第三元素を添加したFe/Ni薄膜の規則化現象

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

Chemical ordering of Fe/Ni films with third-elements

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

はじめに

高い磁気異方性(K_u)を有する材料は、永久磁石や記録媒体などへの応用が期待されるため、以前から盛んに研究されている。しかしながら、資源に乏しい我が国の現状を鑑みると安価かつ豊富な元素によって構成される材料であることが望ましく、元素戦略的な取り組みが行われている。我々は、安価なFeとNiにより構成される$L1_0$-FeNi規則合金に着目している。この材料は、バルクで比較的高いK_u (~1.3×10^7 erg/cc)を発現することが知られている［1］。しかしながら、規則−不規則変態温度が320 ˚Cと非常に低いため[2]、通常の熱処理による作製は困難であり、中性子照射やMBE法などの限られた方法でのみ作製されている[3]。この低い規則−不規則変態温度は、$L1_0$-A1相間の形成エネルギーの差が小さいことに起因しているとされる。我々は第三元素の添加により形成エネルギーを変調させる手法に着目した。遷移金属元素の添加について第一原理計算を行なったところ、Ti, V, Alによって Feを置換することにより形成エネルギーの差が増大することが分かった。そこで、本研究ではFeとNiを交互に積層させる際にFeと同時に添加元素 Tiあるいは Vを添加し、その際の規則−不規則変態温度の変化と磁気特性について調査した。

実験方法

試料は、超高真空マグネトロンスパッタリング装置を用いてFe-Ti(V)とNiをMgO(001)基板上に交互にスパッタし、真空中で熱処理を行った。Ti(V)の添加量を0, 1.5, 3, 5 at%とし、熱処理温度および時間を200-500 ˚C、1-20時間に変化させた。作製したFe-Ti(V)/Ni多層膜について、電子線マイクロアナライザー(EPMA)、振動試料型磁力計(VSM)、X線回折(XRD)、原子間力顕微鏡(AFM)により組成、磁気特性、結晶構造、表面形態をそれぞれ評価した。通常のXRDでは、$L1_0$相に由来して現れる微弱な超格子ピークを観測することが困難なため、SPring-8の高輝度放射光を利用し、入射エネルギーをFe-K吸収端に合わせて異常分散効果を利用したXRD測定を行った。

実験結果

MgO(001)単結晶基板上に$Fe_{50-x}Ti_x$ (x=0, 3, 5 at%)とNiを約0.3 nmずつ交互に積層した膜厚15 nmの試料について熱処理(200-500 ˚C)を行った。In-plane XRD測定を行ったところ、450 ˚Cで熱処理された$[Fe_{47}Ti_3/Ni_{50}]$試料においても、$L1_0$規則相に基づく超格子回折線が観測された。この時の規則度Sを算出したところ0.1程度得られていることが分かった。これは、Tiの添加によって規則−不規則変態温度が上昇したことを示唆する結果である。一方、Vを添加した試料においては、超格子ピークが観測されず、規則−不規則変態温度の上昇は確認されなかった。

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

参考文献

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

Co/Ni エピタキシャル人工格子における磁気異方性とダンピング

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

Magnetic Anisotropy and Damping for Co / Ni Epitaxial Superlattices

T. Seki[1], J. Shimada[1], S. Iihama[1], M. Tsujikawa[1], T. Koganezawa[2], A. Shioda[1], T. Y. Tashiro[1], W. Zhou[1], N. Kikuchi[1], S. Mizukami[1], M. Shirai[1], and K. Takanashi[1]
([1]Tohoku Univ., [2]JASRI)

はじめに

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

実験結果

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

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

参考文献

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

Pt/[Tb/Co]$_n$ 多層細線の電流誘起磁壁移動における Pt 層の効果

黒川雄一郎、粟野博之
（豊田工業大学）

Role of Pt layer for current induced domain wall motion in Pt/[Tb/Co]$_n$ multilayered wire

Yuichiro Kurokawa and Hiroyuki Awano
(Toyota Technological Institute)

序論

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

実験方法

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

実験結果

上部に Pt 層を積層した [Tb/Co]$_n$ 多層膜(n = 4 - 6)の電流誘起磁壁移動を観察したところ、全ての試料で磁壁が電流方向へ移動することが分かった。これは、スピンオービットトルクによって磁壁が駆動されていることを示している。また、これらの試料に面内方向への磁場を印加し、DMI 有効磁場を見積もったところ、磁性層の膜厚が大きくなるにしたがって、DMI 有効磁場が減少することが分かった。図 1 に Pt 層を[Tb/Co]$_5$ のそれぞれ上部、下部に挿入した試料の面内磁場に対する磁壁速度の変化の図を示す。図によると、磁壁速度の変化は up-down 磁壁と down-up 磁壁で異なる磁場依存性を持ち、かつ、それは Pt 層を下部層として用いた場合と上部層として用いた場合で反対の磁場依存性を示すことが分かった。これらの結果は、[Tb/Co]$_n$ の電流誘起磁壁移動では Pt 層由来の DMI が強く働いていることを示唆する。また、これらの結果から DMI 定数を求めたところ従来の膜に対して十分の一程度の値になり、Tb/Co 多層細線では DMI 定数が小さくても磁壁移動に対して十分に寄与していることが分かった。

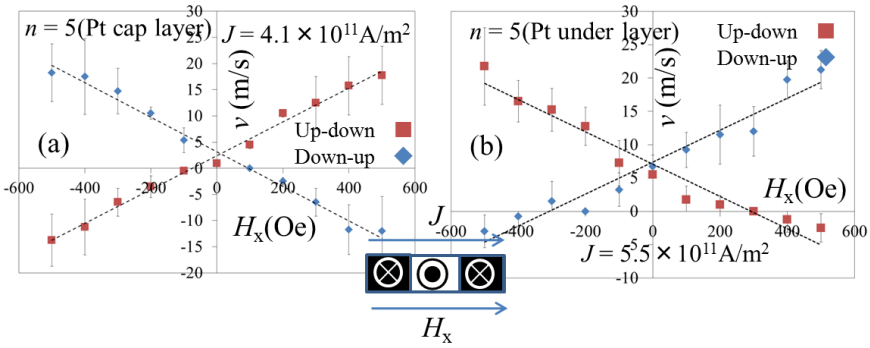


Fig. 1 Velocity (v) of domain wall in [Tb/Co]$_5$ wires with Pt (a) cap layer and (b) under layer as a function of longitudinal in-plane magnetic field (H_x).

