに対して近年、理論的な先行研究によって強磁性体の交換相互作用と界面におけるラシュバスピ軌道相互作用の協奏によって強磁性体超薄膜に PMA が発現し、その電場依存性についても説明ができるとされた[2]。本研究ではスピン軌道相互作用の大きな 5d 金属 Au と絶縁体 MgO といった異種の層の間に 3d 遷移金属 Fe の超薄膜を挟み込んだ系(Au/Fe/MgO 系, Fig.1(a))について、Fe を同種の層(Au)で挟んだ場合と比較し、その垂直磁気異方性に関してスピン軌道相互作用との関連を議論する。

実験方法

Au/Fe/MgO 系は分子線エピタキシー法により成膜し、構造は反射高速電子線回折、薄膜 X 線回折により行った。またその磁気曲線の評価は AGM(Alternating Gradient Magnetometer)測定により行い、Fe の軌道・磁気モーメントは、放射光施設 UVSOR にて X 線磁気円二色性測定を行い、その結果を総和則と組み合わせて導出した。また界面由来の垂直磁気異方性エネルギーをトルク磁力計測定によって決定した。

実験結果

Fe 超薄膜の磁気モーメントの L/S の比、PMA エネルギーはいずれも異種で挟んだ方が同種の場合よりも大きかった。これは、異種で挟み込んだ場合の方が、界面スピン軌道相互作用の垂直磁気異方性への影響が強く現れることを主張する理論の先行研究と整合していた。また、異種で挟み込んだ Fe 超薄膜は、膜厚が薄くなるに従って PMA が大きくなり(Fig. 1(b))、同時に、軌道磁気モーメントも大きくなるのが観測された。講演では、膜構造も含めてこの系の垂直磁気異方性と界面スピン軌道相互作用の関係について議論する。

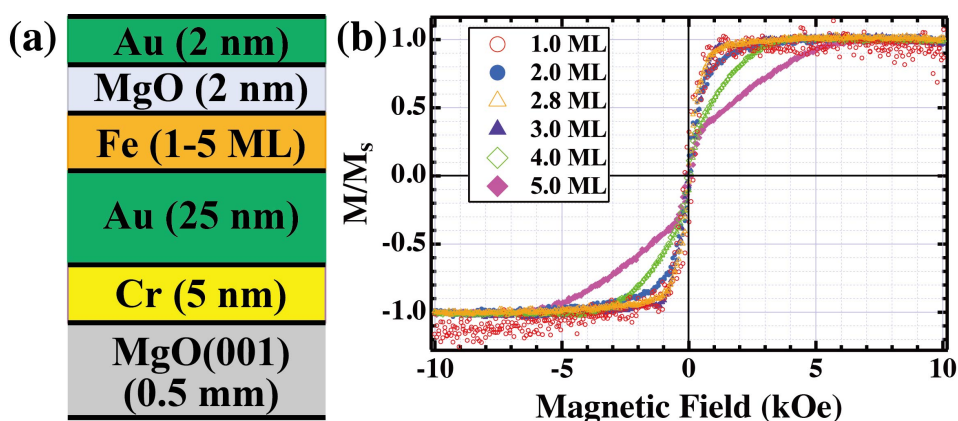


Fig. 1 (a) Film stack of Au/Fe/MgO system

(b) Thickness dependence of magnetization curves obtained by AGM in out-of plane configuration

参考文献

[1] T. Maruyama *et al.*, Nat. Nanotechnol., **4**, 158, 2009 [2] S. E. Barnes *et al.*, Sci. Rep., **4**, 4105, 2014

軌道磁気モーメントが支配する TbCo 系垂直磁化膜の磁化特性と磁化反転挙動

安達美咲¹、柴山茜¹、鈴木宏輔¹、櫻井浩¹、劉小晰²、安居院あかね³
(群馬大¹、信州大²、量研機構³)

Magnetization switching behavior of a TbCo amorphous perpendicular magnetic anisotropy film dominated by orbital magnetic moment

M.Adachi, A.Shibayama, K.Suzuki, H.Sakurai, X.Liu, A.Agui
(Gunma Univ¹, Shinshu Univ², QST³)

はじめに

近年、磁気トンネル接合に垂直磁気異方性をもつ希土類-遷移金属(RE-TM)層を加え、磁気スイッチングを制御する研究が進められている。角型比の高い垂直磁化膜は保磁力が高いため、高いスイッチング磁場が必要であり、その低減が課題である。そのため、RE-TM 合金の磁気スイッチング特性の解明が求められている。最近、磁気コンプトン散乱と SQUID 磁力計を組み合わせることでスピン選択磁化曲線(SSMH)と軌道選択磁化曲線(OSMH)を分離して測定する手法が報告されている。本研究では、Al 層と TbCo 層の厚さを制御した TbCo/Al 多層膜について、磁気コンプトン散乱実験によるスピン選択磁化曲線、軌道選択磁化曲線の測定を行い、磁化反転挙動を調べた。

実験方法

RF スパッタリング装置を用いて 2 種類の試料 [TbCo120nm/Al5nm]₁₀、[TbCo110nm/Al4nm]₁₀ を作製した。作製した 2 種類の試料について、X 線回折測定からアモルファス構造を確認し、EPMA 測定で Tb₂₀Co₈₀ の組成を確認した。SQUID 磁力計を用いて磁化測定を行った。その後大型放射光施設 SPring-8 の BL08W で磁気コンプトン散乱測定を行い、磁気コンプトン散乱から SSMH を求めた。さらに、SQUID 磁力計による磁化曲線と SSMH の差から OSMH を求めた。また、磁気コンプトン散乱から求めた磁気コンプトンプロファイルを解析し、Tb と Co の元素別磁化曲線を求めた。

実験結果

Fig.1(a)(b)に[TbCo120nm/Al5nm]₁₀ 及び[TbCo110nm/Al4nm]₁₀ の全磁化曲線(total)、SSMH 及び OSMH の図を示す。

[TbCo120nm/Al5nm]₁₀ の保磁力は約 0.3T、[TbCo110nm/Al4nm]₁₀ の保磁力は約 1.5T となり、Al 層と TbCo 層の厚さを制御して垂直磁化膜の保磁力が制御されることがわかる。

また、両試料共に、軌道選択磁化曲線は全磁化曲線と似た挙動を示し、スピン選択磁化曲線の寄与は小さい。したがって、2 つの試料の磁化反転はの振る舞いは、軌道磁気モーメントの磁場応答に大きく支配されていることがわかった。

参考文献

- 1) K. Yakushiji et. al. Appl. Phys. Express 3, 053003 (2010).
- 2) M. Itou et. al. Appl. Phys. Lett. 102, 082403 (2013).
- 3) A. Agui et. al. Appl. Phys. Express 4, 083002 (2011).

