

## Development of microwave interferometer based ultra-high sensitivity ferromagnetic resonance measurement apparatus

S. Tamaru, H. Kubota, K. Yakushiji, A. Fukushima and S. Yuasa

(Spintronics Research Center, Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Ibaraki, 305-8568 Japan)

Microwave assisted magnetic recording (MAMR) is one of the promising candidates for increasing the recording density in hard disk drives (HDD). In the MAMR technology, a spin torque oscillator (STO) embedded in the HDD slider generates a microwave field, which is applied to the storage layer of the HDD media to temporally decrease the coercivity during the magnetization switching process. Because this technology takes advantage of the cooperative phenomenon between high frequency magnetic fields and spin dynamics, it is crucial to thoroughly characterize dynamical properties of both the STO and magnetic storage layer. However, the high frequency characterization of the STO is particularly challenging due to its small dimension and multilayer structure that complicate the behavior at high frequencies, thus making it difficult to come up with a clear interpretation of the results obtained by the standard electrical characterization techniques such as oscillation spectrum or thermally excited mag-noise measurements. Therefore, it is desirable to have other means for measuring high frequency dynamics of a magnetic nanostructure as a complementary technique.

For this purpose, we have developed a technique to measure ferromagnetic resonance (FMR) with a high sensitivity based on microwave interferometer, which we named as Interferometric FMR (I-FMR), whose block diagram is shown in Fig. 1 [1]. The basic idea of this technique is as follows. The stimulus signal from P1 is split into two paths, and they destructively interfere with each other such that ideally no stimulus signal exits the power combiner when no magnetic activity is excited. When the FMR condition is met, the stimulus signal of the path going through the coplanar waveguide (CPW) excites FMR on the magnetic element, thus the balance between the two paths is broken. As a result, only the difference signal reflecting the FMR response of the magnetic element exits the power combiner, which is amplified and eventually detected at P2. The first I-FMR demonstration showed a large sensitivity enhancement of as large as about 40 dB (x 100) compared with the conventional vector network analyzer FMR (VNA-FMR) as presented in Fig. 2, which allowed a clear resolution of the Kittel mode FMR signal on a 100 nm diameter and 5 nm thick CoFeB single nanodot. Following this demonstration, we have developed the second version of the I-FMR apparatus. The main difference between the first and second versions is that the first version required manual adjustments of the interferometer every time when the frequency is changed, which is a very tedious and time consuming step, while this adjustment is fully automated in the second version without largely sacrificing the sensitivity, thus making this system a powerful tool for the high frequency characterization of nano-scale magnetic elements.

In the presentation, I will first give the system overview of the second version of the I-FMR apparatus, then will show some FMR spectra measured on nano-scale magnetic elements under various conditions to shed new lights on the magnetization dynamics.

This work is supported by the JST strategic innovation promotion program, “Development of new technologies for 3-D magnetic recording architecture.”

### Reference

- 1) S. Tamaru et al., IEEE Magn. Lett., (5) 1-4, (2014)

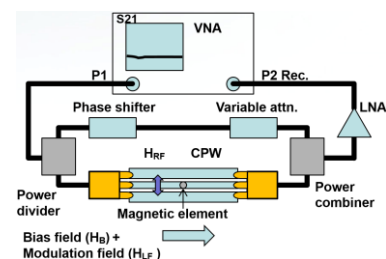


Fig. 1, Block diagram of the I-FMR apparatus

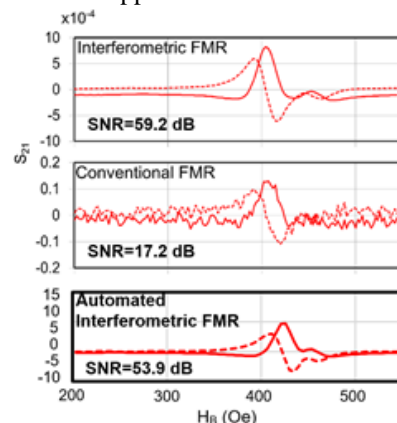


Fig. 2, Comparison of the FMR spectrum measured on a 800 nm diameter and 5 nm thick CoFeB single nanodot taken by the conventional VNA-FMR, first and second versions of I-FMR.

# Magnetization Switching Assisted by Spin Wave Dynamics

Takeshi Seki<sup>\*,\*\*,\*\*</sup> and Koki Takanashi<sup>\*,\*\*</sup>

(<sup>\*</sup>IMR, Tohoku Univ., <sup>\*\*</sup>JST-PRESTO, <sup>\*\*</sup>CSRN, Tohoku Univ.)

## 1. Background

Magnetic storage and spintronic devices face a serious challenge in trying to simultaneously achieve ultrahigh-density recording and ultralow power operation. In other words, a nanomagnet with high magnetic anisotropy energy needs to be switched by applying a small external magnetic field. We reported low-field magnetization switching assisted by spin wave dynamics, which is called “spin wave-assisted magnetization switching”.<sup>1)</sup> In previous experiments,<sup>1-4)</sup> we employed the in-plane magnetized exchange-coupled bilayers having hard magnetic  $L1_0$ -FePt and soft magnetic  $Ni_{81}Fe_{19}$  (Permalloy), and observed a large reduction in the switching field ( $H_{sw}$ ) of  $L1_0$ -FePt by exciting the perpendicular standing spin waves (PSSW) in the Permalloy. From a practical point of view, however, this concept is needed to apply the “perpendicularly magnetized system”. In addition, the detailed switching process of spin wave-assisted magnetization switching has not fully been understood yet.

In this talk, we show (i) spin wave-assisted magnetization switching for the exchange-coupled bilayers with perpendicular configuration. In addition to the study on the perpendicular configuration, (ii) the resonant switching behavior of spin wave-assisted magnetization switching is discussed using the in-plane magnetized exchange-coupled bilayers.

## 2. Spin Wave-Assisted Magnetization Switching in Perpendicularly Magnetized System

We investigated the magnetization dynamics of exchange-coupled bilayers with a perpendicularly magnetized  $L1_0$ -FePt and a soft magnetic Permalloy. The  $L1_0$ -FePt (001) layer was epitaxially grown on an MgO (100) single crystal substrate with an Au (001) buffer layer. In order to examine the effect of magnetization dynamics on  $H_{sw}$  of the perpendicularly magnetized  $L1_0$ -FePt, we exploited a nanodot consisting of the  $L1_0$ -FePt layer and the soft magnetic Permalloy layer having a magnetic vortex. The  $L1_0$ -FePt layer exhibited  $H_{sw} = 8.6$  kOe without the application of rf magnetic field ( $H_{rf}$ ). When  $H_{rf} = 200$  Oe with the frequency ( $f$ ) of 11 GHz was applied,  $H_{sw}$  was reduced to 2.8 kOe. By comparing the experimental result with the micromagnetic simulation, we found that the vortex dynamics of azimuthal spin waves in Permalloy effectively triggered the reversed-domain nucleation in  $L1_0$ -FePt at a low magnetic field ( $H$ ). Our results demonstrate that the excitation of spin waves in the magnetic vortex leads to the efficient  $H_{sw}$  reduction even for the exchange-coupled system having the perpendicularly magnetized  $L1_0$ -FePt.<sup>5)</sup>

## 3. Resonant Switching Condition of Spin Wave-Assisted Magnetization Switching

In order to understand the detailed switching condition of spin wave-assisted magnetization switching, we mapped the switching events in the  $H - f$  planes for the exchange-coupled bilayers, where  $L1_0$ -FePt and Permalloy layers showed in-plane magnetization. The magnetization switching was observed only in a limited region following the dispersion relationship of PSSW modes in the Permalloy layer. The experimental result and the numerical simulation indicate that spin wave-assisted magnetization switching is a resonant magnetization process. This is a characteristic behavior and different from the conventional

microwave assisted switching. Our results also suggest that spin wave-assisted magnetization switching has the potential to be applied to selective switching for multilevel magnetic recording media.<sup>6)</sup>

This work was done in collaboration with Dr. W. Zhou (Tohoku Univ.), Dr. H. Imamura, Dr. H. Arai and Dr. T. Yamaji (AIST). It was partially supported by Grant-in-Aid for Scientific Research B (16H04487), PRESTO “Innovative Nano-electronics through Interdisciplinary Collaboration among Material, Device and System Layers” (JPMJPR1422) and Research Grant from TEPCO Memorial Foundation. The device fabrication and the structural characterization were partly performed at Cooperative Research and Development Center for Advanced Materials, IMR, Tohoku University.

#### References

- 1) T. Seki, K. Utsumiya, Y. Nozaki, H. Imamura, and K. Takanashi: *Nature Comm.*, **4**, 1726 (2013).
- 2) T. Seki, K. Hotta, H. Imamura, Y. Nozaki, and K. Takanashi: *Appl. Phys. Lett.* **103**, 122403 (2013).
- 3) T. Seki, W. Zhou, and K. Takanashi: *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 075002 (2016).
- 4) T. Seki, W. Zhou, T. Yamamoto, and K. Takanashi: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **41**, 46-51 (2017).
- 5) W. Zhou, T. Seki, H. Arai, H. Imamura, and K. Takanashi: *Phys. Rev. B* **94**, 220401(R) (2016).
- 6) W. Zhou, T. Yamaji, T. Seki, H. Imamura, and K. Takanashi: *Appl. Phys. Lett.* **110**, 082401 (2017).

# Experimental Study on Microwave-Assisted Magnetization Switching: Circularly Polarized Microwave Field and Varying-Frequency Microwave Field

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

(Corporate Research & Development Center, Toshiba Corporation, Kawasaki, Japan.)

## I. Background

Applying a microwave magnetic field to a magnet induces FMR excitation, and when this excitation is large enough, it can decrease the switching field. This switching scheme is called microwave-assisted magnetization switching (MAS) and attracts attention for its applications in next-generation magnetic recording such as microwave-assisted magnetic recording and three-dimensional magnetic recording. [1-4] The difficulty of generating a microwave field can be solved by employing a spin-torque oscillator (STO). The STO is a nanodevice, and the one with dimensions less than 30 nm has been reported. [5] By applying a dc current to the STO, the STO magnetization oscillates and generates a microwave field (stray field from the oscillating STO magnetization). This microwave field is confined near the STO, which is beneficial for manipulating magnetization in the nanoscale. In this presentation, for the implementation of the magnetic recording based on MAS, we investigate MAS focusing on two topics: circularly polarized microwave field and varying-frequency microwave field.

## II Microwave-assisted magnetization switching in a circularly polarized microwave field

In order to understand MAS, the polarization of the microwave field, e.g. linear polarization (LP) where the field direction alternates in one direction and circular polarization (CP) where it rotates, must be considered. This is because FMR is a precessional motion of the magnetization and is most efficiently induced by a CP microwave field that rotates in the same rotation direction as the natural precession of the magnetization. The microwave field polarization is also important in applications using an STO because the polarization of the microwave field from the STO strongly depends on the oscillation trajectory of the STO magnetization. Here, we investigate MAS behavior of a Co/Pt multilayer perpendicular magnetic nanodot with a diameter of 50 nm in a microwave field with various polarizations. Figure 1 shows the measurement setup. We use a microwave field generated by introducing a microwave signal to the coplanar waveguide (CPW) because the frequency and the amplitude of the microwave field can be easily controlled. The sample has two CPWs crossing at a right angle above the nanomagnet. By introducing microwave signals with a tunable delay to the CPWs, microwave fields with a linear, elliptical, and circular polarization can be generated. Switching of the nanomagnet is detected by the anomalous Hall effect.

Figure 2 (a) shows the dependence of the switching field on the delay phase between the microwave signals introduced to the two CPWs. When the delay phase is around  $90^\circ$ , the CPWs generate a CP microwave field rotating clockwise in the  $x$ - $y$  plane. This microwave field reduces the switching field only when the nanomagnet reverses from the  $-z$  to  $+z$  direction because the rotation directions of the microwave field and the magnetization precession coincide. At around  $270^\circ$ , the microwave field rotates in the opposite direction and MAS occurs only when the nanomagnet reverses from the  $+z$  to  $-z$  direction. Next, we fix the phase delay to  $90^\circ$  to examine MAS in a CP microwave field. Figure 2(b) shows the dependence of the switching field on the microwave field frequency. The switching field decreases almost linearly with increasing the frequency and suddenly increases to the value without MAS. This kind of switching behavior is typical of MAS. [3] A large switching field decrease from 7.1 kOe to 1.5 kOe is demonstrated. In comparison with MAS in an LP microwave field, a CP microwave field induces the same MAS effect with half the microwave field amplitude (data not shown), thereby showing that a CP microwave field is efficient in MAS.

Figure 2 (a) shows the dependence of the switching field on the delay phase between the microwave signals introduced to the two CPWs. When the delay phase is around  $90^\circ$ , the CPWs generate a CP microwave field rotating clockwise in the  $x$ - $y$  plane. This microwave field reduces the switching field only when the nanomagnet reverses from the  $-z$  to  $+z$  direction because the rotation directions of the microwave field and the magnetization precession coincide. At around  $270^\circ$ , the microwave field rotates in the opposite direction and MAS occurs only when the nanomagnet reverses from the  $+z$  to  $-z$  direction. Next, we fix the phase delay to  $90^\circ$  to examine MAS in a CP microwave field. Figure 2(b) shows the dependence of the switching field on the microwave field frequency. The switching field decreases almost linearly with increasing the frequency and suddenly increases to the value without MAS. This kind of switching behavior is typical of MAS. [3] A large switching field decrease from 7.1 kOe to 1.5 kOe is demonstrated. In comparison with MAS in an LP microwave field, a CP microwave field induces the same MAS effect with half the microwave field amplitude (data not shown), thereby showing that a CP microwave field is efficient in MAS.

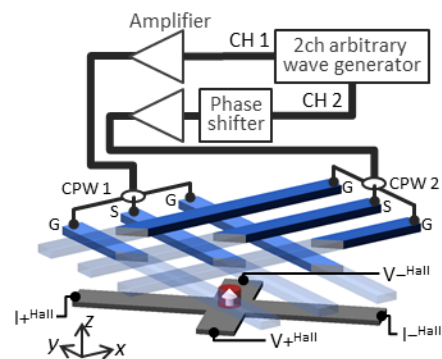


Fig. 1. Experimental setup.

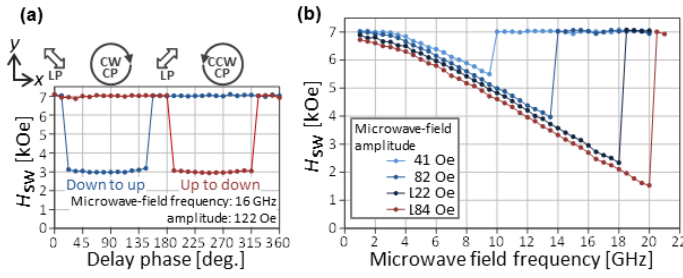


Fig. 2. (a) Switching field versus delay phase of the signal in CPW 1 with respect to that in CPW 2. (b) Switching field versus microwave field frequency in the CP microwave fields from CPWs 1 and 2.

### III Microwave-assisted magnetization switching in a varying-frequency microwave field

The FMR frequency of a magnet is not constant but varies with the magnetization trajectory because of nonlinearity. When the magnet has a perpendicular anisotropy, the FMR frequency decreases as the FMR excitation evolves. This suggests that applying a microwave field with time-varying (decreasing) frequency induces larger FMR excitation because the frequency follows the varying FMR frequency, which is expected to enhance MAS effect. Recently, the use of varying-frequency microwave field was suggested by a micromagnetic simulation study, which reported that, in a certain configuration, an STO spontaneously changes its frequency to match the FMR frequency of a magnet because of the mutual stray fields. [6] Here, we investigate MAS in a varying-frequency microwave field. The experimental setup is similar to that shown in Fig. 1 except that only one CPW is used to generate an LP microwave field and that the anisotropy of the nanomagnet is smaller.

Figures 3(a) shows the dependence of the switching field on the microwave field frequency for constant-frequency MAS (CF-MAS). Switching behavior typical to MAS is obtained. Figures 3(b) shows the result for varying-frequency MAS (VF-MAS). The horizontal axis is the start frequency of the microwave field, and the frequency gradually changes to 0.02 GHz over a 10 ns time period. VF-MAS differs from CF-MAS in the following two aspects. (1) VF-MAS can achieve smaller switching field with the same microwave field amplitude, thereby showing that a varying-frequency microwave field enhances MAS effect. (2) After the abrupt increase, switching field becomes almost same as the minimum switching field of CF-MAS, which differs from CF-MAS where switching field increases to the value without MAS. The latter can be explained as follows. As the start frequency increases, the frequency changes at a higher rate, and when the magnetization excitation cannot follow the frequency change, the enhancement of MAS by a varying-frequency microwave field no longer occurs. When the enhancement disappears, switching occurs in the same manner as CF-MAS when the frequency decreases and matches the frequency at which CF-MAS occurs. Therefore, switching field becomes almost same as the minimum switching field of CF-MAS.

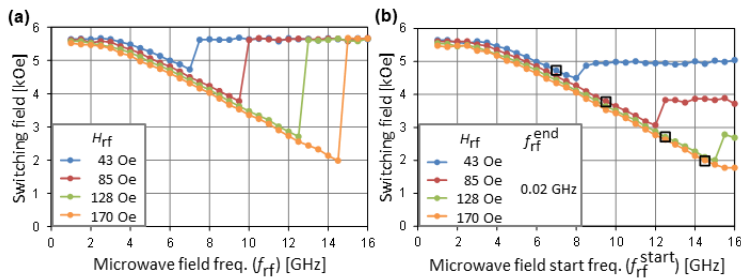


Fig. 3. (a) Switching field versus microwave field frequency for CF-MAS. (b) Switching field versus microwave field start frequency for VF-MAS. Open squares are the maximum microwave field frequency at which CF-MAS occurs and corresponding switching field.

This work is supported by Strategic Promotion of Innovative Research and Development from Japan Science and Technology Agency, JST.

### Reference

- [1] C. Thirion, W. Wernsdorfer, and D. Maily, *Nature Mater.* **2**, 524 (2003).
- [2] J.-G. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 125 (2008).
- [3] S. Okamoto, N. Kikuchi, M. Furuta, O. Kitakami, and T. Shimatsu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48**, 353001 (2015).
- [4] H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, T. Kanao, K. Mizushima, and R. Sato, *Phys. Rev. Appl.* **5**, 014003 (2016).
- [5] S. Bosu, H. Sepeshri-Amin, Y. Sakuraba, S. Kasai, M. Hayashi, and K. Hono, *Appl. Phys. Lett.* **10**, 142403 (2017).
- [6] K. Kudo, H. Suto, T. Nagasawa, K. Mizushima, and R. Sato, *Appl. Phys. Express* **8**, 103001 (2015).

# Microwave assisted magnetic recording on ECC and AFC media

S. J. Greaves<sup>1</sup>, Y. Kanai<sup>2</sup> and H. Muraoka<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University, Sendai, Japan

<sup>2</sup> IEE, Niigata Institute of Technology, Kashiwazaki, Japan

## Introduction

Microwave assisted magnetic recording (MAMR) is a possible technology for use in future hard disk drives [1]. The simultaneous application of a DC field from a write head and a high frequency (HF) field from a spin torque oscillator (STO) can locally reduce the switching field of media in the vicinity of the STO, leading to a higher effective head field gradient and improved SNR. In this work we present results of simulations of two types of media: exchange coupled composite (ECC) and antiferromagnetically coupled (AFC) and consider their behaviour in a MAMR system.

## ECC media

The use of ECC media in a MAMR system offers advantages such as a reduced resonance frequency and enhanced MAMR effect. Fig. 1 shows the switching fields of the hard layers of 4 nm hard +  $x$  nm soft ECC grains subjected to a 500 Oe HF vector field rotating in the plane perpendicular to the easy axis. Without the HF field the switching field was about -16.5 kOe for all grains. With the HF field the switching field decreased rapidly once the soft layer thickness exceeded 4 nm. The switching field changed sign for soft layer thicknesses between 6 nm and 8 nm, i.e. the hard layer magnetisation switched before the applied field reached zero, as shown by the inset hysteresis loop for a grain with a 7 nm soft layer.

The same effect can be realised in a recording medium. A static planar write head with a STO was used to write single bit footprints on AC-erased ECC media. The average change of magnetisation is shown in fig. 2 as a function of down-track position, together with the vertical component of the head field at each point. It can be seen that the magnetisation switched in the opposite direction to the head field, with peaks under the edges of the STO (position indicated by the darker shaded region).

When the head field was zero no magnetisation switching was observed, but [2] describes conditions in which the HF field alone can switch the magnetisation direction. Tuning the STO and medium properties may enable this effect to be realised.

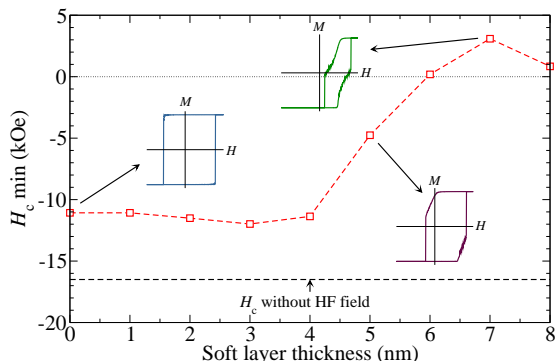


Fig. 1: Minimum switching field of hard layer on descending part of hysteresis loop vs. soft layer thickness. 500 Oe in-plane HF field.

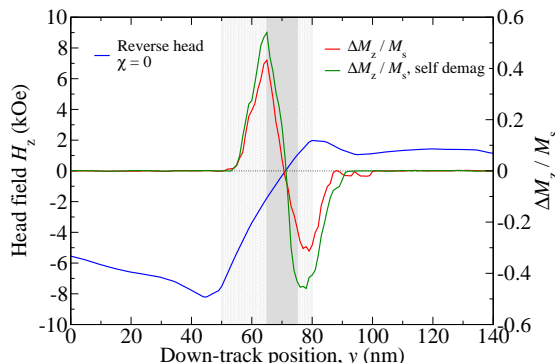


Fig. 2: Change of medium magnetisation,  $\Delta M$ , as a function of down-track position for footprints written by a planar head and HF field from a STO.

## AFC media

Another advantage of MAMR is the possibility to realise multiple layer recording [3]. Selective recording of each layer in a medium with two or more recording layers is possible if the layers have different resonance frequencies. However, the spacing between the recording layers cannot be large as the HF field and head field rapidly decrease in strength with distance from the ABS. As a result there can be strong magnetostatic interactions between the recording layers. To mitigate these interactions the use of AFC media has been proposed [4].

Fig. 3 shows hysteresis loops of single layer (SL) and AFC media. The thickness of both media was 11 nm and the AFC medium had the structure 4 nm hard / 1 nm Ru / 6 nm soft. The saturation magnetisation of the hard layer was  $600 \text{ emu/cm}^3$  and that of the soft layer was  $400 \text{ emu/cm}^3$ . In zero field antiferromagnetic coupling between the hard and soft layers of  $-1 \text{ erg/cm}^2$  led to an anti-parallel magnetisation state and almost zero remanence. The hard layer of the AFC medium had the same switching field, 20 kOe, as the SL medium. In contrast to ECC media, switching of the soft layer in AFC media did not initiate reversal of the hard layer due to the large difference in switching fields between the two layers.

Tracks were written on SL and AFC media at various linear densities. At low densities the SNR was similar or slightly higher for the SL media. However, as the linear density increased the SNR of the SL media decreased whilst the AFC media SNR was almost unchanged. Fig. 4 shows averaged readback signals of ten tracks written on SL and AFC media at 1693 kfc/i (15 nm bit length). Although the signal from the AFC media was lower due to the anti-parallel magnetisation, the noise was much reduced, as evidenced by the smaller fluctuations in peak height and much lower transition jitter. Other properties of AFC media will be discussed in the talk.

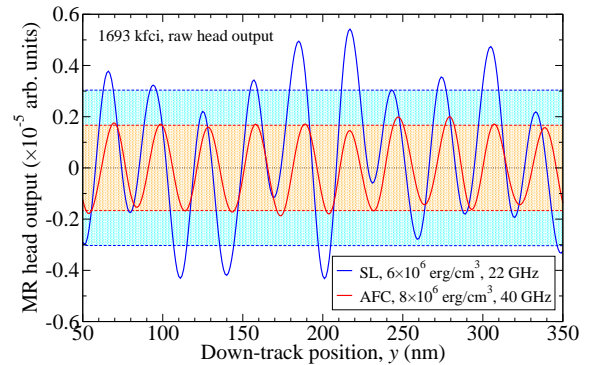
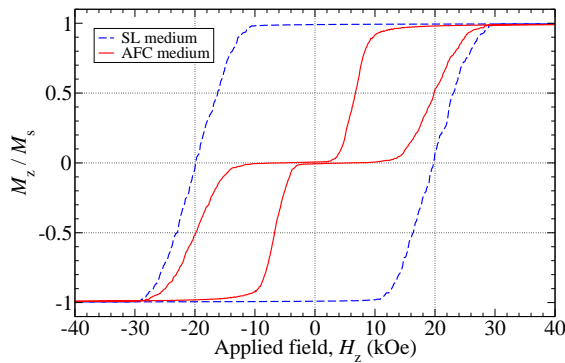


Fig. 3: Hysteresis loops of single layer (SL) and AFC media.  $K_u \text{ hard / SL} = 8 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ .

Fig. 4: MR head output signal for 1693 kfc/i tracks written on SL and AFC media.

## References

- [1] J. G. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, pp. 125–131, Jan. 2008.
- [2] T. Taniguchi *Appl. Phys. Expr.*, vol. 8, pp. 083004–1–4, 2015.
- [3] S. J. Greaves, Y. Kanai, and H. Muraoka *IEEE Trans. Magn.*, vol. 53, pp. 3000510–1–10, Feb. 2017.
- [4] H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, K. Mizushima, and R. Sato *Nanotechnology*, vol. 25, pp. 245501–1–8, 2014.

Perpendicular magnetic tunnel junctions with the p-SAF structure having strong interlayer exchange coupling by the iridium spacer layer and their spin-transfer-torque switching properties

A. Sugihara, K. Yakushiji, A. Fukushima, H. Kubota, and S. Yuasa  
(National Institute of Advanced Science and Technology)

A perpendicularly magnetized magnetic tunnel junction (p-MTJ) is promising for a memory cell of spin-transfer-torque switching magnetic random access memory (STT-MRAM). For steady read and write operation of the cell, perpendicularly magnetized synthetic antiferromagnetic (p-SAF) coupling in the reference layer is one of the key technologies. So far, p-SAF with a Ru spacer layer has been intensively developed because of the high AF exchange coupling field ( $H_{\text{ex}}$ ). Although there have been other candidates such as Ir and Rh besides Ru, they have not been extensively investigated yet. In this study, we systematically investigated magnetic properties of the p-SAF films with an Ir and Rh spacer layer. We also evaluated STT-switching properties in the p-MTJs with an Ir spacer layer.

The p-SAF films whose structure is Si-O substrate / Ta(50) / Ru(60) / Pt(20) / [Pt(1.6)/Co(2.4)]<sub>n=6</sub> / Spacer(*t*) / [Pt(1.6)/Co(2.4)]<sub>n=6</sub> / Pt(20) / capping layer (thicknesses are in Å) were fabricated, where *n* is repetition number. Figure 1(a) shows the antiferromagnetic exchange coupling energy ( $J_{\text{ex}}$ ) for Ir, Ru, and Rh spacer layers as the functions of *t* and the *M-H* curve for the Ir at *t* = 4.5 in the inset. The maximum  $H_{\text{ex}}$  and the maximum  $J_{\text{ex}}$  values achieved 12 kOe and 2.6 erg/cm<sup>2</sup>, respectively, being over 20% higher than that for the Ru.<sup>1)</sup> Furthermore, the width of the first peak in fig.1 and annealing tolerance (not shown) for Ir spacer layer is greater than those for Ru, suggesting that Ir has very high potential for manufacturability of STT-MRAM because they give wider process window than that for Ru.

We also fabricated p-MTJ stacks with the Ir spacer layer and microfabricated them into nano-pillars (18 - 60 nm in diameter ( $\phi$ )) to evaluate their STT-switching properties. The TMR ratio, RA-product, and  $H_{\text{ex}}$  were observed to be 133%, 5.2  $\Omega\mu\text{m}^2$ , and over 8 kOe, respectively. Figure 1 (b) and (c) show STT switching properties of the nano-pillar whose size is 25 nm $\phi$ . Average switching current ( $I_{\text{c0}}$ ) and thermal stability factor ( $\Delta$ ) were estimated to be 43  $\mu\text{A}$  and 85 by fitting from theory.<sup>2)</sup> The switching efficiency which is calculated from the  $I_{\text{c0}}$  and the  $\Delta$  achieved high value of about 2.<sup>3)</sup> These results indicate that the Ir has more suitable properties and no disadvantage compared with Ru for the spacer layer in p-SAF structure for STT-MRAM.

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

## References

- 1) K. Yakushiji, H. Kubota, A. Fukushima, and S. Yuasa, Appl. Phys. Express **8**, 083003 (2015).
- 2) T. Taniguchi, M. Shibata, M. Marthaler, Y. Utsumi, and H. Imamura, Appl. Phys. Express **5**, 063009 (2012).
- 3) K. Yakushiji, A. Sugihara, A. Fukushima, H. Kubota, and S. Yuasa, Appl. Phys. Lett **110**, 092406 (2017).

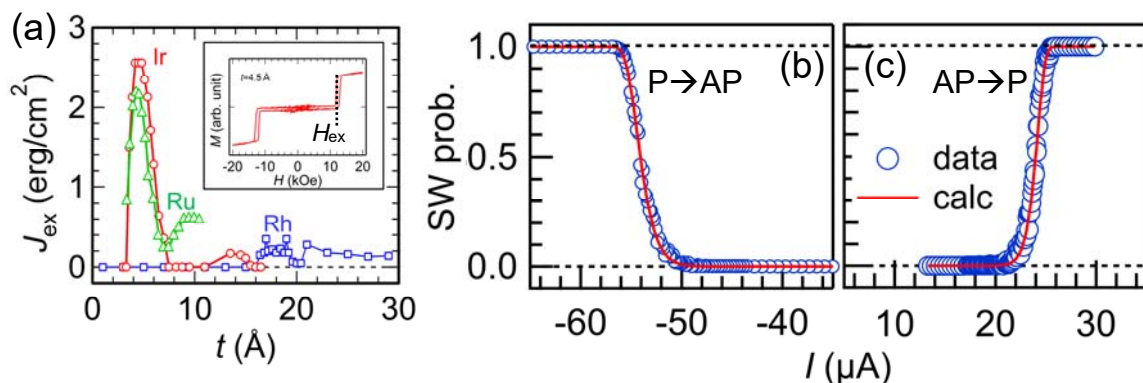


Fig.1 (a) Antiferromagnetic exchange coupling energy ( $J_{\text{ex}}$ ) for functions of spacer layer thickness (*t*) and magnetization (*M-H*) curve for the p-SAF film with a 4.5 Å-thick Ir spacer layer (inset). The STT switching properties of the nano-pillar with an Ir spacer layer for (b) the parallel to antiparallel (P→AP) and (c) the antiparallel to parallel (AP→P) configuration.



## 半導体バリア $\text{CuInSe}_2$ , $\text{CuGaSe}_2$ を持つ磁気トンネル接合の理論解析

増田啓介<sup>1</sup>, 三浦良雄<sup>1,2</sup>  
(物材機構<sup>1</sup>, 京都工繊大<sup>2</sup>)

Theoretical analyses of magnetic tunneling junctions with semiconductor barriers  $\text{CuInSe}_2$  and  $\text{CuGaSe}_2$   
Keisuke Masuda<sup>1</sup> and Yoshio Miura<sup>1,2</sup>  
(NIMS<sup>1</sup>, KIT<sup>2</sup>)

超高記録密度ハードディスクドライブの読み取りヘッドや大容量磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) といった磁気トンネル接合を利用した革新的デバイスの実現のためには、従来重要視されてきた高い磁気抵抗比 (MR 比) に加え、 $0.1\sim 1\ \Omega\mu\text{m}^2$  程度の低い面積抵抗 (RA) が不可欠である。葛西らは近年、化合物半導体  $\text{CuIn}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{Se}_2$  (CIGS) をバリア層に持つ MTJ の作製に成功し、この系で高い MR 比 (低温で $\sim 100\%$ , 室温で $\sim 40\%$ ) と低い RA ( $0.3\sim 3\ \Omega\mu\text{m}^2$ ) が同時に得られることを示した [1]。本系に関する理論解析はこの時点では行われておらず、高い MR 比の起源をはじめ、理論的に明らかにされるべき課題が数多く残されていた。

このような経緯を受け、本研究で我々は CIGS と同じカルコパイライト構造を有する半導体  $\text{CuInSe}_2$  (CIS) と  $\text{CuGaSe}_2$  (CGS) を取り上げ、これらをバリア層に持つ磁気トンネル接合 (Fe/CIS/Fe および Fe/CGS/Fe) のスピン依存伝導特性について第一原理計算に基づいた解析を行った [2]。本研究では MR 比が半導体ギャップの大きさとどのような相関を持つかという点も重要なテーマである。そこでバンドギャップを系統的に変化させることが可能な Cu の 3d 状態におけるオンサイト Coulomb 相互作用  $U$  を考慮に入れ計算を行った。図 1(a) は Fe/CIS/Fe MTJ ( $U=5\text{eV}$ ) の平行磁化状態における Majority-spin 電子透過率の  $k_{\parallel}$  依存性である。良く知られた Fe/MgO/Fe の結果と同様に鋭いピーク構造が  $k_{\parallel}=(0,0)$  に見られ、この系でコヒーレントトンネル伝導現象が発現していることがわかる。同様の振る舞いを Fe/CGS/Fe おいても確認することができた。図 1(b) は CIS, CGS, MgO それぞれをバリア層に持つ MTJ の RA と MR 比の計算結果をまとめたものである。Fe/CIS(CG)/Fe は 100% 前後の高い MR 比と  $1\ \Omega\mu\text{m}^2$  以下の低い RA を有することがわかった。このような RA の値はバリア厚が半分未満の Fe/MgO/Fe よりも十分に低いものである。また我々は、 $U$  を大きくする (=半導体ギャップを大きくする) とともに Fe/CIS(CG)/Fe の MR 比が大きくなることも確認することができた。

なお、本研究の一部は革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の援助を受け行われたものである。

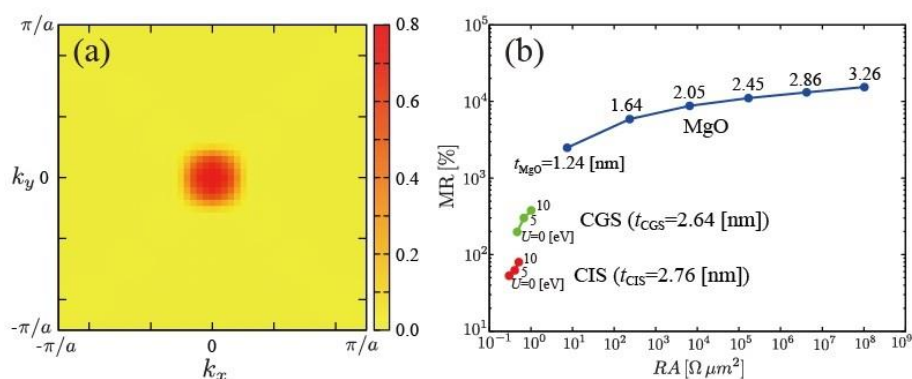


図 1. (a) Fe/CIS/Fe MTJ ( $U=5\text{eV}$ ) の平行磁化状態における Majority-spin 電子透過率の  $k_{\parallel}$  依存性. (b) Fe/CIS/Fe, Fe/CGS/Fe, Fe/MgO/Fe MTJ における RA と MR 比. バリア厚 ( $t_{\text{CIS}}$ ,  $t_{\text{CGS}}$ ,  $t_{\text{MgO}}$ ) はバリアに最も近い左右の Fe 原子層の距離で測ったものである。

- 1) S. Kasai *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109**, 032409 (2016).
- 2) K. Masuda and Y. Miura, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 020306 (2017).