謝辞

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

参考文献

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

Fe_3O_4(110)/非磁性金属/Fe 系多層膜における飽和磁場の非磁性金属層膜厚に対する依存性

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

Dependence of saturation field on non-magnetic (NM) metal layer thickness in Fe_3O_4(110)/NM metal/Fe systems

K. Omori[1], T. Kawai[1], T. Yanase[2], T. Shimada[2], T. Nagahama[2]
(Hokkaido Univ. of Graduate school of Chemical Sciences and Enguneering[1],
Hokkaido Univ. of Graduate Faculty of Engineering[2])

はじめに

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

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

実験方法

試料は分子線エピタキシー(MBE)法により作成した。膜構成は MgO(110)/NiO(5 nm)/Fe_3O_4(60 nm)/MgO(2 nm)/Cr(0~10 nm)/Fe(5 nm)/Al_2O_3(2 nm)および MgO(110)/NiO(5 nm)/Fe_3O_4(60 nm)/Pt(0~10 nm)/Fe(5 nm)/Al_2O_3(2 nm)である。Cr および Pt 層はリニアシャッターを動かしながら蒸着することで 0~10 nm の傾斜をつけた。反射高速電子線回折(RHEED)を用いて各製膜層の表面を観察し、XRD によって構造解析を行った。磁化過程は磁気光学カー効果(MOKE)によって測定し、H_s が非磁性層膜厚に対してどのように変化するのか調べた。

実験結果

MOKE 測定によって得られたヒステリシス曲線から H_s を読み取り、非磁性層膜厚(t)に対してプロットした(Fig. 1)。Fe_3O_4/MgO/Cr/Fe 系多層膜においては Fe_3O_4/Cr/Fe 系多層膜の場合と同様に、広い範囲で H_s の上昇が見られた。Fe_3O_4/MgO/Cr/Fe 系多層膜では間の MgO 層によって強磁性層間の電子的な相関は断ち切られている。したがって、Fe_3O_4/Cr/Fe 系多層膜における H_s の上昇は電子的な相互作用以外の要因によるものだと考えられる。

Fe_3O_4/Pt/Fe 系多層膜においては Fe_3O_4/Cr/Fe 系多層膜の場合とは異なり、Pt 層が厚くなるにつれて H_s はほぼ一定の値に近づいた。さらに、垂直磁気異方性をもつ Co/Pt 系多層膜の場合と同じような H_s の振動的な変化[2]が見られた。

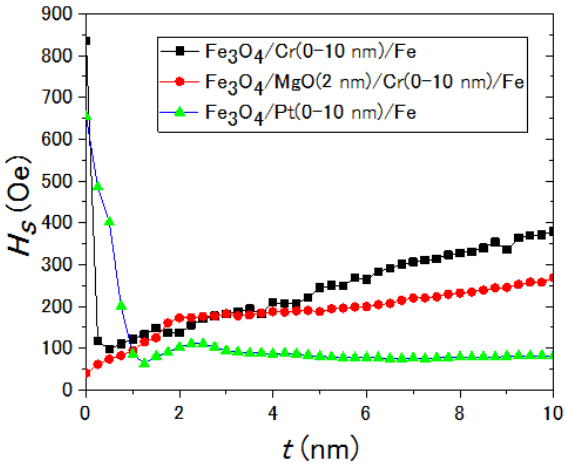


Fig. 1　Saturation field (H_s) of Fe_3O_4/Cr/Fe, Fe_3O_4/MgO/Cr/Fe and Fe_3O_4/Pt/Fe for non-magnetic layer thickness (t).

参考文献

[1] S. S. P. Parkin, N. More, and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).
[2] J. W. Knepper and F. Y. Yang, *Phys. Rev. B* **71**, 224403(2005).

エピタキシャル成長した磁性フィボナッチ多層膜の強磁性共鳴

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

Ferromagnetic resonance of epitaxially-grown magnetic Fibonacci multilayers

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

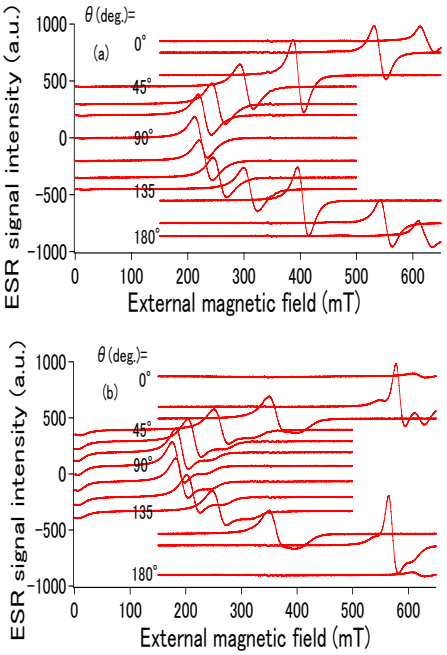
はじめに

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

実験結果と考察

高真空多元電子線蒸着装置を用いて、単結晶 MgO(100)基板上に多層膜をエピタキシャル成長させた。本稿では元素記号の次の数字は膜厚(Å)を意味する。まずシード層 Fe5、次にバッファー層 Au200 を積層した。各層成膜後に反射高速電子線回折(RHEED)を用いて Fe5/Au200 の(100)面のエピタキシャル成長を確認した。その上に周期多層膜では$[Fe5/Au30]_{13}$を成膜した。これに対しフィボナッチ多層膜では、30 Åをフィボナッチ数列の値で割った Au 層と Fe5 を積層した $[Fe5/Au30/Fe5/Au30/Fe5/Au15/Fe5/Au6/Fe5/Au4/Fe5/Au2]_2Fe5/Au30$ を成膜した。多層膜成膜後にも RHEED でエピタキシャル成長を確認した。

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



(a)周期多層膜 (b)フィボナッチ多層膜の ESR スペクトル

参考文献

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

Fe/Pd 薄膜の磁気特性に Pd 層の量子井戸状態が与える影響

櫻木俊輔, 中原翔太, 餅原耕佑, 沢田正博 *, 佐藤徹哉
(慶大, * 広大)