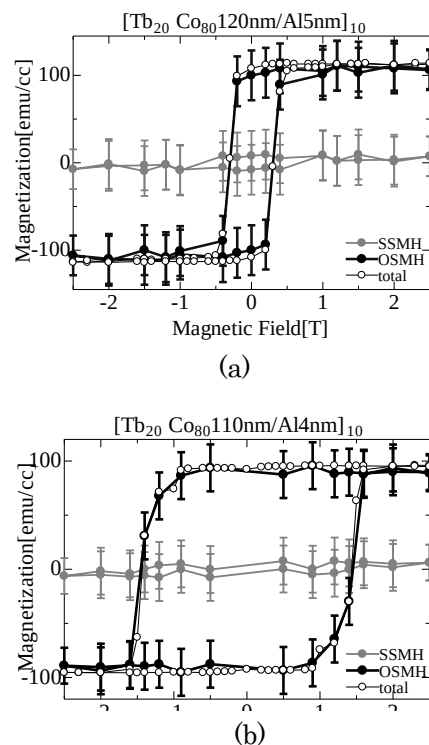


Fig.1 Spin selection, Orbit select and total magnetization curve
(a) [TbCo120nm/Al5nm]₁₀ and
(b) [TbCo110nm/Al4nm]₁₀.

CoFeB/MgO 多層膜におけるスピン・軌道選択磁化測定

柴山茜、山添誠敏、加藤忠、鈴木宏輔、安達美咲、星和志、伊藤真義、櫻井吉晴、櫻井浩
(群馬大、JASRI)

Spin/orbital specific magnetization measurement for CoFeB/MgO multilayers

A.Shibayama, M. Yamazoe, T. Kato, K. Suzuki, M. Adachi, K. Hoshi, M. Itou, Y. Sakurai and H. Sakurai
(Gunma Univ., JASRI)

はじめに

次世代高密度不揮発性メモリ(MRAM)において、磁気スイッチング磁場が低減できる垂直磁気異方性を有する強磁性電極の磁気トンネル接合(MTJ)が注目されている。磁気スイッチングにおける消費電力低減のためには、磁気スイッチングのプロセスを解明する必要がある。

本研究では固体エピタキシーを利用した CoFeB/MgO 磁気トンネル接合膜におけるスピン磁気モーメントの磁化曲線(SSMH)と軌道磁気モーメントの磁化曲線(OSMH)をもとめ、電子論的視点から磁気スイッチングプロセスを検討する。

実験方法

CoFeB(4nm)/MgO(1nm)多層膜を Al フォイル基板、Si(111)基板上に RF スパッタリング法で作製し、360°C、2 時間の条件で熱処理を行った。参照試料として CoFeB(4nm)/MgO(1nm)多層膜 (熱処理なし)、CoFeB 単層膜 (熱処理なし、熱処理あり) を作製した。X 線回折測定から、CoFeB(4nm)/MgO(1nm)多層膜 (熱処理あり) では CoFe(001)/MgO(001)配向を確認した。SPRING-8, BL08W にて磁気コンプトン散乱実験を行い、SSMH を求めた。SQUID 磁力計を用いて全磁化曲線を求めた。全磁化曲線と SSMH の差から OSMH を求めた。なお測定における印可磁場は膜面垂直であった。

実験結果

Fig.1は、CoFeB 単層膜(熱処理なし、熱処理あり)、CoFeB(4nm)/MgO(1nm)多層膜(熱処理なし、熱処理あり)の4つの試料についての磁化曲線を示している。SSMH は各試料において、形状磁気異方性を反映した挙動を示している。熱処理なしの CoFeB 単層膜では、OSMH は SSMH と同様の挙動を示している。一方、熱処理した CoFeB 単層膜、CoFeB/MgO 多層膜(熱処理なし、熱処理あり)では、OSMH は SSMH と異なる挙動を示している。これは結晶化または多層膜界面における軌道磁気モーメントの異方性が寄与している。

参考文献

- 1) B. Cui, J. Alloys. Compd. 559(2013)112-115.
- 2) M. Itou et. al., APL102, 082403(2013).
- 3) Agui et. al., H. Kawata, J. Synchrotron Radiat. 17, 321(2010).
- 4) A. Agui et. al., J. Appl. Phys. 114, 183904(2013).

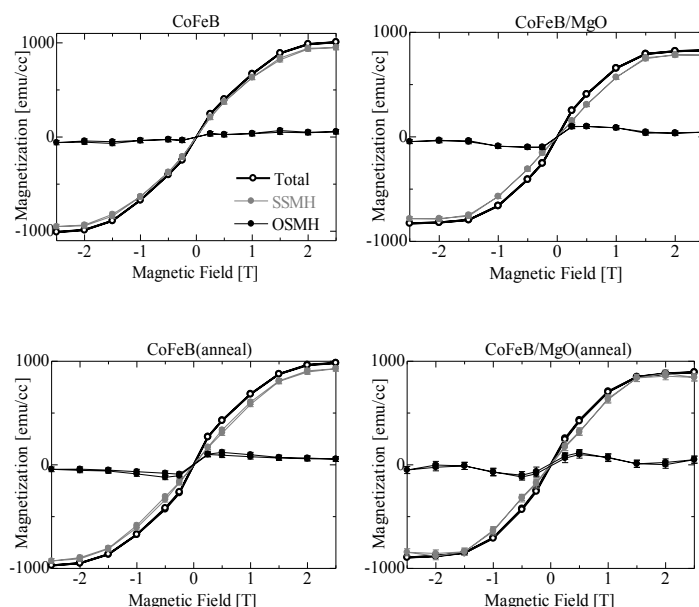


Fig.1 Magnetization curves

Co/Pd 多層構造の元素別軌道磁気モーメントの異方性

岡林 潤、宗片比呂夫*
(東大、*東工大)

Anisotropic Orbital magnetic moments in Co/Pd multilayers

Jun Okabayashi and Hiro Munekata*
(Univ. of Tokyo, *Tokyo Tech.)

Introduction

CoPd is a candidate for the spintronics materials possessing perpendicular magnetic anisotropy (PMA) which can be utilized for the high-density recording technology [1]. The 4d transition metal (TM) system of Pd is well recognized as the sustainable elements of 5d TM system in Pt toward the PMA materials combined with the magnetic 3d TMs. In order to understand the mechanism of PMA in CoPd, the contributions of orbital magnetic moments of each element have to be clarified explicitly. Bruno theoretically proposed the orbital moment anisotropy in TM multilayers as a second perturbation of spin-orbit interaction [2]. However, even in the strong spin-orbit coupled cases using 4d or 5d TMs, the applicability of this formula has been still debated [3]. Our aim in this study is to discuss both orbital and spin moments of Co and Pd for PMA and in-plane anisotropy samples by using angular-dependent X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) in Co *L*-edge and Pd *M*-edges.