# 固相エピタキシー法により低温形成された全単結晶 Fe/GaO<sub>x</sub>/Fe 磁気トンネル接合における磁気輸送特性

土公尚樹<sup>\*,\*\*</sup>、N. Sai Krishna<sup>\*</sup>、松尾紀宏<sup>\*,\*\*</sup>、齋藤秀和<sup>\*</sup>、湯浅新治<sup>\*</sup>  
(\*産業技術総合研究所 スピントロニクス研究センター、\*\*千葉工業大学)

Magneto-transport properties of fully epitaxial Fe/GaO<sub>x</sub>/Fe magnetic tunnel junctions fabricated by  
solid-phase epitaxy at low temperatures

N. Doko<sup>\*,\*\*</sup>, N. Matsuo<sup>\*,\*\*</sup>, N. Krishna<sup>\*</sup>, H. Saito<sup>\*</sup>, and S. Yuasa<sup>\*</sup>  
(\*AIST Spintronics Research Center, \*\*Chiba Institute of Technology)

## はじめに

最近、半導体系材料を絶縁障壁層とした全単結晶磁気トンネル接合 (MTJ) において、電圧印加によるトンネル電流変調[1]や 1Ωμm<sup>2</sup>以下の低抵抗接合[2]等の新機能・特性が報告され注目されている。我々はワイドギャップ半導体酸化ガリウム(GaO<sub>x</sub>)を障壁層とした全単結晶 Fe/GaO<sub>x</sub>/Fe MTJ を作製し、室温で 92%に達する磁気抵抗変化率 (MR 比)を報告した[3]。単結晶 GaO<sub>x</sub>障壁層は、成膜後のアモルファス GaO<sub>x</sub>膜をその場アニールすることにより得られるが、その際に約 500°C の高温が必要であることから実用素子への応用は困難な状況にある。本研究では、アニール条件等を系統的に変化させた上記 MTJ を作製し、結晶構造および磁気輸送特性を調べた。

## 実験方法

膜試料は分子線エピタキシー法により作製された。MTJ 構造は Au(20 nm) / Co(10 nm) / Fe(5 nm) / GaO<sub>x</sub>(2 nm) / MgO(1 nm) / Fe(30 nm) / MgO(001) 基板である。上部 Fe 電極成膜後に真空中にてその場アニールを 250°C で行った。比較のため、上部 Fe 成膜前に GaO<sub>x</sub>層を酸素雰囲気中でその場アニール (250°C ~ 500°C) した試料も作製した。

## 実験結果

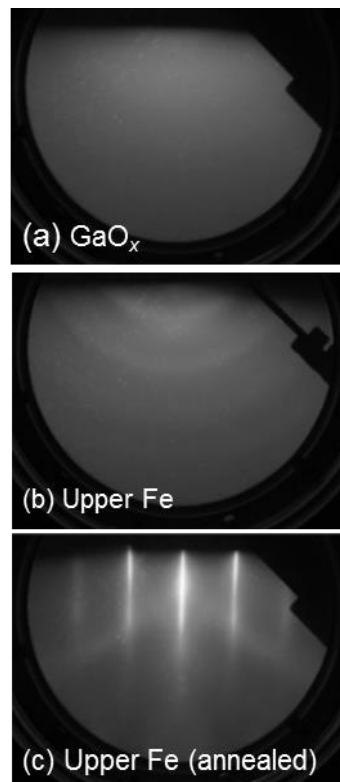
Figure 1 に各層の反射高速電子線回折 (RHEED) 像を示す。成膜後の GaO<sub>x</sub>膜の RHEED 像はハロー状であり (Fig. 1a)、同膜がアモルファス状態であることを示した。同アモルファス GaO<sub>x</sub>層上に成長した上部 Fe 電極膜はブロードなリング状パターンを示し (Fig. 1b)、多結晶であることが暗示された。注目すべきことに、多結晶 Fe の RHEED 像は 250°C でのアニールにより単結晶を示すストリーク状 (fig.1c) となった。断面電子顕微鏡観察により、同膜の GaO<sub>x</sub>層は単結晶であることが確認された。同膜を用いた MTJ の MR 比は室温で 102% であり、GaO<sub>x</sub>層のその場アニールを含むプロセスにより作製した MTJ と同程度の値が得られた。

## 謝辞

本研究は革新的研究開発プログラム (ImPACT) および科研費 (No. 26103003) の支援を受けた。

## 参考文献

- 1) T. Kanaki, H. Asahara, S. Ohya, and M. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **107**, 242401 (2015).
- 2) S. Kasai, Y. K. Takahashi, P. -H. Cheng, Ikhtiar, T. Ohkubo, K. Kondou, Y. Otani, S. Mitani, and K. Hono, Appl. Phys. Lett. **109**, 032409 (2016).
- 3) N. Matsuo, N. Doko, T. Takada, H. Saito, and S. Yuasa, Phys. Rev. Applied **6**, 034011 (2016).



Figs. 1 RHEED images of the (a) GaO<sub>x</sub> barrier layer, (b) Fe upper electrode, and (c) same layer after an *in situ* annealing at 250°C, respectively.

## MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> スピネル系バリアを用いた 低抵抗エピタキシャル強磁性トンネル接合

○介川裕章<sup>1</sup>, 加藤侑志<sup>2</sup>, M. Belmoubarik<sup>1</sup>, P.-H. Cheng<sup>1,3</sup>, 大坊忠臣<sup>2</sup>, 下村尚治<sup>2</sup>, 上口裕三<sup>2</sup>,  
伊藤順一<sup>2</sup>, 與田博明<sup>2</sup>, 大久保 忠勝<sup>1</sup>, 三谷誠司<sup>1,3</sup>, 宝野和博<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup> 物材機構, <sup>2</sup> 東芝, <sup>3</sup> 筑波大)

Low resistance epitaxial magnetic tunnel junctions with an MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> spinel based barrier

○H. Sukegawa,<sup>1</sup> Y. Kato,<sup>2</sup> M. Belmoubarik,<sup>1</sup> P.-H. Cheng,<sup>1,3</sup> T. Daibou,<sup>2</sup> N. Shimomura,<sup>2</sup> Y. Kamiguchi,<sup>2</sup>  
J. Ito,<sup>2</sup> H. Yoda,<sup>2</sup> T. Ohkubo,<sup>1</sup> S. Mitani,<sup>1,3</sup> K. Hono<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Toshiba, <sup>3</sup>Univ. Tsukuba)

### はじめに

スピネル系酸化物 (MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) をバリア層として用いた強磁性トンネル接合 (MTJ) では 300% を超える高い室温トンネル磁気抵抗 (TMR) 比が実現されている<sup>1)</sup>。また、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> は CoFe や Co 基ホイスラー合金などとの格子整合性が良く、良好な強磁性/バリア界面が得られることから TMR 比のバイアス電圧依存性の改善効果も期待できる。一方、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の持つバンドギャップ ( $E_g$ ) は MgO とほぼ同等の 7~8 eV 程度の値を持つことから、MgO バリア MTJ を超える低抵抗化の実現は困難であった。本研究では、 $E_g$  がより小さいスピネル系酸化物をバリア層として導入し、バリア高さの低減による低抵抗化を目指した。特に、逆スピネル構造を安定構造として有するガリウム系スピネル MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ( $E_g \sim 4.9$  eV) に着目し、コヒーレントトンネル効果による高い TMR 比の実現に加え、バリア高さ低減の可能性を探った<sup>2)</sup>。

### 実験方法

MgO(001)単結晶上に Cr を下地として、Fe/MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Fe/IrMn/Ru 構造の面内磁化型 MTJ 膜を作製した。MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> バリアは、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> バリア作製<sup>3)</sup>と同様に、焼結 MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ターゲットを高周波スパッタすることにより形成した。結晶性と平坦性向上のために各層を室温成膜した後ポスト加熱処理を行った。直流 4 端子法による伝導特性評価と断面 STEM 観察による微細構造解析を行った。

### 実験結果<sup>2)</sup>

Fig. 1 には作製した Fe/MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Fe 構造の断面 STEM 像を示しており、エピタキシャル(001)成長が確認できる。また Fe 層と面内格子整合した極めて平坦な界面が実現されていることもわかる。

TMR 比は室温 121% (4 K : 196%) と比較的高い値が得られ、これは MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> バリアを介したコヒーレントトンネル効果による寄与と考えられる。同一バリア厚試料の電流密度-バイアス電圧の両対数プロットの比較 (Fig. 2) からわかるように、MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> バリアは MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> バリア<sup>3)</sup>に比べ非常に抵抗が低く (約 1/50)、また電流密度が急上昇するバイアス電圧 (矢印) は MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> においてより小さい。これらのことは MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> が低バリア高さを持つことを示しており、高 TMR 比と低抵抗を備えた MTJ バリアとして有望である。本研究の一部は、革新的研究開発推進プログラム

(ImPACT) により、科学技術振興機構を通して委託されて行った。

### 参考文献

- 1) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Express **9**, 053004 (2016).
- 2) H. Sukegawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 122404 (2017).
- 3) M. Belmoubarik *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 132404 (2016).

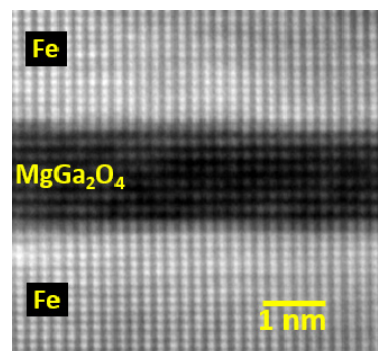


Fig. 1. High resolution STEM image of an Fe/MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/Fe MTJ.

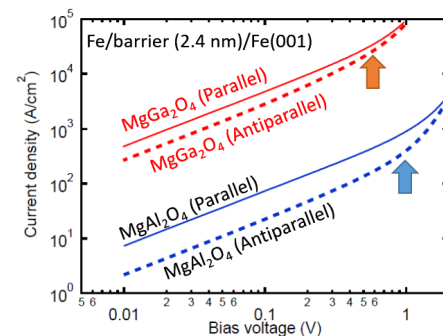


Fig. 2. Current-voltage characteristics for MTJs with MgGa<sub>2</sub>O<sub>4</sub> and MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

## Fe/AlO<sub>x</sub>/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>における逆トンネル磁気キャパシタンス効果

海住英生、長浜太郎\*、佐々木 駿\*、島田敏宏\*、北上 修\*\*、  
三澤貴浩、藤岡正弥、西井準治、Gang Xiao\*\*\*  
(北大電子研、\*北大工、\*\*東北大多元研、\*\*\*ブラウン大学)

Inverse Tunnel Magnetocapacitance Effect in Fe/AlO<sub>x</sub>/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

H. Kaiju, T. Nagahama\*, S. Sasaki\*, T. Shimada\*, O. Kitakami\*\*,  
T. Misawa, M. Fujioka, J. Nishii and G. Xiao\*\*\*

(Hokkaido Univ. RIES, \*Hokkaido Univ. Eng., \*\*Tohoku Univ. IMRAM, \*\*\*Brown Univ. Rhs.)

### はじめに

近年、強磁性トンネル接合 (MTJ) におけるトンネル磁気キャパシタンス (TMC) 効果は、交流スピンドYNAMICS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[1-4]。通常の TMC 効果では、両強磁性層の磁化が平行であるときキャパシタンス  $C_p$  が大きく、反平行であるとき  $C_{AP}$  が小さくなる。本研究では Fe/AlO<sub>x</sub>/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> MTJ においてその逆の現象 ( $C_p < C_{AP}$ ) である逆トンネル磁気キャパシタンス (iTMC) 効果を発見したので報告する[5]。

### 実験方法

分子線エピタキシー法(最高到達真空度:  $10^{-8}$  Pa) [6]により MgO(110) 基板に MgO(20 nm)/NiO(5 nm)/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(60 nm)/AlO<sub>x</sub>(2-4 nm)/Fe(10 nm)/Au(30 nm)から構成される MTJ を作製した。微細加工にはフォトリソグラフィと Ar イオンミリング法を用いた。接合面積は  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  とした。TMC 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 20-1MHz、交流振幅電圧は 35 mV<sub>rms</sub>、最大印加磁場は 1.4 kOe とした。

### 実験結果

図 1 に示すように Fe/AlO<sub>x</sub>/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> MTJ において明瞭な iTMC 効果が観測された。すなわち、磁化平行状態のとき  $C_p$  が小さく、反平行状態のとき  $C_{AP}$  が大きくなる。このときの変化率を iTMC 比 ( $= (C_{AP} - C_p) / C_p$ ) と定義する。図 2 に iTMC 比の周波数特性を示す。iTMC 比は最大で 11.4% を示した。また、この周波数特性は Zhang モデルと放物線バリア近似 (PBA) を取り入れた Debye-Fröhlich モデル、及びスピン依存ドリフト拡散 (SDD) モデル[4]を用いた理論計算により定量的に説明できることがわかった。さらに、本計算結果によると 65%と-42%のスピン分極率を有する MTJ では 150%を超える iTMC 比が得られることが明らかになった。講演では iTMC 比の電圧依存性を含めた詳細な実験・計算結果を報告する。

### 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] H. Kaiju *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **107**, 132405 (2015). [4] T.-H. Lee *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015).  
[5] H. Kaiju *et al.*: *Sci. Rep.* **7**, 2682 (2017). [6] T. Nagahama *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **105**, 102410 (2014).

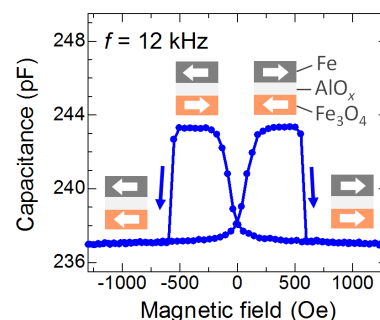


図 1: Fe/AlO<sub>x</sub>/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> における iTMC 効果

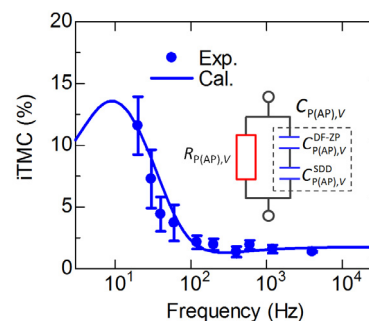


図 2: iTMC 比の周波数特性

## Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si/MgO/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> トンネル接合における磁気抵抗効果の下地層材料依存性

○孫 銘嶺<sup>1,2</sup>、窪田 崇秀<sup>2,3</sup>、高橋 茂樹<sup>4</sup>、川戸 良昭<sup>4</sup>、園部 義明<sup>4</sup>、高梨 弘毅<sup>2,3</sup>

(1 東北大学大学院工学研究科 2 東北大学金属材料研究所

3 東北大学スピントロニクス学術連携教育センター 4 サムスン日本研究所)

Buffer layer dependent magnetoresistance effect in Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si/MgO/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> magnetic tunnel junctions

○Mingling Sun<sup>1,2</sup>, Takahide Kubota<sup>2,3</sup>, Shigeki Takahashi<sup>4</sup>, Yoshiaki Kawato<sup>4</sup>,

Yoshiaki Sonobe<sup>4</sup> and Koki Takanashi<sup>2,3</sup>

(1 Grad. School of Eng., Tohoku Univ., 2 IMR, Tohoku Univ.,

3 CSRN, Tohoku Univ. 4 Samsung R&D Institute Japan)

### 緒言

次世代不揮発性メモリの有力な候補として、スピン注入書込型の磁気ランダムアクセスメモリ (STT-MRAM) が注目を浴びている。特にギガビットクラスの記憶容量を実現するため、高いトンネル磁気抵抗 (TMR) 比を備えた垂直磁化型トンネル接合 (MTJs) が必須となる<sup>1)</sup>。Co 基のフルホイスラー合金はスピン偏極率が 1 であるハーフメタル材料とされており、高 TMR 比実現に向けて有望な材料である。一方、その結晶構造は高対称な立方晶系であり結晶磁気異方性が小さいことから、垂直磁化ホイスラー合金実現のためには極薄膜の作製と界面磁気異方性の付与が不可欠である。我々のグループでは、Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si (CFMS) フルホイスラー合金に着目し、垂直磁気異方性の下地層材料(Pd, Ru 又は Cr)系統的に調べてきた<sup>2)</sup>。垂直磁化膜作製のために極薄膜化した CFMS 膜に於いては、下地材料等の拡散の影響でスピン分極率が低下することが懸念される。そこで本研究では、CFMS/MgO/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> (CoFe) MTJs における TMR 比の熱処理温度及び CFMS 層膜厚依存性を異なる下地層を用いた試料について調査することを目的とした。

### 実験方法

超高真空多元マグネトロンスパッタ装置を用いて、MgO(100)単結晶基板上に“下地層”/CFMS ( $t_{\text{CFMS}}$ )/MgO (2 nm)/CoFe (5 nm)/Ir<sub>22</sub>Mn<sub>78</sub> (10 nm)/保護層、 $t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}, 10 \text{ nm}, 5 \text{ nm}, 3 \text{ nm}, 0.8 \text{ nm}$  とする積層試料を作製した。“下地層”は Pd, Ru 又は Cr とし、そのうち Pd 及び Ru 層は平坦性確保のために予め Cr 層を積層し、その上に成膜した。試料はフォトリソグラフィ、アルゴンイオンミリングとリフトオフ法で素子に微細加工した。素子加工後に真空中熱処理炉で 200°C から 500°C まで 50°C 刻みで熱処理を行った。TMR 効果の測定は室温で 4 端子プローバーを用いて行った。なお、測定時の印加磁場は全て面内方向である。

### 実験結果

$t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}$ 、熱処理温度 400°C の条件では、下地層材料に依らず全ての試料で約 120% の TMR 比が得られた。 $t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}$  における TMR 比が減少し始める熱処理温度について、Ru 及び Cr 下地層は 500°C であったのに対し、Pd 下地層では 450°C で TMR 比が減少し始めた。一方、 $t_{\text{CFMS}} = 5 \text{ nm}$  における熱処理温度依存性は、Ru 及び Cr 下地層を用いた試料は  $t_{\text{CFMS}} = 30 \text{ nm}$  の場合と同様であったが、Pd 下地層の場合には熱処理温度に依らず TMR 比は 1% 以下となった。さらに、 $t_{\text{CFMS}} = 0.8 \text{ nm}$  の試料では、Cr 下地層を用いる試料のみ 250°C での熱処理で最大 22% の TMR 比を示す一方で、Pd 及び Ru 下地層を用いた試料は 5% 未満の TMR 比を示した。以上のような、TMR 比の熱処理並びに  $t_{\text{CFMS}}$  依存性は下地材料により異なる相互拡散の度合いによるものと考えられる。

### 参考文献

- 1) H. Yoda *et al.*, *Curr. Appl. Phys.* **e10**, 387 (2010).
- 2) M. Sun *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, submitted.

## ゲルマニウム中の電子スピン伝導とスピン緩和

藤田裕一<sup>1</sup>, 山田道洋<sup>1</sup>, 塚原誠人<sup>1</sup>, 山田晋也<sup>1,2</sup>, 澤野憲太郎<sup>3</sup>, 浜屋宏平<sup>1,2</sup>  
 (<sup>1</sup>阪大基礎工,<sup>2</sup>阪大基礎工スピントロニクスセンター,<sup>3</sup>東京都市大総研)

Spin transport and relaxation in *n*-Ge

Y. Fujita<sup>1</sup>, M. Yamada<sup>1</sup>, M. Tsukahara<sup>1</sup>, S. Yamada<sup>1,2</sup>, K. Sawano<sup>3</sup>, K. Hamaya<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., <sup>3</sup>Advanced Research Laboratories, Tokyo City Univ.)

### 【はじめに】

シリコン(Si) CMOS 技術における微細化の限界が訪れようとする中、トランジスタのチャンネル材料をゲルマニウム(Ge)へ置き換えようとする潮流がある[1]. これまで我々は Ge-CMOS の到来に整合するスピントロニクス技術の開発を行ってきた[2]. 本研究では、Ge へのスピン注入技術とスピン伝導の観測から、Ge 中で生じる電子スピンの緩和現象までを議論する[3-5].

### 【実験手法】

MBE 法を用いて Si 基板上に作製した Ge 層( $n \sim 10^{18} \text{cm}^{-3}$ )上にリン(P)のデルタドーピング層を介して  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  (CFAS) 薄膜を作製し、Fig.1(a)にあるような横型スピンバルブ素子へと微細加工した. スピン伝導測定には非局所 4 端子測定[直流電流(-1 mA)]を用いた.

### 【実験結果】

Fig.1(b)には代表的な非局所 Hanle 効果の測定結果を示す. CFAS の磁化配置(平行・反平行)に対応した明瞭な信号が観測されている. この測定を様々な温度で行い、次元拡散モデルで解析した結果得られたスピン寿命( $\tau$ )の温度依存性を Fig.1(c)に示す. 100 K 付近から温度依存性を示す特徴的な挙動を示したが、この挙動は最近提案された不純物誘起の谷間散乱[3,4,6]とフォノン誘起の谷間散乱[7]をベースとしたシンプルな理論で説明できることが明らかとなった[5]. 残念ながら Hanle 効果は 250 K までしか観測されなかったが、今回の結果で Ge 中の電子スピンの緩和機構が解明されたため、今後、室温付近でスピン信号を得るための鍵となる技術開発への指針がたったと言える.

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・新学術領域研究ナノスピン変換(No. 26103003)の補助を受けた.

### 参考文献

- 1) H. Wu et al., 2014 International Electron Devices Meeting (IEDM).
- 2) K. Hamaya et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 137204 (2009); K. Kasahara et al., Appl. Phys. Express **7**, 033002 (2014).
- 3) Y. Fujita et al., Phys. Rev. B **94**, 245302 (2016).
- 4) M. Yamada et al., Phys. Rev. B **95**, 161304(R) (2017).
- 5) Y. Fujita et al., Phys. Rev. Applied (in press).
- 6) Y. Song et al., Phys. Rev. Lett. **113**, 167201 (2014).
- 7) P. Li et al., Phys. Rev. B **86**, 085202 (2012).

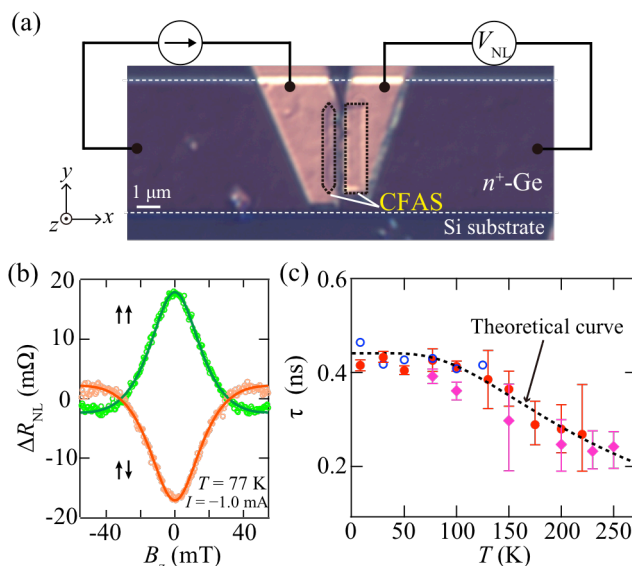


Fig.1. (a) Optical micrograph of a fabricated lateral spin valve. (b) Nonlocal (NL) Hanle effect curves at 77 K. (c) Temperature dependence of the spin lifetime in Ge.

## Ag/InZnO/Zn スペーサー層をもつ CPP-GMR スピンバルブの微細構造と磁気抵抗特性

中谷友也、佐々木泰祐、李松田、桜庭裕弥、古林孝夫、宝野和博  
(物質・材料研究機構)

Microstructure and magneto-resistive properties of CPP-GMR spin-valves with Ag/InZnO/Zn spacer  
Tomoya Nakatani, Taisuke Sasaki, Songtian Li, Yuya Sakuraba, Takao Furubayashi, and Kazuhiro Hono  
(National Institute for Materials Science)

### はじめに

電流面直巨大磁気抵抗 (CPP-GMR) はトンネル磁気抵抗に比べ、面積抵抗 ( $RA$ ) が 1 桁以上小さく、ハードディスクドライブの再生ヘッドセンサーへの応用が期待される。CPP-GMR 出力の増大のために、高スピン分極なホイスラー合金を強磁性層に用いるほか、スペーサー層に Ag/InZnO (IZO)/Zn の積層構造を用いることが有効であることが報告されている。[1] しかしながら、スペーサー層を構成する各層の役割はよくわかっていない。本研究では、Ag/IZO/Zn スペーサー層を用いた CPP-GMR 積層膜および素子について、微細構造と磁気抵抗特性の関係について調査した。

### 実験方法

スパッタリングにより、Cu 電極上に Ta/Ru(2)/IrMn(6)/CoFe(2.8)/Ru(0.8)/CoFe(0.6)/CoFeBTa(0.8)/CMFG(2.5)/CoFe(0.4)/Ag(0.2 or 0.4)/IZO(1.6)/Zn(0.8)/CoFe(0.4)/CMFG(4)/CoFe(1)/Ru(8) (膜厚は nm) の多結晶スピンバルブ構造を作製し、磁場中で 280 °C、3 時間のアニールを行った。CMFG は  $\text{Co}_2(\text{Mn}_{0.6}\text{Fe}_{0.4})\text{Ge}$  ホイスラー合金である。直径 100 nm および 200 nm の円形素子に微細加工し、室温での磁気抵抗特性を 4 端子法により測定した。スピンバルブ薄膜の微細構造を走査透過電子顕微鏡 (STEM) およびエネルギー分散型 X 線分光 (EDS) によって解析した。

### 結果

図 1 に CPP-GMR 素子の面積抵抗 ( $RA$ ) と磁気抵抗比 ( $\Delta R/R$ ) を示す。比較として、 $\text{Ag}_{90}\text{Sn}_{10}$  (4 nm) スペーサー層の CPP-GMR 素子では  $RA \sim 65 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$ ,  $\Delta R/R = 9\%$  であった。一方、Ag/IZO/Zn スペーサー層を用いることで、 $RA$  を 70–120  $\text{m}\Omega \mu\text{m}^2$ ,  $\Delta R/R$  を 15% 以上に増大することができる。Ag 挿入層が厚いほど  $RA$  が小さくなる傾向がある。積層膜構造と成膜プロセスを改善することで、 $\Delta R/R$  を 30% まで増大させることができた (図 1(b), (c))。これは、 $RA$  と  $\Delta R/R$  の点では 2 Tbit/in<sup>2</sup> の磁気記録密度に対応する再生ヘッドセンサーの要求性能を満足している。[2]

図 2(a)-(c)に、EDS による In, Zn, Ag の分布を示す。In と Zn は同一の位置に存在していることから IZO 上に別に成膜された Zn は IZO 中に拡散し、一体の IZO を形成すると考えられる。一方、Ag は IZO スペーサー中に不均一に分布している (図 2(c))。今回の STEM による解析では、Ag は fcc-Ag として IZO マトリックス中に析出しているのか、それとも IZO 中に固溶しているのかは結論できないものの、面直電流は Ag 濃度の高い部分を選択的に流れることが予想される。すなわち、Current-confined-path 的な不均一な電流分布が、 $RA$  と  $\Delta R/R$  の増大の起源であると考えられる。

参考文献 [1] Nakatani et al. APEX 8, 093003 (2015). [2] Takagishi et al. IEEE Trans. Magn. 46, 2086 (2010).

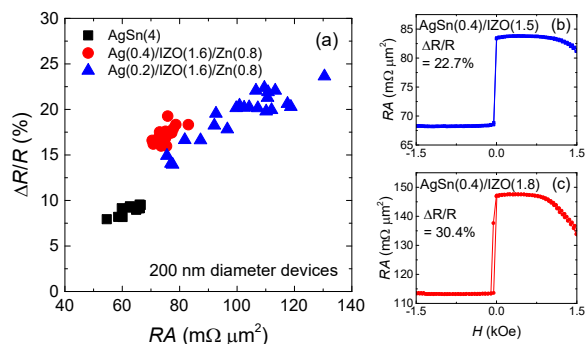


図 1 (a) Ag/IZO/Zn スペーサー素子の  $RA$  と  $\Delta R/R$  の分布。(b), (c) 膜構造と成膜プロセスの改善後の MR 曲線。スペーサー層は  $\text{Ag}_{90}\text{Sn}_{10}/\text{IZO}$ 。

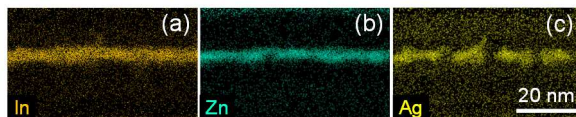


図 2 Ag(0.4)/IZO(1.6)/Zn(0.8) スペーサー層の CPP-GMR 素子 ( $RA = 70 \text{ m}\Omega \mu\text{m}^2$ ,  $\Delta R/R = 17\%$ ) における In, Zn, Ag の分布。

# Co<sub>2</sub>MnSi を用いた電流面直型スピバルブ素子の磁気抵抗特性に及ぼす Co<sub>2</sub>MnSi 薄膜の Mn 組成の影響

犬伏和海<sup>1</sup>, 井上将希<sup>2</sup>, Hu Bing<sup>2</sup>, Moges Kidist<sup>2</sup>, 中田勝之<sup>1</sup>, 山本眞史<sup>2</sup>, 植村哲也<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>TDK 株式会社, <sup>2</sup>北海道大学)

Influence of Mn composition in Co<sub>2</sub>MnSi films on magnetoresistance characteristics of Co<sub>2</sub>MnSi-based current-perpendicular-to-plane spin valves

K. Inubushi<sup>1</sup>, M. Inoue<sup>2</sup>, Bing Hu<sup>2</sup>, Kidist Moges<sup>2</sup>, K. Nakada<sup>1</sup>, M. Yamamoto<sup>2</sup>, and T. Uemura<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>TDK Corporation, <sup>2</sup>Hokkaido University)

## 1. はじめに

スピントロニクスデバイスに必須のスピ源として、ハーフメタル系の Co 基ホイスラー合金薄膜が注目されており、磁気トンネル接合 (MTJ)<sup>1-4)</sup>、電流面直型スピバルブ (CPP-GMR) 素子<sup>5,6)</sup>、スピン注入素子<sup>7,8)</sup>などに応用され、広く研究されている。最近、著者の何人かは Co<sub>2</sub>MnSi (CMS), Co<sub>2</sub>(Mn, Fe)Si (CMFS) 及び Co<sub>2</sub>MnGe ホイスラー合金薄膜において、ハーフメタル特性を低下させる Co<sub>Mn</sub> アンチサイトが、Mn を化学量論組成よりも過剰に添加することで抑制されることを実証した<sup>1-4)</sup>。本研究の目的は、CMS を用いた CPP-GMR 素子の磁気抵抗 (MR) 特性に対する非化学量論組成の影響を明らかにすることである。

## 2. 実験方法

CMS 電極と Ag スペーサを用いた交換バイアス型の CPP-GMR 素子において、CMS 電極における Mn 組成を系統的に変化させ、その MR 特性を調べた。CPP-GMR 層構造は、各層を超高真空チャンバー中で連続的に成膜することにより作製した。作製した層構造は MgO(001) 単結晶基板側から、MgO buffer (10 nm)/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> (CoFe) seed (10)/Ag buffer (100)/CoFe buffer (10)/CMS lower electrode (3)/CoFe (1.1)/Ag spacer (5)/CoFe (1.1)/CMS upper electrode (3)/CoFe (1.1)/IrMn (10)/Ru cap (5) である。なお、MR 比の向上を図るため、Ag spacer と上下 CMS 電極との間の両界面に厚さ 1.1 nm の極薄 CoFe 層を挿入した。CMS 電極は CMS ターゲット及び Mn ターゲットを用いた同時スパッタ法により堆積し、その薄膜組成を Co<sub>2</sub>Mn<sub>α</sub>Si<sub>0.82</sub> と表記した時に α = 0.62 から α = 1.45 まで変化させた。また、CMS 薄膜の結晶性向上のため、上部 CMS 電極を室温にて堆積後、in-situ で 550°C のアニールを行った。上記の層構造に対して、EB リソグラフィ、Ar イオンミリングにより微細加工を行い、CPP-GMR 素子を作製した。素子の MR 特性を室温において直流 4 端子法により測定した。MR 比は (R<sub>AP</sub> - R<sub>P</sub>) / (R<sub>P</sub> - R<sub>C</sub>) により定義した。ここに R<sub>AP(P)</sub> は磁化反平行 (平行) 時の抵抗、R<sub>C</sub> は接合面積に依存しない寄生抵抗成分である。

## 3. 結果および考察

図 1 に作製した CMS/CoFe/Ag/CoFe/CMS CPP-GMR 素子の室温での MR 比の Co<sub>2</sub>Mn<sub>α</sub>Si<sub>0.82</sub> 電極における Mn 組成 α に対する依存性を示す。α の増加に伴い、MR 特性が Mn-deficient な α = 0.62 に対する 11.1% から Mn-rich の α = 1.45 に対する 20.4% まで系統的に増加する事がわかった。この結果は、CMS あるいは CMFS を用いた MTJ に対する結果<sup>1-4)</sup>と同様であり、Mn-deficient な組成から Mn-rich の組成に変化させると共に、系統的に、Co<sub>Mn</sub> アンチサイトが低減することによって説明できる。以上、本研究の結果は、CMS の組成を Mn リッチにするアプローチが、CPP-GMR 素子における CMS スピ源のハーフメタル性の向上に、MTJ の場合と同様に非常に有効であることを示している。

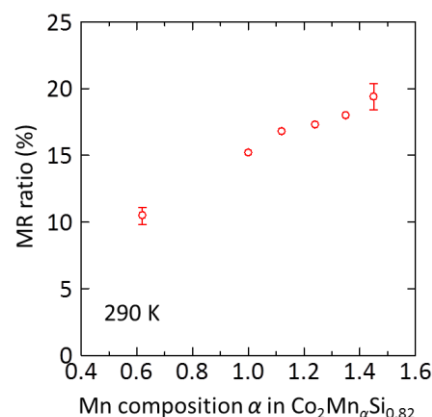


Fig. 1. MR ratios at 290 K for CMS/CoFe/Ag/CoFe/CMS CPP-GMR devices as a function of Mn composition α in Co<sub>2</sub>Mn<sub>α</sub>Si<sub>0.82</sub> electrodes.