Effect of quantum-well states in Pd layer on magnetic properties of Fe/Pd films

S. Sakuragi, S. Nakahara, K. Mochihara, M. Sawada*, and T. Sato
(Keio Univ., *Hiroshima Univ.)

1　はじめに

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

2　実験方法

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

3　実験結果

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

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

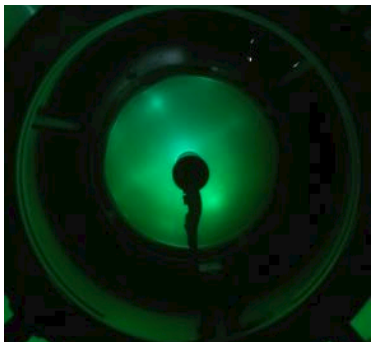


Fig. 1　LEED image

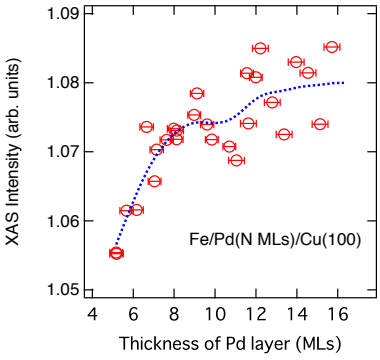


Fig. 2　Pd M_3 XAS intensity

References

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

TbFeCo 薄膜の組成と磁気特性に対する酸化の影響

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

Influence of film oxidation on composition and magnetic property in TbFeCo thin films

R. Hara, N. Suwabe, K. Morita, M. Kobayashi, and Y. Yasukawa
(Chiba Institute of Technology)

背景

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

実験方法

Tb:Fe:Co = 22:66:12 at%の TbFeCo 合金ターゲット上に Tb チップを配置した複合ターゲット方式で、DC マグネトロンスパッタ法により成膜を行った。ターゲット面積当たりのスパッタパワーを 0.12 W/cm^2 とし、膜厚 65 nm の試料を作製した。振動試料型磁力計(VSM)を用いて室温における磁気特性を評価した。また、蛍光 X 線(XRF)で薄膜の組成を定量し、X 線光電子分光法(XPS)で薄膜の深さ方向の組成の定量と化学結合状態を評価した。

実験結果

プレスパッタ時のガス圧、成膜時のガス圧を共に 3m Torr とし、プレスパッタ時間 60 分、成膜時間約 20 分で作製した試料の膜面垂直方向の磁気特性を Fig.1 に示す。試料は垂直磁気異方性を示し、垂直方向では約 6.4 kOe の保磁力が観察された。また、Fig.2 は 3m Torr で施したプレスパッタ時間に対する薄膜中の Tb 量および垂直方向の保磁力を示す。Tb 量は約 25.5 at%で一定であったが、保磁力はプレスパッタ時間が 60 分以上になると約 6 kOe で飽和した。プレスパッタ時間が 20 分までの試料は、ターゲットと Tb チップ表面の酸化膜の清浄が不十分であり、これが成膜時に膜中に混入し、酸化 Tb が薄膜に含有したため保磁力が相対的に低かったと考えられる。一方でプレスパッタ時間 60 分以上の試料に見られる保磁力の飽和は、ターゲットとチップの酸化膜の清浄が十分であることを示唆する。これは XPS による薄膜深さ方向の組成分析結果とも一致する。以上から、プレスパッタによる薄膜原料の十分な清浄が、試料の垂直磁気異方性の発現に寄与したと考えられる[2]。

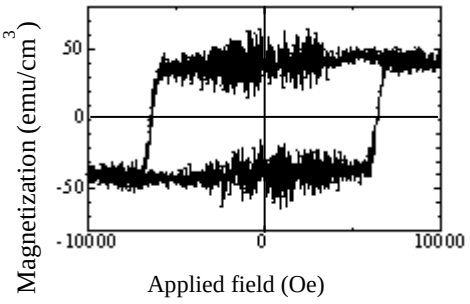


Fig.1 Perpendicular hysteresis loop of TbFeCo Film deposited at 3m Torr for 3 min. Pre-sputtering was performed 3 m Torr for 60 min before sputtering.

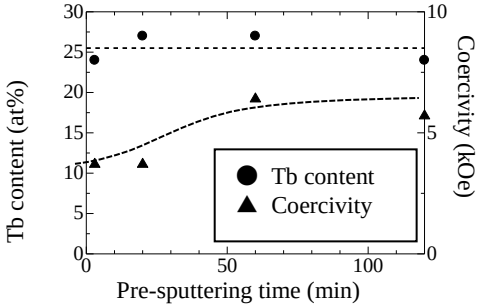


Fig.2 Tb contents and perpendicular coercivity values of TbFeCo films as a function of pre-sputtering time carried out 3m Torr.

謝辞

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

参考文献

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

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

市村明雄、榮岩哲二
（信州大学大学院　理工学系研究科　情報工学専攻）

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

Akio Ichimura, Tetsuji Haeiwa
(Faculty of Engineering, Graduate School of Science and Engineering, Shinshu Univ.)

はじめに

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

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

実験方法

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

実験結果

Fig1 にバイアス電圧 100V を印加した際の SEM 像を示す。赤線で囲った部分にはメソ孔が確認されず、スポンジ層であると考えられる。SEM 像から、スポンジ層を除いた領域の割合を細孔率とし、バイアス電場依存性を評価した。