Experimental

We prepared two kinds of samples of Co/Pd multilayered structures: Co (0.69 nm)/Pd (1.62 nm) for PMA and Co (1.03 nm)/Pd (1.62 nm) for in-plane anisotropy with stacking five periods on the Si substrates [4]. Sample surfaces were sputtered by Ar ions before the XMCD measurements in order to remove the oxygen contamination. We performed XMCD experiments at BL4B, UVSOR, Institute of Molecular Science. Total electron yield mode was adopted. A magnetic field of ± 5 T was applied along the direction of the incident polarized soft x-ray.

Results

We observed XMCD signals in Pd *M*-edges after the removal of surface contamination as shown in Fig. 1. Although the X-ray absorption spectroscopy (XAS) line shapes overlap with those of O *K*-edge absorption, clear XMCD signals induced by the proximity with Co layers are observed. The Pd *M*-edge XMCD line shapes in both PMA and in-plane samples almost remain unchanged. Magneto-optical sum rule analysis, which is defined in the TM *L*-edge absorption, cannot be applicable for *M*-edge XMCD. Precise XAS line shapes in Pd *M*-edges are necessary for the determination of absolute values of spin and orbital moments. On the other hand, clear Co *L*-edge XAS and XMCD with angular dependence reveal the enhancement of orbital moments in the surface normal direction because of PMA.

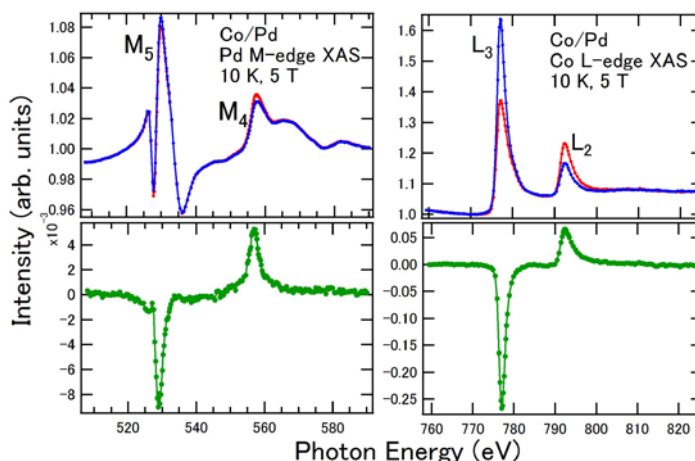


Fig. 1, XAS and XMCD of Pd *M*-edge and Co *L*-edge in perpendicularly magnetized Co (0.69 nm)/Pd (1.62 nm) multilayer.

References

- [1] M.T. Johnson *et al.*, Rep. Prog. Phys. **59**, 1409 (1996). [2] P. Bruno, Phys. Rev. B **39**, 865 (1989).
- [3] C. Andersson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 177207 (2007).
- [4] K. Yamamoto *et al.*, IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS **49**, 3155 (2013).

Co/Ni 垂直磁化人工格子膜の核形成磁界および磁壁抗磁力に対する下地層効果

吉岡涼, 田浦皓士, 田中輝光, 松山公秀

(九州大学)

Effect of seed layer in nucleation field and domain wall coercive force in Co/Ni multilayer
with perpendicular magnetic anisotropy

R. Yoshioka, T. Taura, T. Tanaka and K. Matsuyama

(Kyushu University)

はじめに

Co/Ni, Co/Pd 等の垂直磁化人工格子膜は, レーストラックメモリ等の磁壁移動型デバイスの材料としての応用が期待されている. 磁壁抗磁力は, 磁壁移動型デバイスにける磁壁移動の容易さ, 即ち動作電力に影響する重要な磁気特性である. 保磁力に関しては Ta, Pt 等における顕著な下地層効果^{1),2)}が報告されている. 本研究では, 磁壁抗磁力と核形成磁界との関係性に注目して, これらの Au 下地層厚依存性について系統的な実験を行った.

実験方法

電子ビーム蒸着法によりガラス基板上に Ti(0.5 nm)/Au (t nm)を成膜後, その上に DC マグネトロンスパッタリング法で $[\text{Co}(0.2 \text{ nm})/\text{Ni}(0.8 \text{ nm})]_N$ の成膜を行った. 磁気特性の評価は極 Kerr 効果測定により行った. 磁気ヒステリシス曲線から核形成磁界 H_N を評価し, 交流消磁状態からの初磁化曲線より磁壁抗磁力 H_w を求めた.

実験結果

Fig.1 に示す $[\text{Co}(0.2 \text{ nm})/\text{Ni}(0.8 \text{ nm})]_5$ のヒステリシス曲線と初磁化曲線の Au 下地層厚依存性に示されるように, H_N , H_w は t の増大に伴い顕著に増大している³⁾. 同様の Au 下地層厚依存性は Co/Pd 人工格子膜においても確認された. Fig.2 は $[\text{Co}(0.2 \text{ nm})/\text{Ni}(0.8 \text{ nm})]_N$ ($N=3,5$) における H_w/H_N の t 依存性を示している. H_w/H_N は t の増大に伴い増加していることが分る. 多層膜の積層数 N 及び Au 層厚の異なる種々の試料について, H_w/H_N と H_N の関係をプロットした結果を Fig.3 に示す. 同図に示されるように, H_w/H_N と H_N とは積層数に係わらずほぼ同じ相関傾向を呈していることが分る. H_N は垂直磁気異方性を反映することから, H_N の小さい膜では磁壁幅 ($\sim \pi (A/K_u)^{1/2}$) が大きくなることが推測され, これにより異方性分散等に起因する磁壁ピン止め効果が低減される結果 H_w/H_N が減少するものと考えられる.

参考文献

- 1) R. Law et al., *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 242504 (2007).
- 2) J. Fukami et al, *Appl. Phys. Express.*, **3**, 113002 (2010).
- 3) Y. B. Zhang et al, *IEEE Trans. Magn.*, Vol.30, No.6, Nov. 1994

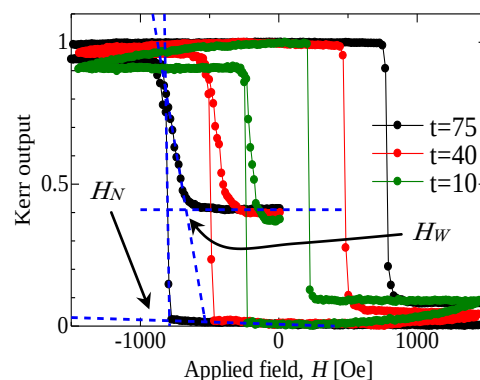


Fig.1. Hysteresis and initial magnetization curves $[\text{Co}(0.2 \text{ nm})/\text{Ni}(0.8 \text{ nm})]_5$ on $\text{Au}(t \text{ nm})$.