- 1) H.-x. Liu et al., Appl. Phys. Lett. **101**, 132418 (2012).
- 2) H.-x. Liu et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 164001 (2015).
- 3) G.-f. Li et al., Phys. Rev. B **81**, 134432 (2014).
- 4) K. Moges et al., Phys. Rev. B **93**, 134403 (2016).
- 5) J. W. Jung et al., Appl. Phys. Lett. **108**, 102408 (2016).
- 6) S. Li et al., Appl. Phys. Lett. **108**, 122404 (2016).
- 7) Y. Ebina et al., Appl. Phys. Lett. **104**, 172405 (2014).
- 8) T. Uemura et al., Phys. Rev. B **91**, 140410 (R) (2015).



## Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si/L<sub>12</sub>型 Ag<sub>3</sub>Mg/Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si 素子における 膜面垂直通電型巨大磁気抵抗効果の強磁性層膜厚依存性

窪田 崇秀<sup>1,2</sup>、伊奈 幸佑<sup>1</sup>、温 振超<sup>1,2</sup>、高梨 弘毅<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 東北大 金研, <sup>2</sup> 東北大 スピントロニクス学術連携研究教育センター)

Ferromagnetic layer thickness dependence of current perpendicular-to-plane giant magnetoresistance effect  
in Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si/L<sub>12</sub>-type Ag<sub>3</sub>Mg/Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si devices

Takahide Kubota<sup>1,2</sup>, Yusuke Ina<sup>1</sup>, Zhenchao Wen<sup>1,2</sup>, Koki Takanashi<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> IMR, Tohoku Univ., <sup>2</sup> CSRN, Tohoku Univ.)

### はじめに

膜面垂直通電型の巨大磁気抵抗素子 (CPP-GMR 素子) は、面積抵抗積 (RA 値) 0.01 – 0.1 Ωμm<sup>2</sup> 程度の低抵抗領域において比較的大きな磁気抵抗変化率 (MR 比) が得られることから、次世代のハードディスクドライブ用の読み取りヘッドへの応用が期待されている<sup>1)</sup>。我々のグループは、これまでに高スピン分極材料である Co<sub>2</sub>Fe<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.6</sub>Si (CFMS) ホイスラー合金を磁性層とし、非磁性中間層に L<sub>12</sub> 型の Ag<sub>3</sub>Mg 合金を用いることで高出力化が可能であることを示してきた<sup>2,3)</sup>。Ag<sub>3</sub>Mg 中間層を用いた素子は、それまで典型的に用いられていた Ag 中間層と比較して特に面積抵抗変化 (ΔRA) が大きいことが確認されているが<sup>3)</sup>、その起源についての議論はこれまで十分には行われていない。そこで本研究では CFMS/Ag<sub>3</sub>Mg/CFMS CPP-GMR 素子における ΔRA の CFMS 層膜厚依存性に Valet-Fert のモデル<sup>4)</sup> を適用することで、バルク並びに界面のスピン非対称係数 (β, γ) を算出することを目的とした。

### 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用い、MgO (100) 単結晶基板/Cr (20 nm)/Ag (40 nm)/CFMS (*t*<sub>CFMS</sub> nm)/Ag 又は Ag<sub>3</sub>Mg (5 nm)/CFMS (*t*<sub>CFMS</sub> nm)/Ag (2 nm)/Au (5 nm) の積層膜を作製した。CFMS 層膜厚 (*t*<sub>CFMS</sub>) は 3, 4, 5, 7, 9, 12 nm とした。各層は室温で成膜し、Cr と上部の CFMS 層成膜後に超高真空中で、それぞれ 650°C、500°C で熱処理を行った。試料は電子線リソグラフィ法等を用いてサブミクロンオーダーの素子に加工した。GMR 効果の測定は室温において直流 4 端子法で行った。

### 実験結果

*t*<sub>CFMS</sub> = 12 nm における MR 比 (寄生抵抗の寄与を差し引く前の値) は Ag 中間層の素子で 24%、Ag<sub>3</sub>Mg 中間層の素子で 23% であった。いずれの中間層の場合においても *t*<sub>CFMS</sub> の減少に伴い MR 比は増大し、MR 比は Ag、Ag<sub>3</sub>Mg それぞれの場合で 43%、49% まで増大した。ΔRA の *t*<sub>CFMS</sub> 依存性から β, γ を算出した結果、β は Ag 中間層素子で 0.63 程度、Ag<sub>3</sub>Mg 中間層の素子で 0.78 程度の値が得られた。γ の値については、CFMS 層と中間層との界面における、界面抵抗値の不確定性のために値の確定には至っていないものの、いずれの素子においても 0.7 以上となると考えられる。Ag 中間層の素子と比較して Ag<sub>3</sub>Mg 中間層の素子で高い β が得られた要因は、中間層/CFMS 層界面が改善されたことによって CFMS 層の規則性が向上したためと考えられる。

### 謝辞

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金 (基盤研究 S、25220910)、情報ストレージ研究推進機構 (ASRC) の支援を受けた。

### 参考文献

- 1) M. Takagishi *et al.*, IEEE Trans. Magn. **38**, 2277 (2010).
- 2) H. Narisawa *et al.*, Appl. Phys. Express **8**, 063008 (2015).
- 3) T. Kubota *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 014004 (2017).
- 4) T. Valet and A. Fert, Phys. Rev. B **48**, 7099 (1993).

エピタキシャル CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造の低温成長とその磁気特性

酒井宗一郎<sup>1</sup>, 河野慎<sup>1</sup>, 井川昌彦<sup>1</sup>, 沖宗一郎<sup>1,2</sup>, 佐藤浩<sup>3</sup>, 山田晋也<sup>1,2</sup>, 浜屋宏平<sup>1,2</sup>  
 (<sup>1</sup>阪大基礎工, <sup>2</sup>阪大基礎工スピントロニクスセンター, <sup>3</sup>東京エレクトロン(株))

Low-temperature growth and magnetic properties of all-epitaxial CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si vertical structures

S. Sakai<sup>1</sup>, M. Kawano<sup>1</sup>, M. Ikawa<sup>1</sup>, S. Oki<sup>1,2</sup>, H. Sato<sup>3</sup>, S. Yamada<sup>1,2</sup>, and K. Hamaya<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., <sup>3</sup>Tokyo Electron Ltd.)

## 【はじめに】

我々は、分子線エピタキシー(MBE)法を用いて、エピタキシャル Fe<sub>3</sub>Si/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造を形成することに成功している[1]. しかし、Ge 層成長時の基板温度制御の難しさから[2], Ge 層から上部 Fe<sub>3</sub>Si 層への Ge 原子の拡散を防げず、Fe<sub>3</sub>Si 層の磁気特性が劣化してしまうことがわかっている. 本研究では、Ge 層成長初期に固相エピタキシー(SPE)層を挿入することで、Ge 中間層の平坦性の向上と成長温度の低減を実現し、良好な磁気特性を有する縦型構造の低温エピタキシャル成長を検討する[3,4].

## 【実験方法】

MBE 法を用いて Si(111)基板上に Fe<sub>3</sub>Si 層(25 nm)を成長した後、最表面を Si 面終端し[2], その直上に非晶質 Ge 層(3 nm)を室温堆積して、1 時間のアニール処理( $T_a = 150, 175, 200$  °C)を施した(SPE-Ge). その後、温度  $T_a$  のままで SPE-Ge 層上に Ge 層(17 nm)を MBE 成長した(MBE-Ge). 最後に、温度  $T_a$  を室温まで下げた後、CoFe 層(10 nm)を MBE 成長し、CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造とした[3,4].

## 【実験結果】

Fig.1 に  $T_a = 175$  °C で作製した縦型構造の断面 TEM 像を示す. 中間 Ge 層中には積層欠陥が存在しているが、Fe<sub>3</sub>Si 層上で一様に成長しており、SPE-Ge/MBE-Ge 層の作製に成功している. つまり、200 °C 以下という低温でエピタキシャル強磁性/Ge/強磁性縦型構造を作製することに成功した.

Fig. 2 に 300 K で測定した磁化曲線(赤実線)を示す. 二段のヒステリシス曲線が観測され、CoFe, Fe<sub>3</sub>Si が Ge を介して磁氣的に分断していることが示唆される. また、二つの反転磁場はそれぞれ基板上に作製した CoFe, Fe<sub>3</sub>Si 薄膜の保磁力とよく一致していることから、磁氣的にも良好な三層構造であることが示唆された. 講演では、Ge 中間層の膜厚や成長条件が磁性に与える影響についても述べる.

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・新学術領域研究ナノスピン変換科学(26103003)の補助を受けた.

## 参考文献

- 1) K. Hamaya *et al.*, Mater. Trans., **57**, 760, (2016)
- 2) S. Yamada *et al.*, Cryst. Growth Des., **12**, 4703 (2012).
- 3) M. Ikawa *et al.*, J. Cryst. Growth, **468**, 676-679 (2017).
- 4) S. Sakai *et al.*, Semicond. Sci. Technol. (accepted).

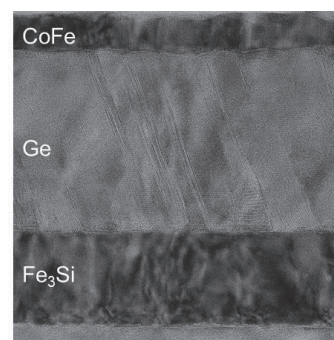


Fig.1 TEM image of all-epitaxial CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si on Si(111).

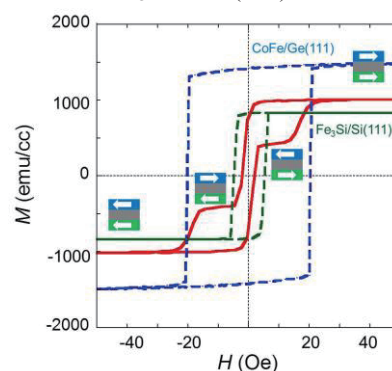


Fig. 2  $M$ - $H$  curves at 300 K for a CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si trilayer (red line), a CoFe layer on Ge(111) (blue line), and an Fe<sub>3</sub>Si layer on Si(111) (green line).

エピタキシャル CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造におけるスピン伝導の観測

井川昌彦<sup>1</sup>, 河野慎<sup>1</sup>, 酒井宗一郎<sup>1</sup>, 沖宗一郎<sup>1,2</sup>, 佐藤浩<sup>3</sup>, 山田晋也<sup>1,2</sup>, 浜屋宏平<sup>1,2</sup>  
 (<sup>1</sup>阪大基礎工,<sup>2</sup>阪大基礎工スピントロニクスセンター,<sup>3</sup>東京エレクトロン(株))

Spin transport in all-epitaxial CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si vertical structures

M. Ikawa<sup>1</sup>, M. Kawano<sup>1</sup>, S. Sakai<sup>1</sup>, S. Oki<sup>1,2</sup>, H. Sato<sup>3</sup>, S. Yamada<sup>1,2</sup>, and K. Hamaya<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka Univ., <sup>2</sup>Center for Spintronics Research Network, Osaka Univ., <sup>3</sup>Tokyo Electron Ltd.)

## 【はじめに】

半導体スピン素子は不揮発メモリ機能を有する次世代半導体デバイスとして期待されている。我々はこれまで、縦型 Ge チャネルスピン MOSFET の可能性を追求し、強磁性体/Ge/強磁性体縦型構造の結晶成長技術を開発してきた<sup>1-3</sup>。本研究では、最近開発した Ge の低温結晶成長技術<sup>3</sup>)を用いて作製したエピタキシャル CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造において、明瞭なスピン伝導の観測に成功したので報告する。

## 【実験方法】

MBE 装置を用いて、高抵抗 Si(111) 基板の上に CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造をエピタキシャル成長した<sup>3</sup>。電子線リソグラフィや Ar イオンミリング等を用いて Fig. 1 に示すようなピラー型の縦型スピンバルブ素子とした<sup>4</sup>。

## 【実験結果】

縦型伝導素子の電気抵抗を測定したところ、低温側で増加する傾向を示し、中間層に非縮退系半導体品質の Ge 層が形成されていることが確認された。20 K における電流電圧特性は、トンネル伝導を示唆する非線形曲線を示した。Fig. 2 に 10 K で測定した電圧変化( $\Delta V_S$ )の磁場依存性を示す。上下の強磁性電極の磁化配置(平行・反平行)に対応した明瞭な矩形のヒステリシス信号が観測されている。マイナーループ測定(紫線)も観測され、反平行配置が安定に形成されていることが確認されている。この結果は、CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si 縦型構造におけるスピン伝導の観測に成功したことを意味している。講演では、 $\Delta V_S$  の温度依存性、バイアス依存性などについても議論する。

本研究は、科研費基盤研究(A)(16H02333)・新学術領域研究ナノスピン変換科学(26103003)の補助を受けた。

## 参考文献

- 1) M. Kawano *et al.*, J. Appl. Phys. **119**, 045302 (2016).
- 2) K. Hamaya *et al.*, Mater. Trans. **57**, 760 (2016).
- 3) S. Sakai *et al.*, Semicond. Sci. Technol. (accepted).
- 4) M. Kawano *et al.*, (submitted).

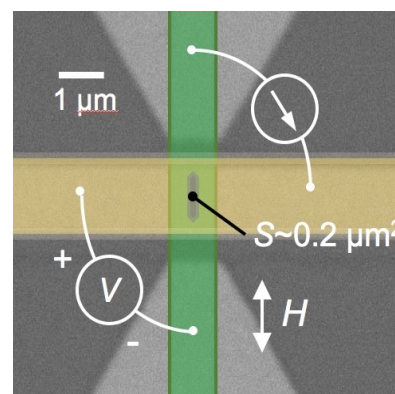


Fig. 1 Scanning electron micrograph of CoFe/Ge/Fe<sub>3</sub>Si spin valves.

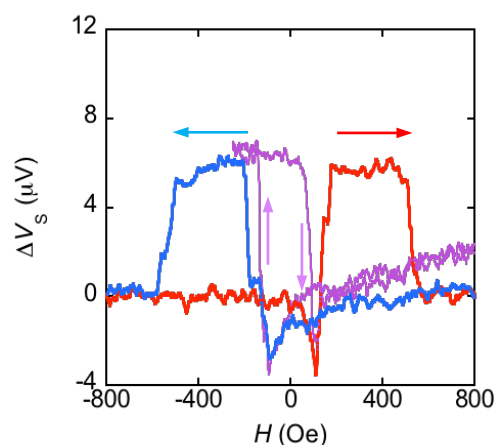


Fig. 2 Spin accumulation output voltage ( $\Delta V_S$ ) as a function of external magnetic field ( $H$ ) at 20 K with an  $I_{DC}$  of 0.5 mA.

## アモルファス GdFeCo 膜におけるスピン軌道トルク

川上圭祐, 大島大輝, 加藤剛志, 岩田聡  
(名古屋大学)

Spin orbit torques in amorphous GdFeCo films

K. Kawakami, D. Oshima, T. Kato, S. Iwata  
(Nagoya Univ)

## はじめに

Gbit を超える MRAM 開発およびその低消費電力化において、磁性薄膜の高効率な磁化反転手法の開発が求められている。スピンホール効果による純スピン流を利用した磁化反転は、スピントランスファートルク磁化反転に比べて低消費電力化の可能性があり、また書き込みマージンの確保が容易であるなどの利点があると指摘されている<sup>1)</sup>。GdFeCo は、Gd と遷移金属の磁気モーメントが反平行に結合したフェリ磁性体であり、組成により磁気特性を制御することが可能な材料であるが、本研究では、組成の異なる GdFeCo 膜に隣接 Ta 層で生じたスピン流によるスピン軌道トルクについて調べたので報告する。

## 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置により、熱酸化膜付き Si 基板上に Ta (20 nm) / Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub>)<sub>100-x</sub> (5 nm) / SiN (3 nm) を成膜した。素子の加工には、電子ビームリソグラフィと Ar<sup>+</sup>イオンエッチングを用い、幅 1~8 μm のホールクロス構造を作製した。スピンホール磁化反転はパルス幅 10 μsec のパルス電流  $I_{\text{pulse}}$  を通電後、読み出し電流  $I_{\text{read}}$  で異常ホール (AHE) 電圧を測定することにより確認した。また、パルス電流と平行に磁界  $H_{\text{ext}}$  を加えた。スピン軌道トルクは周波数 80 Hz の交流電流  $J_c$  を流すことによる磁化の傾きの変化を、AHE の高調波電圧を検出することで見積もった。交流電流と平行および垂直方向に磁界  $H_{\text{ext}}$  を加えることによって、ダンピングライクトルクおよびフィールドライクトルクによる磁界  $H_{\text{DL}}$ ,  $H_{\text{FL}}$  を得た。

## 実験結果

Fig. 1 は、Gd 組成 21, 23, 26 at.% の GdFeCo 膜におけるスピンホール磁化反転の臨界電流密度  $J_{\text{sw}}$  の外部磁界  $H_{\text{ext}}$  依存性を示している。AHE の符号から、Gd26 at.% 以下は TM-rich, Gd28 at.% は RE-rich であることを確認した。 $J_{\text{sw}}$  の  $H_{\text{ext}}$  依存性は Gd<sub>21</sub>(FeCo)<sub>79</sub> が最も大きく、正味磁化が大きいほど  $H_{\text{ext}}$  依存性が大きくなる傾向が見られた。なお、 $J_{\text{sw}}$  を  $H_{\text{ext}} = 0$  Oe へ外挿した値は Gd 組成に大きく依存せず、10 MA/cm<sup>2</sup> 程度となった。Fig. 2 は Gd<sub>x</sub>(FeCo)<sub>100-x</sub> 膜の飽和磁化  $M_s$  と  $J_c = 2$  MA/cm<sup>2</sup> における  $H_{\text{DL}}$ , およびこれらから求められるスピンホール角  $J_s / J_c$  の Gd 組成依存性を示している。 $H_{\text{DL}}$  は GdFeCo の補償組成付近で大きくなるが、AHE と異なり、 $H_{\text{DL}}$  の符号は TM-rich, RE-rich で変化がない。また、 $J_s / J_c$  は全ての組成でおおよそ 0.1 程度となることが分かった。

## 参考文献

1) L. Liu *et al.*, Science, **336**, 555 (2012).

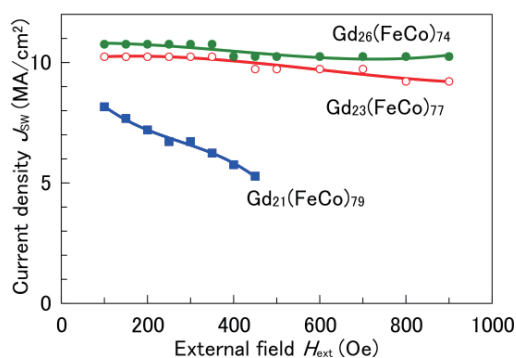


Fig. 1 External field  $H_{\text{ext}}$  dependence of switching current density  $J_{\text{sw}}$  of Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub>)<sub>100-x</sub>.

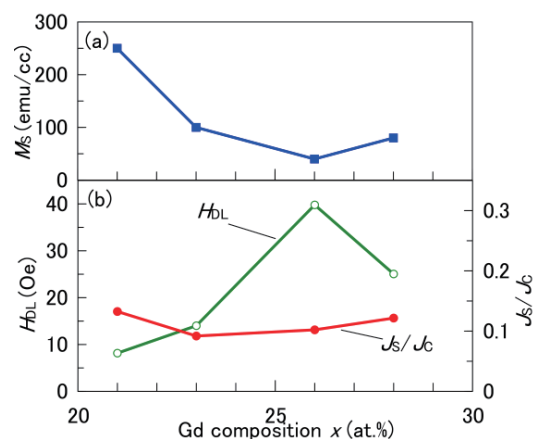


Fig. 2 Gd composition dependence of (a) net magnetization  $M_s$ , (b) damping-like field  $H_{\text{DL}}$ , and spin Hall angle  $J_s / J_c$  in Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>90</sub>Co<sub>10</sub>)<sub>100-x</sub>.

# Gd<sub>x</sub>-Fe<sub>1-x</sub> 合金磁性細線における電流誘起磁壁移動特性の組成依存性

海老澤 遼<sup>1</sup>, 青島 賢一<sup>2</sup>, 加藤 大典<sup>2</sup>, 船橋 信彦<sup>2</sup>, 久我 淳<sup>2</sup>, 秋山 泰伸<sup>1</sup>, 町田 賢司<sup>2</sup>  
(東海大工<sup>1</sup>, NHK 技研<sup>2</sup>)

Current induced domain wall movement of magnetic wires with various composition of Gd<sub>x</sub>-Fe<sub>1-x</sub> alloy

Ryo Ebisawa<sup>1</sup>, Kenichi Aoshima<sup>2</sup>, Daisuke Kato<sup>2</sup>, Nobuhiko Funabashi<sup>2</sup>,

Kiyoshi Kuga<sup>2</sup>, Yasunobu Akiyama<sup>1</sup>, Kenji Machida<sup>2</sup>

(Tokai University,<sup>1</sup> NHK STRL.<sup>2</sup>)

## はじめに

広視域ホログラフィ表示用ディスプレイとして、高精細化を目指した磁気光学(MO)空間光変調器(SLM)の研究を行っている<sup>1)</sup>。画素の高精細化に伴う画素選択トランジスタサイズ縮小による駆動電流低下のため、磁化反転に要する電流の低減が必須となっている<sup>2)</sup>。近年、アモルファス希土類遷移金属(RE-TM)合金を用いた磁性細線において、低電流での磁壁移動が報告されている<sup>3)</sup>。我々は電流誘起磁壁移動を用いた MOSLM 実現を目指し、RE-TM 合金である Gd<sub>x</sub>-Fe<sub>1-x</sub> に着目し、様々な組成の Gd-Fe 磁性細線素子を作製してきた。これまでに外部磁界での磁化反転特性、初期磁区形成方法および基本的な電流誘起磁壁移動特性について報告をした。今回、パルス幅や組成を変えたときの電流誘起磁壁移動特性について調べたので報告する。

## 実験方法

作製した磁性細線は Gd<sub>x</sub>-Fe<sub>1-x</sub> 磁性細線(幅:500nm, 厚:15nm, x=0.204, 0.230, 0.244)、電極、初期磁区形成用ハード膜(0.5μm×3.0μm)からなる構成とし、ハード膜は細線下に埋め込む構造とした。これら素子はスパッタによる製膜、電子線描画、イオンミリング、リフトオフを用いて作製した。マイクロ Kerr 測定装置(λ:408nm)を用いて磁性細線の磁化反転特性を評価した。電流誘起磁壁移動実験では、外部磁界 8kOe を印加しハード膜と磁性細線の磁化方向を上向きに揃え初期化、磁界をゼロとして、(Gd<sub>0.244</sub>-Fe<sub>0.756</sub> では初期磁区をつくるための逆向きに電流注入)、パルス幅 50ns, 1μs の電流を注入した。その後、MO 顕微鏡で磁壁の移動を観察し電流注入前後の MO 差分像から移動速度を算出(5回の平均)した。各々の測定を5回繰り返し移動速度の平均および標準偏差(エラーバー)を求めた。

## 実験結果

Fig. 1 に磁性細線部の磁化反転特性をマイクロ Kerr にて測定した結果を示す。これまでの研究で報告したように、どのヒステリシスループもプラス磁界の反転磁界は大きく、マイナス磁界の反転磁界は小さいという非対称なループであった。プラス磁界側の反転は、一斉磁化反転、マイナス磁界での反転は磁壁移動による反転と、反転モードが異なるため非対称なループが得られたのだと考えられる。Gd が多い組成ほど、プラス側の反転磁界が大きかったが、マイナス磁界の反転磁界は組成依存性が見られなかった。また、Fig. 2 に電流誘起磁壁移動特性を示す。どちらのパルス幅でも Gd が多い組成ほど、閾電流密度が低く、電流密度を大きくすると磁壁移動速度は大きくなった。1μs では 21.3MA/cm<sup>2</sup>、50ns では 28.0MA/cm<sup>2</sup> 以上の電流密度では、マルチドメインになった。また、1μs のパルス幅では、50ns のパルス幅よりも低電流密度で磁壁が動くことを確認できた。Gd<sub>0.244</sub>-Fe<sub>0.756</sub> の閾電流密度( $J_c$ )は、1μs では 13.3MA/cm<sup>2</sup>、50ns では 16.0 MA/cm<sup>2</sup> であった。これはパルス幅が大きい程発熱が大きく、低電流で動いたためと考えている。反転磁界が大きい Gd が多い組成では  $J_c$  は小さく、移動速度は速かった。Gd<sub>0.25</sub>Fe<sub>0.75</sub> が本材料の補償組成であり、この補償組成に近い Gd<sub>0.244</sub>-Fe<sub>0.756</sub> においては、飽和磁化( $M_s$ )が下がったため、閾電流密度が下がった<sup>4)</sup>のだと考えられる。

## 参考文献

- 1) K. Aoshima, et. al, *J. Display Technol.*, vol. 11, no. 2, pp. 129-135, (2015)
- 2) K. Aoshima, et. al, *J. Display Technol.*, vol. 12, no. 2, pp.1212-1217, (2016)
- 3) H. Awano, *J. Magn. Mater.*, vol. 383, pp.50-55 (2015)
- 4) S-W. Jung, et. al, *Appl. Phys. Lett.*, 92, 202508 (2008)

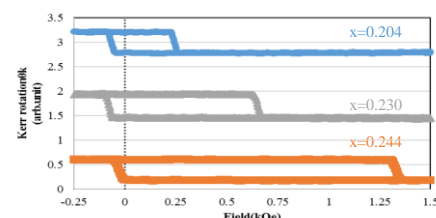


Fig.1 Kerr loop of Gd<sub>x</sub>-Fe<sub>1-x</sub> magnetic wire

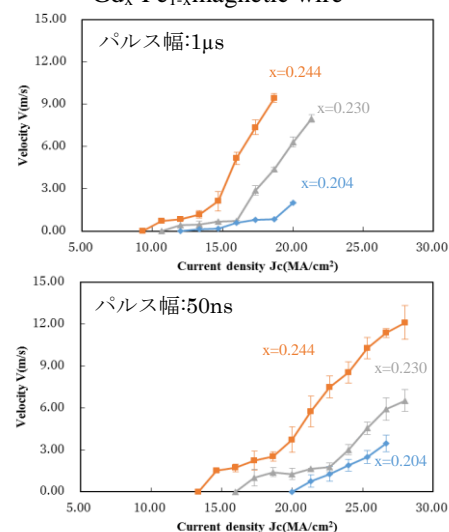


Fig. 2 Domain wall velocity

# 低キュリー温度 Co/Pd 系多層膜を用いたスピン注入磁化反転

木村匠, 董夏茵, 大島大輝, 加藤剛志, 園部義明\*, 川戸良昭\*, 岩田聡  
(名大, \*サムスン日本研究所)

Spin transfer torque magnetization switching of Co/Pd based multilayers with low Curie temperature

T. Kimura, X. Dong, D. Oshima, T. Kato, Y. Sonobe\*, Y. Kawato\*, S. Iwata  
(Nagoya Univ., \*Samsung R&D Institute Japan)

## 1. はじめに

スピン注入磁化反転は、大容量 MRAM を実現する技術として開発が進められているが、10 Gbit を超える容量の実現には、高い熱安定性と低い臨界電流を両立させる高効率な磁化反転手法の開発が求められる。我々は高効率な磁化反転を実現するメモリ層として、低いキュリー温度 (低  $T_C$ ) と高い垂直磁気異方性 (高  $K_u$ ) を有する層と高  $T_C$ , 低  $K_u$  の層を交換結合させた積層型メモリ層に注目した<sup>1)</sup>。低  $T_C$  層として CoPd/Pd 多層膜, 高  $T_C$  層として Co/Pd 多層膜を用いた積層膜の磁化反転を検討し, 低  $T_C$  層の磁化反転が, 高  $T_C$  層の磁化方向との交換結合により制御できることを示してきた<sup>2),3)</sup>。今回は  $T_C$  を制御可能な Co/Pd 系多層膜へのスピン注入磁化反転を検討した。

## 2. 実験方法

熱酸化膜付 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法により, Si sub./Ta (10)/Cu<sub>70</sub>Ta<sub>30</sub> (150)/Pt (5)/[Pt (1.0)/Co (0.6)]<sub>6</sub>/Cu (2.5)/[Co (0.3)/Pd (1.2)]<sub>3</sub>/Cu (5)/Ta (2) (膜厚の単位は nm) を作製した。素子の微細加工には, フォトリソグラフィ, ECR プラズマ Ar イオンエッチング, および電子ビームリソグラフィを用い, 直径 200 nm  $\phi$  の接合を有する CPP-GMR 素子を作製した。磁気抵抗特性は直流 4 端子法により評価し, スピン注入磁化反転はパルス幅 10  $\mu$ sec~10 msec のパルス電流を印加後, 1 mA の読み出し電流で接合抵抗を測定することで評価した。未加工膜の磁気特性は, 交番磁界勾配型磁力計 (AGM) により測定した。

## 3. 実験結果

Fig.1 (a) は Co/Pd をメモリ層とする CPP-GMR 素子の MR 曲線を, Fig.1 (b) は外部磁界  $H_{\text{ext}} = -3$  kOe を印加してスピン注入磁化反転を確認した  $I$ - $R$  曲線を示している。図(a)から, Co/Pt リファレンス層の保磁力が 3.5 kOe, Co/Pd メモリ層の保磁力が 5 kOe であることが分かった。接合の MR 比は約 0.2% であった。Fig. 1 (b)は, 外部磁界-7 kOe を印加して平行状態にし, 次に 3.5 kOe を印加して反平行状態にした後, 外部磁界を-3 kOe 印加してスピン注入磁化反転を観察した結果である。パルス電流のパルス幅は 10  $\mu$ sec である。 $I$ - $R$  曲線より,  $I = 18$  mA で反平行 (AP) から平行 (P) へ, また,  $I = -20$  mA で P から AP へ磁化反転が起きていることがわかる。これから見積もられる反転電流密度はそれぞれ  $6.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup>,  $6.7 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> であった。反転電流密度の平均値のパルス幅依存性から Co/Pd 多層膜の熱安定性指数  $\Delta$  を見積もったところ,  $\Delta = 70$  という値が得られた。これはスピン注入によりメモリ層が一斉反転する場合に期待される  $\Delta$  に比べ非常に小さく, Co/Pd 内に反転核が生成し, 磁化反転が進行しているものと考えられる。

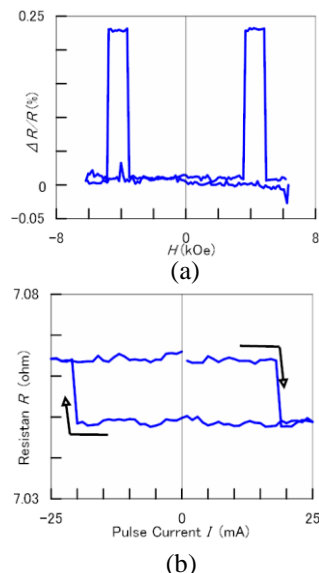


Fig. 1 (a) MR curve, and (b)  $I$ - $R$  curve for the CPP-GMR junction with [Co/Pd]<sub>3</sub> memory layer. The  $I$ - $R$  curve was taken at an external field of  $H_{\text{ext}} = -3$  kOe.

- 1) Machida et al., DOI 10.1109/TMAG.2017.2711247, IEEE Trans. Magn. (2017).
- 2) 董ら, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 8pC-9 (2016).
- 3) X. Dong et al., 61st MMM conference, FT-03 (2016).