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

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

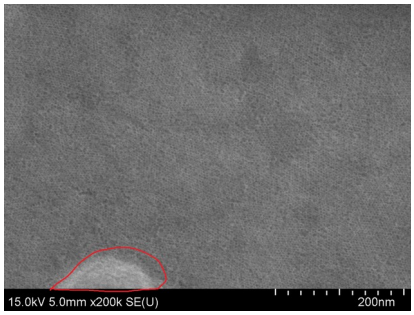


Fig1. Image of SEM

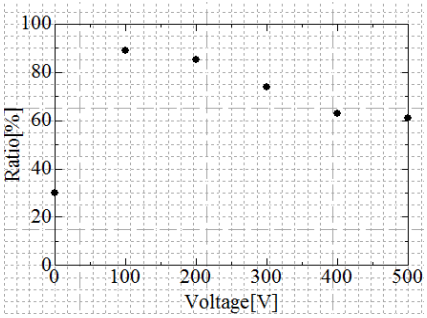


Fig2. Relationship of bias voltage and ratio of meso pore area

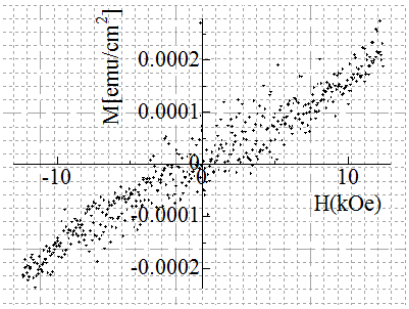


Fig3. Magnetization curve

謝辞

本研究は JSPS 科研費 15K05982 の助成を受けたものです。

参考文献

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

MgO(001)基板上に形成した Fe-Co-B 合金薄膜の構造と磁気特性

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

Structure and Magnetic Properties of Fe-Co-B Alloy Thin Films Deposited on MgO(001) Substrates
Kana Serizawa[1], Ryoma Ochiai[1], Masahiro Nakamura[1], Tetsuroh Kawai[1], Mitsuru Ohtake[1,2], Masaaki Futamoto[1], Fumiyoshi Kirino[3], and Nobuyuki Inaba[4]
([1]Chuo Univ., [2]Kogakuin Univ., [3]Tokyo Univ. Arts, [4]Yamagata Univ.)

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

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使用し，基板上に 40 nm 厚の $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{100-x}B_x$（$x$ = 0–15 at. %）膜を形成した．構造評価には RHEED および XRD，表面形態観察には AFM，磁化曲線測定には VSM，磁歪測定には片持ち梁法を用いた．

実験結果　Fig. 1 に基板温度を変えて形成した $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ 膜の RHEED パターンを示す．RT から 600 °C で形成した全ての薄膜から，Fig. 1(a)に指数表示した回折点が観察された．この結果から，薄膜は基板に対していずれもエピタキシャル成長していることが分かる．結晶方位関係は，

Fe-Co-B(001)[110] ∥ MgO(001)[100]

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

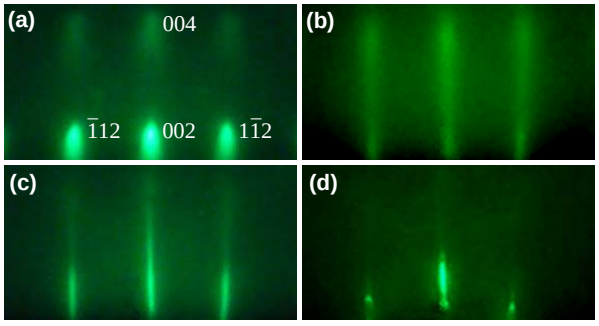


Fig. 1　RHEED patterns observed for $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ films deposited on MgO(001) substrates at (a) RT, (b) 200 °C, (c) 400 °C, and (d) 600 °C. The incident electron beam is parallel to MgO[100].

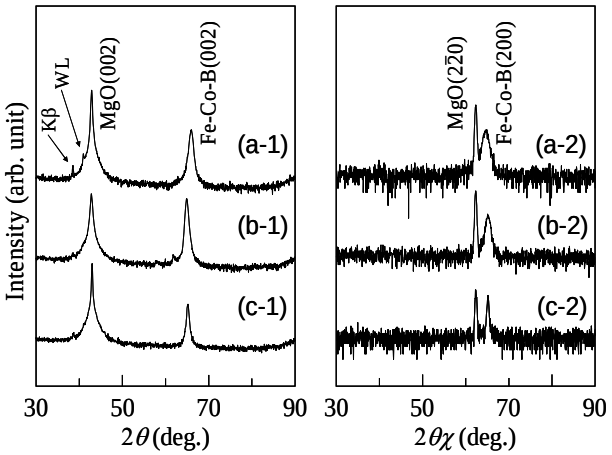


Fig. 2　(a-1)–(c-1) Out-of-plane and (a-2)–(c-2) in-plane XRD patterns of $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ films deposited on MgO(001) substrates at (a) RT, (b) 400 °C, and (c) 600 °C. The scattering vector of in-plane XRD is parallel to MgO[110].

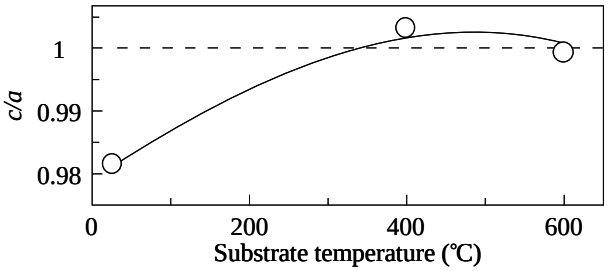


Fig. 3　Effect of substrate temperature on the c/a ratio of $(Fe_{0.7}Co_{0.3})_{95}B_5$ film.

参考文献

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

fcc-Co(001)単結晶薄膜の磁歪挙動

川井哲郎[1]・大竹充[1,2]・二本正昭[1]
([1]中央大，[2]工学院大)

Magnetostrictive Behavior of fcc-Co(001) Single-Crystal Films

Tetsuroh Kawai[1], Mitsuru Ohtake[1,2], Masaaki Futamoto[1]
([1]Chuo Univ., [2]Kogakuin Univ.)

はじめに

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

実験方法

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

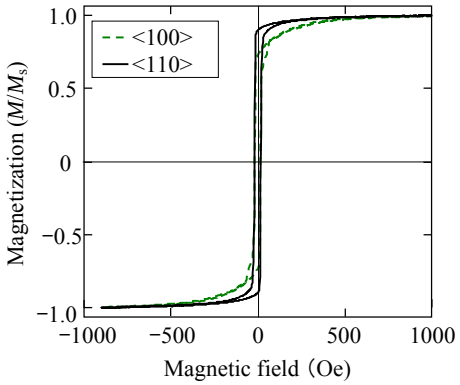


Fig. 1 Magnetization curves measured for fcc-Co(001) single-crystal film.

実験結果と考察

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

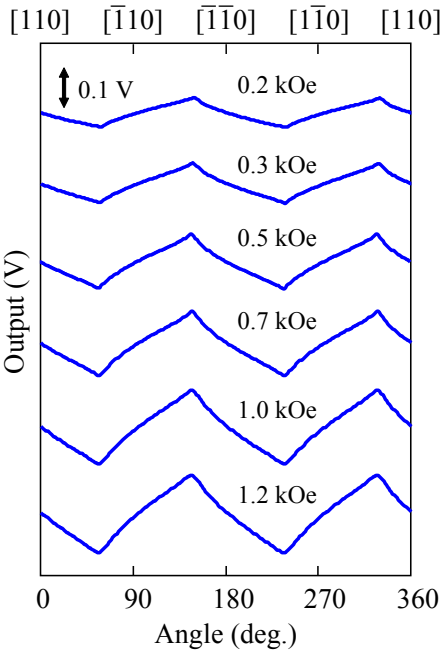


Fig. 2 Magnetostrictive behavior measured for fcc-Co(001) single-crystal film along fcc[100] under various magnetic fields.