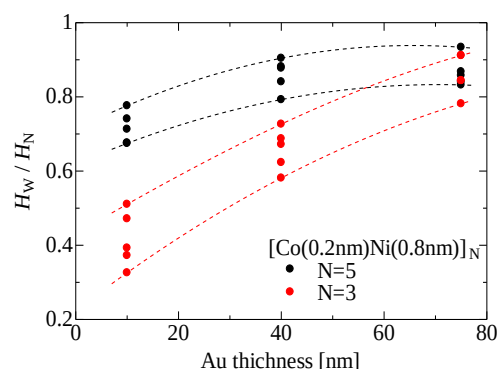


Fig.2. Dependence of H_w/H_N on Au thickness.

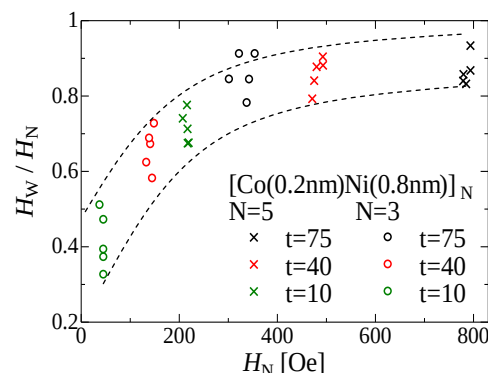


Fig.3. Dependence of H_w/H_N on H_N measured for various Au thicknesses.

保磁力の配向度依存性と保磁力メカニズム (I)

松浦 裕

公益財団法人 応用科学研究所

Coercivity Mechanism Derived from Alignment Dependence of Coercivity

Yutaka Matsuura

(Research Institute for Applied Sciences)

はじめに

NdFeB 焼結磁石の磁化反転メカニズムは NdFeB 磁石の主相結晶粒である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の異方性の低いところから、磁化反転の芽が発生(Nucleation)し、結晶全体に広がるという一斉回転メカニズムと熱揺らぎによる活性化体積から、同じく異方性の低い場所で磁化反転核に成長した反転磁区から磁壁移動により、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 結晶粒内に磁壁が侵入することにより直反転が進むという True Nucleation モデルが提唱されている。

しかし、この両者を検証する方法として保磁力の角度依存性が用いられており、磁化の一斉回転で直反転が進むのか、磁壁移動で直反転が進むのかについては多くの議論がなされてきた。

報告では、直反転メカニズムを検討する方法として保磁力の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 結晶粒の配向度性について報告する。

実験方法

実験に用いた磁石組成は Dy 量を変えることにより保磁力レベルの異なる組成合金(1) $\text{Nd}_{14.1}\text{B}_{6.1}\text{Fe}_{\text{bal.}}$,

(2) $\text{Nd}_{12.1}\text{Dy}_{2.1}\text{B}_{6.1}\text{Fe}_{\text{bal.}}$, (3) $\text{Nd}_{10.2}\text{Dy}_{4.1}\text{B}_{6.1}\text{Fe}_{\text{bal.}}$ と高い配向度($\alpha=0.991$)を有する(4) $\text{Nd}_{12.37}\text{B}_{5.76}\text{Fe}_{\text{bal.}}$ (Ref.)およびフェライト磁石(5) $\text{Sr}_{0.76}\text{La}_{0.24}\text{Fe}_{11.5}\text{O}_{19}$ を用いた。

磁石作成は通常の粉末冶金的手法を用いた。成型時の配向磁界(H)を(H=0~2.6T)まで変え異なる配向度を持つ磁石を作成した。配向度の測定には直測定と EBSD(Electron Back Scattered Diffraction)により評価を行った。

実験方法

図1に保磁力レベルの異なる(1)から(3)の磁石の保磁力の配向度依存性から得られた保磁力を用い

保磁力減少率(β)= $(H_{\text{cJ}}-H_{\text{cJisotropy}})/H_{\text{cJisotropy}}$ (H_{cJ} :配向磁石の保磁力、 $H_{\text{cJisotropy}}$:等方性磁石の保磁力) から得られた結果を、図2に等方性磁石の磁化分布を Br 点および保磁力点で磁化一斉回転の場合および磁壁移動の場合について示している。配向磁石での保磁力点での磁化分布の考察から、一斉回転モデルでは配向度の向上と共に保磁力は増加することになり、実験結果を説明することができない。一方、磁壁移動モデルでは $\alpha=1$ における保磁力は等方性磁石の保磁力の $1/\sqrt{2}$ となり実験結果を定性的に説明できる。

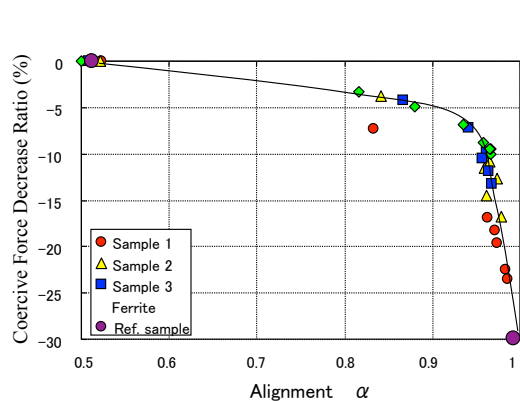


図1 保磁力減少率(β)の配向度依存性

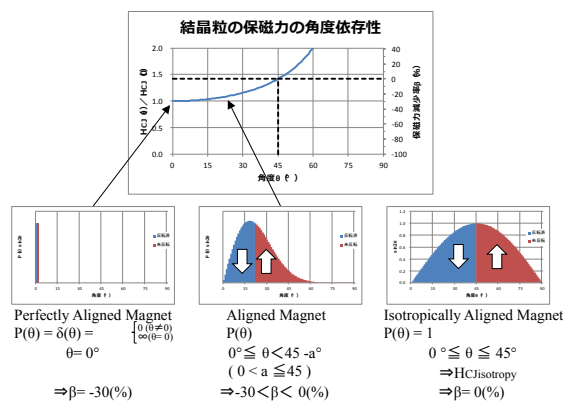


図2 磁壁移動モデルの保磁力角度依存性と保磁力減少率

参考文献

- 1) Y. Matsuura; The 22 International Workshop Proceeding of REPM2012, 147-150
- 2) Y. Matsuura, J. Hoshijima, R. Ishii; J. Magn. Mater. 336 (2013) 88-92

大規模シミュレーションによる熱間加工磁石モデルの初磁化過程

塚原宙、岩野薫、三保千春¹、小野寛太
(高エネ研,¹ 物材機構)

Large-scale micromagnetics simulation for initial magnetization process of hot-deformed permanent magnet

H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata¹, K. Ono
(KEK, ¹NIMS)