# シミュレーションによるジャロシンスキー・守谷相互作用の測定法の検討

平野 安彦<sup>1</sup>、山田 啓介<sup>2</sup>、仲谷 栄伸<sup>1</sup>

<sup>1</sup>電気通信大学 情報理工学研究所、<sup>2</sup>岐阜大学 工学部

Study on measurement method of Dzyaloshinskii-Moriya interaction by simulations

Yasuhiko Hirano<sup>1</sup>, Keisuke Yamada<sup>2</sup>, Yoshinobu Nakatani<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate school of Informatics and Engineering, University of Electro-Communications

<sup>2</sup>Faculty of Engineering, Gifu University

## はじめに

近年、ジャロシンスキー・守谷相互作用(DMI)が働く強磁性体薄膜において、スカーミオンの生成[1]や特異な磁壁移動[2]などが観測されており、DMI が有効に作用する系での研究が注目されている。しかしながら、DMI の大きさを直接測る手法は、実験的に高度な測定方法を要する問題がある[3]。また他の DMI 値を測定する方法として、磁壁移動を用いる間接的な方法などがあるが、より簡易に DMI 値が測定できる方法が求められている。本研究では DMI 値を測定する方法として、垂直磁気異方性と DMI を持つ円盤状ディスクの反転磁界を用いる方法をマイクロマグネティックシミュレーションで検討した。

## 計算条件・手法

シミュレーションでは、CoFeB の材料定数を用いた：飽和磁化  $1500 \text{ emu/cm}^3$ 、交換スティフネス定数  $3.1 \mu \text{ erg/cm}$ 、磁気異方性定数  $14 \text{ Merg/cm}^3$ 、磁気回転比  $1.76 \times 10^7 \text{ rad/(s} \cdot \text{Oe)}$ 、損失定数  $0.1$ [4]。DMI 値は  $0 \sim 3 \text{ erg/cm}^2$  の値とした。円盤状ディスク径は  $50 \text{ nm}$ 、膜厚  $1 \text{ nm}$  とした。磁界パルス幅  $t_p$  は  $0.1 \sim 3 \text{ ns}$  とした。シミュレーションでは、円盤状ディスクの初期磁化状態を面直上向きとし、面直下向きの外部磁界 ( $H^{EXT}$ ) を  $t_p$ (s)間加え、磁化反転の有無を調べた。各条件に対し 1000 回の磁化反転シミュレーションを行い、反転確率を求めた。

## 結果

図 1 に  $D = 0, 1, 2, 3 \text{ erg/cm}^2$ ,  $t_p = 1 \text{ ns}$  の場合の、外部磁界による反転磁界の変化を示す。図より、DMI 値の増加と共に反転磁界が減少することがわかる。図 2(a)(b)に、 $D = 0, 1 \text{ erg/cm}^2$ ,  $t_p = 0.1 \sim 3 \text{ ns}$  の場合の、規格化した磁界による反転確率の変化を示す。図より、パルス幅により反転磁界が変化することがわかる。また図 2(a),(b)の比較より、 $D = 0 \text{ erg/cm}^2$  では  $t_p = 0.1 \sim 1.0 \text{ ns}$  での反転確率がほぼ一致するのに対し、 $D = 1 \text{ erg/cm}^2$  では  $t_p = 0.1$  と  $0.3 \text{ ns}$  の反転確率が  $0.1$  以上の場合に限り一致するが、それ以上のパルス幅の結果は一致しないことがわかった。以上の結果より、パルス幅を変えて反転確率を求め、反転磁界を規格化した上で各パルス幅での重なりを調べることで DMI 値を測定できる可能性があることがわかった。

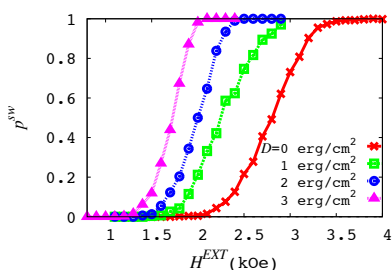


Fig 1. Effect of DMI and the magnetic field on the switching probability

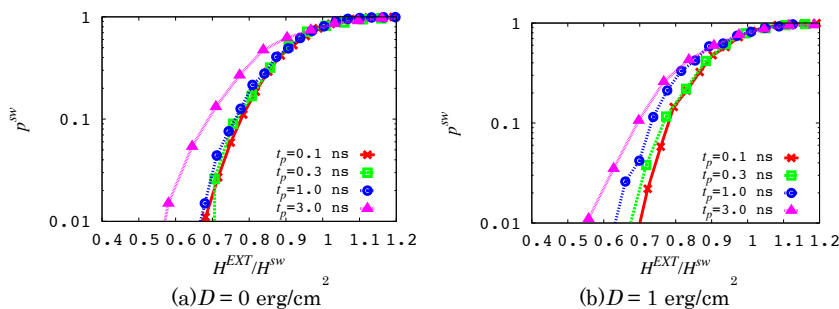


Fig 2. Effect of the pulse length and the normalized magnetic field on the switching probability

## 参考文献

- [1] X. Z. Yu, *et al.*, Nature. **465**, 901-904 (2010). [2] S. Emori, *et al.*, Nat. Mater. **12**, 611 (2013). [3] V. E. Dmitrienko, *et al.*, Nat. Phys. **2859**, 202-206 (2014). [4] S. Kanai, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 122403 (2012).

# DMI を有する SpinRAM のシミュレーション解析

高松 駿一<sup>1</sup>、山田 啓介<sup>2</sup>、仲谷 栄伸<sup>1</sup>

<sup>1</sup>電気通信大学 情報理工学研究所、<sup>2</sup>岐阜大学 工学部

Simulation Analysis of SpinRAM with Dzyaloshinskii-Moriya interaction

Shun-ichi Takamatsu<sup>1</sup>, Keisuke Yamada<sup>2</sup>, Yoshinobu Nakatani<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate school of Informatics and Engineering, University of Electro-Communications

<sup>2</sup>Faculty of Engineering, Gifu University

## はじめに

磁気抵抗メモリ的一种である SpinRAM は、メモリセルサイズを小さくすると書き込み電流を小さくできるため、大容量メモリや省電力化の実現が期待されている。しかし、メモリセルサイズが小さくなると、熱安定性が保たれない問題がある。この問題を解決する方法として、近年注目されている Dzyaloshinskii-Moriya 効果(DMI)の適応が考えられる<sup>[1][2]</sup>。DMI 効果により磁性体の磁化構造が変化するために、SpinRAM の記録層に DMI を考慮した場合、磁化反転機構が変化し、反転電流や熱安定性が変化することが考えられる。しかしながら、DMI によって熱安定性を保ったまま反転電流が減少するかは不明である。本研究では DMI 効果による反転電流の変化を、マイクロマグネティックシミュレーションを用いて検討した。

## 計算条件

シミュレーションでは、SpinRAM の記録層として円盤ディスクを用いた。シミュレーションで用いた材料定数は、飽和磁化  $600 \text{ emu/cm}^3$ 、磁気回転比  $17.6 \text{ Mrad/(s} \cdot \text{Oe)}$ 、交換スティッフネス定数  $1.0 \text{ } \mu\text{erg/cm}$ 、損失定数  $0.01$  とした。円盤ディスク径( $D$ )は直径  $15 \sim 60 \text{ nm}$ 、膜厚  $2 \text{ nm}$  とした。スピン電流のパルス幅( $t_p$ )は  $0.1 \sim 10 \text{ ns}$  とした。シミュレーションでは、まず円盤ディスク状の磁性体に対し、熱安定性指数( $\Delta$ )が  $60$ <sup>[4]</sup>となる磁気異方性定数と DMI 定数による値の組み合わせ (DMI 定数は  $0.0 \text{ erg/cm}^2$  から  $1.0 \text{ erg/cm}^2$  の間で  $0.2 \text{ erg/cm}^2$  刻み)を求めた。次に、得られた組み合わせを使って、円盤ディスク面に面直方向( $z$  方向)へスピン電流を加え、各条件に対するディスクの反転電流( $J_{sw}$ )を求め、DMI 定数と円盤ディスク径の依存性を調べた。

## 結果

図 1 の(a)-(c)に、DMI 定数、パルス幅、ディスクサイズによる反転電流の変化を示す。 $D=15, 30 \text{ nm}$  では短パルスの場合に、DMI 効果により反転電流が減少した(図 1 (a), (b))。反転電流は  $D=15 \text{ nm}$  よりも  $D=30 \text{ nm}$  の方が減少し、最も効果が見られたのは  $t_p = 0.1 \text{ ns}$  のときで、 $33 \sim 48\%$ 減少した。 $D=60 \text{ nm}$  の場合は、DMI 効果によって反転電流が増加した(図 1. (c))。また、いずれのディスクサイズでも、長パルスの場合、DMI 定数の増加とともに反転電流は増加した。

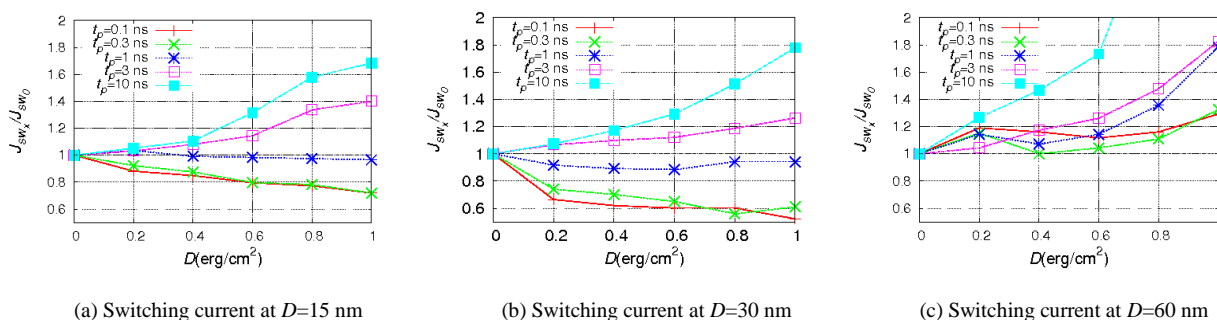


Figure1. Effect of DMI, pulse length, and the diameter of the disc on the switching current

## 参考文献

[1] T. Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960)

[2] I. E. Dzialoshinskii, Sov. Phys. **5**, 1259 (1957)

[3] S.Rohart and A.Thiaville, Phys. Rev. **88**, 184422(2013)

[4] K.Yamada *et al.*, Appl. Phys. Lett. **106**,042402(2015)



# マイクロマグネティックシミュレーションによる スピントルク発振素子の発振パワー解析

田中智大、古屋篤史、上原裕二、清水香壺、藤崎淳、安宅正、吉田親子、大島弘敬\*、  
(富士通株式会社、\*株式会社富士通研究所)

Emission Power Analysis of Spin-Torque Oscillator: Micromagnetic Simulation Study

T. Tanaka, A. Furuya, Y. Uehara, K. Shimizu, J. Fujisaki, T. Ataka, C. Yoshida, H. Oshima\*

(Fujitsu Limited, \*Fujitsu Laboratories Limited)

## はじめに

スピントルク発振素子 (STO) はスピントランスファートルクを利用したデバイスであり、ナノスケールにおけるマイクロ波発振器等への応用が期待されている。発振パワーは STO の性能指標の一つであり、フリー層の発振モードや歳差のコーンアングル等に影響されて増減する<sup>(1)</sup>。マイクロマグネティクスは nm オーダーで磁化の運動を記述することができるため、STO の発振パワーや発振モードの解析に有効な手法である。今回、有限要素法とマイクロマグネティクスを用いて様々な素子サイズの STO について磁界と電流を変化させた場合の計算を行い、発振パワーの変化とその原因を解析する。

## 計算方法

計算に用いた STO はフリー層、リファレンス層、ピン層からなる素子であり、その構造を図 1 に示す。STO のフリー層とリファレンス層はスピントルクを考慮した以下の Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式に従って計算する<sup>(2)</sup>

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2} \mathbf{M} \times (\mathbf{H}_{eff} + H_s \alpha \mathbf{p}) - \frac{\gamma}{1+\alpha^2} \frac{1}{M_s} \mathbf{M} \times \{ \mathbf{M} \times (\alpha \mathbf{H}_{eff} - H_s \mathbf{p}) \},$$

$$H_s = \frac{p_0 \hbar J}{2e\delta(M_s - p_0^2 \mathbf{M} \cdot \mathbf{p})}.$$

ここで  $\mathbf{M}$  は磁化ベクトル、 $\mathbf{p}$  は MgO 層を挟んで向かい合う層の規格化された磁化ベクトル、 $\mathbf{H}_{eff}$  は有効磁界ベクトル、 $\gamma$  はジャイロ磁気定数、 $\alpha$  はダンピング定数、 $p_0$  はスピン偏極因子、 $J$  は電流密度、 $\delta$  は膜厚、 $M_s$  は飽和磁化である。

## 結果

STO に対して様々な磁界と電流を印加し、発振パワーを計算した。図 2 に STO の直径が 200nm の場合における発振パワーのマップを示す。外部磁界が 2kOe から 3kOe にかけて、発振パワーは磁界の増大につれて減少するが、磁界が 4kOe に近づいたあたりから再度増大することが確認できる。当日は素子サイズによる影響も含めて、発振挙動の詳細な解析について報告する。

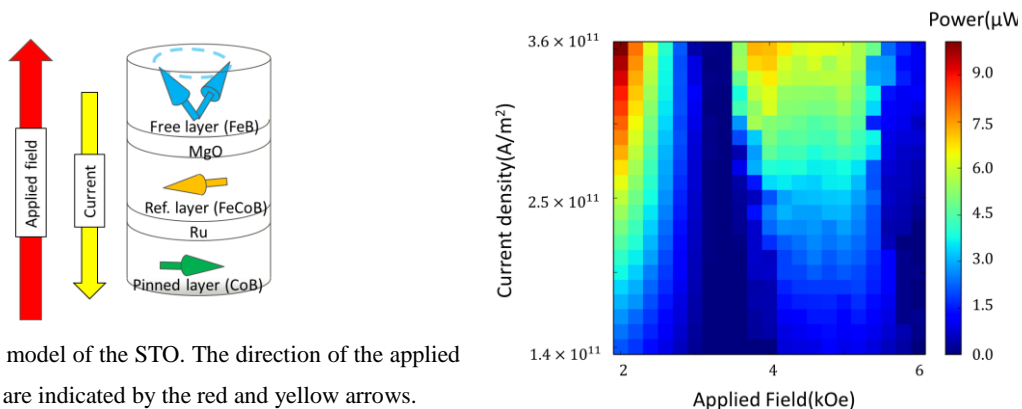


Fig.1 Simulation model of the STO. The direction of the applied field and current are indicated by the red and yellow arrows.

Fig.2 The map of the emission power of the STO, the diameter of which is 200nm.

## 参考文献

1) B. Wang. et al., Appl. Phys. Lett. (2016)

2) T. Taniguchi, et al., Appl. Phys. Express(2013)

# 共蒸着 Co-MgF<sub>2</sub> グラニューラー薄膜の透過率とファラデー効果

宮本光教\* \*\*、久保利哉\*、藤城佑太\*\*、塩田健太\*\*、佐藤敏郎\*\*、曾根原誠\*\*  
(\*シチズンファインデバイス株式会社, \*\*信州大学)

The faraday-effect and transmittance of Co-MgF<sub>2</sub> granular film prepared by Co-evaporation

M. Miyamoto\* \*\*, T. Kubo\*, Y. Fujishiro\*\*, K. Shiota\*\*, T. Sato\*\*, M. Sonehara\*\*

(\*Citizen Finedevice Co.,Ltd., \*\*Shinsyu University)

## はじめに

直線偏光は右回り円偏光と左回り円偏光が同位相であることと等価である。磁化された媒質中を直線偏光が通過したとき、左右円偏光間で生じる位相差は直線偏光の旋光角として観測される。このファラデー効果を利用する磁気光学デバイスにとって、透過光(=信号光)強度の確保は最も重要な課題の一つである。YIG結晶は、アイソレーターにも使用される透明な磁気光学材料の代表であって、薄膜としても近年、Ce置換YIG薄膜<sup>1)</sup>などが注目されている。また、Kobayashiらは、可視域から赤外域にかけて極めて高い透明性を持つ強磁性材料としてFeCo-(Al-Fluoride)グラニューラー薄膜を報告している<sup>2)</sup>。本稿では、印加磁場に対して線形応答する透明ファラデー素子を得ることを目指し、強磁性体としてCoを、マトリックスとしてMgF<sub>2</sub>を用いたCo-MgF<sub>2</sub>グラニューラー薄膜を各種条件下で作製した。その透過率とファラデー効果について評価した結果について報告する。

## 実験方法

CoおよびMgF<sub>2</sub>を別々の蒸発源から蒸発させ、ホウ珪酸ガラス(D263Teco)基板上で混合・堆積することによってグラニューラー薄膜を得た。CoとMgF<sub>2</sub>の混合比は、それぞれの蒸発レートによってコントロールし、堆積比Co:MgF<sub>2</sub>=1:2となるように成膜した。成膜中の基板温度は、<70, 250, 350, 450℃とした。また、これらの試料は成膜後に真空中で500℃×4hの条件下でアニール処理を行った。各試料について、著者らが構築した光ファイバーを用いたファラデー回転測定装置にて、λ=1550nmの光源を用いて測定した。

## 実験結果

Fig.1に、Co:MgF<sub>2</sub>堆積レート比1:2、基板温度350℃、厚さ1μmで作製されたグラニューラー薄膜の透過率を示す。成膜中の基板温度に比例して透過率は増大し、特に赤外域において高い値を示した。基板加熱による透過率の上昇はCoとMgF<sub>2</sub>の相分離とグラニューラー薄膜中のCo粒子径が密接に関係していると考えられる。上記と同じ試料の薄膜垂直方向における磁化曲線とファラデーループを、Fig.2に示す。グラニューラー薄膜は一般的に超常磁性を示し、その磁化曲線はLangevin関数に従う。しかし、特に高温下で作製されたCo-MgF<sub>2</sub>グラニューラー薄膜は、およそ±5kOe範囲で線形的な応答を示し、強磁性であった。単位厚さあたりの飽和ファラデー回転角は約0.44deg./μmと赤外域としては大きな値が得られた。

## 参考文献

- 1) Mehmet C.Onbasli *et al.*, Nature Scientific Reports 6, Article number 23640 (2016).
- 2) N.Kobayashi *et al.*, Nature Scientific Reports 6, Article number 34227 (2016).

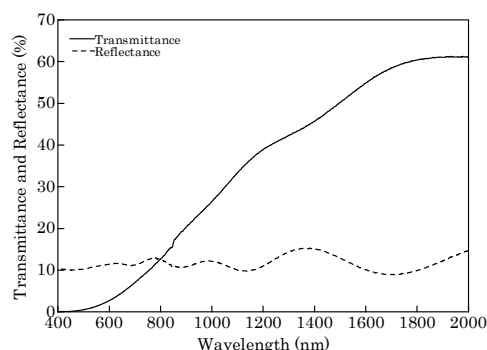


Fig.1 Optical spectrum of the Co-MgF<sub>2</sub> granular film.

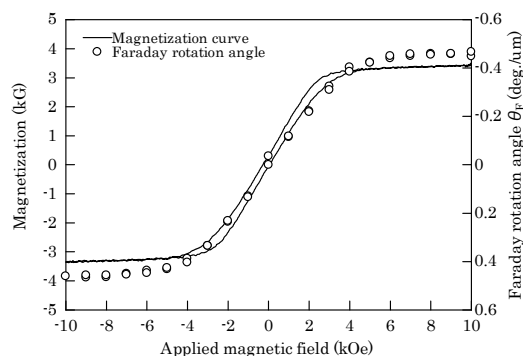


Fig.2 Magnetization curve and faraday-loop of the Co-MgF<sub>2</sub> granular film.

# FeCo-MgF ナノグラニューラー薄膜における高周波 TMD 効果

池田賢司<sup>1</sup>、小林伸聖<sup>1</sup>、藪上信<sup>2</sup>、荒井賢一<sup>1</sup>

(電磁材料研究所<sup>1</sup>、東北学院大学<sup>2</sup>)

High frequency TMD effect in FeCo-MgF nanogranular films

K. Ikeda<sup>1</sup>, N. Kobayashi<sup>1</sup>, S. Yabukami<sup>2</sup>, K. I. Arai<sup>1</sup>

(Research Institute for Electromagnetic Materials<sup>1</sup>, Tohoku Gakuin University<sup>2</sup>)

## はじめに

ナノグラニューラー薄膜は、数 nm の強磁性金属微粒子を絶縁体のマトリックス中に分散させた構造を有しており、磁性金属の含有量に応じて、高周波軟磁気特性、トンネル型磁気抵抗 (TMR) 効果などの物性を示すことで知られている。我々のグループは、FeCo-MgF ナノグラニューラー膜において、30 at.%以下の FeCo 組成域において誘電特性を示すことを確認し、磁界によって誘電率が変化する磁気誘電効果を発現することを見出した<sup>1)</sup>。この磁気誘電効果は、隣接する磁性粒子間のトンネル伝導によって形成される電気双極子、すなわちトンネル型磁気誘電 (TMD: Tunnelling Magneto Dielectric effect) 効果によって説明され、磁性粒子間のトンネル伝導によってその特性が大きく変化する予測される。特に、トンネル伝導の緩和時間の変化は、誘電率の高周波特性に大きく影響すると予測されることから、FeCo 組成の制御によって粒子間距離を変えた試料を作製し、伝送線路の線路間容量の測定を用いて高周波誘電特性を解析した。

## 実験方法

ナノグラニューラー薄膜は、FeCo と MgF<sub>2</sub> ターゲットを用いたタンデムスパッタ法によって成膜した。成膜は 200°C の加熱雰囲気で行い、Ar 雰囲気 (1 Pa) において、石英基板上に約 1 μm 形成した。それぞれのターゲットの電力を変えることによって組成を変えた試料を作製した。組成分析は WDS、微細構造は TEM によって解析した。磁化曲線は VSM を用いて測定した。比誘電率は、ナノグラニューラー薄膜上部に Au 電極で形成したコプレーナ型伝送線路 (50 Ω 整合: 終端開放) のシグナル-グランド間の線路間容量を測定し、ナノグラニューラー薄膜による容量の増加量を電磁界シミュレーションの計算結果と比較することによって算出した。容量測定は、ネットワークアナライザー (R&S: ZNB20) を用い、1 MHz から 10 GHz の周波数帯域で測定した。TMD 効果の周波数特性は、電磁石で最大 1 kOe の磁界を印加しながら容量を計測することによって算出した。

## 実験結果

Fig.1 にナノグラニューラー薄膜の断面 TEM 像を示す。FeCo 粒子 (暗部) が MgF マトリックス (明部) に分散した構造が観察されている。FeCo 組成の増加により、FeCo 粒子の若干の粒成長と、粒子間距離の減少が確認される。

比誘電率の周波数特性を Fig.2 に示す。比誘電率 (実線部) は、全周波数帯域において FeCo 30at.% 試料の値が高くなっており、緩和周波数の高周波化を示している。この結果は、FeCo 組成の増加に応じて隣接する磁性粒子間の距離が減少することにより、粒子間のトンネル伝導の緩和時間が減少することに起因すると考えられる。Fig.2 の破線は、緩和時間の分布を取り入れた Debye-Frölich モデルによる計算値であり、ナノグラニューラー薄膜の誘電緩和を良く説明することができる。この計算で用いた緩和時間は、FeCo 組成に応じて減少しており、TEM 観察で確認された粒子間距離の減少と対応した結果が得られている。

## 参考文献

- 1) N. Kobayashi et al., Nat. Commun. 5, 5417 (2014).

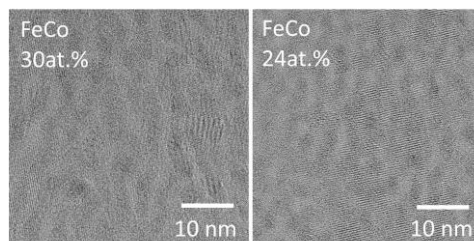


Fig.1 TEM images of FeCo-MgF films.

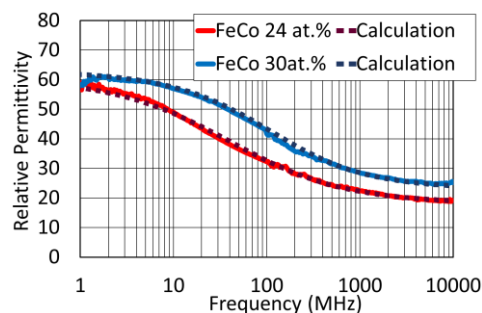


Fig.2 Frequency dependence of relative permittivity.

# 光透過性を有する磁性金属-フッ化物 ナノグラニューラー膜の磁気光学効果

小林伸聖, 池田賢司, 増本博\*, 高橋三郎\*\*, 前川禎通\*\*\*  
(電磁研, \*東北大学際研, \*\*東北大金研, \*\*\*原研先端基礎研)

Magneto-optic effects of metal-fluoride nanogranular films with optical transparency

N. Kobayashi, K. Ikeda, H. Masumoto\*, S. Takahashi\*\*, and S. Maekawa\*\*\*

(DENJIKEN, \*FRIS, Tohoku Univ., \*\*IMR, Tohoku Univ., \*\*\*ASRC, JAEA)

**はじめに**：良好な光透過性を有するフッ化物マトリックスに、粒径が数 nm 程度の微細な磁性金属グラニューラーが分散したナノグラニューラー膜は、光の波長に対し磁性金属グラニューラーの粒径が小さいため、光透過性と磁性の両方を同時に発揮することが期待できる。我々は、FeCo-AlF ナノグラニューラー膜に関し、その光透過性、磁性および磁気光学効果について検討した。その結果、加熱基板上に作製することにより FeCo の粒径を超常磁性の臨界直径よりも大きく設計することによって強磁性が得られ、さらにマトリックスの AlF<sub>3</sub> の結晶性が向上し光透過性が得られることが分かった。本報告では、FeCo-AlF ナノグラニューラー膜の光透過性と磁気特性また磁気光学効果について報告する。

**実験方法**：薄膜試料は、高周波スパッタ装置により、タンデム法によって作製した。ターゲットは FeCo 合金円板(75mm φ)と、MgF<sub>2</sub> 粉末焼結円板(75mm φ)を用いた。膜組成は、波長分散型分光分析法(WDS)を用いて分析し、構造解析は、高分解能透過電子顕微鏡(HRTEM)によって行った。膜の光透過率は、フーリエ変換赤外分光法(FTIR)を用いて測定した。また、磁場中で光透過率を計測し、その変化を測定した。磁化曲線は、振動試料磁力計(VSM)を用いて測定し、これらの磁場中の測定においては磁場は膜面平行に印加した。尚、各測定は室温で行った。

**結果**：図 1 には Fe<sub>9</sub>Co<sub>5</sub>Al<sub>19</sub>F<sub>67</sub> 膜の光透過率の波長依存性、図 2 には磁化曲線を示す。膜は、測定下限波長の 400nm 以下から光透過性を示し、マトリックスの AlF<sub>3</sub> 単体と同程度広い波長帯にわたって高い光透過性を示していることがわかる。また、磁化曲線は残留磁化を伴うヒステリシスを有し、この膜が強磁性であることが分かる。ナノグラニューラー膜における強磁性と光特性の両立は、その磁性は FeCo 合金から成るグラニューラーに起因し、光透過特性はマトリックスを構成する AlF<sub>3</sub> に起因している。

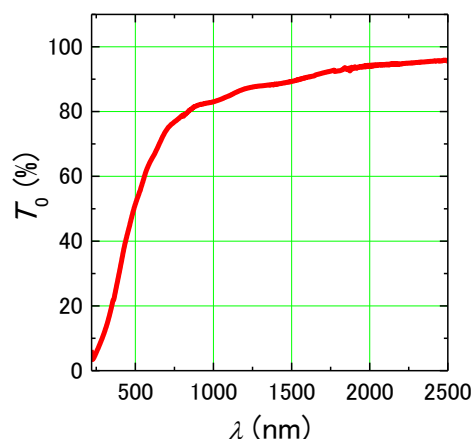


Fig.1 Optical transmittance of Fe<sub>9</sub>Co<sub>5</sub>Al<sub>19</sub>F<sub>67</sub> film.

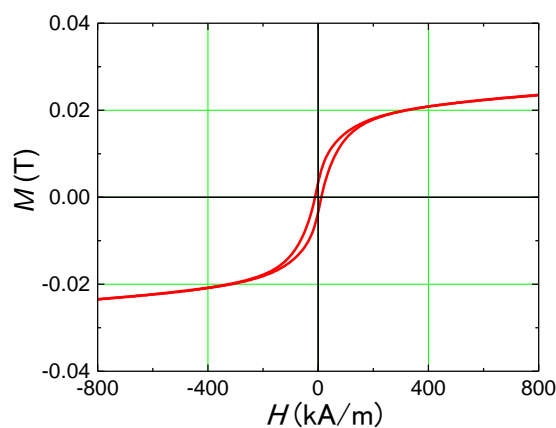


Fig.2 Magnetic curve of Fe<sub>9</sub>Co<sub>5</sub>Al<sub>19</sub>F<sub>67</sub> film.

# 酸化物磁性層による 90 度磁気結合を用いた疑似反強磁性層の作成

永島 玄、平山 雄大、湯浅 裕美  
(九州大)

Quasi antiferromagnetic layer by using 90 degree magnetic coupling through magnetic oxide layer  
G. Nagashima, Y. Hirayama, H. Yuasa  
(Kyushu Univ.)

## 研究目的

反強磁性体における Spin Transfer Torque (STT) が理論的に予測され、実験的にも磁化の微小変動が報告されている<sup>2,3)</sup>。しかし、隣接する磁気モーメント間の強い交換結合を断ち切る必要があるため、反強磁性体における STT の明白かつ実用的な実証はされていない。本研究では、反強磁性体の漏洩磁場ゼロという特徴を持ち、かつ強磁性体で簡単に観測される STT 発振、Spin Transfer Oscillation (STO) を実現させるため、酸化物磁性層による 90 度磁気結合を用いて疑似反強磁性層を作成した。

## 実験方法

熱酸化 Si 基板上に、次の膜構成でスパッタした。

Ta 5/Ru 2/Ir<sub>22</sub>Mn<sub>78</sub> t/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> 2 (A)/Fe 1/O<sub>2</sub> x kL/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> 2 (B)/Cu 3/Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> 2.5 (C)/Cu 1/Ta 5 (単位: nm)

CoFe(A)層は IrMn 層 (反強磁性層) により磁化が一方向に固着され、CoFe(A)層と CoFe(B)層で 90 度磁気結合し CoFe(B)層に疑似反強磁性層ができる。CoFe(C)層はフリー層である。IrMn 膜厚、酸素暴露量を変化させて試料を作成し、270 °C で 1 時間、4.1 kOe 磁場中アニール処理を行った。その後、VSM による磁化測定、磁気抵抗測定、高分解能断面 TEM 観察、強磁性共鳴 (FMR) 測定を行った。

## 実験結果

Fig. 1 にアニール方向 (0 deg) に対して垂直方向 (90 deg) における、IrMn 膜厚 5 nm、酸素暴露量 50 kL の試料の磁気曲線と CoFe(A)~(C)層の磁化状態を示す。これより、CoFe(A)層と (B) 層は 90 度磁気結合していることがわかる。この試料でのみ、90 度磁気結合が発現した。この原因を高分解能断面 TEM 観察で確認したところ、IrMn 膜厚が大きいとラフネスにより CoFe(A)層と (B)層でオレンジピール結合をしていたことがわかった。また、酸素暴露量が小さいと Fe が酸化されずに残っており、CoFe(A)層と (B)層で強磁性結合をしていたことがわかった。

Fig. 2 に 90 度磁気結合が確認された試料の FMR 測定結果を示す。20 GHz 以下でフリー層 (CoFe(C)層) のみ FMR が観測され、疑似反強磁性層 (CoFe(B)層) の FMR は観測されなかった。これは、疑似反強磁性層の FMR が Sub-THz 級であると予測され、本実験で用いた装置では測定できなかったためである。

以上より、疑似反強磁性層を作成することに成功した。今後は、疑似反強磁性層の FMR を観測するため、疑似反強磁性層の磁区形状を制御する予定である。

## 謝辞

九州大学の松山教授、田中助教、牙さんに VSM 測定で、九州大学の木村教授、大西助教、山野井さん、中野さんにアニール処理と FMR 測定でご協力いただきました。この研究の一部はキャノン財団研究助成『産業基盤の創生』により行われました。

## 参考文献

- 1) A. S. Núñez *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 214426 (2006).
- 2) Z. Wei *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 116603 (2007).
- 3) T. Moriyama *et al.*, Appl. Phys. Lett. **106**, 162406 (2015).

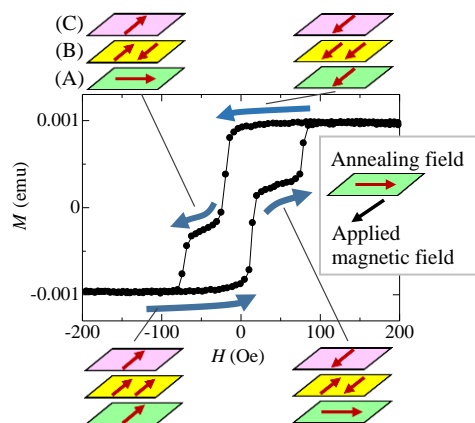


Fig.1 MH curve and the schematic image of magnetization of (A) ~ (C) layers in 90 deg

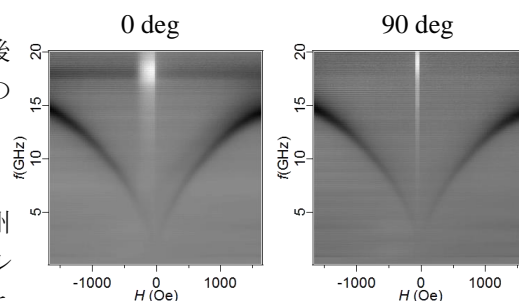


Fig.2 FMR spectral mapping

# スパッタ法により成膜した CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 薄膜の微細構造と磁気特性

川上 哲朗・神島 謙二・柿崎 浩一  
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Microstructure and magnetic properties of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> thin films fabricated by sputtering method

T. Kawakami, K. Kamishima, and K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

## 1. 緒言

近年、データ量の増加に伴い、磁気記録媒体には大容量高記録密度化が求められている。CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(CFO)は薄膜化することで非常に大きな保磁力を示し、安価に作製可能であることから高密度磁気記録媒体としての応用が期待されている材料である。本研究では O<sub>2</sub> ガス分圧を制御しながら反応性スパッタ法により CFO 薄膜を合成石英ガラス基板上に成膜し、その微細構造および磁気特性について調べたので報告する。

## 2. 実験方法

CFO 薄膜は rf マグネトロンスパッタ法により成膜した。ターゲットには Fe 円板(76 mm<sup>φ</sup>)上に Co チップを貼り付けたものを使用した。チャンバー内を 6.0×10<sup>-7</sup> Torr 以下に排気後、Ar および O<sub>2</sub> ガスを導入し、全圧を 10 mTorr とした。その際、酸素分圧は 0~20 % の範囲で変化させた。投入電力は 4.4 W/cm<sup>2</sup> とし、膜厚約 50 nm となるように合成石英ガラス基板上に成膜した。作製した試料の結晶構造は X 線回折法(XRD)により解析し、磁気特性は最大印加磁場 20 kOe の振動試料型磁力計(VSM)により測定した。

## 3. 結果および考察

Fig. 1 は酸素分圧 0~20 % で成膜後、大気中、800°C で 2 時間熱処理した CFO 薄膜の X 線回折図を示す。全ての試料において CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 相(311)面からの回折線が現れており、CFO の生成が確認できる。しかし、これらの CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 相の回折強度は小さく結晶性は良くない。これは試料の膜厚が約 50 nm と薄く、CFO の結晶粒子が成長しなかったためと考えられる。また酸素分圧 0 % の膜では CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 相(400)面の回折線も認められる。

Fig. 2 はこれらの試料の飽和磁化値( $M_s$ )、膜面内方向の保磁力( $H_{c//}$ )、および膜面垂直方向の保磁力( $H_{c\perp}$ )の酸素分圧依存性を示す。飽和磁化は約 300 emu/cm<sup>3</sup> である。一方、保磁力は酸素分圧 0 % の試料において  $H_{c\perp}$ =10.1 kOe、 $H_{c//}$ =3.7 kOe であり、垂直磁気異方性を示す。これに対して酸素分圧の上昇に伴い、 $H_{c\perp}$  と  $H_{c//}$  の差が小さくなり、磁気的に等方な膜となる。大きな保磁力は膜と基板との熱膨張率の差により生じる膜面垂直方向の圧縮歪みによるものと考えられる<sup>2)</sup>。

## 参考文献

- 1) T. Niizeki, *et al.* : Appl. Phys. Lett., 103 (2013) 162407.
- 2) S. E. Shirsath, *et al.* : Sci. Rep., 6 (2016) 30074.