参考文献

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

Fe, Co を用いた誘導透過干渉フィルタのファラデー回転特性

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

Faraday effect of Induced transmission filter with Fe, Co films

M. Miyamoto* **, T. Kubo*, T. Hanada**, H. Ihara**, T. Sato**, M. Sonehara**
(*Citizen Finedevice Co.,Ltd., **Shinsyu University)

はじめに

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

実験方法

石英基板上に構造式:$(H/L)_2/H/M/H(L/H)_2$（H:Ta_2O_5, L:SiO_2, M:Fe,Co）で表される DMD 型の誘導透過干渉フィルタを IAD 蒸着(Ion Assisted Deposition)によって形成した。ここで、H, L の物質およびその積層数は磁性体 M と光路媒質である石英（n=1.46）とのアドミッタンス値が最小となるように理論計算から求め、決定した。このように形成された試料を光ファイバーで構成されたファラデー回転評価装置にて、λ=1550nm の光源を用いて測定した。

実験結果

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

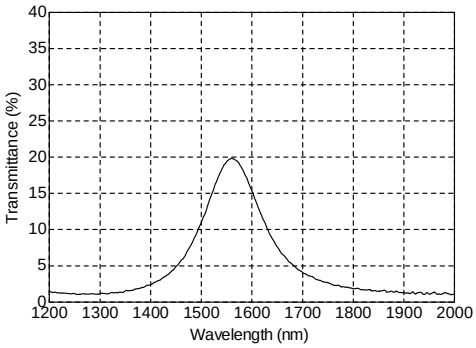


Fig.1 Spectrum of the filter with Fe65nm

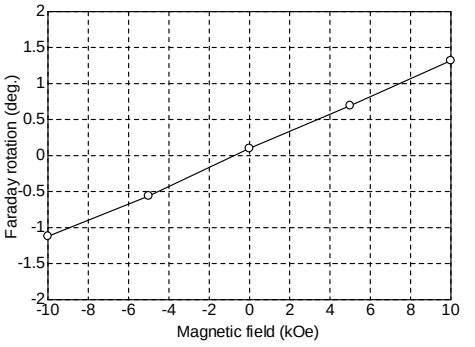


Fig.2 Faraday rotation angle of the filter with Fe65nm

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

参考文献

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

高エネルギーイオン照射によるグラフェンへのヘテロ原子ドーピング

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

はじめに

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

実験方法

Cu 箔に成長させたグラフェン上にヘテロ原子層を作製した（図 1）。ヘテロ原子層には 3 原子層の六方晶窒化ホウ素（*h*-BN）または 100nm の膜厚の LiF を用いた。真空中において同ヘテロ界面に高エネルギーイオン（2.4 MeV $^{63}Cu^{2+}$）を照射した。イオン照射後の電子状態や原子構造を顕微ラマン分光および C *K* 吸収端 XAFS により評価した。

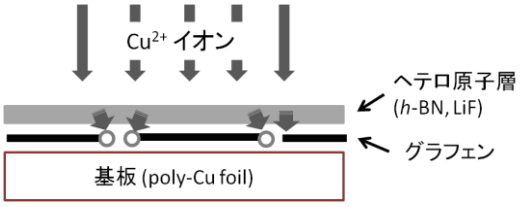


図 1: 高エネルギーイオン照射によるグラフェンへのヘテロ原子ドーピングの概念図。

実験結果

図 2 にイオン照射後の *h*-BN/グラフェンのラマンスペクトルを示す。G バンド（1580 cm^{-1}）の半値幅が増大するとともに，D バンド（1350 cm^{-1}）があらわれたことから，グラフェン中の欠陥の導入が明らかになった。さらに 2200 cm-1 付近に CN 結合由来（ν(C=N)）のピークが観察された。同ピーク強度は照射量の増大に伴い増大することが分かった。これらのことから，イオン照射によって窒素原子がグラフェン中に化学結合を形成することが明らかになった。同ヘテロ原子ドーピングは，電子励起相互作用が支配的なエネルギー領域（数 MeV）のイオンビームをグラフェンに照射することによって，電子励起後の緩和過程で空間的に近接し同様に励起状態にあるヘテロ原子（*h*-BN 層中の窒素原子）との間で結合の組換えが生じることに起因していると考えられる。講演では，LiF/グラフェンへのイオン照射によるフッ素原子のドーピングについても議論する予定である。

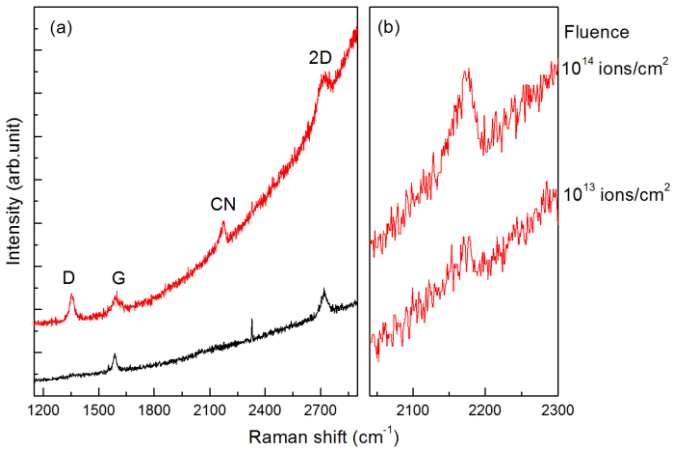


図 2: *h*-BN/グラフェンヘテロ構造へのイオン照射後のラマン分光スペクトル。(a)照射によって D バンドおよびν(C=N)由来のピークがあらわれる。(b)照射量の増大に伴いν(C=N)ピークの強度が増大している。

$MgAl_2O_4$(001)基板上にエピタキシャル成長した $NiFe_2O_4$薄膜のカチオン分布

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

Cation distribution in $NiFe_2O_4$ epitaxial thin films grown on $MgAl_2O_4$(001)

M. Matsumoto, Y. Hisamatsu, J. Inoue, S. Sharmin, E. Kita, and H. Yanagihara
(Institute of Applied Physics, University of Tsukuba)