はじめに

高い保磁力と大きな磁化を持つ高性能永久磁石の開発には磁石内で起こる磁化ダイナミクスの解明が不可欠である。マイクロマグネティクスシミュレーションは磁性体の磁化ダイナミクスを明らかに出来るため永久磁石研究でも利用されてきた。しかしながら永久磁石は数 100 nm 以上の粒径を持つ多数の粒子から構成され、磁壁の厚みは数 nm であるので、正確な磁化ダイナミクスの計算には必然的に大規模なシミュレーションが不可欠となる。先行研究において我々はマイクロマグネティクスシミュレーターを改良し、1 億セルを超えるシミュレーションを可能とした [1]。本発表では改良したシミュレーターを用い熱消磁状態からの初磁化における磁化ダイナミクスについて報告する。

計算手法

平均の厚みおよび結晶粒径が 32nm および 200nm の扁平粒子を z 軸方向 (Fig. 1 (a) 参照) に積み重ね、ナノサイズの粒子からなる熱間加工磁石モデルを作成した。この磁石モデルの大きさは $2048 \times 2048 \times 512 \text{ nm}^3$ であり、1 辺の長さが 2nm の立方体セルで分割した。シミュレーションでは 3384 個の粒子からなる系を約 3 億個の計算セルを用いて計算している。初期状態ではランダムに磁化を配置した。磁化ダイナミクスは Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を周期境界条件下で解く事により求めた。磁石を構成する物質は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を想定し、飽和磁化 1281 emu/cm^3 、磁気異方性定数 $4.0 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ およびギルバートダンピング定数 1.0 を用いた。また交換ステイフネス定数は粒子内および粒子間交換相互作用に対して $7.7 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$ および $7.7 \times 10^{-9} \text{ erg/cm}$ を用いた。シミュレーションは KEK のスーパーコンピューティングシステム Blue Gene/Q で実行した。

結果

完全にランダムな磁化配置から計算された熱消磁状態を Fig. 1(b) に示す。熱消磁状態では多磁区構造が現れる。磁化は容易軸 (z 軸) 方向では、反磁場の影響により、向きを揃える傾向を示す。これに対し容易軸垂直方向 (xy 面内) ではランダムに配置される。磁区は粒子内を区切り、磁壁を内部に持つ粒子が存在している。熱消磁状態から外部磁場を変化させて計算した磁化曲線を Fig. 1(c) に示す。磁化は初め急激に増加するが、その後ほとんど変化しなくなり、更に外部磁場を大きくすると再度増加する傾向を示した。

謝辞

本研究は、(独) 科学技術振興機構 (JST) による産学共創基礎基盤研究「革新的次世代高性能磁石」の支援を受けて行われたものである。スーパーコンピュータシミュレーションは、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の大型シミュレーション研究 (課題番号 15/16-01) により行われた。

[1] H. Tsukahara, S.-J. Lee, K. Iwano, N. Inami, T. Ishikawa, C. Mitsumata, H. Yanagihara, E. Kita, and K. Ono, AIP Advances 6, 056405 (2016).

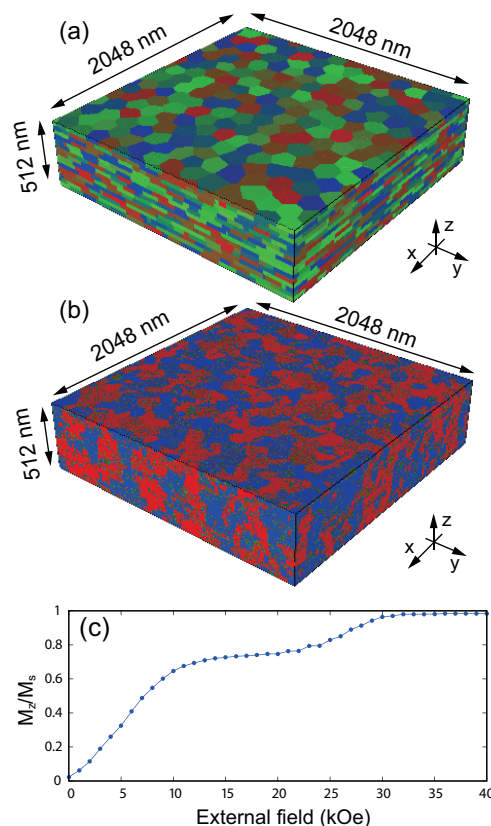


Fig 1: (a) The schematic of the simulation model, (b) the thermal demagnetization state and (c) the initial magnetization curve.

リバースモンテカルロ法による磁区構造の再構築の最尤決定

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

Maximum Likelihood Decision of reconstruction of magnetic domain structure in Reverse Monte Carlo Method

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

(Univ. of Tsukuba, *Ibaraki National College of Technology,

National Institute for Materials Science, *High Energy Accelerator Research Organization)

実空間での磁区構造は磁化過程の解釈に多くの情報を与えるため、磁区構造の可視化が求められている。しかし、中性子散乱実験から得られた逆空間像から実空間像への直接的な変換は不可能なため、リバースモンテカルロ法¹⁾による像の再構成を試みた。仮定した磁区構造から求めたフーリエ像の比較を繰り返す過程で、収束を早め、より正解像に近づけるために、シュミレーティッドアニールとフーリエ像の拡張、ならびに初期状態の像を磁化から決定する手法を用いている。この手法により Fig.1 の上部に示す正解像①と計算結果②が得られた。未知の値を周囲点の平均から求めるという手法でフーリエ像の拡張を行っていることから、完全に一致する像は得られないが、再構成した像と正解像では、磁区幅²⁾は比較的近いことがわかる。

複数の計算結果と正解像の磁区幅を比較した結果、Fig.1 下部に示すように、どの像も磁区幅が小さくなるという傾向が確認できた。また Fig.2 からストライプ像に位相ずれが生じた場合においても、磁区幅が減少することがわかる。よって、リバースモンテカルロ法により、得られた複数の候補データから磁区構造を決定する判定基準として、平均磁区幅が最も大きいものを採用するという最尤決定が有効であると考えられる。

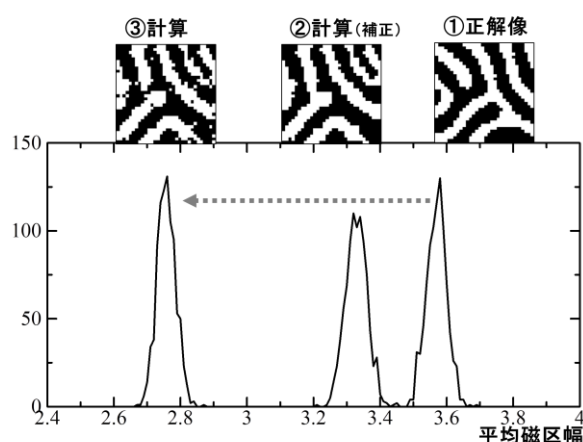


Fig.1 RMC から得た磁区像と正解像の平均磁区幅
(①は正解像、②は計算から得た像を示す)