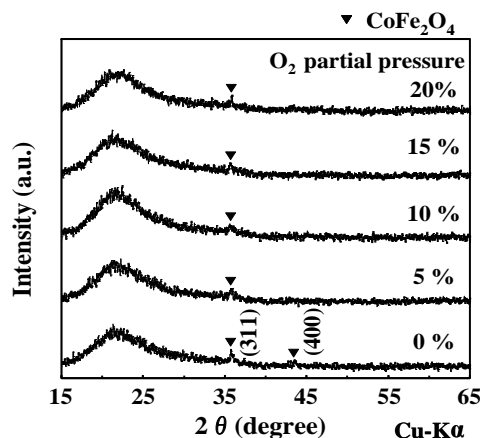


Figure 1 XRD patterns of the CFO films deposited at various O<sub>2</sub> partial pressures, then post annealed at 800°C for 2 hours in air.

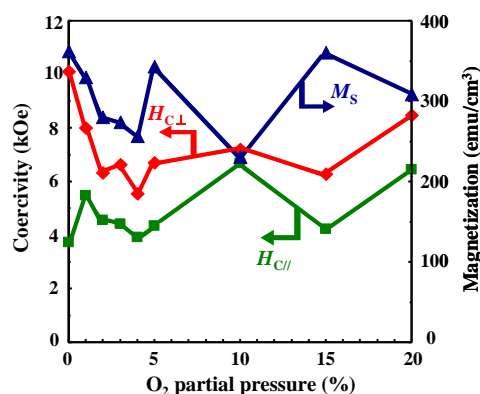


Figure 2 Magnetic properties of the CFO films deposited at various O<sub>2</sub> partial pressures, then post annealed at 800°C for 2 hours in air.

## 緩衝層膜によるコバルトフェライト薄膜の歪と磁気異方性制御

小野田 浩成<sup>1</sup>, 井上 順一郎<sup>1</sup>, 介川 裕章<sup>2</sup>, Sonia Sharmin<sup>1</sup>, 柳原 英人<sup>1</sup>

(1.筑波大学, 2.物材機構)

Control of epitaxial strain and magnetic anisotropy in cobalt-ferrite thin films by buffer layers

H. Onoda<sup>1</sup>, J. Inoue<sup>1</sup>, H. Sukegawa<sup>2</sup>, S. Sharmin<sup>1</sup>, and H. Yanagihara<sup>1</sup>

(Univ. of Tsukuba<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>)

### はじめに

MgO(001)上にエピタキシャル成膜されたコバルトフェライト ( $\text{Co}_x\text{Fe}_{3-x}\text{O}_4$ :CFO) 膜は垂直磁気異方性を示し, その垂直磁気異方性エネルギー  $K_u$  は  $14.7 \text{ Merg/cm}^3$  に達する[1]. この CFO/MgO(001)膜における垂直磁気異方性は, 基板との格子不整合 (-0.48%) による磁気弾性効果で生じると理解されている[2]. 一方で,  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ (001)に CFO 膜を成膜すると面内圧縮歪が導入され,  $K_u = -60 \text{ Merg/cm}^3$  が生じる[3]. どちらの基板上に成膜した場合も, 誘導される  $K_u$  は歪に対して線形に変化することが確認された. したがってこの格子歪の範囲では, CFO の誘起磁気異方性は現象論である磁気弾性効果によって定量的に説明できる. そのため, 3~4%程度の引張り歪を導入することで, さらに大きな垂直磁気異方性の発現が期待できる. そこで本研究では, MgO と比して格子定数の大きいスピネル型酸化物  $\text{Mg}_2\text{SnO}_4$ (MSO)を緩衝層として導入し, その上に成膜した CFO 膜の歪と磁気異方性の関係を実験的に明らかにすることとした.

### 方法

緩衝層である MSO(001)を単結晶 MgO(001)基板上に Mg 金属ターゲットと Sn 金属ターゲットを用いた 2 元同時反応性 RF スパッタリングにより作製した. MSO 膜の膜厚は 10 nm とした. 続いて, CFO(001)を CoFe 合金ターゲットを用いた反応性 RF スパッタリング法で MSO(001)上に作製した. CFO 膜の作製は, 基板温度  $500^\circ\text{C}$ , 酸素流量  $8 \text{ sccm}$  とした. 試料評価として, 反射高速電子線回折 (RHEED)・X 線回折法・磁気トルク測定・磁化測定を行なった.

### 実験結果

MSO(001)および CFO(001)成膜後の RHEED 像はいずれもストリークであることから, 薄膜の表面は平坦でかつ単結晶成長していることが分かった. Fig.1 に CFO(5 nm)/MSO/MgO(001)膜におけるスピネル(115)近傍の逆格子マップ (RSM) を示す. 図中に示した×印は, MSO と CFO の(115)の逆格子点である. 2つの逆格子点と同じ横軸の直線上に並ぶことから CFO の面内の格子定数が MSO の格子定数に拘束されていることが分かる. 逆格子点の位置から格子定数を求めた結果,  $\epsilon_{\text{in-plane}} = 1.83\%$ ,  $\epsilon_{\text{perp.}} = -1.52\%$ の歪が CFO 膜に導入されていることが確認された. 磁気トルク測定の結果から,  $K_u$  が  $40 \text{ Merg/cm}^3$  を超えることが確認された. また, CFO の膜厚に伴い, 導入された歪が変化することが分かった.

講演当日は, 上記に加え, CFO の各膜厚における格子歪と磁気特性の評価に基づき, 磁気異方性と歪の関係についても議論する.

### 参考文献

- 1) T. Niizeki et al., Appl. Phys. Lett. 103, 162407 (2013).
- 2) J. Inoue, et al., IEEE Trans. Mag., 49, 3269 (2013).
- 3) 田結荘他 第 39 回日本磁気学会学術講演会 08pB-14.

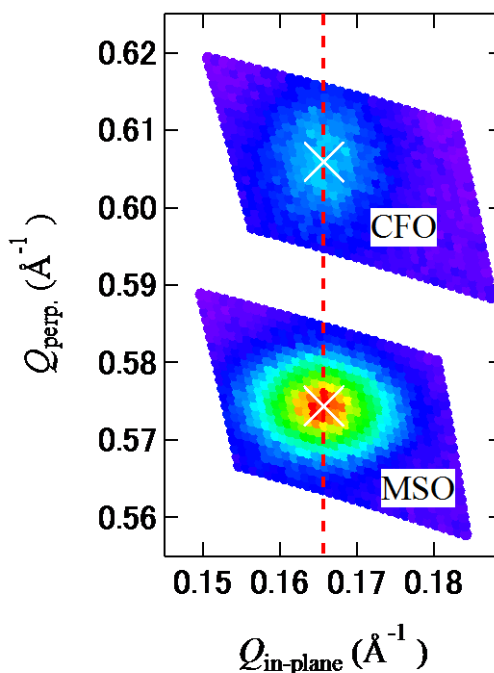


Fig. 1 RSM of CFO and MSO (115) on MgO substrates. (CFO thickness: 5 nm)

# Mn<sub>2</sub>VAl/Fe 積層膜における交換バイアス特性の熱処理条件依存性

土屋朋生<sup>1</sup>, 小林亮太<sup>1</sup>, 窪田崇秀<sup>1,2</sup>, 高梨弘毅<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>2</sup> 東北大学 スピントロニクス学術連携研究教育センター)

## The effect of the annealing condition on exchange bias properties of Mn<sub>2</sub>VAl/Fe bilayers

Tomoki Tsuchiya, Ryota Kobayashi, Takahide Kubota, and Koki Takanashi

(<sup>1</sup>Institute for Materials Research, Tohoku Univ., <sup>2</sup> CSRN, Tohoku Univ.)

### 緒言

ハードディスクドライブ (HDD) の磁気センサや磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) などのスピントロニクスデバイスにはスピバルブ構造が用いられている。スピバルブ中の反強磁性体は一方向磁気異方性により隣接する強磁性層の磁化を固定する役割を担っている。Mn<sub>3</sub>Ir は高交換結合磁界と高ブロッキング温度を両立する魅力的な材料であるため、スピバルブ構造に広く用いられているが、Ir は希少金属であり、元素戦略的な観点から使用量の削減が望まれる。本研究では Mn<sub>3</sub>Ir の代替材料として、ホイスラー合金 Mn<sub>2</sub>VAl に注目した。反強磁性ホイスラー合金は、Co-Fe 合金やハーフメタルホイスラー合金などのスピン偏極率が高い強磁性体材料と格子整合性が良く特性の向上が期待できる。他方、反強磁性ホイスラー合金を用いた交換バイアス効果の研究は少なく、系統的な実験による知見の蓄積が必要である。Mn<sub>2</sub>VAl はバルクにおいて A2 構造の時に反強磁性となり、そのネール温度は 600 K 以上と室温よりも十分に高い値であることが報告されている[1]。我々は 2016 年学術講演会で A2 構造の Mn<sub>2</sub>VAl と強磁性体 Fe 積層膜における交換磁気異方性を報告したが[2]、本講演では、Mn<sub>2</sub>VAl/Fe 積層膜の交換バイアス特性の向上を目的とし、熱処理条件を系統的に変化させ、その交換バイアス特性を調査することを目的とした。

### 実験方法

薄膜試料は MgO(100)単結晶基板上に DC マグネトロンスパッタ法を用いて作製した。Mn<sub>2</sub>VAl の膜厚は 100 nm とし、成膜温度を室温から 800°C の範囲で変化させた。Mn<sub>2</sub>VAl 薄膜上に強磁性層の Fe とキャップ層の Ta をそれぞれ 3 nm、室温で成膜した。Mn<sub>2</sub>VAl 薄膜の組成は合金ターゲットを使用することにより化学量論組成に調整した。作製した試料の結晶構造は X 線構造回折法 (XRD)、磁気特性は振動試料型磁力計 (VSM) により測定した。交換バイアスは、300 K から 10 K まで印加磁場 1 T において磁場中冷却を行った後に磁化曲線を測定し評価した。

### 結果

XRD 測定の結果、全ての試料において、Mn<sub>2</sub>VAl が MgO (100)単結晶基板上に(001)配向でエピタキシャル成長していることが確認された。また、成膜温度が室温, 300, 400, 700, 800°C の試料は A2 相、500, 600°C の試料は L2<sub>1</sub> 相となることが確認された。Mn<sub>2</sub>VAl/Fe 積層試料において、Mn<sub>2</sub>VAl 層の成膜温度 400°C の条件で、成膜後の *in situ* アニール(400°C、180 分間)の有無による交換バイアスの差異を調査した。その結果 10 K におけるシフトの大きさは *in situ* アニール無しの 120 Oe に対し、アニール有りの試料では 230 Oe まで増大した。また、交換バイアスシフトが消失する温度であるブロッキング温度は *in situ* アニールを行うことで、200 K から 275 K まで増大した。両試料間の交換バイアス特性の差は、アニールの有無による結晶性の違いが影響していると考えられる。

### 謝辞

本研究の一部は JST 国際科学技術共同研究推進事業 (SICORP-EU, HARFIR) および東北大学金属材料研究所新素材共同研究開発センター共同利用研究 (17G0409) の支援を受けて行われた。

### 参考文献

- [1] 貝沼亮介、日本金属学会 2015 年秋期講演大会、S4・12、(2015)
- [2] 土屋朋生、日本磁気学会 第 40 回学術講演会概要集、8pC-7 (2016).



## Ru 下地層上の CoNi 人工格子の磁気特性

菊池直登<sup>1</sup>、伊藤啓太<sup>1,2</sup>、関剛斎<sup>1,2</sup>、高梨弘毅<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>東北大学 金属材料研究所, <sup>2</sup>東北大学 スピントロニクス学術連携研究教育センター)

Magnetic properties of CoNi superlattices on Ru under layers

Naoto Kikuchi<sup>1</sup>, Keita Ito<sup>1,2</sup>, Takeshi Seki<sup>1,2</sup>, Koki Takanashi<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>IMR, Tohoku Univ. <sup>2</sup>CSRN, Tohoku Univ.)

### はじめに

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)は不揮発性による低消費電力、高速動作が期待されるデバイスである。MRAM に用いられる強磁性材料には、高い軸磁気異方性エネルギー( $K_u$ )と、低いダンピング定数( $\alpha$ )が求められる。高い  $K_u$  を持つ材料として貴金属元素を含む規則合金が挙げられるが、同時に大きなスピン軌道相互作用から  $\alpha$  も増大する傾向がある。そこで本研究では貴金属元素を含まない高  $K_u$  材料として CoNi 規則合金に着目した。Co と Ni を単原子層(monolayer: ML)の単位で交互に積層することにより、高い  $K_u$  を持つ CoNi 垂直磁化膜を得られることが報告されている<sup>1,2)</sup>。理論計算からの予想では、 $\alpha$  を低くするためには Co と Ni を 1 原子層ごとに交互積層することが望ましい。このとき CoNi 合金は fcc 積層である  $L1_1$  構造または hcp 積層である  $B_h$  構造を持つと予想されるが、第一原理計算の結果から  $B_h$ -CoNi がより大きな  $K_u$  を持つことが示唆されている<sup>2)</sup>。本研究では CoNi の下地層に hcp 構造を持つ Ru を用いることで  $B_h$ -CoNi を得ることにより、貴金属元素を含まない高  $K_u$  かつ低  $\alpha$  の強磁性材料の作製を目的とした。

### 実験

硝酸3%エタノール溶液で処理した  $Al_2O_3(11-20)$  基板を  $800^\circ C$  でフラッシングし、分子線エピタキシー(MBE)法により室温または  $150^\circ C$  で Ru を 20 nm 成膜し  $800^\circ C$  でアニーリングを行った。次に、これらの Ru 下地層上へ MBE 法により室温において Co と Ni を 1 ML ずつ交互に 20 回積層し、Au キャップ層を施した。表面形態を反射高速電子線回折(RHEED)、結晶構造を X 線回折(XRD)、磁気特性を振動試料型磁束計(VSM)で評価した。

### 結果

$\omega$ - $2\theta$  XRD 測定の結果から、いずれの試料も  $Al_2O_3(11-20)$  基板上での Ru(0001)および CoNi(0001) or (111)配向でのエピタキシャル成長が、 $\phi$ -scan XRD 測定の結果から双晶構造が確認された。CoNi の RHEED 像は、Ru を  $150^\circ C$  で成膜した試料の方がシャープな回折像となった。Fig. 1 に室温で Ru を成膜した試料、Fig. 2 に  $150^\circ C$  で成膜した試料の室温での磁化曲線を示す。Fig. 2 の  $150^\circ C$  で Ru を成膜した試料で垂直磁気異方性が確認され、 $K_u = 6.1 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> となった。これは Ru 下地層の成長温度の上昇により CoNi 層の結晶配向も改善されたためと考えられる。この試料に対してより詳細な  $\phi$ -scan XRD 測定を行ったところ、少量ながらも hcp-CoNi の存在を確認できた。今後は、hcp-CoNi の体積割合と  $K_u$  の増大を目指す。

### 謝辞

本研究は JSPS 科研費基盤 S(No. 25220910)の支援を受けた。

### 参考文献

1)S. Girod *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 262504 (2009). 2)T. Seki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., accepted for publication.

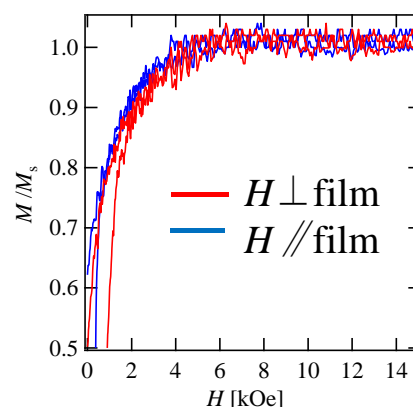


Fig. 1  $M$ - $H$  curves of CoNi on Ru deposited at RT.  $M_s = 910$  emu/cm<sup>3</sup>.

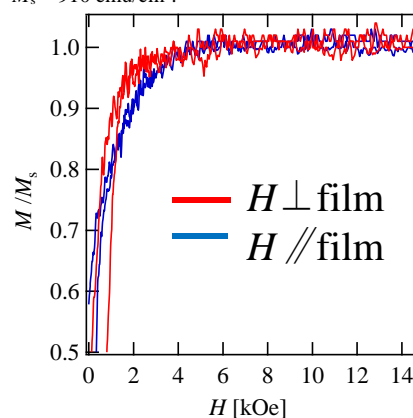


Fig. 2  $M$ - $H$  curves of CoNi on Ru deposited at  $150^\circ C$ .  $M_s = 970$  emu/cm<sup>3</sup>.

## 単結晶および多結晶 Ni/Ni-Co 積層膜の磁歪挙動

芹澤伽那<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・大竹充<sup>1,2</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>中央大, <sup>2</sup>工学院大, <sup>3</sup>東京藝大, <sup>4</sup>山形大)

### Magnetostriction Behaviors of Single- and Poly-Crystalline Ni/Ni-Co Bi-Layer Films

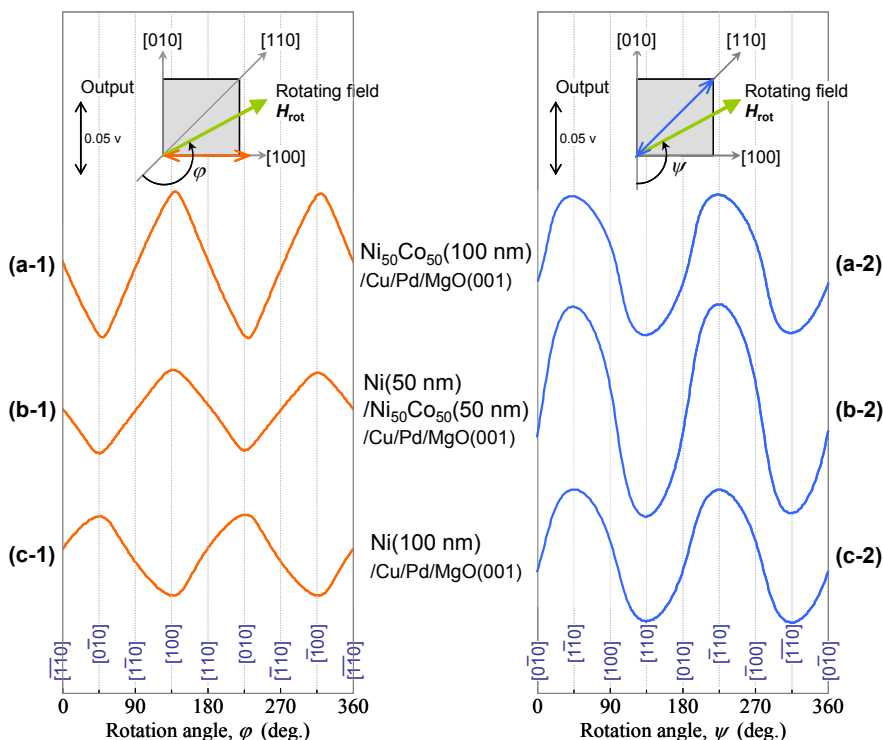
Kana Serizawa<sup>1</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1,2</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, and Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts., <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** 軟磁性材料は磁気ヘッドやセンサなどの磁気デバイスから変圧器やモータなどの電磁エネルギー変換機器まで幅広く活用されている。デバイスや機器の性能向上には保磁力などの基本磁気特性に加え、磁歪の制御も要求される場合がある。また、軟磁性材料はデバイスや機器中においてしばしば交番磁界にさらされる。従って、回転磁界を用いて磁歪挙動を調べることが有効である<sup>1)</sup>。これまで、我々は、回転磁界中における Ni<sub>100-x</sub>Co<sub>x</sub>(001)<sub>fcc</sub> 単結晶膜 ( $x = 0-100$  at. %) の磁歪挙動を調べてきた<sup>2)</sup>。本研究では、正の  $\lambda_{100}$ <sup>3)</sup>を持つ Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 合金と負の  $\lambda_{100}$ <sup>3)</sup>を持つ Ni を積層させた単結晶および多結晶積層膜を形成することにより、磁歪特性の制御を試みた。

**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た。単結晶膜形成には、MgO(001)基板にヘテロエピタキシャル成長させた Cu(001)単結晶下地層、多結晶膜形成にはガラス基板を用いた。そして、これらの上に Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub>(100- $t$  nm)/Ni( $t$  nm)二層膜を形成した ( $t = 0-100$  nm)。構造評価には RHEED および XRD、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(a-1)および(c-1)にそれぞれ Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 単層膜 ( $t = 0$ ) および Ni 単層膜 ( $t = 100$ ) の fcc[100]方向に対して観察を行った磁歪の出力波形を示す。Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 単層膜に対しては正の  $\lambda_{100}$ , Ni 単層膜に対して負の  $\lambda_{100}$  を示す出力波形が観察されている。また、Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 膜の方が Ni 膜よりも出力の絶対値が大きいことが分かる。

Fig. 1(b-1)に Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub>/Ni 二層膜 ( $t = 50$ ) の出力波形を示す。正と負の  $\lambda_{100}$  をそれぞれ持つ Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> および Ni の磁歪特性が重畳され、Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 単層膜 (Fig. 1(a-1)) に比べ、Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub>/Ni 二層膜 (Fig. 1(b-2)) の出力は半分程度まで低下していることが分かる。Fig. 1(b)に上述の3種類の膜に対して観察方向を fcc[110]とすることにより測定した磁歪の出力波形を示す。いずれの膜に対しても、同程度の負の  $\lambda_{111}$  を示す出力波形が現れており、二層膜にすることによる出力の低下は認められない。以上のことから、単結晶の場合、積層膜の磁歪挙動においても、膜面内における観察結晶方位の依存性があることが分かる。当日は、二層膜の層厚比を詳細に変化させた結果および単結晶膜と同様な条件で形成した多結晶二層膜の磁歪挙動についても報告する。



**Fig. 1** Output waveforms of magnetostriction observed for (001) single-crystalline (a) Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub>(100 nm) single-layer (b) Ni(50 nm)/Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub>(50 nm) bi-layer, (c) Ni(100 nm) single-layer films along (a-1)–(c-1) [100] and (a-1)–(c-2) [110].

- 1) M. Enokizono, T. Suzuki, and J. Sievert: *IEEE Trans. Magn.*, **26**, 2067 (1990).
- 2) K. Serizawa, T. Kawai, M. Ohtake, M. Futamoto, F. Kirino, and N. Inaba: to be published in *IEEE Trans. Magn.*, **53** (2017).
- 3) S. Ishio, T. Kobayashi, H. Saito, S. Sugawara, and S. Kadowaki: *J. Magn. Magn. Mater.*, **164**, 208, (1996).

# Cr(100)単結晶下地層に形成した Sm-Co<sub>1-x</sub>Cu<sub>x</sub> および Er-Co<sub>1-y</sub>Cu<sub>y</sub> 合金薄膜の構造解析

大竹充<sup>1,2</sup>・落合亮真<sup>2</sup>・鈴木中<sup>2</sup>・二本正昭<sup>2</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>工学院大, <sup>2</sup>中央大, <sup>3</sup>東京藝大, <sup>4</sup>山形大)

Structure Analysis of Sm-Co<sub>1-x</sub>Cu<sub>x</sub> and Er-Co<sub>1-y</sub>Cu<sub>y</sub> Alloy Thin Films Formed on Cr(100) Single-Crystal Underlayer

Mitsuru Ohtake<sup>1,2</sup>, Ryoma Ochiai<sup>2</sup>, Ataru Suzuki<sup>2</sup>, Masaaki Futamoto<sup>2</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, and Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>

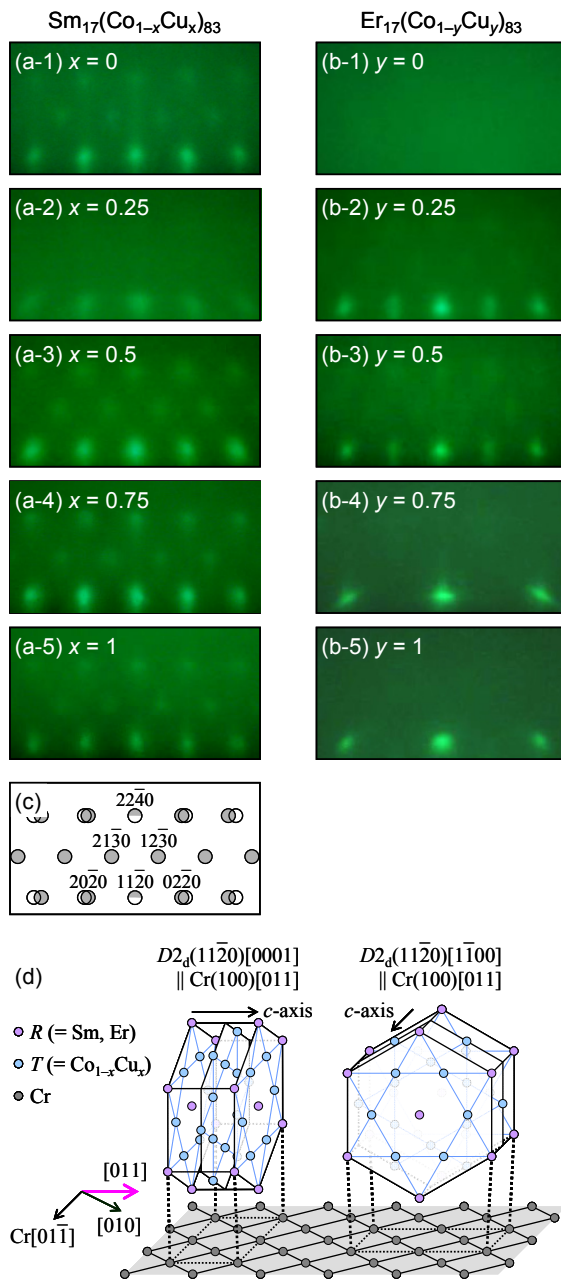
(<sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** 高  $K_u$  磁性薄膜は磁気記録媒体などへの応用に向けて研究されており、また、異方性ナノコンポジット磁石の基礎検討にも用いられている。希土類金属 ( $R$ ) と Co からなる  $D2_d$  型六方規則格子構造を持つ  $RCo_5$  合金は  $10^7 \sim 10^8 \text{ erg/cm}^3$  の高い  $K_u$  を持つものが多い<sup>1)</sup>。また、 $R$  元素の原子番号の増加に伴い ( $57 \Rightarrow 68$ ),  $M_s$  と  $T_c$  が増加する傾向が認められる。しかしながら、バルク状態では 66 番以降の  $R$  元素 ( ${}_{66}\text{Dy}$ ,  ${}_{67}\text{Ho}$ ,  ${}_{68}\text{Er}$ ) からなる  $RCo_5$  規則相は  $1100 \text{ }^\circ\text{C}$  以下において準安定である<sup>2)</sup>。 $RCo_5$  規則相は Co サイトを Cu 原子で部分置換することにより安定化させられることが Sm-Co 合金に対して報告されており<sup>3)</sup>,  ${}_{66-68}R\text{-Co}$  合金に対しても同様な効果が期待される。本研究では、Cu/Co 組成比  $x$ ,  $y$  を変化させることにより  $\text{Sm}_{17}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_{83}$  および  $\text{Er}_{17}(\text{Co}_{1-y}\text{Cu}_y)_{83}$  合金膜 (at. %) を Cr(100)単結晶下地層上に形成し、規則相の安定化を試みた。

**実験方法** 膜形成には超高真空 MBE 装置を用いた。MgO(100)基板上に 20 nm 厚の Cr(100)下地層を形成し、その上に Cu/Co 組成比  $x$ ,  $y$  を 0 から 1 の間で変化させた状態で 20 nm 厚の  $\text{Sm}_{17}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_{83}$  もしくは  $\text{Er}_{17}(\text{Co}_{1-y}\text{Cu}_y)_{83}$  合金膜を形成した。膜形成時の基板温度は  $500 \text{ }^\circ\text{C}$  とした。構造評価には RHEED および XRD, 磁気特性評価には VSM を用いた。

**実験結果** Fig. 1(a)に  $\text{Sm}_{17}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_{83}$  膜に対して観察を行った RHEED パターンを示す。いずれの組成比  $x$  に対しても、Fig. 1(c)に示す  $D2_d(11\bar{2}0)$  表面に対応する回折パターンが現れており、エピタキシャル膜が形成されていることが分かる。RHEED 解析から決定した Cr 下地層に対する方位関係は  $RT_5(11\bar{2}0)[0001]$ ,  $(11\bar{2}0)[1\bar{1}00] \parallel \text{Cr}(100)[011]$  である。 $\text{Sm}_{17}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_{83}$  膜は  $c$  軸が面内に存在し、互いに直交した方位関係を持つ 2 つの  $D2_d$  バリエーションから構成されていることが分かった。Fig. 1(b)に  $\text{Er}_{17}(\text{Co}_{1-y}\text{Cu}_y)_{83}$  膜の RHEED パターンを示す。 $y = 0$  では、不鮮明なパターンが現れており、結晶化が起きていないことが分かる。 $y$  を 0.25 まで増加させると、 $\text{Sm}_{17}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_{83}$  膜と同様に  $D2_d(11\bar{2}0)$  表面に対応する回折パターンが観察されており、Cu 原子による部分置換により規則相形成が促進されていることが分かる。 $y$  が 0.75 まで増加すると、 $D2_d(11\bar{2}0)$  表面とは異なる回折パターンが観察されている。したがって、 $D2_d$  規則相の安定化のためには、Cu 原子による置換量の制御も重要であることが分かる。

1) K. J. Strnat: Handbook of Ferromagnetic Materials (Elsevier Science B. V., New York, 1988). 2) T. B. Massalski: Binary Alloy Phase Diagrams (ASM International, Ohio, 1990). 3) F. Hofer: IEEE Trans. Magn., 6, 221 (1970).



**Fig. 1** RHEED patterns observed during formation of (a)  $\text{Sm}_{17}(\text{Co}_{1-x}\text{Cu}_x)_{83}$  and (b)  $\text{Er}_{17}(\text{Co}_{1-y}\text{Cu}_y)_{83}$  films on Cr(100) underlayers. (c) Schematic diagram of RHEED pattern simulated for  $D2_d(11\bar{2}0)$  surface. (d) Epitaxial orientation relationship between  $D2_d(11\bar{2}0)$  crystal and Cr(100) underlayer.

# GdFeCo フェリ磁性体界面近傍磁気不均一構造の検討

二川康宏<sup>1</sup>, Souliman EL Moussaoui<sup>2</sup>, 吉川大貴<sup>1</sup>, 笠谷 雄一<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 日本大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup> 日本大学理工学部)

Investigation of magnetic inhomogeneous structures at interfaces in GdFeCo ferrimagnetic thin film

Yasuhiro Futakawa<sup>1</sup>, Souliman EL Moussaoui<sup>2</sup>, Hiroki Yoshikawa<sup>1</sup>, Yuichi Kasatani<sup>2</sup>, Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ., <sup>2</sup> College of Science and Technology, Nihon Univ.)

**はじめに:** 磁気記録メモリやスピントルクオシレータなどのデバイスでは磁気動特性が重要となる。これらのデバイスでは, Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式の第二項の Gilbert 減衰定数  $\alpha$  により磁化反転時間や電流印可時の反転電流閾値が決定される。 $\alpha$  は元素種や結晶構造に依存した内的要因に加え、磁性体の微細構造化、薄膜化などの界面条件に代表される外的要因の寄与が想定されているが、その  $\alpha$  との相関は明確にはされておらず、微細構造/多層薄膜磁性材料における磁化の動的挙動の解明・制御が求められている。本研究では、膜面垂直方向に一軸磁気異方性を有するアモルファス GdFeCo フェリ磁性薄膜の磁性体界面に着目し、 $\alpha$  との相関について検討を行う。GdFeCo フェリ磁性体は磁気特性に鋭敏な組成依存性を示し、磁化補償現象や角運動量補償現象、独特なスピン動特性<sup>(1),(2)</sup>を発現する。GdFeCo 単層膜のある膜厚範囲において飽和磁化や磁化動特性パラメータが膜厚により連続的に大きく変化することを明らかにしており<sup>(3)</sup>、これは界面近傍領域において実効的組成比の異なる特性が発現した膜厚方向に対する不均一構造の存在を示唆している。本報告ではこの界面磁気不均一に対し、磁気特性の膜厚依存性の寄与を抑制する層構成を提案し、検討を行った。

**実験方法:** 磁気静特性の評価には、試料振動型磁力計(Vibrating Sample Magnetometer : VSM)を用いた。測定試料には Gd 組成を膜厚に依らず遷移金属優勢の  $x = 22$  at.%, 正味の磁化が 0 となる磁化補償点を挟む  $x = 25$  at.% とし、マグネトロンスパッタ法で成膜した試料群 A, C : SiN(60nm) / Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (  $t$  nm ) / SiN(5 nm) / glass sub. ( $x = 22$ :A, 25:C at.%) ( $t = 5 \sim 60$ nm) を用いた。また、試料群 A の界面近傍領域の磁気不均一の均質化を目的とし、同様の手順で作製した試料群 B, D : SiN(60 nm) / Gd(1 nm) / Gd<sub>x</sub>(Fe<sub>87.5</sub>Co<sub>12.5</sub>)<sub>100-x</sub> (  $t$  nm ) / Gd(1 nm) / SiN(5 nm) / glass sub. ( $x = 22$ :B, 25:D at.%) ( $t = 5 \sim 60$ nm)を用いた。

## GdFeCo フェリ磁性体界面近傍磁気不均一構造の検討

試料群 A, C における飽和磁化の膜厚依存性を Fig.1 に示す。また、試料群 B, D における飽和磁化の膜厚依存性を Fig.2 に示す。試料群 A, C では作製した全膜厚範囲で、飽和磁化  $M_s$  の大きな膜厚依存性が確認された。膜厚依存性は定性的に膜厚に依らず界面近傍に一定の厚さの範囲に異なる磁気特性が発現しているものとして説明でき、低含有率の希土類組成が更に低下するように振る舞う。これに対し、提案した構造の試料群 B, D では試料群 A, C で確認されたような飽和磁化の膜厚依存性はほぼ見られない。隣接した Gd 層を設けることで、組成から期待される GdFeCo の磁気特性を膜厚に依らず発現可能であることを示した。

**謝辞:** 本研究の一部は平成 25~29 年度文部科学省私立大学戦略的基盤形成事業(S1311020), 平成 26~30 年度文部科学省科学研究費補助金 新学術領域研究 (研究領域提案型) ナノスピン変換科学(Grant No. 26103004), 情報ストレージ研究推進機構の助成により行った

## 参考文献

1. C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing, *Phys. Rev. B* **73**, 220402 (R) (2006)
2. A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, *Journal of Applied Physics*, **109**, 07D302 (2011)
3. R. Ueda, H. Yoshikawa, T. Sato, and A. Tsukamoto, *Digests of MORIS 2015*, Mo-P-06, Penang, 2015.