はじめに

正方歪を導入した $CoFe_2O_4$ 薄膜に現れる一軸磁気異方性は，Co^{2+}イオンの t_{2g} 軌道を考慮した 1 イオンモデルにより理解することが出来る．基板との格子不整合に伴い正方歪が導入された後も t_{2g} 軌道の縮退が残るために軌道角運動量が活性となって，その結果スピン軌道相互作用を通じて磁気異方性が現れる．[1] カチオンの電子状態がもたらす磁気異方性への影響を明らかにするために，電子数が一つ多い Ni^{2+}を有する $NiFe_2O_4$(NFO) について調べたところ，大きな負の一軸磁気異方性やバルクよりも大きな飽和磁化を示すという特異な現象が生じることを報告した．[2] そこで今回，これらの現象を理解するために，$MgAl_2O_4$(MAO)(001)基板上にエピタキシャル成長した NFO 薄膜のカチオンの電子状態および，逆サイト欠陥 (ASD) の有無について調べた．

実験方法

基板には，1200℃で 6 時間の熱処理を行なうことで，表面にステップ−テラス構造を持たせた単結晶 MAO(001)を用いた．試料作製プロセスとしては，ターゲットに NiFe 合金(1:2 atm 比)を，反応性ガスとして O_2 を用いた反応性スパッタリングを用いて成膜を行った．膜厚の異なる試料を作製し，X 線回折法を用いた結晶構造評価，磁化測定，磁気トルク測定による磁気特性評価を行った．さらに KEK 放射光科学研究施設 PF の BL−4C において X 線異常分散法を用いた X 線回折評価を行うことで，カチオン分布の評価を行なった．

実験結果

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

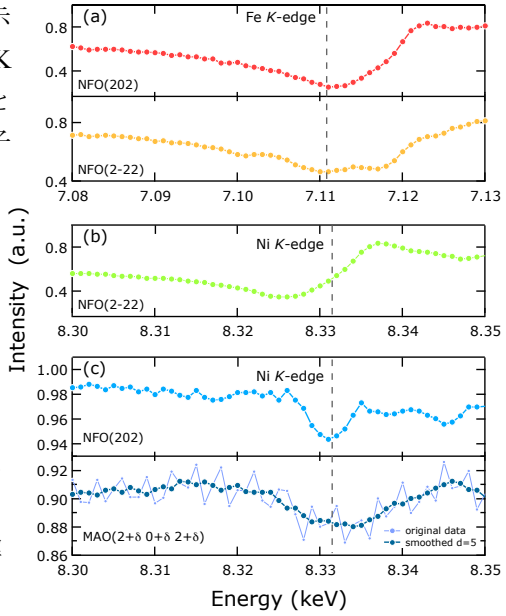


Fig. 1 t = 4 nm における X 線異常分散スペクトル

参考文献

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

$Mo_xFe_{3-x}O_4$(001)薄膜の作製と磁気特性

久松裕季，Sonia Sharmin，柳原英人
（筑波大）

Growth and magnetic properties of $Mo_xFe_{3-x}O_4$(001) thin films

Y. Hisamatsu, S. Sharmin, H. Yanagihara
(Univ. of Tsukuba)

目的

$MoFe_2O_4$ は高い電気伝導性を示すことからスピントロニクスへの応用が期待される物質である [1]. しかし，その飽和磁化 M_s は A-site と B-site の磁気モーメントから求めた概算値よりも非常に小さい値を示すことが報告されている [2]. これは Mo イオンのスピン状態やスピン配列の分散，組成比のズレ等が関係していると言われているが詳細はわかっていない．本研究ではこの磁化の減少は磁気弾性効果によって復活した軌道角運動量がスピンと打ち消し合うために生じていると考え，歪みを導入した $Mo_xFe_{3-x}O_4$ (MFO)の単結晶薄膜を作製することでこれを明らかにすることを試みた．

実験方法

二元同時反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により MgO(001)基板上に MFO を作製した．基板温度は 300℃とし，Fe，及び Mo の純金属ターゲットを使用して Ar＋O_2 雰囲気中で成膜を行った．このとき，Fe ターゲットの投入電力 P_{Fe} を 100 W に固定し，Mo ターゲットの投入電力 P_{Mo} を変化させることで組成比の制御を試みた．作製した試料に対して反射高速電子線回折 (RHEED) を用いた表面結晶構造の評価，X 線逆格子マップ測定 (RSM) を用いた歪み評価および振動試料型磁束計 (VSM) を用いた室温および 100 K での磁化曲線の測定を行った．

実験結果

Fig. 1 に(a) MgO(001)および(b) P_{Mo}=30 W で作製した $Mo_xFe_{3-x}O_4$/MgO(001)の RHEED 像を示す．成膜後の RHEED 像は P_{Mo} の値によらず(b)に示すような明瞭なストリークパターンを示した．さらに，菊池線が現れていることから，平滑で結晶性が高い事が示唆される．また，新たに MgO の 2 倍の格子定数に対応するストリークが現れており，これからスピネル型結晶構造の形成が示唆される．

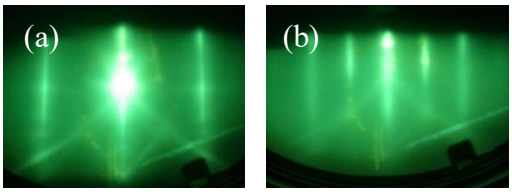


Fig. 1 RHEED images of (a) MgO(001), and (b) $Mo_xFe_{3-x}O_4$/MgO(001) (P_{Mo}=30 W).

Fig. 2 に M_s と P_{Mo} の関係を示す．Mo の含有量は P_{Mo} に依存すると考えられることから，組成が Fe_3O_4 から $MoFe_2O_4$ へと近づくに連れて M_s が小さくなっていると言える．M_s の値は室温と 100 K でほとんど変化していないため，ネール温度は室温よりも十分に高いと考えられる．

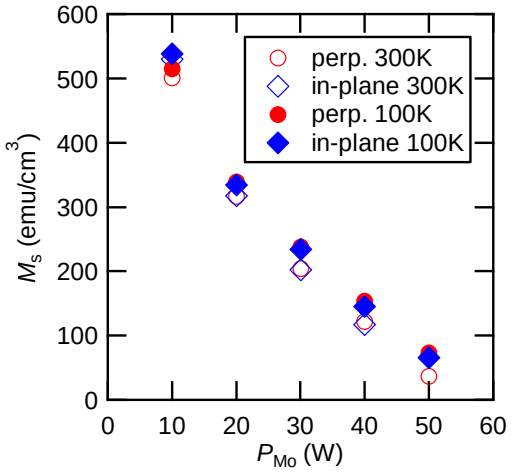


Fig. 2 RF-power of Mo target dependence of saturation magnetization of $Mo_xFe_{3-x}O_4$.