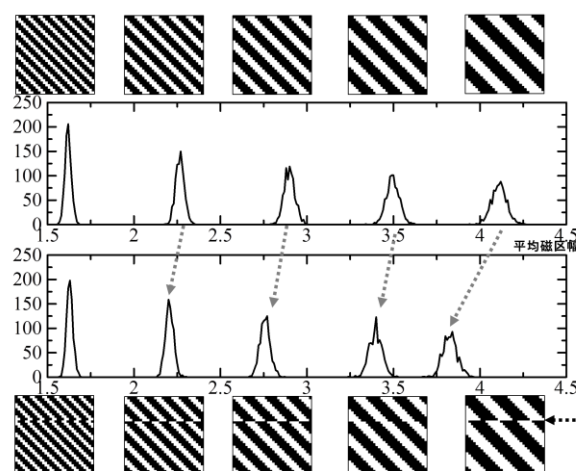


Fig.2 ストライプ像と平均磁区幅
(下図は、位相ずれを与えたストライプ像の場合)

謝辞

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

参考文献

- 1) O.Gereben, L.Pusztai and R.L.McGreevy, J. Phys.: Condens.Matter, 22, 404216(2010).
- 2) W. Szmaja, J. Grobelny, M. Cichomski, S. Hirose, Y. Shigemoto, Acta Materialia 59, 531-536 (2011).

強誘電体 LiNbO_3 基板上に作製した微小磁性体の磁区構造

山口明啓¹, 大河内拓雄², 保井晃², 木下豊彦², 中島武憲¹, 山田啓介³
(¹兵庫県大高度研, ²高輝度光科研, ³岐阜大工)

Magnetic Domain structure induced on nanomicromagnets on a LiNbO_3 substrate

A. Yamaguchi¹, T. Ohkouchi², A. Yasui², T. Kinoshi², T. Nakajima¹, K. Yamada³
(¹ Univ. Hyogo, ²JASRI, ³Gifu Univ.)

はじめに

磁性体の磁化反転機構は、基礎学理だけではなく応用技術にも極めて重要である。最近では、外部磁場ではなく、強磁性体に直接電流[1-3]あるいは電圧[4]を印加することによって、磁化反転や磁壁移動が起きることが報告されている。電流による磁化反転および磁壁駆動では、不揮発性磁気メモリ等に 응용が期待されているが、電流を伴うため発熱や書き込み電流密度が高いことが問題となっている。本研究では、新奇な磁化反転機構として、固体の結晶構造において、磁気モーメントと格子が直接結合していることに着目し、固体中を伝播する格子振動によって磁壁駆動を誘発する実証実験とその物理機構の究明を目標とした。図1のように、磁壁は外部磁場印加によって磁区構造の境界に存在しており、磁区変形とともに移動することで磁化反転が起きる。表面弾性波による格子振動が伝搬することで、磁壁移動が生じる可能性について研究を行う。

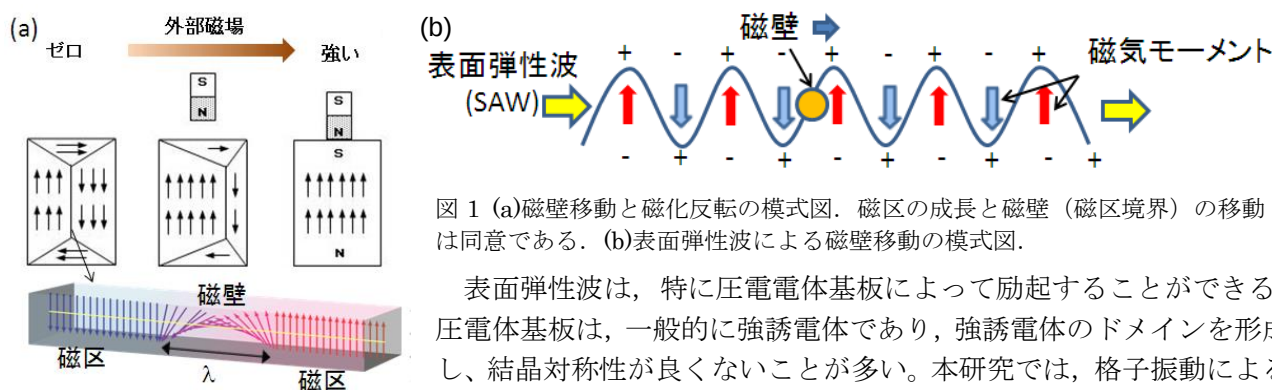


図1 (a)磁壁移動と磁化反転の模式図。磁区の成長と磁壁(磁区境界)の移動は同意である。(b)表面弾性波による磁壁移動の模式図。

表面弾性波は、特に圧電電体基板によって励起することができる。圧電体基板は、一般的に強誘電体であり、強誘電体のドメインを形成し、結晶対称性が良くないことが多い。本研究では、格子振動による磁化反転あるいは磁壁駆動現象を研究する前に、まず格子歪みが大きな結晶系に静磁エネルギーで磁区構造を制御する微小磁性体を配置した場合に、どのような磁区構造を形成するのかを究明することにした。

実験結果と考察

圧電体基板として、ニオブ酸リチウム基板を用いた。半導体微細加工を用いて、Ni および $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ (パーマロイ) から構成される微小磁性体を基板上に系統的に配置した。磁区構造観察は、SPring-8 BL25SU および BL17SU の X 線磁気円二色性光電子顕微鏡(XMCD-PEEM)を用いて行った。[5] XMCD-PEEM 観察の結果、Ni では基板の結晶歪を反映したような特異な磁区構造が形成される一方、格子との相互作用が小さいとされるパーマロイでは環流磁区構造が形成されることが分かった。講演では、マイクロマグネティクス計算との比較検討を行い、磁区構造形成に関連する物理機構について議論を行う。

参考文献

- [1] L. Berger, J. Appl. Phys. 55 (1984) 1954; *ibid.* 71 (1992) 2721. [2] G. Tatara, K. Kohno and J. Shibata, Phys. Rep. 468 (2008) 213. [3] A. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 92 (2004) 077205. [4] J. C. Slonczewski and J. Z. Sun, J. Magn. Magn. Mater. 310 (2007) 169. [5] T. Ohkouchi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 51 (2012) 128001.