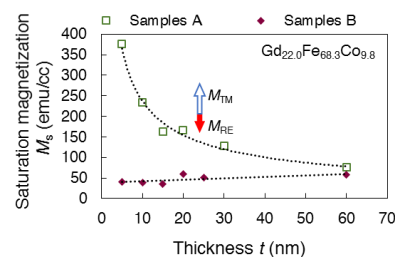


Fig.1 Thickness dependency of  $M_s$  in samples A and B measured by VSM.

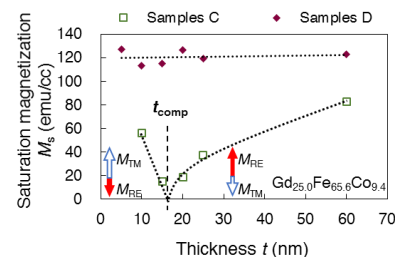


Fig.2 Thickness dependency of  $M_s$  in samples C and D measured by VSM.

# Fe-Ga 薄膜における高周波磁気特性の膜厚依存性

遠藤 恭, 坂井 拓美, 宮崎 孝道, 島田 寛 (東北大)

Thickness Dependence of High-frequency Magnetic Properties in Fe-Ga Films

Yasushi Endo, Takumi Sakai, Takamichi Miyazaki, Yutaka Shimada (Tohoku Univ.)

**はじめに** Fe-Ga 合金は巨大磁気ひずみ、低飽和磁界、高い引っ張り応力特性といった特徴的な磁気特性<sup>1)</sup>を有することから、応力センサやアクチュエータといった電磁気デバイスへの応用が期待されている。最近では、情報通信技術に関連する高速・小型・エネルギー高効率なデバイスの創製に向けて Fe-Ga 薄膜が注目を集めている<sup>2)</sup>。したがって、Fe-Ga 薄膜は、デバイス応用に向けた基礎物性に関する検討が広く行われている。これまでの研究では、主に磁気ひずみ、強磁性共鳴周波数、ダンピング定数の Ga 組成依存性に関して検討されてきた<sup>2,3)</sup>。一方で、これらの磁気パラメータの膜厚による変化に関しては十分な検討が行われおらず、とりわけ 20 nm 以下のより薄い膜厚領域での結果はこれまで報告されていない。本研究では、幅広い膜厚の Fe-Ga 薄膜における高周波磁気特性を検討し、その膜厚による変化を議論する。

**実験方法** Fe<sub>0.78</sub>Ga<sub>0.22</sub> (Fe-Ga) 薄膜に関しては、DC マグネトロンスパッタを用いて作製した。その膜構成は、Glass 基板上に製膜した 3-100 nm 厚の Fe-Ga 薄膜である。CPW に関しては、フォトリソグラフィ、DC マグネトロンスパッタおよびリフトオフ法を用いて作製した。その膜構成はガラス基板 (厚さ: 550 μm, 比誘電率 $\epsilon_r$ : 7.0) 上に製膜させた Cr (5 nm)/Cu (300 nm)/Cr (5 nm) 積層膜であり、その形状は一端が終端された 1 ポート型形状である。

作製した Fe-Ga 薄膜の結晶構造解析には TEM を、その組成分析には EDX を用いた。なお、結晶構造に関しては、膜厚に関係なく bcc 多結晶膜である。また、静磁気特性に関しては VSM と高感度磁歪計測装置<sup>4)</sup>を、高周波磁気特性に関しては VNA と CPW を組み合わせたブロードバンド FMR 測定法<sup>5)</sup>を用いた。

**結果および考察** Fe-Ga 薄膜の磁化曲線形状は膜厚によって異なっている (図 1)。すなわち、膜厚 5 nm 以下では、外部磁界の印加方向を 90 度変化させると、磁化曲線形状が角型形状から直線形状となり、一軸磁気異方性によるものである。一方、膜厚 7.5 nm 以上では、磁化曲線形状は外部磁界に依存せず、磁化が面内等方に向いていると考えられる。この結果は、Fe-Ga 膜の軟磁気特性が膜厚によって著しく異なることを示している。図 2 は Fe-Ga 膜における飽和磁気ひずみ ( $\lambda_s$ ) とダンピング定数 ( $\alpha$ ) の膜厚による変化である。 $\lambda_s$  は膜厚 30 nm 以下では膜厚の増加とともに 15 ppm から 24 ppm へと著しく増加し、膜厚 30 nm 以上では 18 ppm まで減少した。これらの値はすべて多結晶バルクの値 (98 ppm) に比べて低くなった。この原因は、膜面内の結晶軸が [111] 方向となっていることによるものと考えられる。 $\alpha$  に関しては、膜厚 30 nm で最大となり、その値は 0.084 であった。膜厚 30 nm 以上では、 $\alpha$  は 0.068 まで減少した。これらの値は Fe-Ga 単結晶膜<sup>2)</sup> に比べて高く、材料固有の  $\alpha$  だけでなく、外的要因が加わったことによるものと考えられる。これらの結果は、膜厚に関係なく、構造的あるいは磁気的不均一性が  $\lambda_s$  と  $\alpha$  に著しく影響を与えていることを示唆している。

**謝辞** 本研究の一部は、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センターの支援のものと行われた。また、本研究の一部は、科研費基盤研究 (B) (No. 26289082, No. 17H03226) 科研費特別研究員奨励費 (No. 17F17070) の補助のもとで行われた。

## 参考文献

- 1) A. E. Clark et al., IEEE Trans. Magn., 36, 3238 (2000)., 2) B. K. Kuanr et al., J. Appl. Phys., 115, 17C112 (2014)., 3) Y. Yu et al., Appl. Phys. Lett., 106, 162405 (2015)., 4) Y. Endo et al., J. Appl. Phys., 109, 07D336 (2011)., 5) 遠藤恭他, Digest of The 39<sup>th</sup> Annual Conf. Magn. JPN 2015, 124 (2015).

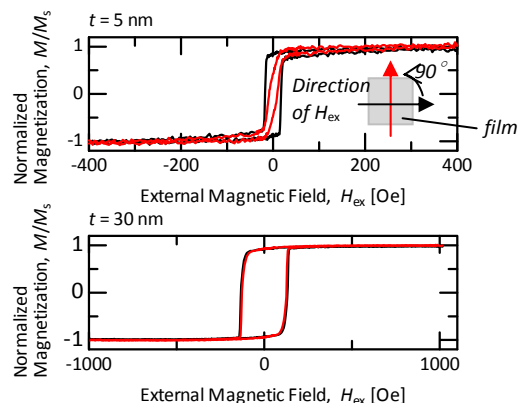


Fig. 1.  $M$ - $H$  curves of Fe-Ga films.

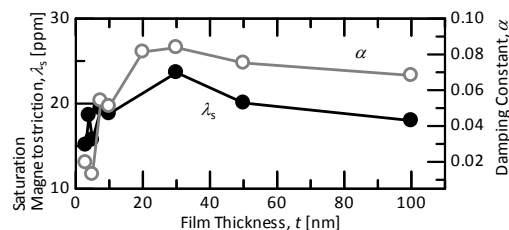


Fig. 2. Thickness dependence of  $\lambda_s$  and  $\alpha$  for Fe-Ga films.

## パルスレーザー蒸着(PLD)法を用いた MgO 基板上 L1<sub>0</sub>-FeNi の作製

齊藤真博<sup>1</sup>, 伊藤久晃<sup>1</sup>, 落合順也<sup>1</sup>, 森あゆみ<sup>1</sup>, 鈴木雄太<sup>1</sup>, 富田正樹<sup>1</sup>,  
宮町俊生<sup>2</sup>, 小森文夫<sup>2</sup>, 小金澤智之<sup>3</sup>, 水口将輝<sup>4</sup>, 高梨弘毅<sup>4</sup>, 小嗣真人<sup>1</sup>  
(1.東京理科大学, 2.東京大学物性研究所, 3.JASRI, 4.東北大学金属材料研究所)

Fabrication of L1<sub>0</sub>-FeNi on MgO substrate by using Pulsed Laser Deposition system

M. Saito, H. Ito, J. Ochiai, A. Mori, Y. Suzuki, M. Tomita

T. Miyamachi, F. Komori, T. Koganezawa, M. Mizuguchi, K. Takanashi, M. Kotsugi

(Tokyo Univ. of Sci., ISSP The Univ. of Tokyo, JASRI, IMR Tohoku Univ.)

### はじめに

近年ではレアメタルの価格高騰と供給不安への懸念からユビキタス元素のみで構成されるレアメタルフリー磁性材料に注目が集まっている。こうした社会背景から我々は主相が Fe と Ni のみで構成され、高い磁気異方性を有する L1<sub>0</sub>-FeNi に注目し、研究を進めてきた。L1<sub>0</sub>-FeNi の磁気特性は界面のモフォロジーに大きく影響されることが Kojima ら<sup>1)</sup>により示されている。またその一方で、Shen ら<sup>2)</sup>により特定の材料の薄膜成長においては、パルスレーザー蒸着 (PLD) 法を用いることで MBE 法に比べより layer-by-layer 成長に近い薄膜成長が可能であることが示されている。そこで我々は PLD を用いて L1<sub>0</sub>-FeNi を作製することで規則度の向上と結晶磁気異方性 ( $K_u$ ) の向上を試みたので報告する。

### 実験方法

試料の作製には YAG レーザーを光源とする PLD を用いた。基板には MgO を用い、アニール処理を行い、Fe シード層を蒸着した後、Au, Cu をバッファ層として蒸着した。FeNi 層との格子ミスマッチを低減し、平坦性を向上させるため、バッファ層の基板温度を様々に変えて系統的に調査した結果、基板温度は 300 °C に最適化されている。その後、単原子交互積層法を用いて FeNi 相を 50 ML 蒸着した。 $K_u$  の向上を目的に、FeNi 蒸着時の基板温度依存性を調査し、試料の表面モフォロジーを AFM で観察すると共に、結晶構造は XRD で解析し、SQUID を用いて磁気特性を評価した。

### 実験結果

Fig. 1 に AFM により観察した FeNi 層の表面モフォロジーの一例を示す。本試料の構成は FeNi/Cu(50 nm)/Au(10 nm)/Fe(1 nm)/MgO-sub. で基板温度は 300 °C である。表面は観測領域のほぼ全域で平坦であることが確認されたが、大きさが 500 nm 程度の島状構造が幾つか観測された。そのファセットが MgO 基板の <110> 方位に沿うことが確認された。このことから FeNi 膜は MgO 基板に対してエピタキシャルに成長していることが示唆される。

Fig. 2 にこの試料の SQUID により測定した磁化曲線を示す。 $M_s = 800$  emu/cc,  $K_u = 1.43 \times 10^6$  erg/cc であり、面内磁化膜であることが分かった。室温蒸着した FeNi 薄膜に対して  $K_u$  が大きく向上しており、磁化の向上も確認された。基板温度の上昇に伴い L1<sub>0</sub> 規則化が進行したことが示唆される。当日は放射光 XRD による結晶構造の評価、MFM によるマイクロな磁区構造の観察、室温蒸着試料との比較について議論を行う予定にしている。

### 参考文献

- 1) T. Kojima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 010204, (2012).
- 2) J. Shen *et al.*, Surface Science Reports **52**, 163, (2004)

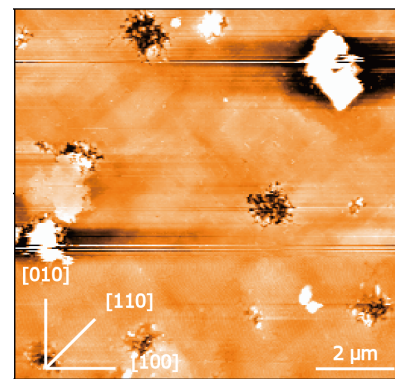


Fig. 1 Surface morphology of FeNi deposited at 300 °C

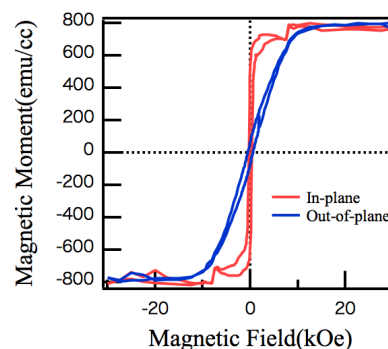


Fig. 2 Magnetization curves of FeNi deposited at 300 °C

# RTA 処理した Pd-Sb 添加 L1<sub>0</sub>-CoPt 薄膜の結晶配向性と磁気特性

国分 勇磨・神島 謙二・柿崎 浩一  
(埼玉大学 大学院 理工学研究科)

Crystal orientation and magnetic properties of Pd-Sb added L1<sub>0</sub>-CoPt thin films prepared by RTA method

Y. Kokubun, K. Kamishima, and K. Kakizaki

(Graduate School of Science and Engineering, Saitama University)

## 1. 緒言

高度情報化に伴い、高密度記録が可能な記録媒体が求められている。L1<sub>0</sub>-CoPt 薄膜は高い結晶磁気異方性を有するため<sup>1)</sup>記録磁化を安定に保持出来ることから、次世代の記録媒体として有望視されている。当研究室では Pd および Sb を添加した CoPt 薄膜において、L1<sub>0</sub>-CoPt 合金の磁化容易軸である <001> 方向が膜面垂直方向に配向することを報告した<sup>2)</sup>。本研究では、rapid thermal annealing (RTA) を導入し、熱処理条件を再検討することで配向性および磁気特性の向上を目的とした。

## 2. 実験方法

成膜には対向ターゲット型 rf マグネトロンスパッタ装置を用いた。ターゲットには Co 円板(76 mm<sup>φ</sup>)上に Pt チップ(1 cm<sup>2</sup>), Pd チップ(1 cm<sup>2</sup>) および粒状の Sb を張り付けたものを用いた。チャンバー内を 2.0×10<sup>-6</sup> Torr 以下に排気後、Ar ガス圧を 2.0×10<sup>-2</sup> Torr とした。スパッタ時の投入電力は 4.4 W/cm<sup>2</sup> とし、合成石英ガラス基板上に常温で成膜した。成膜後、赤外線ランプ加熱炉を用い、減圧中、500~700°C まで 40K/sec. で急速加熱後、5 分間の熱処理を行い試料を得た。

## 3. 結果および考察

Fig.1 は T<sub>a</sub> = 500~700°C で 5 分間 RTA 処理をした PdSb-CoPt 薄膜の X 線回折図を示す。T<sub>a</sub> = 500 および 550°C で熱処理した膜では、fcc-CoPt 相からの回折線のみが確認され、規則化が不十分である。T<sub>a</sub> = 600°C 以上で熱処理した膜において fct-CoPt 相(001)面からの回折線が明確に認められる。T<sub>a</sub> = 650 および 700°C の膜では(001)面からの回折強度が増大し、半値幅が減少することから結晶性の向上が確認できる。これは熱処理温度の上昇に伴い核形成から相変態に移行するためのエネルギーが増加し、規則化が進行したためと考えられる。

Fig.2 は T<sub>a</sub> = 500~700°C で 5 分間 RTA 処理をした PdSb-CoPt 薄膜の磁化値(M)、膜面内方向(H<sub>c||</sub>)および膜面直方向(H<sub>c⊥</sub>)の保磁力を示す。磁化値は熱処理温度の上昇に伴い減少する傾向を示す。一方、膜面垂直方向の保磁力は T<sub>a</sub> = 600°C 以上で熱処理した膜において 16 kOe を超える大きな値となり、T<sub>a</sub> = 650°C の膜で最大 18 kOe が得られる。加えて、H<sub>c⊥</sub>/H<sub>c||</sub> は、T<sub>a</sub> = 650°C の膜で最大値約 20 となり最も良好な垂直磁化膜となる。

## 参考文献

- 1) D.Weller, A.Moser, M.E.Best, W.Lee, M.F.Toney, M.Schwickert, J.U.Thiele, M.F.Doerner ; IEEE Trans. Magn., 36 (2000) 10.
- 2) 狩野智弘, 柿崎浩一, 神島謙二; 第 39 回日本磁気学会講演概要集(2015) 34.

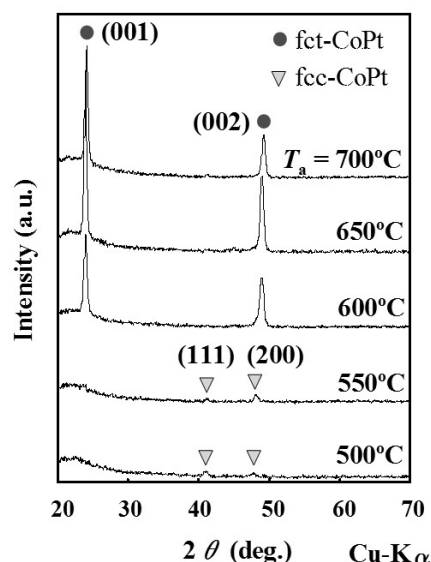


Fig.1 XRD patterns of the PdSb-CoPt thin films, then post annealed at various temperatures for 5min. by RTA method.

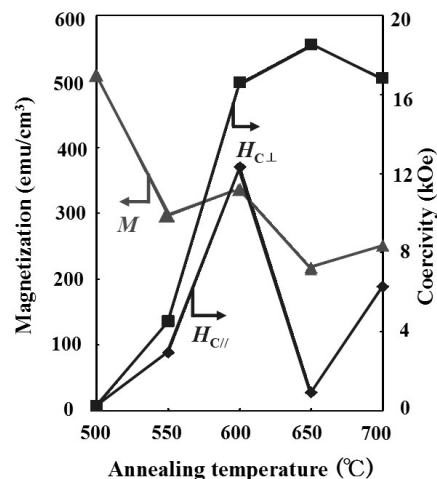


Fig.2 Dependence of magnetization and coercivity on annealing temperature for the PdSb-CoPt thin films annealed by RTA method.

# VN および VC 下地層上に形成した平坦 FePt 薄膜の 配向性に及ぼすキャップ層の影響

清水智貴<sup>1</sup>・大竹充<sup>1,2</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>中央大, <sup>2</sup>工学院大, <sup>3</sup>東京藝大, <sup>4</sup>山形大)

Influence of Cap-Layer on the Structure of FePt Alloy Thin Films Formed on VN and VC Underlayers  
Tomoki Shimizu<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1,2</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, and Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

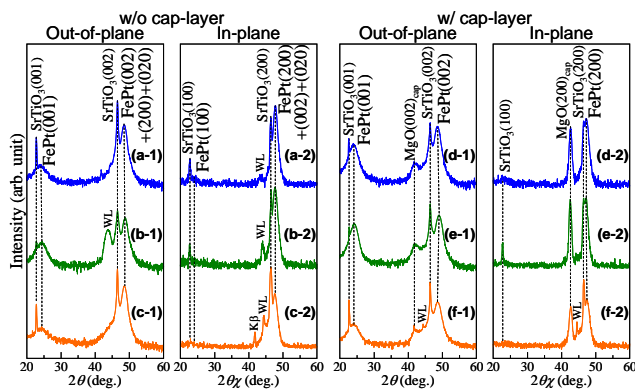
**はじめに**  $L1_0$ -FePt 規則合金は  $6.6 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  の高い  $K_u$  を持つため、高密度磁気記録媒体や MRAM への応用が検討されているが、デバイスへの応用には磁化容易軸である  $c$  軸の配向制御、規則度の向上、膜の平坦性が必要となる。これまで我々は表面エネルギーの大きな下地層上に FePt 膜を形成することで膜の表面平坦性の向上を実現したが<sup>1)</sup>、 $c$  軸の配向制御および規則度に関して問題点が残った。キャップ層を導入することで、面内方向に対する引張応力が強まり、配向制御が可能であるため<sup>2)</sup>、本研究では格子定数ミスマッチが大きく表面エネルギーの異なる 3 種の下地層上に FePt 膜を形成し、下地層材料およびキャップ層の有無が FePt 膜の配向性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。SrTiO<sub>3</sub>(001) 基板上に基板温度 600 °C で 2 nm 厚の下地層を形成し、次いで 200 °C で 10 nm 厚の FePt 膜を形成した。FePt 膜上に基板温度 200 °C で 2 nm 厚のキャップ層を形成し、規則化促進のため 600 °C で熱処理を施した。同様な方法でキャップ層無しの試料も製膜した。構造評価には RHEED, XRD, AFM, 磁化曲線測定には VSM を用いた。

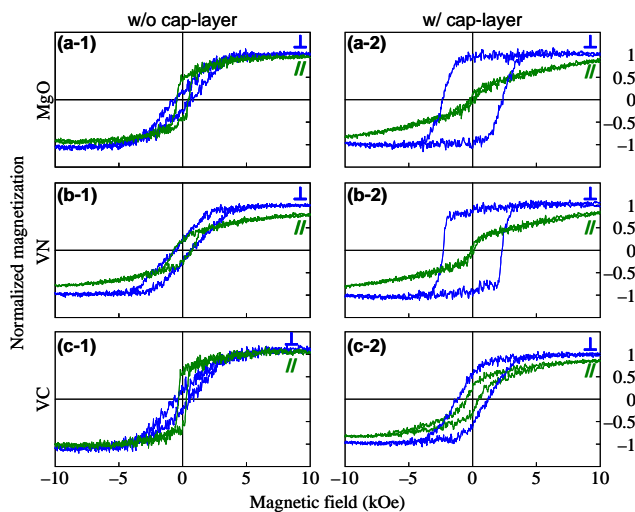
**実験結果** Fig. 1 に MgO, VN, VC 下地層上に形成した FePt 膜の面外および面内 XRD パターンを示す。キャップ層が無い場合、いずれの膜に対しても面外と面内 XRD パターンにおいて基本反射に加えて超格子反射が観察されるため、 $c$  軸が膜面内に向いた  $L1_0(100)$  および  $L1_0(010)$  バリエントが混在していることが分かる。一方、キャップ層を設けた場合、いずれの下地層を用いても面内の超格子反射が確認されず  $c$  軸が膜面直に向いた  $L1_0(001)$  バリエントのみになるように配向が制御されていることが分かる。XRD の結果より算出した MgO, VN, VC 下地層上の FePt 膜の規則度  $S$  はキャップ層が無い場合、それぞれ  $S = 0.1, 0.2, 0.1$  と低い値であったが、キャップ層を設けた場合、 $S = 0.5, 0.6, 0.3$  にそれぞれ増大し、キャップ層を形成することで規則度の向上が実現できた。Fig. 2 にキャップ層の有無で FePt 膜の磁化曲線を比較した結果を示す。いずれの下地層を用いてもキャップ層を形成することで垂直磁気異方性が増大していることが確認できる。この結果より下地層を用いた場合においてもキャップ層の導入が  $c$  軸の垂直制御に有効であることが分かった。当日は VC および VN キャップ層を用いた結果も発表する予定である。

## 参考文献

- 1) 清水, 中村, 落合, 大竹, 二本, 桐野, 稲葉: 信学技法, **116**, MR2016-40 (2016).
- 2) 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)] VN, and [(c), (f)] VC underlayers.



**Fig. 2** Magnetization curves measured for FePt films (a-1)–(c-1) without and (a-2)–(c-2) with MgO cap-layers deposited on (a) MgO, (b) VN, and (c) VC underlayers.



異なるバッファ層上の  $Mn_xGa$  薄膜の磁気特性

高橋勇圭、佐藤啓、嶋敏之、土井正晶  
(東北学院大学大学院工学研究科)

Dependence of magnetic properties on different buffer layers of  $Mn_xGa$  thin films

Y. Takahashi, K. Sato, T. Shima, M. Doi

(Graduate School of Engineering, Tohoku Gakuin University)

## はじめに

$Mn-Ga$  規則合金膜は飽和磁化( $M_s = 200-600 \text{ emu/cm}^3$ )<sup>1-3</sup>、高い磁気異方性( $K_u = 10-23.5 \text{ Merg/cm}^3$ )<sup>1-3</sup>)を示すことが知られている。従って、近年では  $Mn-Ga$  合金薄膜は新規永久磁石材料やスピニエレクトロニクスデバイスの次世代材料として注目されており、 $Mn-Ga$  合金薄膜の研究が多く行われている。 $Mn-Ga$  薄膜は組成によって強磁性からフェリ磁性を示し、チューナブルな飽和磁化と高結晶磁気異方性を有するとされているが、バルクにおける  $L1_0$  型  $Mn-Ga$  (1対1) 合金は平衡状態図では存在しない。また、蒸着法を用いて作製された  $Mn-Ga$  合金薄膜や様々なバッファ層で作製された報告も少ない。本研究では超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて作製した異なるバッファ層上における  $Mn_xGa$  薄膜の磁気特性の関係を明らかにすることを目的とした。

## 実験方法

薄膜試料は超高真空電子ビーム蒸着装置を用いて作製し、蒸着ソースは到達真空度  $5 \times 10^{-3} \text{ Pa}$  以下の状態でアーク溶解法により作製した  $Mn_{1.0}Ga$  合金を用いた。薄膜作製時は到達真空度  $8.9 \times 10^{-7} \text{ Pa}$  以下、基板温度  $T_s = 300 \text{ }^\circ\text{C}$ 、熱処理温度  $T_a = 300 \sim 500 \text{ }^\circ\text{C}$ 、熱処理時間 3h とした。また膜構成は  $MgO(100)$  基板の上に様々なバッファ層(Cr, Fe, Pt, Au)を 5 nm、磁性層として  $MnGa$  を 20 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。作製した薄膜の組成をエネルギー分散型 X 線分析装置(EDX)、結晶構造を X 線回折装置(XRD)、表面粗さを原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性は超伝導量子干渉型磁束計(SQUID)を用いて評価した。また、薄膜表面を反射高速電子線回折装置(RHEED)により、その場観察を行った。

## 実験結果

Fig.1 に薄膜作製時の Cr または Pt バッファ、磁性層の  $MnGa$  薄膜をその場観察した RHEED パターンを示す。RHEED パターンでは Cr バッファにおいてはそれぞれのストリーク間隔が下の層に合うように成長しており、 $MnGa$  層では表面再配列構造も観察された。これは原子レベルで平坦な表面が成膜されたエピタキシャルな薄膜であるといえる。しかしながら、Pt バッファにおいては Cr バッファに比べ、ややリング状のパターンが見られており、多結晶に近い成長が確認された。講演では Mn 組成とバッファ層を変化させた薄膜の基板温度や熱処理温度における規則度および表面粗さと磁気特性の関係について報告する。

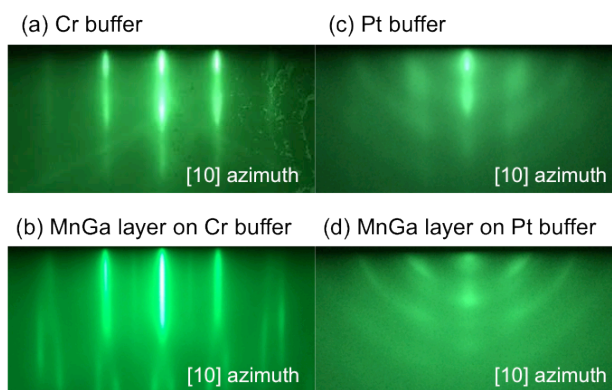


Fig.1 RHEED patterns of  $Mn-Ga$  thin films.

## 参考文献

- 1) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma and Y. Ando, *Phys. Rev. B* **85**, 014416 (2012).
- 2) K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, A. Sugihara, T. Miyazaki and S. Mizukami: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **55**, 010305 (2016).
- 3) Y. Takahashi, H. Makuta, T. Shima and M. Doi, *T. Magn. Soc. Jpn.* **1**, 30-33 (2017).

# Mn<sub>x</sub>Ga 薄膜における磁気特性の Fe バッファ層厚依存性

佐藤啓、高橋勇圭、嶋敏之、土井正晶  
(東北学院大学大学院工学研究科)

Thickness dependence of Fe buffer layer on magnetic properties for Mn<sub>x</sub>Ga thin films

K. Sato, Y. Takahashi, T. Shima, M. Doi

(Graduate School of Engineering, Tohoku Gakuin University)

## はじめに

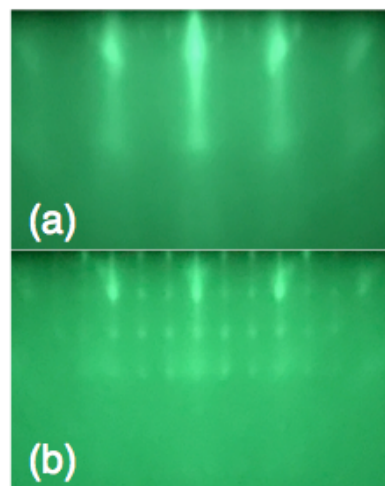
MnGa 合金薄膜はチューナブルな飽和磁化(200 ~ 600 emu/cm<sup>3</sup>)、高結晶磁気異方性(~ 10<sup>7</sup>erg/cm<sup>3</sup>)<sup>1)</sup>、高スピン分極率(~ 88%)<sup>2)</sup>を示し、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁石材料やスピントロニクスデバイスの次世代材料として魅力的な特性を持っている。MnGa 合金薄膜は現在盛んに研究が行われているが、蒸着法を用いた MnGa 合金薄膜の報告はわずかしかない。本研究では、超高真空蒸着法を用いて Fe バッファ層の膜厚変化に伴う Mn<sub>x</sub>Ga 薄膜の磁気異方性および諸磁気特性の関係を明らかにすることを目的とした。

## 実験方法

ターゲット材料にはアーク溶解炉で作製した Mn<sub>1.0</sub>Ga 合金を使用した。成膜は超高真空電子ビーム蒸着装置(EB)で行い、基板には MgO(100)単結晶基板を用いた。膜構成はバッファ層として Fe を 1 nm または 5 nm、主層として Mn<sub>x</sub>Ga を 20 nm、キャップ層として Cr を 10 nm とした。成膜手順は、700 °C で 30 分基板洗浄したのち、バッファ層を成膜、その後 300 °C で主層の Mn<sub>x</sub>Ga を成膜し、最後に室温でキャップ層の Cr を成膜した。結晶構造は X 線回折装置(XRD)、結晶成長評価を反射高速電子線回折装置(RHEED)、磁気特性は超伝導量子干渉磁束系(SQUID)、表面形態は原子間力顕微鏡(AFM)、組成分析はエネルギー分散型 X 線分析(EDX)を用いて評価した。

## 実験結果

Fig. 1. に Fe バッファ層 5 nm、1 nm 上に成膜した Mn<sub>2.2</sub>Ga 薄膜の RHEED パターンを示す。Fe バッファ層 5 nm ではそれぞれのストリークの間隔が MgO 基板、Fe バッファ層と一致しており、ほぼエピタキシャルな成長が確認できた。しかし 1 nm においては 3 倍周期の表面構造が確認でき、完全にエピタキシャルな成長ではないと考えられる。磁化測定の結果から、Fe バッファ層 5 nm においては Fe の面内方向の磁化が強く現れ、面内容易軸となったが、1 nm においては垂直容易軸が確認された。講演では Mn 組成を変化させた薄膜と Fe バッファ層の膜厚変化に伴う磁気異方性および諸磁気特性の関係について報告する。



[100] azimuth

Fig. 1. RHEED patterns for Mn<sub>2.2</sub>Ga thin films 20 nm on (a) Fe buffer layer 5 nm, and (b) 1 nm.

## 参考文献

- 1) S. Mizukami, T. Kubota, F. Wu, X. Zhang, T. Miyazaki, H. Naganuma, M. Oogane, A. Sakuma, and Y. Ando, *Phys. Rev. B* 85, 014416 (2012).
- 2) B. Balke, G. H. Fecher, J. Winterlik, and C. Felser, *Appl. Phys. Lett.* 90, 152504 (2007).