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

参考文献

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

緩衝層膜によるコバルトフェライト薄膜の歪制御

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

Control of epitaxial strain in cobalt-ferrite thin films by various buffer layers

H. Onoda, Y. Hisamatsu, J. Inoue, S. Sharmin, E. Kita, and H. Yanagihara
(Univ. of Tsukuba)

はじめに

MgO(001)上に成膜したコバルトフェライト（$Co_xFe_{3-x}O_4$: CFO）膜はバルクとは異なる一軸性の磁気異方性を示し，その大きさは 14.7 Merg/cm^3 にも達する [1]．CFO/MgO 薄膜における垂直磁気異方性は，基板との格子不整合（+0.47%）による磁気弾性効果によって生じると理解されている [2]．その発現機構の理解を深めるため，現象論の範囲を超えて微視的な（電子論的な）観点から理解を進めているところである [3]．電子論的な解釈に定量性を与えるためにも，広い範囲で格子歪を変化させその結果誘起される磁気異方性を評価することが不可欠である．そこで本研究では，MgO と比して格子定数の大きい NbN および $Mg_{0.7}Ca_{0.3}O$(MCO)を緩衝層として導入し，その上に成膜した CFO 薄膜の特性を調べ，歪をパラメータとして磁気異方性の変化を実験的に調べることを試みた．

方法

MgO 単結晶基板上に反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により NbN 薄膜と MCO 薄膜を作製した．成膜温度は 600℃とし，それぞれ Nb 純金属ターゲットと MgO-CaO(7:3)焼結体ターゲットを使用して成膜を行った．CFO 薄膜は CoFe 合金ターゲットを使用して反応性 RF マグネトロンスパッタリング法により作製した．成膜温度は 500℃とし，Ar + O_2 雰囲気中で成膜を行った．作製した試料は，反射高速電子線回折法（RHEED）による表面構造の観察，X 線回折法（XRD）による格子定数と結晶構造の評価，および磁気特性の評価を行った．

実験結果

Fig.1 に(a)NbN(001)と(b) MCO(001) の RHEED 像を示す．NbN では，(a)のように明瞭なストリークパターンが現れていることから平坦性の良い膜が得られたと言える．MCO においても，(b)のようにストリークパターンであることから平坦性の良い膜であることが言える．しかし， MCO のストリークの線幅は広く，結晶面は配向しているものの格子歪も大きいものと考えられる．これは，MgO と MCO の格子不整合が大きく，格子緩和が起こる過程で格子面間隔が連続的に変化していることが原因だと考えられる．格子不整合の緩和が起こると，それ以降は格子に歪みが生じなくなるため，緩衝層の膜厚を厚くすることで RHEED 像は改善されると考えられる．Fig.2 に(a)NbN と(b)MCO 上に成膜した CFO(001)の RHEED 像を示す．NbN 上に成膜した CFO 薄膜は，(a)のようにハローパターンとなっていることから，試料表面はアモルファス状で，原子配列が揃っていないことが分かる．MCO 上に成膜した CFO 薄膜は，(b)のように MCO の 2 倍の格子定数に対応するストリークが現れており，これはスピネル型結晶構造を示唆しており，CFO 薄膜のエピタキシャル成長に成功したと言える．しかし，MCO 上に成膜した CFO 薄膜の in-plane 測定を行った結果から，CFO 薄膜の面内の格子定数がバルクの値より小さく面内圧縮歪みが導入されていることが示唆され，磁化曲線の結果から，面内磁化膜であること分かった．組成の異なる MCO 薄膜を作製して結晶構造の評価を行うなど MCO 薄膜についてさらなる解析が必要である．

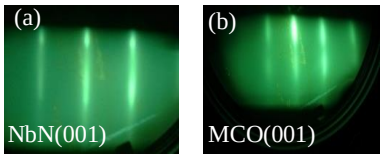


Fig. 1 RHEED images of various buffer layer (a) NbN (001)/MgO (b) MCO (001)/MgO

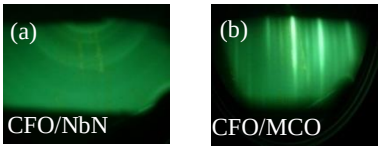


Fig. 2 RHEED images of Co ferrite (001) grown on (a) NbN (001), (b) MCO (001)

参考文献

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

反応性スパッタリング法による
$Fe_{3-x}O_4$ (001)成膜時の RHEED 振動の観察

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

Observation of RHEED oscillation of $Fe_{3-x}O_4$ (001) thin films deposited by reactive sputtering technique

T. Ojima, T. Tainosho, S. Sharmin and H. Yanagihara
(Inst. of Appl. Phys., Univ. of Tsukuba)

はじめに

磁気材料の薄膜に広く用いられている物理蒸着法（PVD）として、分子線エピタキシー(MBE)法やパルスレーザーデポジション(PLD)法、スパッタリング法などが挙げられる。薄膜材料、基板、成膜条件が整うことで、MBE 法や PLD 法では、膜が一原子層ずつ成長する層状成長をすることが知られており、これに対応して反射高速電子線回折(RHEED)の鏡面反射成分の強度変化が観察される。一般にスッパリング法では、膜の形成初期段階は島状であり、この島が大きくなることで膜厚が増加するため、薄膜の平坦性は低く層状成長は難しいと考えられてきた[1]。我々の研究グループでは、反応性スパッタリング法により平坦性の高く、バルクの磁気特性に近いFe_3O_4(マグネタイト)やγ-Fe_2O_3(マグヘマイト)の成膜に成功している[2]。そこで、成膜中の反射高速電子線回折(RHEED)の強度変化を測定することで、反応性スパッタリング法における薄膜成長の過程を調べた。