謝辞 本研究は、科研費 B, 萌芽研究および川西新明和教育財団による支援によって行われた。電気通信大学 仲谷教授には有意義な議論を頂いたことに感謝申し上げます。

磁歪と磁気異方性：現象論と電子論

井上順一郎^{1,2}、吉岡匠哉¹、土浦宏紀¹

(東北大学応用物理学専攻¹、筑波大学物理工学域²)

Magnetostriction and magnetic anisotropy: phenomenology and electron theory

J. Inoue^{1,2}, T. Yoshioka¹, H. Tsuchiura¹

(Dept. Appl. Phys. Tohoku University², Inst. Appl. Phys., Univ. of Tsukuba¹)

はじめに

磁気異方性と磁歪は密接に関連した現象である。磁歪は磁気体積ないしは磁気弾性効果でもある。近年永久磁石として注目されている希土類金属間 (R-TM) 化合物においても後者の効果は大きいものとなっている。しかしながら、R-TM 化合物における磁気異方性と磁歪の関係は十分には調べられてはいない。また磁歪・磁気弾性効果に対する電子論も確立されているとはいえない。R-TM 化合物の結晶構造は、cubic, tetragonal, hexagonal と多様である。本研究では、まずこれらの結晶構造における磁気異方性と磁歪との関係を現象論により統一的に取り扱う。続いて、電子論による磁気弾性係数の見積もり法を述べ、具体的計算例を示す。

現象論

磁歪によって生じる有効的磁気異方性は、磁性体の弾性エネルギーと磁気弾性エネルギーの和 (自由エネルギー F) を最小にする条件から求まる。形式的に $F = e \cdot \epsilon + \epsilon \cdot e / 2 + e \cdot \epsilon$ と表される。ここで e , ϵ はそれぞれ弾性テンソル成分の 1 次元ベクトル表示、弾性テンソル、磁気弾性係数を含む 1 次元ベクトルである。 F は磁化方向に依存するため、最小条件から自発磁歪と有効的磁気異方性が求まる。

磁気弾性係数に対する電子論

現象論で用いた自由エネルギーの式を用いると、体積一定のもとで適当な格子変形 (例えば tetragonal 変形) を与えた場合のエネルギー変化を磁化方向の関数として得ることができる。他方、そのような変形を与えた時の電子系エネルギーを電子論により見積もることが可能である。両者の比較から磁気弾性定数を見積もることができる。例えば、tetragonal 格子をさらに tetragonal 変形させた場合の一軸異方性エネルギーが次のように求まる。

$$K_u = (100) - (001) = K_{u0} - (\epsilon_1 - 2\epsilon_2 + 2\epsilon_3)\chi/3$$

ここで、 K_{ui} は磁気弾性係数である。Cubic 格子では、 $\epsilon_2 = 0$, $\epsilon_3 = \epsilon_1$ である。また χ は歪の程度である。

計算例として L1₀-FePt と Y₂Fe₁₄B に対する結果を表 1 に示す。第一原理計算は文献値[1,2]である。数値の比較・検討については講演で述べる。

		L1 ₀ -FePt			Y ₂ Fe ₁₄ B		
	exp.	1st.Principles	RSTB		exp.	1st.Principles	RSTB
K_u	3.2	7.0 - 8.1	58		1.1	0.06	0.16
$\delta K_u / \delta(c/a)$	—	61	52		—	—	0.07

表 1 L1₀-FePt と Y₂Fe₁₄B に対する一軸異方性とその c/a 依存性の計算例、単位は 10⁶J/m³

参考文献 [1] A. Sakuma, J. Phys. Soc. Jpn. 63, 3053 (1994)

[2] Y. Miura et al., J. Appl. Phys. 115, 17A765 (2014)

Ru/FeCoB 膜における異方的応力形成過程の評価

中込将成、高村陽太、中川茂樹
(東京工業大学 工学院 電気電子系)

Investigation of development of anisotropic stress in Ru/FeCoB film during film growth

Masanari Nakagome, Yota Takamura, and Shigeki Nakagawa

(School of Engineering, Tokyo Institute of Technology)

はじめに

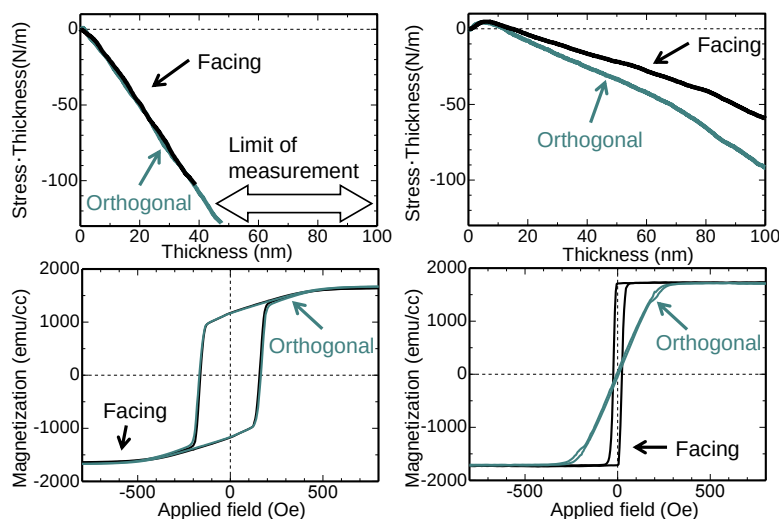
対向ターゲット式スパッタリング法(FTS)法では、ターゲットと基板の位置関係からターゲット対向方向 (Facing direction) とそれに膜面内で直交する直交方向 (Orthogonal direction) で、基板に到達するスパッタ粒子は異方的な運動量と入射角度を有する。Ru 薄膜上に作製した FeCoB 膜内には上記の効果とみられる異方的な残留応力が形成され、これによる逆磁歪効果に起因した高い異方性磁界を持つ Ru/FeCoB 膜が形成できる¹⁾。この異方的な応力の発現機構や形成過程を明らかにするために、膜形成中の薄膜内の応力を膜面内の異なる2方向で in-situ 観測できるシステムを構築した²⁾。今回、下地層の Ru の形成条件や膜厚が上部層の FeCoB 膜中の異方的応力形成過程に大きく影響を与えることが観測できたので報告する。

実験方法

Ru/FeCoB 薄膜は FTS 法を用いて成膜した。厚さ 60 μm のガラス基板の一端を固定し、成膜中の内部応力によるガラス基板のたわみ量をレーザー変位計により測定する片持ち梁法で in-situ 観測した。この際ターゲットの対向方向と直交方向の2方向で基板の変位を測定し、2方向同時に内部応力を評価した²⁾。

実験結果

Fig.1 に Ru 下地層の膜厚を 5 nm とし、スパッタリングガス圧を変えた際の Ru/FeCoB 層の応力変化と磁化特性の結果を示す。Fig.1(a)は Ru を 3 mTorr で形成した試料の応力と膜厚の積 (測定基板のたわみ量に比例) の膜厚依存性を示す。40nm 付近でたわみ量の測定上限に達しているが、強い圧縮応力が膜堆積初期段階から形成され、面内方向での応力差もほとんど見られていない。このため磁気特性では逆磁歪効果による垂直磁気異方性が高くなった磁化特性が現れている。これに対して(b) は Ru を 6 mTorr で形成した試料の結果であるが、膜堆積初期段階で引張性の応力が観測され、その後膜堆積に従って2方向で応力差が形成されていく様子がわかる。この異方的な残留応力により磁化特性は 280 Oe 程度の高いを示すことがわかる。