# 反強磁性 MnN 薄膜のエピタキシャル成長と交換結合特性

吉田 拓也、羽尻 哲也、倪 遠致、石野 直、浅野 秀文  
(名大院工)

Epitaxial growth of antiferromagnetic MnN thin films and exchange-coupling properties

T. Yoshida, T. Hajiri, Y. Z. Ni, S. Ishino and H. Asano  
(Nagoya Univ.)

## はじめに

近年、反強磁性体(AFM)/強磁性体(FM)積層構造では、FMを介してAFM磁気モーメントの制御が可能である事が明らかになり<sup>1)</sup>、FMよりも省電力化・高速化が期待される、AFMを主体としたAFMスピントロニクスに向けた研究が精力的に行われてきている。その中で我々は、Mn<sub>3</sub>GaN (AFM)/Co<sub>3</sub>FeN (FM) 積層膜において  $T=4\text{ K}$  で、界面交換結合とAFMスピントランスファートルクにより、AFM磁気モーメントの電流駆動磁化スイッチングを報告した<sup>2)</sup>。今回は、室温での磁化スイッチングを目指すために660 Kと高いネール温度を有する反強磁性MnN<sup>3)</sup>とハーフメタルCo<sub>3</sub>FeN積層膜に注目し、高品質なMnNエピタキシャル成長膜の作製と、Co<sub>3</sub>Feおよびスピニ注入に有利なハーフメタルCo<sub>3</sub>FeNとの積層膜で交換結合特性評価を行ったので報告する。

## 実験方法

反応性マグネトロンスパッタ法によりMnターゲットを用いてMnN薄膜をMgO基板(001)(格子ミスマッチ: -1.0%)、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>(MAO)基板(001)(格子ミスマッチ: -5.3%)上に、基板温度325 °C、膜厚30-50 nm、スパッタガスAr+5-50 N<sub>2</sub>%、ガス圧1-4 Pa、の範囲で作製した。

交換結合磁界( $H_{ex}$ )はCo<sub>3</sub>Feターゲットを用いてCo<sub>3</sub>Fe、Co<sub>3</sub>FeNを積層させ、温度400 °C、磁場10 kOeでアニールして測定を行った。

## 実験結果

Fig. 1に、基板温度325 °Cで作製したMnN薄膜の面直XRDパターンを示す。MgO基板とMAO基板との両方で、N<sub>2</sub>=8%-50%と広いN<sub>2</sub>%範囲での成長が確認され、N<sub>2</sub>=18%で $\theta$ 相MnNの $a$ 軸長理論値(0.4256 nm)に近い格子定数(0.4249 nm)が得られた。またMgO基板上では、X線回折(XRD)パターンからはMnN(200)ピーク付近にラウエ振動が確認でき、ロッキングカーブ半値幅(FWHM)が0.049 °と狭い高品質なMnNが得られていることが分かった。Fig. 2にMnN上に室温でCo<sub>3</sub>Feを積層させた積層膜における磁化曲線を示す。交換結合磁界は、それぞれの基板においてN<sub>2</sub>=10%で最大値を示したが、MgO基板上でより大きな $H_{ex}=230\text{ Oe}$ が発現した。このMnNは、XRDパターンから理論値に近い格子定数と狭いFWHMを有しており、反強磁性体MnNの結晶性と交換結合特性の関係性を示していると考えられる。

## 参考文献

- 1) B. G. Park, *et al.*, Nature Mat. **10**, 347 (2011).
- 2) H. Sakakibara *et al.*, J. Appl. Phys., **117**, 17D725 (2015).
- 3) A. Leineweber *et al.*, J. Mater. Chem. **10**, 2827 (2000).

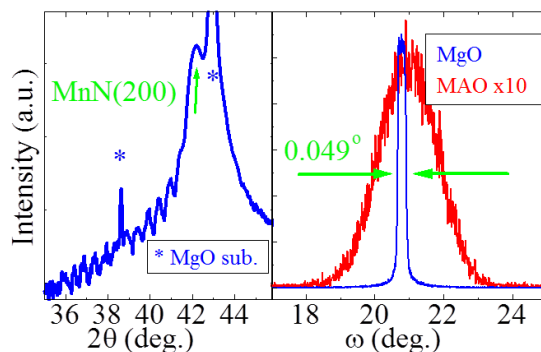


Fig.1. Out-of-plane XRD pattern of MnN deposited on MgO sub. (blue line) and MAO sub. (red line)

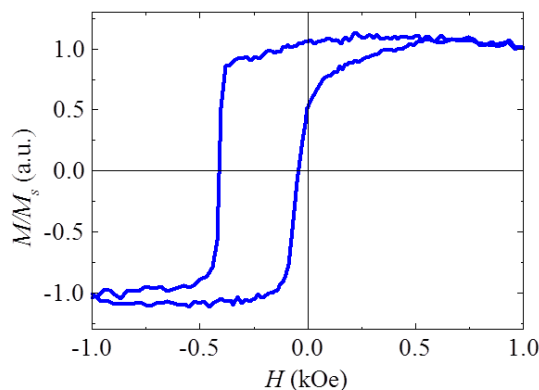


Fig.2. M-H loops of MgO sub./MnN/Co<sub>3</sub>Fe bilayer, measured at 300 K after annealing at 400 °C in the field of 10 kOe.

# FeCo 膜への V, C 添加による bct 構造安定化と一軸結晶磁気異方性

坂本真人 (院生), 熊谷洗平 (院生), 高橋海里 (院生), 石尾俊二, 長谷川崇  
(秋田大理工)

Stabilization of bct structure and uniaxial magnetocrystalline anisotropy of FeCoVC films

M. Sakamoto, K. Kumagai, K. Takahashi, S. Ishio, T. Hasegawa  
(Akita Univ.)

## はじめに

資源問題の観点から、レアアースを含まない高結晶磁気異方性 ( $K_u$ )、高飽和磁化 ( $M_s$ )、高キュリー温度 ( $T_c$ ) を有する次世代の新規永久磁石材料の開発が求められている。FeCo 合金は、遷移金属の中で最大の  $M_s$  と高  $T_c$  を有する材料であるが、立方晶であるために一軸磁気異方性をもたない軟磁性材料として知られている。正方晶歪を有する  $Fe_{1-x}Co_x$  は、高い  $K_u$  と高い  $M_s$  をあわせもつ可能性があることが T. Bukert<sup>1)</sup>, Y. Kota<sup>2)</sup> により報告されている。また実験的には、Ir や Rh パツファー層と FeCo 層との間の格子ミスフィットによる歪の導入、あるいは第三元素添加による歪の導入により、垂直磁気異方性が発現するとの報告がある<sup>3-5)</sup>。しかしながら、例えば数 100 nm 程度の厚膜領域における十分な歪の導入、またそれに伴う高  $K_u$  の獲得には至っていない。そこで本研究では、FeCoVC 合金薄膜の膜厚に対する結晶構造と  $K_u$  の変化を調べた。

## 実験方法

試料の成膜には超真空多元同時スパッタリング装置 (到達真空度  $< 5 \times 10^{-7}$  Pa) を用いた。まず、MgO(001) 単結晶基板上に FeCoVC を配向させるために、基板温度を 200°C に保持して成膜を行った。次いで、酸化防止のためにキャップ層として SiO<sub>2</sub> を室温で成膜した。構造評価には X 線回折装置 (XRD)、磁気特性評価には振動試料型磁力計 (VSM) を用いた。

## 実験結果

Fig.1 に MgO 基板上に異なる膜厚で成膜した FeCoVC 薄膜の Out of plane XRD パターンを示す。MgO 基板からのピークと FeCo(002) ピークのみが観測されることから、FeCo 以外の化合物の生成はなく、(001) 面が膜面に対して垂直方向に配向した試料が得られていることが分かる。FeCo(002) ピークが膜厚の増加に伴い、低角側にシフトしていることから、 $c$  軸が伸びた結晶構造を有することが分かる。Fig.2 は、XRD の結果から求めた格子定数  $c, a$  およびその軸比  $c/a$  をプロットしたものである。Rh 下地層上の FeCoVC では、膜厚の増加に伴い格子緩和が生じ  $c/a$  が減少している。一方、MgO 基板上に直接成膜した FeCoVC では、膜厚の増加に伴い  $c/a$  が増加し、膜厚 100nm においても  $c/a \approx 1.08$  が発現している。これらのことから、FeCoVC は自発的に正方晶歪を有すると考えられる。

## 参考文献

- 1) T. Burkert *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 93, 027203 (2004).
- 2) Y. Kota and A. Sakuma, *Appl. Phys. Express*, 5, 113002 (2012).
- 3) F. Yildiz *et al.*, *Phys. Rev., B*, 80, 064415 (2009)
- 4) H. Oomiya *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 48, 475003 (2015).
- 5) 石尾俊二他, まぐね, Vol. 12, No. 1, PP. 21-25 (2017)

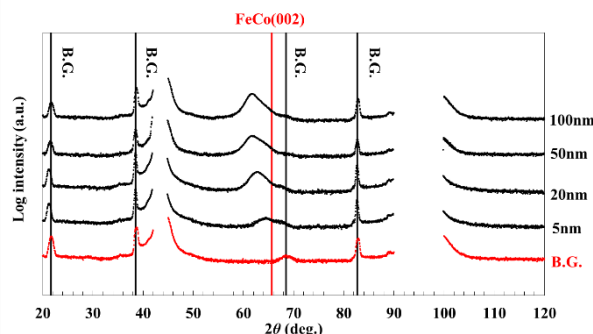


Fig.1 Out of plane XRD spectra of MgO/FeCoVC/SiO<sub>2</sub> films as a function of film thickness.

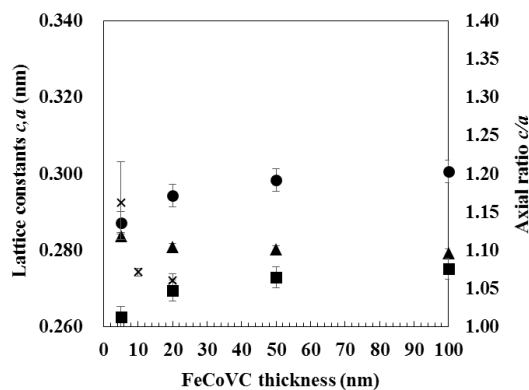


Fig.2 Film thickness dependences of lattice constants  $c$  (●),  $a$  (▲) and axial ratios  $c/a$  (MgO/Rh/FeCoVC/SiO<sub>2</sub> ■, MgO/FeCoVC/SiO<sub>2</sub> ×).

# 一軸結晶磁気異方性を有する bct FeCo 薄膜のナノドット化による磁気特性の変化

長谷川崇, 熊谷洸平 (院生), 坂本真人 (院生), 中村靖子 (院生), 石尾俊二 (秋田大理工)

Magnetic properties of bct FeCo nanodots with uniaxial magnetocrystalline anisotropy  
T. Hasegawa, K. Kumagai, M. Sakamoto, Y. Nakamura, S. Ishio (Akita Univ.)

## はじめに

永久磁石や磁気記録媒体の機能向上のためには、高い結晶磁気異方性定数 ( $K_u$ )、高い飽和磁化 ( $M_s$ )、高い保磁力 ( $H_c$ ) を兼ね備えた材料が必須である。筆者らのグループではこれまでに、FeCo 薄膜に対して軸比  $c/a$  が 1.15 ~ 1.25 の正方晶歪 (Fig.1(a)参照) を導入すると、 $10^7$  erg/cm<sup>3</sup> オーダーの高  $K_u$  が得られることを報告している[1]。しかし薄膜状態では、バルク体とは異なり膜面垂直方向の反磁場が極めて大きいため、たとえ高  $K_u$  が得られても、高  $H_c$  が得られにくい。そこで本研究では、正方晶歪を導入した FeCo 薄膜を、ドット直径が数十 nm の円形ドットパターン状に微細加工し、 $H_c$  をはじめとする磁気特性を調べた。

## 実験方法

超高真空多元同時マグネトロンスパッタリング装置 (到達真空度 $\sim 10^{-7}$  Pa) を用いて、MgO (100)単結晶基板上に、Rh 下地層 (膜厚 20 nm) と Fe<sub>45</sub>Co<sub>45</sub>Al<sub>10</sub> (膜厚  $1.0 < t < 20$  nm) を、それぞれ基板加熱温度が 300、200 で成膜した。Al は  $K_u$  増大のために添加した[2]。微細加工には電子線描画装置 (EB) を用い、ネガ型レジスト (TEBN-1) をマスクとして、Ar イオンミリングを行った。

## 実験結果

Fig.1(b)は、MgO sub./Rh(20 nm)/FeCoAl(20 nm)連続薄膜の垂直( )磁化曲線と消磁状態の MFM 像である。図には示していないが、軸比は  $c/a = 1.01$ 、規則度は 0.1-0.2 程度、 $M_s = 1.95$  Wb·m<sup>-2</sup> (1550 emu/cm<sup>3</sup>)、 $K_u = 6.8 \times 10^5$  J m<sup>-3</sup>であった。この  $K_u$  値から見積もられる  $\mu_0 H_k$  は約 0.88 T となる。しかし薄膜状態では、反磁場  $\mu_0 H_d$  は 1.95 T と見積もられ、方向の磁化曲線は図のように磁化困難軸となっている。Fig.1(c)は、上述の薄膜を、EB リソグラフィ技術でナノドット化した試料 (ドット直径  $D = 50$  nm) の磁化曲線と消磁状態の MFM 像である。磁化曲線は常磁性成分を補正してある。微細化により、反磁場は約 41%減少して 1.15 T と見積もられ、磁化曲線には図のように磁化容易軸の成分が出現している。保磁力  $\mu_0 H_c$  は 0.60 T であり、 $\mu_0 H_k$  の値の約 68%に達している。

[1] H. Oomiya *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys., 48 (2015) 475003. [2] S. Yoshida *et al.*, 8th Joint European Magnetic Symposia, p. 757, Glasgow, UK (2016). This work was supported by the Japan Society for the Promotion of Science KAKENHI through its Grant-in-Aid for Young Scientists (A) (JP15H05518).

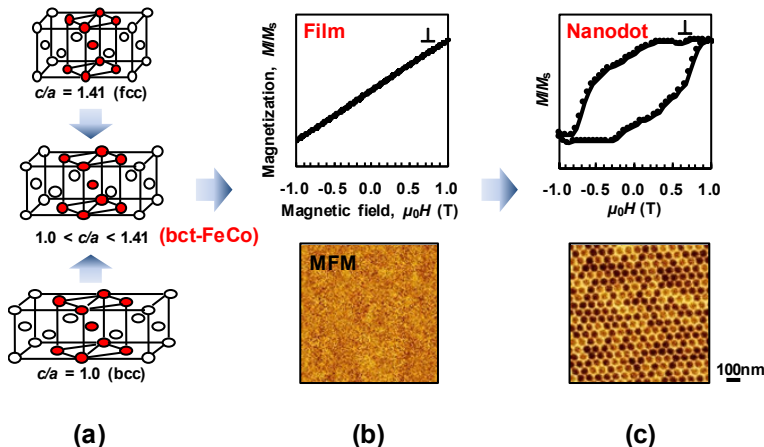


Fig. 1. (a) Schematic image of bct structure. Magnetic properties of (b) bct Fe<sub>45</sub>Co<sub>45</sub>Al<sub>10</sub> film ( $t = 20$  nm) and (c) nanodots with  $D = 50$  nm. (Samples were demagnetized before MFM measurements.)

# SmCo<sub>5</sub> ナノコンポジット多層膜の高エネルギー積化

古我城 航, 田中 純太, 大橋 健\*, 中川 茂樹

(\*信越化学工業, 東京工業大学)

Improvement of maximum energy product of SmCo<sub>5</sub> multilayer for permanent magnet films

W.Koganoki, J.Tanaka, K.Ohashi\*, S.Nakagawa

(\*Shin-Etsu Chemical Co., Ltd., Tokyo Institute of Technology)

## はじめに

最大エネルギー積が高くかつ耐熱性の高い永久磁石薄膜は、様々な環境下で使用が想定されるマイクロアクチュエーターやマイクロセンサー等の用途に需要がある。現在最も高い最大エネルギー積を持つ Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B は、キュリー点が 315°C ほど低く耐熱性に難があるため、本研究では SmCo<sub>5</sub> を用いた永久磁石薄膜の作製を行った。更なる高飽和磁化を達成するため、SmCo<sub>5</sub> の配向制御も期待し、下地層に FeCoB, Fe を採用した。今回基板温度を 450°C で成膜することで SmCo の結晶性向上と層間拡散防止を両立し、さらに FeCoB を Fe に変更することで最大エネルギー積が向上したことを報告する。

## 実験方法

試料は対向ターゲット式スパッタ法により熱酸化 Si 基板上に成膜した .Si/SiO<sub>2</sub>/W(40nm)/[FeCoB(5nm)/SmCo<sub>5</sub>(10nm)]<sub>3</sub>/Ta 多層構造を基板温度 400-500°C で成膜した。500°C の試料では下地層の W を積層していない。また、FeCoB 層を Fe に変更した Si/SiO<sub>2</sub>/W(40nm)/[Fe(5nm)/SmCo<sub>5</sub>(10nm)]<sub>3</sub>/W を基板温度 450°C で成膜した。作製した試料は、結晶構造を X 線回折法(XRD), 磁気特性を振動試料型磁力計(VSM), 深さ方向元素分布をオージェ電子分光法(AES)により評価した。

## 実験結果

Fig.1 に作製した試料の XRD の結果を示す。FeCoB を用いた試料では、XRD の結果から 400°C 成膜で SmCo(110) の結晶性が低下し、AES の結果から 500°C 成膜の場合に SmCo と FeCoB 層の相互拡散が確認された。そこで、中間の 450°C 成膜したところ、SmCo の結晶性の向上と積層構造の形成を両立することができた。

Fig. 2 に基板温度 450°C で作製した試料の磁化特性を示す。J-H 曲線は単一ループとなっていることから、SmCo 層と FeCoB 層で層間交換結合していることが確認でき、(BH)<sub>max</sub> は 85 kJ/m<sup>3</sup> となった。

次に、飽和磁化向上のために、FeCoB を Fe に変更した試料を作製した。Fe に変更した試料の XRD の結果から SmCo(110) の結晶性が低下しているが、磁気曲線から飽和磁化、保磁力が共に向上することが確認された。これは SmCo が XRD では回折ピークが明瞭でない程度の微結晶となっているためだと考えられる。(BH)<sub>max</sub> は 181 kJ/m<sup>3</sup> となり、FeCoB を用いた試料の 2 倍以上の値となった。

## 参考文献

- 1) J. M. D. Coey, IEEE Trans. Magn. **47**, 12 (2011)
- 2) 田中純太, 第 40 回日本磁気学会学術講演会, 08pC-10 (2016)

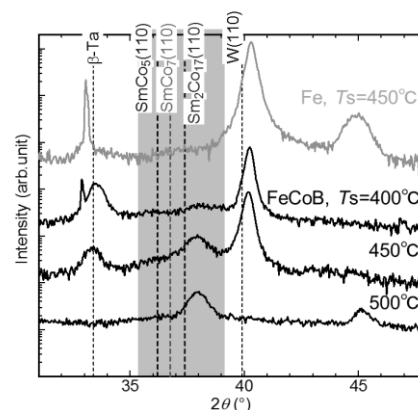


Fig.1 XRD pattern of [FeCoB, Fe/SmCo<sub>5</sub>]<sub>3</sub> multilayers

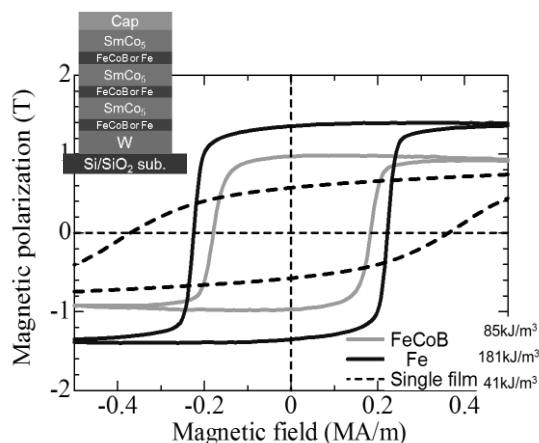


Fig.2 J-H loop of [FeCoB, Fe/SmCo<sub>5</sub>]<sub>3</sub> multilayers prepared at Ts = 450°C

# Estimation of Interlayer Exchange Coupling Constant in $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ Thin Film: A TRMOKE Study

Ruma Mandal<sup>1,2</sup>, Yukiko K. Takahashi<sup>1,2</sup>, Kunie Ishioka<sup>2</sup>, Toshiyuki Shima<sup>3</sup>, Daisuke Ogawa<sup>1,2</sup>, Takeshi. Kato<sup>4</sup>, Satoshi Hirosawa<sup>1,2</sup> and Kazuhiro Hono<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Elements Strategy Initiative Center for Magnetic Materials (ESICMM)

<sup>2</sup>National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, 305-0047, Japan

<sup>3</sup>Tohoku Gakuin University, 1-13-1, Chuo, Tagajo, 986-8537, Japan

<sup>4</sup>Nagoya Univ. Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8603, Japan

Enhancement of coercivity in Nd-Fe-B magnet without using heavy rare-earth element is one of the most important topics in the permanent magnet community. Recent study on microstructure analysis of hot-deformed Nd-Fe-B magnets revealed that one possible way to achieve high coercivity is to isolate each  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  grains magnetically by forming non-ferromagnetic (NF) intergranular phase. Grain boundary diffusion process (GBD) using Nd-rich eutectic alloy [1, 2] in sintered and hot-deformed Nd-Fe-B magnets is one solution to form the NF intergranular phase. However, no experimental method to evaluate exchange coupling between  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  grains is established. In order to estimate the exchange coupling constant ( $J_{ex}$ ), here we chose a model sample of Nd-Fe-B/Mo ( $t$ )/Ni-Fe magnetic multilayer thin film structure.

The stacking structure of Mo (20 nm)/ $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  (16 nm)/Mo ( $t$  nm)/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (5 nm)/Mo (20 nm)/SiN (65 nm) were deposited on MgO [001] single-crystalline substrate by magnetron sputtering with a base pressure of  $4 \times 10^{-7}$  Pa. The thickness ( $t$ ) of the Mo layer was varied from 0 to 3 nm. The magnetization curve (Fig.1 (c) and (d)) shows that for Mo ( $t > 0$  nm) the coercivity increases and remanence decreases. To evaluate  $J_{ex}$  at the interface between the Nd-Fe-B and Ni-Fe layers, resonance frequency ( $f_r$ ) was measured using time-resolved MOKE microscope. An external static bias magnetic field ( $\mu_0 H_b$ ) upto 2 T was applied at an angle of  $\theta_H = 50^\circ$ . The  $f_r$  of a single layer Nd-Fe-B thin film is studied first. Then we studied the magnetization dynamics of coupled multilayer film structure. The  $f_r$  of Nd-Fe-B/Ni-Fe resembles with the value of  $f_r$  of a single layer Ni-Fe thin film with addition of a strong anisotropic field originated from the Nd-Fe-B thin film. A model calculation [3] of  $f_r$  vs.  $H_b$  is done using a macro-spin approximation for this bi-layer model (Fig.1 (a), (b)). The total magnetic energy of the system is assumed as a summation of Zeeman, magneto-crystalline anisotropy, magneto-static energy in each layer and the interlayer exchange-coupling energy. Fig.1 (e) shows the fitting of calculated and measured resonance frequencies at different bias magnetic fields. The calculated resonance frequency curve shows that the exchange-coupling constant ( $J_{ex}$ ) of Nd-Fe-B (16 nm)/Ni-Fe (5 nm) is  $4 \times 10^{-3} \text{ J/m}^2$ . But insertion of a very thin ( $t = 1\sim 3$  nm) Mo layer can totally decouple the exchange-coupled system.

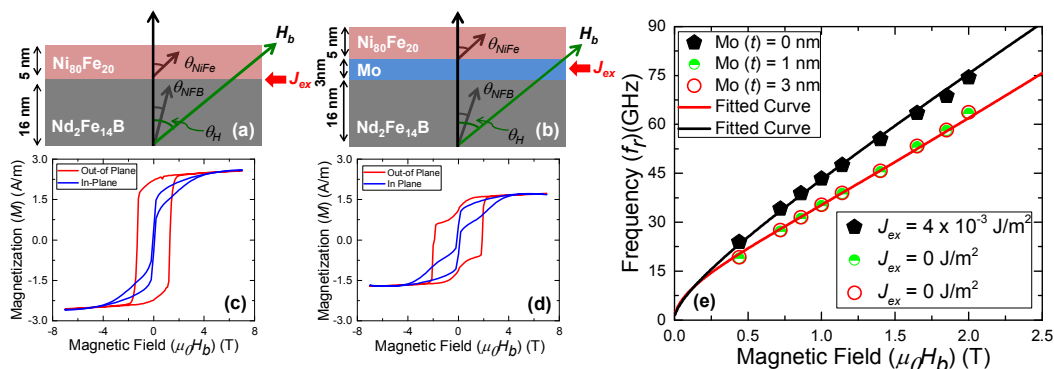


Figure 1: Schematic diagram of Nd-Fe-B/Ni-Fe bilayer coupled system and their corresponding magnetization curve Mo ( $t = 0$  nm) (a), (c) and Mo ( $t = 3$  nm) (b), (d). (e) Calculated and observed  $f_r$  as a function of  $\mu_0 H_b$  for Mo ( $t = 0, 1$  and  $3$  nm).

## Reference

- 1) H. Sepelri-Amin *et al.*, *Acta Mater.*, **61**, 6622 (2013). T. Akiya *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **115**, 17A766 (2014).
- 2) H. Kato *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **37**, 2567 (2001).

# 高エネルギー密度 PLD 法により作製した Nd-Fe-B/ $\alpha$ -Fe 系

## ナノ分散型磁石膜の特性と金属基板材料の関係

近藤 秀俊\*, 山下 昂洋, 柳井 武志, 中野 正基, 福永 博俊  
(長崎大学)

Relationship between metal substrates and properties of Nd-Fe-B/ $\alpha$ -Fe nano-dispersed film magnets prepared using PLD with high laser energy density

Hidetoshi Kondo\*, Akihiro Yamashita, Takeshi Yanai, Masaki, Nakano, Hirotohi Fukunaga  
(Nagasaki University)

**はじめに** 工業, 医療分野の発展に貢献が期待される「薄手永久磁石の開発」が報告される中<sup>(1),(2)</sup>, 我々は紫外線波長の PLD(Pulsed Laser Deposition)法を用いた際の Nd-Fe-B ターゲット表面に照射するレーザービーム径を Focus し, 10 J/cm<sup>2</sup> 以上の高エネルギー密度下で成膜し熱処理を施す事で, Ta 基板上に等方性 Nd-Fe-B/ $\alpha$ -Fe 分散型ナノコンポジット磁石膜を作製できる結果を最近報告した<sup>(3)</sup>. この手法で作製した膜は, Fig.1 に示すように成膜直後の時点では Nd-Fe-B アモルファス相内に  $\alpha$ -Fe が柱状に析出し, 熱処理後に  $\alpha$ -Fe が分散配置するような微細構造に変化することが確認されている。上記の微細構造は Ta 基板上では確認できている。

本研究では, 上記の高エネルギー密度を利用する手法において, Ta 基板と同様, 融点が高い他の金属基板を準備し, それらの基板が成膜直後や熱処理後の微細構造に及ぼす影響について検討し, 磁気特性向上への知見を得ることを目的とした。

**実験方法** 約 6.5 rpm で回転させた Nd<sub>26</sub>Fe<sub>14</sub>B 合金ターゲットに, 波長 355 nm の Nd:YAG レーザーを照射し成膜する PLD (Pulsed Laser Deposition)法を用い, 高融点金属基板 (Ti, W, Nb, Mo) 上に Nd-Fe-B 系磁石膜を作製した。具体的には, ターゲット-基板間距離を 10 mm, レーザーパワーを 4 W, エネルギー密度 10 J/cm<sup>2</sup> 以上, 成膜時間 60 min に固定し成膜した。いずれの基板においても, 成膜直後は非晶質であったため, 2.0 s 程度のパルス熱処理を施し結晶化させた。その後, 印加磁界 7 T のパルス着磁を施し, 最大印加磁界 2.5 T のもと VSM で磁気特性を評価した。組成は SEM-EDX で Nd と Fe の含有量を測定し, 膜断面の微細構造は TEM (透過電子顕微鏡) を用い観察した。

**実験結果** Ti, W, Nb 基板上の成膜後の試料は, 既報の Ta 基板上の試料 (Fig.1 参照) と同様な微細構造が観察され, 熱処理を施すことにより分散構造となる様子を確認した。Fig. 2 が示すように, この 3 つの基板の試料の磁気特性はばらつきはあるものの, Nd-Fe-B/ $\alpha$ -Fe 分散型ナノコンポジット磁石膜として,  $(BH)_{\max}$  が平均 90 kJ/m<sup>3</sup> 以上の値を示す事が明らかとなった。すなわち, 上述した微細構造を得るに当たり, 基板材料の影響はレーザーのエネルギー密度等の成膜条件に比べ小さいことが明らかとなった。一方, Mo 基板上の試料においては, 熱処理後の  $(BH)_{\max}$  が他の基板上の試料に比べ低く, 磁石膜と基板の密着力も弱い事が観察され, 著しく異なる現象が観察された。これらの結果については, 各試料の組成なども含め, 議論する予定である。

### 参考文献

- (1) P. McGuinness *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* 305, pp. 177-181, 2006.
- (2) N. M. Dempsey *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, 092509, 2007.
- (3) H. Kondo *et al.*, *INTERMAG Europe 2017*, HR-10

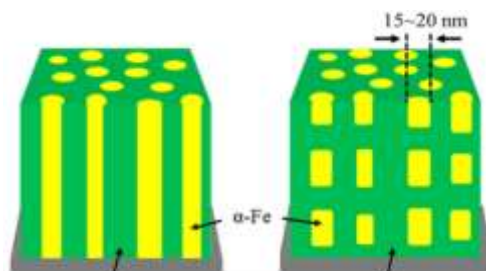


Fig.1 Schematic diagram of the cross-sectional microstructure.

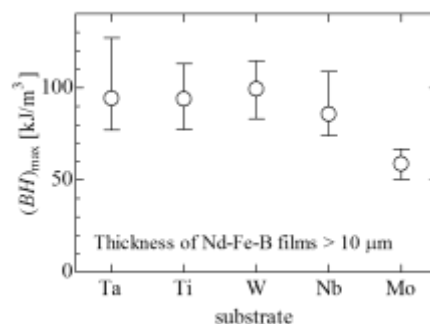


Fig.2  $(BH)_{\max}$  values of each film deposited on various metal substrates.



## Si 基板上酸化膜と等方性 Nd-Fe-B 系厚膜磁石の特性の関係

清水 大\*, 山口 雄太, 山下 昂洋, 柳井 武志, 中野 正基, 福永 博俊 (長崎大学)

Relationship between each oxide layer on Si substrates and properties of isotropic Nd-Fe-B thick-film magnets

D. Shimizu, Y. Yamaguchi, A. Yamashita, T. Yanai, M. Nakano and H. Fukunaga (Nagasaki University)

### はじめに

電子機器の内部に使用される永久磁石の小型化が求められる中, MEMS(Micro-electromechanical system)への応用を鑑み, スパッタリング法を利用した Si 基板上への Nd-Fe-B 系磁石膜の成膜と共に, デバイス応用が報告されている<sup>(1)(2)</sup>. その膜厚は最大で 20  $\mu\text{m}$  程度であり, 更なる厚膜化を実現した際には, 磁石膜の応用範囲の拡大, 磁石膜を用いたデバイスの特性向上などが期待される. 最近我々は, 成膜速度を数 10  $\mu\text{m}/\text{h}$  の条件に設定した PLD (Pulsed Laser Deposition) 法を用い, Nd の線膨張係数が  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相と Si 基板の間の値であることに着目し, 試料内の Nd 含有量を増加させ粒界や三重点に Nd を析出させることで, 熱処理時に起こる基板内部からの破壊を抑制し, 膜厚 100  $\mu\text{m}$  以上の Nd-Fe-B 系厚膜磁石が Si 基板上に得られる事を報告した<sup>(3)</sup>.

本稿では, 上記の Nd 含有量をパラメータとすると共に, 厚膜磁石と Si 基板上の界面に存在する酸化膜に着目した. 具体的には, 自然酸化膜以外に厚さの異なる 3 種類の熱酸化膜を持つ Si 基板を準備し, 各々の磁気特性と機械特性に及ぼす影響を検討した.

### 実験条件

真空度  $10^{-5}$  Pa 程度のチャンバー内で回転する Nd-Fe-B 合金ターゲットに, Nd-YAG パルスレーザーを照射することで, ターゲットを構成する分子や原子等を解離・放出させ, 対面に設置した熱酸化膜 (20, 100, 500 nm 厚程度) と自然酸化膜 (約 1 nm 厚) を各々有する (100) 単結晶 Si 基板上に堆積した. その際, レーザパワーを 4 W, ターゲットと基板間の距離を 10 mm に固定した. 更に, 成膜直後の試料はアモルファス構造であったため, 3.5~3.7 sec の極短時間での熱処理を施し,  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相を形成した. 磁気特性の測定は VSM, 膜組成の評価と試料の表面観察には, SEM-EDX, 微細構造観察には TEM を用いた.

### 実験結果

Nd 含有量 (Nd/(Nd+Fe)) を約 20 at.% で固定した 10  $\mu\text{m}$  厚以上の Nd-Fe-B 系磁石膜を上記の 4 種類の Si 基板上に成膜し, 熱処理後の磁気特性ならびに機械特性を比較したところ, いずれの基板に作製した試料の  $(BH)_{\text{max}}$  も 50~60  $\text{kJ}/\text{m}^3$  の範囲の値を示し, 保磁力ならびに残留磁気分極もほぼ同程度の特性であった. すなわち, 現状の条件の範囲では, 磁気特性に及ぼす Si 基板上の酸化膜の影響は小さいことがわかった.

一方, 機械特性を検討したところ, 酸化膜の厚みの影響が見られた. 具体的な結果を図 1 に示す. 試料の Nd 含有量を約 20 at.% で固定した際, 酸化膜の厚みの増加に伴い, 熱処理時の破壊が起きなかった試料での最大膜厚が増加した. 破壊が生じた際の様子を観察すると, 自然酸化膜と 20 nm 厚の熱酸化膜を有する基板を用いた試料は, Si 基板から磁石膜が剥離する一方, 100 nm ならびに 500 nm 厚の熱酸化膜のものでは, 剥離ではなく, Si 基板の内部から常に破損した. すなわち, 後者の試料 (100 nm もしくは 500 nm 厚の熱酸化膜を用いたもの) では基板と厚膜磁石の強い密着性が観察された. 酸化膜の厚みの変化により, 破壊現象が異なる原因を調べるために, 500 nm 厚の熱酸化膜付 Si 基板上の試料における熱処理後の微細構造とその元素分布を観察したところ, Si 基板と Nd-Fe-B 系磁石膜の界面に, Fe, Si, O 元素よりなる約 100 nm 厚の化合物層が確認された. 現在のところ, この化合物は酸化膜の厚みの増加に伴い, より形成しやすい事が推察され, 異なる密着性を生じさせたものと考えられる. 加えて, 図 2 には, 500 nm 厚の熱酸化膜のものに対し, Nd 含有量を 20 もしくは 25 at.% 程度に制御した際の Nd-Fe-B 系厚膜磁石の最大膜厚を示している. 試料の Nd 含有量が増加するに従い, Nd が粒界相, 三重点だけではなく, 基板と厚膜磁石の界面にも析出する様子が観察された. 上記の析出した Nd が, 熱処理における基板と厚膜磁石の線膨張係数の差を起源とする応力を緩和し, 最大膜厚の増加に貢献したものと推察される. 本発表では, 図 2 に示す 100  $\mu\text{m}$  厚を超える Nd-Fe-B 系厚膜磁石に対してダイシング加工やウェットエッチングを施した結果も併せて報告する.

### 参考文献

- (1) R. Fujiwara et al., *Int. J. Automobile Tech*, Vol.7 No.2 pp. 148-155(2013).
- (2) 小峠ら, 電気学会マグネティクス研究会資料, MAG-12-170(2012).
- (3) M. Nakano et al., *IEEE Trans. Magn.* 51, #2102604(2015).