実験方法

反応性スパッタリング法により MgO(001)基板上に酸素流量を変えることでFe_3O_4とγ-Fe_2O_3をそれぞれ成膜した。基板温度は 300℃、ターゲットには Fe を用いて Ar+O_2雰囲気中で成膜を行った。成膜中、膜の <100>方向から電子線を入射しながら、RHEED の強度変化を測定した。また、作成した試料に対して、X 線反射率測定法(XRR)により膜厚を測定した。

実験結果

Fig. 1 に(a)MgO(001)、(b) Fe_3O_4(001)の RHEED 像を示す。明瞭なストリークと菊池線が表れていることから、平坦性の高いエピタキシャル膜であることが示唆される。Fig. 2 にFe_3O_4成膜中の RHEED 強度の推移を示す。真空蒸着法による原子レベルでの層状成長に特徴的な強度振動が本実験でも観測された。周期は 7.6 秒で、これがFe_3O_4の一分子層(：≈2.10Å)の積層に相当すると仮定すると、成膜レートは 0.276Å/s となり、XRR 測定より求めた成膜レート 0.282Å/s とよく一致する。また、γ-Fe_2O_3の成膜中、周期 43.9 秒の RHEED 振動が観測された。これより求められた成膜レートは 0.0476Å/s であり、XRR 測定より求めた 0.0486Å/s とよく一致する。以上の結果より、反応性スパッタリング法による $Fe_{3-x}O_4$ (001)膜の成長過程は、層状成長であることが確認された。講演当日は上記に加え、より詳細な振動の傾向について議論する。

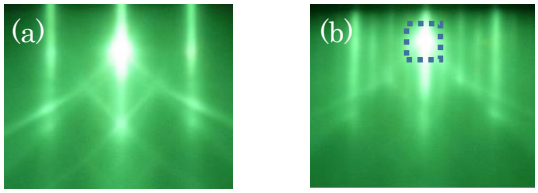


Fig. 1 RHEED images of (a)MgO(001) and (b) Fe_3O_4(001)

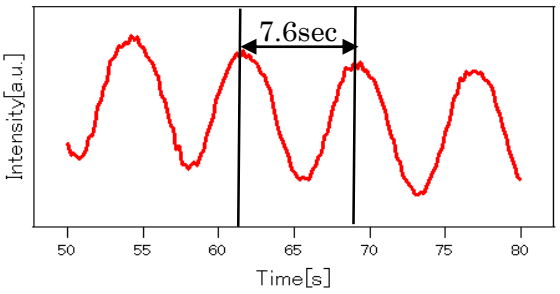


Fig. 2 Time dependent RHEED intensity corresponding to the square area of Fig. 1 (b) .

参考文献

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

Topotactic phase transformation of spinel Fe_3O_4 to FeO with rock salt structure via ion irradiation

Yang Liu[1], Yuki Hisamatsu[1], Sonia Sharmin[1], Daiki Oshima[2], Takeshi Kato[2], Satoshi Iwata[2], Eiji Kita[1] and Hideto Yanagihara[1].

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

Introduction

An interesting topic of recent study is how spinel materials, such as $MgAl_2O_4$, $MgGa_2O_4$ and $MgIn_2O_4$[1], are affected by ion implantation, a technique which can change a material's fundamental properties. However, hardly any investigation has been carried out on irradiated spinel ferrite materials. In a previous study, we investigated the effect of Kr ion implantation on the epitaxial growth $CoFe_2O_4$ thin films, and found that the magnetization decreased due to ion irradiation causing a structural transformation from spinel to rock salt type. However, the mechanism of topotactic reaction in epitaxial films was not well explained. In this study, we focus on prototype spinel Fe_3O_4 thin films and investigate the structural transformation from spinel to rock salt via Kr ion implantation.

Experiment

Fe_3O_4 thin films were fabricated on MgO (001) single crystal substrates by reactive RF sputtering. The substrate temperature was kept at 300℃. Kr ions were accelerated in a conventional ion implantation system in Nanotechnology Platform. The acceleration was set at 30 keV and the ion dosage was controlled at 5×10^{15} ions/cm^2. An annular 25% ^{57}Fe enriched tablet placed on a natural Fe sputtering target was custom-made in order to perform room temperature conversion electron Mössbauer spectroscopy (CEMS). The structure transformation was measured by X-ray diffraction at beamline BL-4C of the Photon Factory, KEK, while the magnetization was measured by vibrating sample magnetometer (VSM) at room temperature.

Results

Figure 1 and Figure 2 show the result of the (0 0 *l*) scan, which defined with MgO lattice, of sample after 5×10^{15} ions/cm^2 ion irradiation. In Fig.1, the intensity of strongest peak (partial shown) indicates the reflection of the substrate, MgO (0 0 2). The protuberant part on the right side of MgO (0 0 2) peak, shown by the arrow represents the thin film. From the lattice constant value, we estimated that the thin film observed is Fe_3O_4 (0 0 4). In Fig. 2, the reflection of the MgO (0 0 2) substrate is also observed as the peak of strongest intensity, the arrow indicating the slight swell on the left side of the MgO (0 0 2) peak (shown by the arrow) indicates the presence of FeO (0 0 2) thin film, as estimated from lattice constant.

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

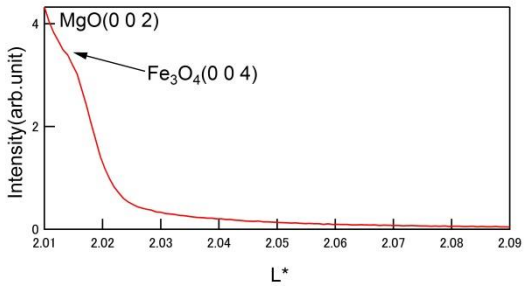


Fig. 1. The result of the (0 0 *l*) defined with MgO lattice, which shows Fe_3O_4 (0 0 4) after 5×10^{15} ions/cm^2 ion irradiation.

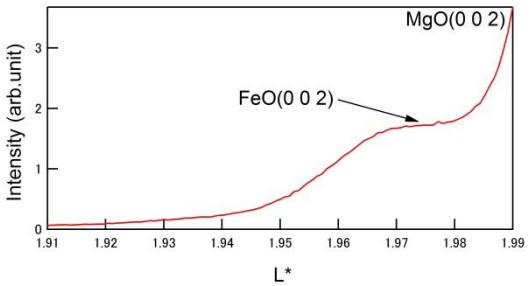


Fig. 2. The result of the reciprocal lattice indexes defined with MgO lattice, which shows FeO (0 0 2) thin film after 5×10^{15} ions/cm^2 ion irradiation.

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