(a) Ru: 5nm, 3mTorr (b) Ru: 5nm, 6mTorr
Fig.1 Stress curve and Magnetic property of Ru/FeCoB film

参考文献

- 1) A. Hashimoto, K. Hirata, T. Matsuu, S. Saito, and S. Nakagawa, IEEE Trans. Magn. 44, 3899 (2008).
- 2) 中込将成, 林原久憲, 高村陽太, 中川茂樹, 第 39 回 日本磁気学会学術講演会, 10aC-6, 2015

負の超磁歪を有する SmFe_2 薄膜の作製と逆磁歪効果の評価

富田誠人, 石谷優剛, 高村陽太, 中川茂樹
(東京工業大学)

Fabrication of SmFe_2 thin films with negative giant magnetostriction and evaluation of inverse magnetostrictive effect

M. Tomita, Y. Ishitani, Y. Takamura, and S. Nakagawa
(Tokyo Institute of Technology, Japan)

1 はじめに

トンネル磁気抵抗素子 (MTJ) を応用した、磁気抵抗メモリ (MRAM) は、不揮発性、高速読み書き、高書き込み耐性といった利点から次世代の RAM として期待されている。しかしながら、スピン注入磁化反転による MTJ の磁化反転時に大きな電力消費を伴うことが欠点とされる。この問題の解決策として、負の超磁歪材料を磁気トンネル接合 (MTJ) 素子のフリー層に使用し、逆磁歪効果を利用して磁化反転時の磁気異方性エネルギーを低下させ、消費電力を削減する構造の逆磁歪 MTJ (IMS-MTJ) が提案されている¹⁾。そこで、負の超磁歪材料である SmFe_2 に注目した。 SmFe_2 は、バルクで -2060 ppm という巨大な負の磁歪定数を持ち²⁾、大きな逆磁歪効果を期待できる。しかし、 SmFe_2 の薄膜状態での磁歪特性の詳細な調査は行われていない。今回は、負の超磁歪フリー層用の SmFe_2 薄膜の作製と、その逆磁歪効果について調査した結果を報告する。

2 実験方法

SmFe_2 薄膜は、対向ターゲット式スパッタ法により、厚さ $30\text{ }\mu\text{m}$ のガラス基板上に室温で Ar ガス圧 0.1 Pa で成膜した。試料構造は Glass sub. ($30\text{ }\mu\text{m}$)/Ta (20 nm)/ SmFe_2 (100 nm)/Ta (10 nm) とし、XRD により SmFe_2 薄膜の結晶性を評価した。逆磁歪効果は、3D プリンタで専用に設計した治具を用いて、試料を曲げる前後の磁化特性を VSM によって測定することで評価した。

3 実験結果

Glass sub./Ta/ SmFe_2 構造と Glass sub./Ta 構造の XRD の結果比較を Fig.1 に示す。Fig.1 からは、 SmFe_2 (220) ピークと $\beta\text{-Ta}$ (002) ピークの位置が近く、はっきりとした SmFe_2 薄膜の結晶化は示せなかった。しかし、Ta 単層の構造に比べて Ta/ SmFe_2 構造のときは高角側にピークがシフトしており、 SmFe_2 が結晶化していることを示唆している。この Glass sub./Ta/ SmFe_2 構造の試料に応力を加え、逆磁歪効果を測定した。試料は、磁化容易軸方向に引張応力、困難軸方向に圧縮応力が加わるように曲げ、VSM による磁化特性測定時の印加磁界方向は困難軸方向とした。Fig. 2 は、 SmFe_2 を室温成膜した試料について、曲げることによる応力を加える前と後の磁化曲線の第一象限を拡大した図である。点線は応力の印加前、実線は応力の印加後の磁化曲線のうち、それぞれの減磁曲線を示す。応力印加前よりも印加後のほうが磁化しやすくなっていることがわかる。測定方向には圧縮応力が印加されているため、 SmFe_2 は薄膜状態でも負の磁歪定数を示すことがわかる。また、応力印加前後の磁化曲線に囲まれた領域の面積は、磁化エネルギーの変化量に相当し、その大きさは 4.9 kJ/m^3 と算出できた。応力印加時の曲率半径と、 SmFe_2 の物性値から、 SmFe_2 薄膜に印加される応力の大きさは 22.4 MPa と計算でき、この応力と磁化エネルギーの変化量から作製した SmFe_2 薄膜の磁歪定数は -150 ppm と評価できる。この値は、バルクでの値に及ばないものの、他の材料よりも比較的大きな値である。 SmFe_2 は薄膜でも比較的大きな磁歪定数を持つことから、薄膜のさらなる結晶化に取り組み、より大きな磁歪定数をもつ薄膜を作製することが課題となる。

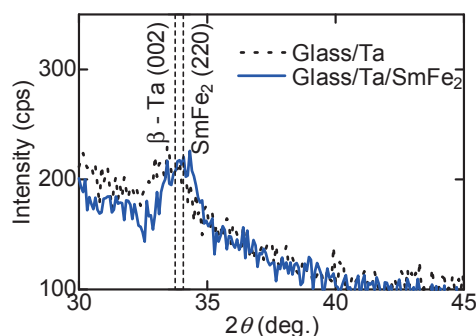


Fig. 1 XRD pattern of glass/Ta/ SmFe_2 and glass/Ta structure

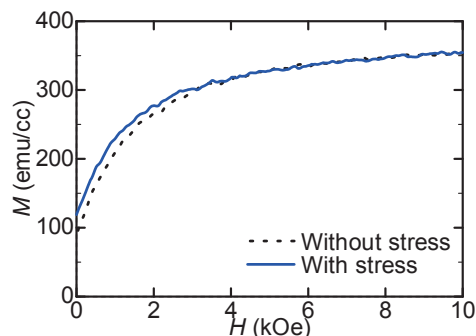


Fig. 2 Transition of magnetization from without stress to with applied stress of SmFe_2 film deposited at R.T.

References

- 1) Y. Takamura, Y. Shuto, S. Yamamoto, H. Funakubo, M. K. Kurosawa, S. Nakagawa, and S. Sugahara: *In 2016 Joint International EUROSOI-ULIS, IEEE*, 72 (2016).
- 2) W. J. Ren, J. L. Yang, B. Li, D. Li, X. G. Zhao, and Z. D. Zhang: *Physica B: Condensed Matter*, **404**, 20 (2009).