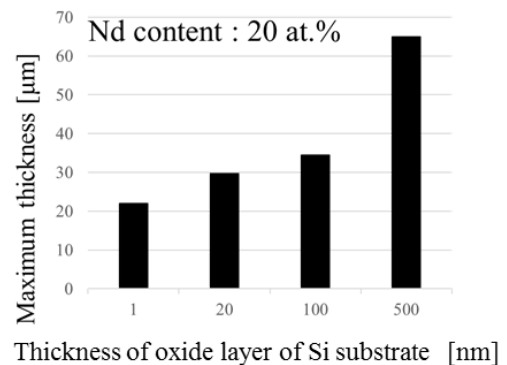


Fig.1 Relationship between each thickness of oxide films and maximum thickness of Nd-Fe-B thick film magnets.

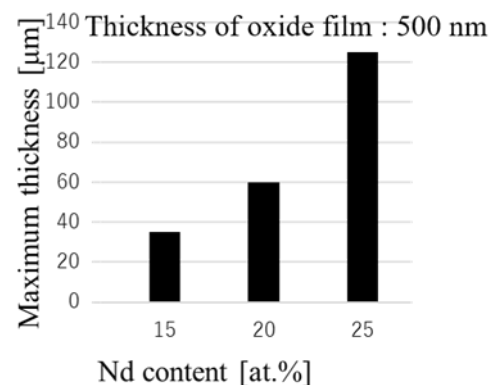


Fig2. Relationship between each Nd content and maximum thickness of Nd-Fe-B thick film magnets.

## Ga 添加焼結 Nd-Fe-B 磁石の FORC 解析

宮澤和則<sup>1</sup>, 蓬田貴裕<sup>1</sup>, 岡本聡<sup>1,2</sup>, 菊池伸明<sup>1</sup>, 北上修<sup>1</sup>, 佐々木泰祐<sup>2</sup>, 大久保忠勝<sup>2</sup>, 宝野和博<sup>2</sup>,  
高田幸生<sup>3</sup>, 佐藤岳<sup>3</sup>, 金子裕治<sup>3</sup>, 加藤晃<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>東北大学, <sup>2</sup>ESICMM, 物材機構, <sup>3</sup>豊田中研, <sup>4</sup>トヨタ自動車)

FORC analysis on Ga added Nd-Fe-B sintered magnets

K. Miyazawa<sup>1</sup>, T. Yomogita<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1,2</sup>, N. Kikuchi<sup>1</sup>, O. Kitakami<sup>1</sup>, T.T. Sasaki<sup>2</sup>, T. Ohukubo<sup>2</sup>, K. Hono<sup>2</sup>,  
Y. Takada<sup>3</sup>, T. Sato<sup>3</sup>, Y. Kaneko<sup>3</sup>, A. Kato<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>ESICMM, NIMS, <sup>3</sup>Toyota Central R&D Labs., Inc. <sup>4</sup>Toyota Motor Corp)

### 1. はじめに

焼結 Nd-Fe-B 磁石はハイブリッド/電気自動車の駆動用モータへの適用など、環境・省エネルギー技術におけるキーマテリアルの一つである。さらなる高性能化のために保磁力  $H_c$  の増大が強く求められており、高  $H_c$  磁石として近年注目を集めているのが Ga 添加焼結 Nd-Fe-B 磁石である<sup>1)</sup>。First-order reversal curve (FORC)解析は磁化反転に関する詳細な情報を考察するうえで非常に有効な手法であり<sup>2)</sup>、これまでに我々は熱間加工 Nd-Fe-B 磁石に対して詳細な検討を進めてきた<sup>3)</sup>。今回、Ga 添加焼結 Nd-Fe-B 磁石に対して FORC 解析を実施した結果を報告する。

### 2. 実験方法

試料はマクロな反磁界係数を小さくするため  $0.5 \times 0.5 \times 3 \text{mm}^3$  のピラー形状に加工して測定を行った。 $c$ -軸は長軸に平行である。測定は VSM を用いた。比較のために商用焼結 Nd-Fe-B 磁石も併せて測定しており、測定温度は室温から  $200^\circ\text{C}$  の範囲で行った。

### 3. 結果と考察

Fig. 1 に商用磁石, Fig. 2 に Ga 添加磁石の FORC 解析結果を示す。商用磁石では、 $\mu_0 H_c = 1.07 \text{ T}$  であり、その FORC diagram には  $H = H_c$  に対応する強いスポットに加えてゼロ磁場付近にも弱いスポットが確認される。このような低磁場スポットの存在は、焼結 Nd-Fe-B 磁石における特徴の一つである<sup>4)</sup>。一方、Ga 添加磁石では  $\mu_0 H_c = 1.56 \text{ T}$  であり、その FORC diagram においては、低磁場スポットが非常に弱くなっていることが分かり、高  $H_c$  発現との相関が示唆される。現在、これらの温度依存性を測定し、高磁場/低磁場スポットと  $H_c$  挙動の相関について調査している。

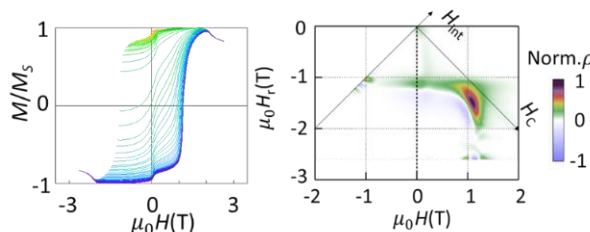


Fig. 1 FORCs and FORC diagram of commercially available sintered magnet at rt

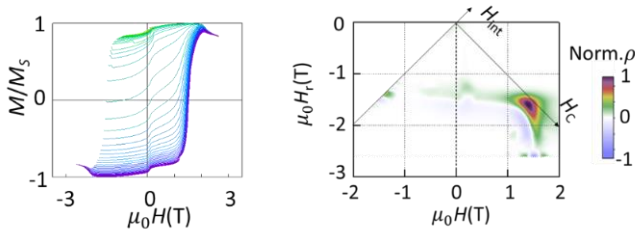


Fig. 2 FORCs and FORC diagram of Ga-added sintered Nd-Fe-B magnet at  $50^\circ\text{C}$

### 4. 参考文献

- 1) T.T. Sasaki et al. *Scr. Mater.*, **113**, 218 (2016)
- 2) C. Pike et al., *J. Appl. Phys.* **85**, 6660 (1999)
- 3) T. Yomogita et al., under review
- 4) T. Schrefl et al., *J. Appl. Phys.* **111**, 07A728 (2012)

## 大規模シミュレーションによる粒界相のピンニング効果の研究

塚原宙、岩野薫、三俣千春<sup>1</sup>、石川正、小野寛太  
(高エネ研,<sup>1</sup> 物材機構)

Investigation for directional dependency of pinning effect of grain boundary phase using large-scale micromagnetic simulation

H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata<sup>1</sup>, T. Ishikawa, and K. Ono  
(KEK, <sup>1</sup>NIMS)

## はじめに

近年温室効果ガスによる温暖化が深刻し電気自動車などの低炭素社会に向けた技術が重要になっている。永久磁石はその技術の中核を担う材料であり、さらなる高性能化に向けた研究が精力的になされている。永久磁石は多数の粒子から構成され、磁気特性向上のためには粒子間の磁氣的分断による磁化反転の阻止が重要になる。永久磁石では浸透処理による粒界相の改質などの手法で磁化反転の伝搬を阻害する。しかしながら磁化反転伝搬における粒界相の役割は完全には理解されていない。我々は反磁場の効果も含め粒界相の役割について大規模シミュレーションを用いて研究した。その結果、外部磁場平行方向と比べて垂直方向に対して粒界相による磁気分断を行うことで磁化反転の伝搬が阻害される事を明らかにした。

## 計算手法

図1(a)に示される様に立方体の粒子を格子状に並べた異方性磁石モデルを用いてシミュレーションを行った。粒径は64nmであり異方性磁石モデル1辺の長さは1024nmである。磁化ダイナミクスは異方性磁石モデルを1辺2nmの立方体セルで分割し、Landau-Lifshitz-Gilbert方程式を周期境界条件下で解き計算した。よってこの異方性磁石モデルは4,096個の粒子から構成されており、シミュレーションでは約1億セルを用いている。今回のシミュレーションでは図1(b), (c)に示される様に $xy$ 平面および $z$ 軸方向のみ粒界相がある場合を考え、それぞれtype AおよびBとした。外部磁場は $z$ 軸方向に印加される。粒子を構成する物質は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を想定し、飽和磁化 $1281.2 \text{ emu/cm}^3$ 、磁気異方性定数 $4.5 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$ 、交換スティフネス定数 $12.5 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$ およびギルバートダンピング定数1.0を用いた。また粒界相は強磁性体を仮定し、主相粒子に比べ飽和磁化は10%、交換スティフネス定数は1%とし、磁気異方性は無いとした。シミュレーションは独自に開発したシミュレーターを使用し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[1]。容易軸は平均で $z$ 軸から $11.6^\circ$ 傾いたモデルを作成した。

## 結果

シミュレーションから計算された磁化曲線を図1(d)に示す。磁化曲線は粒界相が存在する方向に大きく依存し、保磁力はtype Aで約36kOeでありtype Bに比べ1.28倍大きな値となった。Type Aでは磁化は徐々に減少しているのに対し、type Bでは急激に磁化が減少する。図1(e)および(f)にtype AおよびBの外部磁場が $-36\text{kOe}$ での磁化状態を示す。Type Aでは粒界相でのピンニング効果により磁化反転領域は $z$ 軸方向のみに伝搬している事が分かる。これに対しType Bでは、反磁場の影響により、 $z$ 方向に粒界相があるにも関わらず磁化反転が磁石全体に広がる。

## 謝辞

本研究の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16/17-25)により行われた。

[1] H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata, T. Ishikawa, K. Ono, Comput. Phys. Commun, 207, 217 (2016).

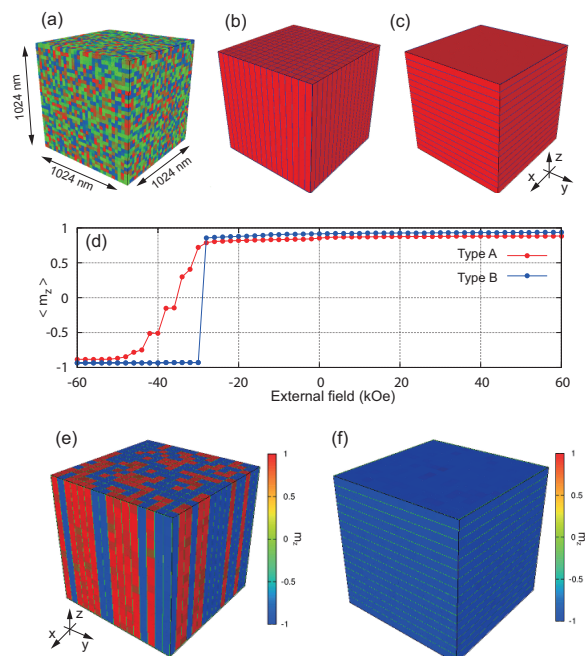


Fig 1: The simulation model (a), the grain boundary phase of type A (b) and B (c). The black lines represent the grain boundary phase. The calculated hysteresis curve (d), and the magnetization of type A (e) and B (f), when external field is  $-36\text{kOe}$ .

## UHM 着磁に適した Nd-Ce-Fe-B 系急冷薄帯の開発

村上勘太、戸高孝、花島健太郎\*、幸村治洋\*  
(大分大、\*ミネベアミツミ)

Development of Nd-Ce-Fe-B based melt-spun ribbons for UHM magnetization  
Kanta Murakami, Takashi Todaka, Kentaro Hanashima and Haruhiro Komura  
(Oita Univ., MinebeaMitumi Co. Ltd.)

### はじめに

近年、車載用途のモータ開発が盛んに行われており、磁石にも耐熱性が要求されている。耐熱磁石としては、高保磁力の焼結磁石を利用することが多いが、使用環境によっては耐熱ボンド磁石が使用される場合がある。耐熱ボンド磁石には耐熱磁粉が使用されているが、ボンド磁石としては高コストになること、高保磁力による着磁率の低下が課題となっている。そこで、本研究では着磁率の高い着磁方法である UHM (Ultra High Magnetizing) 着磁<sup>1)</sup>に適した低コストかつ高保磁力な耐熱ボンド磁石用の磁粉開発を目的とした。また、UHM 着磁を行う場合、ボンド磁石の Curie 温度が低くなることによるメリットがある。そこで、Nd をより安価な Ce に一部置換することで、磁粉の低コスト化と Curie 温度の制御を試みた。また Zr 添加による保磁力と Curie 温度へ与える影響についても同時に検討した。

### 作製試料および熱処理条件

組成は Nd-Fe-B 系を基準とし、希土類量は 11 及び 13 at% で、Nd のみの試料と Nd の 30% を Ce で置換した試料を作製し、Ce 置換の効果を調べた。また、B は 6、8 そして 10 at% と変化させ、磁気特性に与える影響を調べた。さらに、Zr を 2 及び 5 at% 添加し、保磁力と Curie 温度への影響を調べた。磁粉は、母合金作製後にメルトスピニング法による急冷を行って作製した。作製した試料は 600 °C、650 °C 及び 700 °C で熱処理し(保持時間なし)、保磁力  $H_c$ 、飽和磁化  $J_s$ (最大磁化 at 15 kOe) ならびに保磁力が最も大きい試料の Curie 温度  $T_c$  の測定を行った。母合金は超小型真空アーク溶解装置(日新技研製、NEV ADO 3 型)を用いて作製し、急冷薄帯は液体急冷凝固装置(日新技研製、NEV-A05)を用いて作製した。磁気特性は振動試料型磁力計(VSM: 理研電子、BHV-35H)で評価した。

### 測定結果

Fig. 1 に Zr の添加量に対する保磁力と Curie 温度の関係を示す。Fig. 1(a), は希土類が Nd のみであり、Fig. 1 (b)は Nd の 30% を Ce で置換した試料である。Fig. 1 から、Ce 置換によって Curie 温度が低下していることがわかる。Ce の置換量によって Curie 温度の制御が可能であることが示唆される。一方、Zr の添加により保磁力の増加と Curie 温度の低下傾向が得られた。当日は、測定結果の詳細及び Zr 添加の希土類量依存性について報告する。

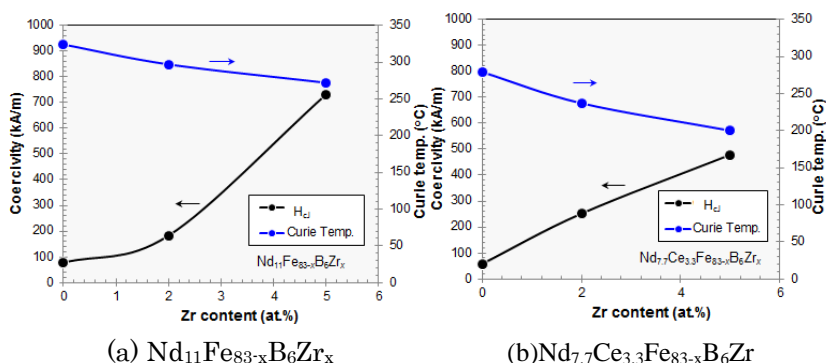


Fig.1 Relationship between coercivity and Curie temperature with respect to the amount of Zr added.

### 参考文献

- 1) 幸村、Nd-Fe-B 系ボンド磁石の粉体圧縮成形と高効率着磁技術、SOKEIZAI, Vol. 52, No. 8, pp. 1-5, 2011.

# 粒界改質した Nd-Fe-B 系焼結磁石の重希土類成分と磁気特性

町田憲一、難波雅弘、兪 小紅、西尾博明、遠藤政治  
(大阪大学)

Heavy Rare Earth Elements and Magnetic Properties of Grainboundary Modified Nd-Fe-B Sintered  
Magnets

Ken-ichi Machida, Masahiro Namba, Xiaohong Yu, Hiroaki Nishio, Masaji Endo  
(Osaka Univ.)

## 1. 緒言

Nd-Fe-B 系焼結磁石では、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 主相粒子を取り囲む Nd リッチ粒界相に選択的に高保磁力成分である重希土類元素 (Dy や Tb) を導入すること (粒界改質法) で、高い磁化と保磁力とを兼ね備えた磁石とすることが可能となる[1]。この場合、Dy や Tb をいかに粒界部に均一に導入するかが重要であり、この良否により磁気特性、特に減磁曲線において磁化が急激に低下する部位の曲率 (角型性) に顕著な違いが生じる。特に、導入した Dy や Tb の拡散深さ方向に対する濃度の均一性が保磁力の増加割合の大小と密接に関連すると考えられる。そこで、本研究では DyAl 系または Tb-Al 系合金を用いて Nd-Fe-B 系焼結磁石に対して粒界改質処理を施し、磁化、保磁力、角型性などの研磨深さに対する数値の揺らぎについて検討したので報告する。

## 2. 実験

改質に用いた磁石は信越化学工業(株)製の N52 で、角柱状 (3×3×2.8 mm) または円柱状 (10 mmφ×3.5 mmL) の磁石片に切断し有機溶媒で脱脂後、既報[1]に従い改質処理を施した。改質材である Dy-Al 系または Tb-Al 系と Nd を含む Dy-Nd-Al 系または Tb-Nd-Al 系合金は、所定量のそれぞれの単体金属 (純度: 99~99.99%) をアーク溶解することで作製し、精製 Ar 雰囲気中、950°C で 4 時間加熱後、引き続き 550°C から 600°C で 2 時間アニール処理した。得られた角柱状磁石ではそれぞれの辺に沿って等方的に、また円柱状磁石では高さ方向 L に沿って垂直に各底面を研磨し、これらの磁気特性は超電導式 VSM 装置を用いて室温で測定した。

## 3. 結果と考察

Nd-Fe-B 系焼結磁石に対して、Tb<sub>3</sub>Al<sub>2</sub> 合金粉末を改質材として処理した試料 (この場合は L=7 mm の円柱状磁石で、単独の 1 個で測定) 磁気ループ曲線と同微分曲線を、未処理磁石のそれらと併せて図 1 に示す。図から、Tb-Al 系合金の改質により保磁力が効果的に増大する反面、未処理磁石に比べて角型性が幾分低下していることがわかる。これは改質処理により内部に導入された Tb 元素の分布に偏りが起こり、深さ方向に対して保磁力のバラツキが生じたものと推察される。

次に、L=3.5 mm の円柱状磁石 2 個に対して同様に改質処理を行い、上下のそれぞれの底面を同程度研磨した試料の磁気特性を表 1 に示す。ここで、L の大きさは研磨した円柱状磁石 2 個の L 値の合計であり、未研磨の L=7 mm からの高さの差が研磨した深さに対応する。表より、研磨することで磁化と最大エネルギー積は幾分上昇したが、保磁力はほぼ同程度であった。また角型性も研磨深さと共に幾分低下した。同様の結果は Dy-Al 系合金等を改質材として使用した場合でも見られた。

## 参考文献

- 町田、李、金属、78 (2008) 760 など
- 町田、脇、難波、兪、西尾、遠藤、日本金属学会 2017 春期大会、講演番号 S1.16

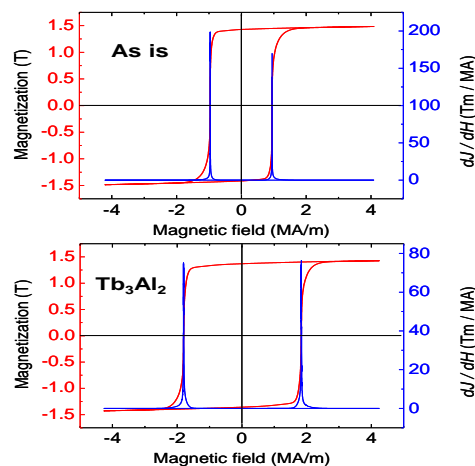


図 1. 改質前および Tb-Al 系合金で改質した円柱状磁石の磁気

表 1. Tb-Al 系合金で改質した円柱磁石の長さ方向 L (研磨深)

Sample	Br (T)	H <sub>J</sub> (MA/m)	BH <sub>max</sub>	H <sub>k</sub> /H <sub>J</sub>
As-is	1.46	0.969	410	95
Tb3Al2_L7.0	1.32	1.900	339	89
Tb3Al2_L6.6	1.32	1.890	341	88
Tb3Al2_L6.2	1.34	1.890	347	87
Tb3Al2_L5.8	1.35	1.896	347	85

## Nd-Fe-B 磁石の微細構造が高温時の保磁力に及ぼす影響

原田俊貴\*, 柳井武志, 中野正基, 福永博俊 (長崎大学)

Influence of microstructure of Nd-Fe-B magnet on coercivity at high temperatures

T. Harada, T. Yanai, M. Nakano and H. Fukunaga (Nagasaki University)

## はじめに

Nd-Fe-B 磁石は、最高の最大エネルギー積をもつ永久磁石であるが、高温での保磁力劣化が激しく、温度上昇が見込まれる用途での使用が困難である。この磁石の保磁力は、磁石の微細構造に依存することが知られており、高温時の微細構造の影響を解明することが高温での保磁力改善の手がかりとなる。Sepehri-Amin らは、結晶粒径が及ぼす影響について、反磁界の大きさに注目して計算機シミュレーションを行っているが<sup>1)</sup>、本研究では、粒界三重点の大きさに加えて、交換スティフネス定数、結晶表面の磁気異方性定数が高温時の保磁力に及ぼす影響を、計算機を用いて解析を行った。

## 解析方法

$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  を母相とし、その外側に非磁性粒界相を配置したモデル磁石を仮定した (Fig.1)。また、結晶表面の異方性定数の影響を検討する際には母相と比べて磁気異方性定数のみ低下した磁気劣化層 (厚さ 1.5 nm) を母相表面に配置した。モデルの一边  $L$  (48 or 96 nm) をそれぞれ 32 ~ 64 等分し、 $32^3 \sim 64^3$  個の立方体要素に分割することで結晶内部の非一様な反転を模擬した<sup>2)</sup>。境界条件として周期境界条件を用いて無限に大きな磁石を仮定した。使用したパラメータを Table1 に示す。

Table1 Simulation parameters.

	Nd <sub>2</sub> Fe <sub>14</sub> B phase			nonmagnetic phase
	300 K	400 K	473 K	
$K_u$ [MJ/m <sup>3</sup> ]	4.50	3.01	1.62	0
$J_s$ [T]	1.61	1.41	1.22	0
$A_c$ [pJ/m]	8.70	6.66	4.97	0
$K_d$ [MJ/m <sup>3</sup> ]	0 ~ $K_u$			—

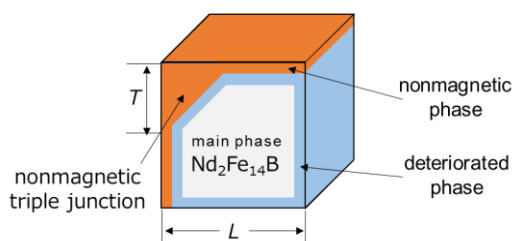
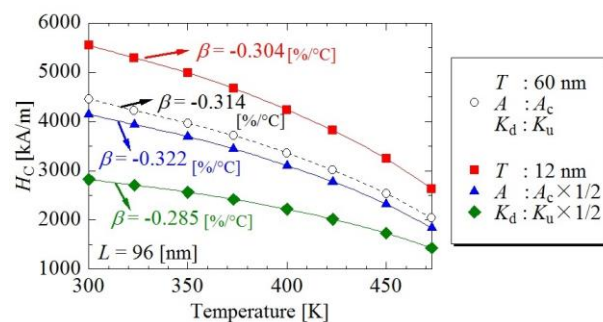


Fig.1 Simulation model.

## 解析結果

Fig.2 に保磁力  $H_c$  の温度依存性を示す。図には粒界三重点の大きさ  $T$  を 60 nm、交換スティフネス定数  $A$  を Table1 に示す値 ( $A_c$ )、磁気劣化層の異方性定数  $K_d$  を主相の異方性定数  $K_u$  (磁気劣化層なし) とした計算結果に加えて、それらのパラメータのうちの  $T$ ,  $A$ ,  $K_d$  のみ変化させた場合の  $H_c$  を示している。また、図中には 300 ~ 473 K での  $H_c$  の温度係数  $\beta$  も示している。図に示されるように、 $T$  の増加、 $A$  の減少、 $K_d$  の減少によってそれぞれ保磁力は減少する。 $T$  の影響は反磁界によるもの<sup>2)</sup>、 $K_d$  の影響は異方性磁界によるもの<sup>3)</sup>ということは既に報告されているが、交換結合の強度も保磁力に影響を及ぼす。これは、交換長の減少によるものと考えられる<sup>2)</sup>。

$K_d$  が減少すると  $\beta$  が改善される。このとき、磁壁が結晶表面でピン止めされることが確認された。この結果は保磁力の発現機構をピンニング型にすることで保磁力の温度依存性を改善できる可能性を示唆している。

Fig.2 Temperature dependence of coercivity  $H_c$ .  $\beta$  is the temperature coefficient of  $H_c$  between 300 to 473 K.

## 参考文献

- 1) H. Sepehri-Amin *et al.*, *Scripta Materialia*, **89** (2014) pp.29-32.
- 2) H. Fukunaga *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **117** (2015) #17A729.
- 3) H. Fukunaga *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29** (1990) pp.1711-1716.

## ナノコンポジット $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Mo}/\text{Fe-B}$ 積層膜の磁気特性

大橋一輝, 神尾知志, 小池邦博, 稲葉信幸, 加藤宏朗  
 小川大介\*, 近藤政孝\*\*, 板倉 賢\*\*, 大兼幹彦\*\*\*, 安藤康夫\*\*\*  
 (山形大, \*NIMS, \*\*九州大, \*\*\*東北大)

Magnetic properties of nanocomposite  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Mo}/\text{Fe-B}$  multilayer films

Kazuki Ohashi, Tomoshi Kamio, Kunihiro Koike, Nobuyuki Inaba, Hiroaki Kato,

Daisuke Ogawa\*, Masataka Kondo\*\*, Masaru Itakura\*\*, Mikihiro Oogane\*\*\*, Yasuo Ando\*\*\*

(Yamagata Univ., \*NIMS, \*\*Kyushu Univ., \*\*\*Tohoku Univ.)

### 1. はじめに

永久磁石の最大エネルギー積 $(BH)_{\max}$ の増大方法であるハード/ソフト相交換結合型のナノコンポジット化は、均質なナノ結晶粒子の形成が困難なため、期待される性能が得られていない。他の要因として Toga 等は第一原理計算により  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$  接合界面における負の交換結合状態の存在が磁化低下の要因である事を指摘した[1]。我々は実験的にこの交換結合状態の接合界面異方性を確認し [2],[3],  $\text{Nd-Fe-B}$  がアモルファスの状態からポストアニールした  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Mo}/\text{Fe}$  積層膜における垂直磁気異方性の発現を報告している[4]。本研究では  $\text{Fe-B}$  合金を軟磁性相とした  $\text{Nd-Fe-B}/\text{Mo}/\text{Fe-B}$  積層膜の磁気特性に与える  $\text{Mo}$  中間層効果を検討する。

### 2. 実験方法

積層膜は UHV スパッタ装置を用いて  $\text{MgO}(001)$  基板上に製膜した。膜構成は  $\text{Mo}(20 \text{ nm})/[\text{Nd-Fe-B}(30 \text{ nm})/\text{Mo}(t_{\text{Mo}}=0, 1 \text{ nm})/\text{Fe-B}(5 \text{ nm})/\text{Mo}(t_{\text{Mo}}=0, 1 \text{ nm})]_5/\text{Mo}(10 \text{ nm})$  である。  $T_s=300^\circ\text{C}$  で  $[\text{Nd-Fe-B}/\text{Fe-B}]$  及び  $[\text{Nd-Fe-B}/\text{Mo}/\text{Fe-B}]$  を 1 周期として 5 周期繰り返し堆積し、  $400^\circ\text{C} \leq T_a \leq 750^\circ\text{C}$  の範囲で真空中アニールした。磁化曲線は VSM を用い、結晶構造と配向状態は XRD と TEM で、膜厚は XRR で評価した。膜表面形態は AFM で、磁区像を MOKE で観察した。

### 3. 実験結果・考察

Fig.1 の  $750^\circ\text{C}$  でアニールした  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Mo}(t_{\text{Mo}}=0, 1 \text{ nm})/\text{Fe-B}$  積層膜の面直方向(OOP)の磁化曲線から、 $\text{Mo}$  中間層の無い  $t_{\text{Mo}}=0 \text{ nm}$  の積層膜における約  $1 \text{ kOe}$  の保磁力  $H_c$  が、 $\text{Mo}$  中間層を導入した  $t_{\text{Mo}}=1 \text{ nm}$  の積層膜では約  $5 \text{ kOe}$  へ増大していることが分かる。後者の積層膜の断面 TEM 観察から  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  の形成が確認されており、この面直方向の初磁化曲線の放物線形状と減磁曲線の良好な角型性は、ピン留め型の保磁力発生機構と  $\text{Mo}$  中間層を介した  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  層と  $\text{Fe-B}$  層間の交換結合状態を示唆している。この結果は軟磁性相に  $\text{Fe-B}$  合金を用いた場合でも、 $1 \text{ nm}$  厚の  $\text{Mo}$  中間層の導入が既報 [4] と同様に  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  相生成と両層間の正の交換結合を維持するのに有効であることを示している。

#### References

[1] Y. Toga, H. Moriya, H. Tsuchiura, and A. Sakuma, *J. Phys.: Conf. Series* **266** (2011) 012046.

[2] D. Ogawa, K. Koike, S. Mizukami, M. Oogane, Y. Ando, T. Miyazaki, and H. Kato, *J. Magn. Soc. Jpn.* **36**, (2012) 5.

[3] D. Ogawa, K. Koike, S. Mizukami, T. Miyazaki, M. Oogane, Y. Ando, and H. Kato, *Appl. Phys. Lett.*, **107**, (2015) 102406.

[4] K. Kobayashi, D. Ogawa, K. Koike, H. Kato, M. Oogane, T. Miyazaki, Y. Ando and M. Itakura, *J. Phys.: Conf. Ser.*, in press.

謝辞：本研究の一部は JST 産学共創基礎基盤研究プログラム「革新的次世代高性能磁石創製の指針構築」および JSPS (基盤研究(B) No.16H04488)の助成を受けて行われた。

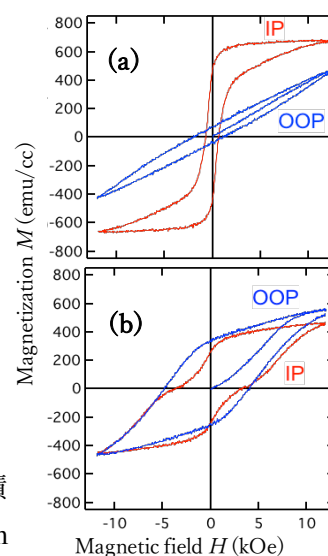


Fig.1 Magnetization curves for the  $\text{Nd-Fe-B}/\text{Mo}(t_{\text{Mo}})/\text{Fe-B}$  multilayers with (a)  $t_{\text{Mo}}=0 \text{ nm}$  and (b)  $t_{\text{Mo}}=1 \text{ nm}$  annealed at  $T_a=750^\circ\text{C}$ .

## 2段階熱処理を用いて作製した異方性 Sm-Co/ $\alpha$ -Fe ナノコンポジット厚膜磁石の磁気特性

前島悠雅、古川雄也、柳井武志、中野正基、福永博俊  
(長崎大学)

Magnetic properties of anisotropic Sm-Co/ $\alpha$ -Fe nanocomposite thick film-magnets prepared by two-step annealing

Y. Maehata, Y. Furukawa, T. Yanai, M. Nakano, H. Fukunaga  
(Nagasaki University)

### はじめに

Sm-Co/ $\alpha$ -Fe ナノコンポジット磁石は高温下で使用可能な高性能磁石として注目されている。我々は等方性 Sm-Co/ $\alpha$ -Fe ナノコンポジット磁石で 100 kJ/m<sup>3</sup> の最大エネルギー積を報告しており<sup>[1]</sup>、異方化によりさらなる磁気特性の向上が期待される。異方性磁石は加熱基板に成膜することによって得られるが、長時間 (60 min) の加熱によって Sm-Co 層と  $\alpha$ -Fe 層間で原子拡散が起こり、積層構造が破壊される。一方、Nd-Fe-B 系磁石では2段階熱処理により異方性磁石が得られることが知られている<sup>[2]</sup>。本研究では、2段階熱処理を用いて異方性 Sm-Co/ $\alpha$ -Fe ナノコンポジット厚膜磁石を作製し、その磁気特性を検討した。

### 実験方法

本研究では Sm<sub>1.9-2.3</sub>Co<sub>5</sub> と  $\alpha$ -Fe(25-50 vol.%) の複合ターゲットを用いた。Nd:YAG レーザ ( $\lambda=355$  nm) を 6.2-7.8 rpm で回転するターゲットに照射し、Ta 基板上に成膜した。基板はジュール熱で加熱した。成膜後の磁石膜に熱処理 (600 °C で 0 min) を施すことで磁氣的に硬化させた。

### 実験結果

Fig. 1 に作製した積層型 Sm-Co/ $\alpha$ -Fe ナノコンポジット磁石における残留磁気分極比 (面内方向残留磁気分極/垂直方向残留磁気分極) の Sm/(Sm+Co) 依存性を示す。Sm 含有量の減少に伴って残留磁気分極比が向上した。

Fig.1 中の A 及び B の試料の X 線回折図を Fig.2 に示す。両試料で Fe と SmCo<sub>3</sub> から回折線が観測されるが、B 試料において SmCo<sub>3</sub> の(110)や(220)面のピーク強度が強い。Sm 含有量の減少に伴う残留磁気分極比の向上は磁化容易軸の面内配向によると考えられる。

Fig.1 中の C の試料の面内(a)と面直方向(b)のヒステリシスループを Fig.3 に示す。図中の斜線部の面内・面直の面積差を異方性エネルギーと定義すると、異方性エネルギーは約 240 kJ/m<sup>3</sup> 程度となり、同様な方法で作製した Sm-Co 単層の異方性磁石の持つ異方性エネルギー約 400 kJ/m<sup>3</sup><sup>[3]</sup> と比較して半分程度の値であった。これは膜組成の半分程

度が Fe で置き換えられたことにより、異方性が損なわれたためであると考えられる。

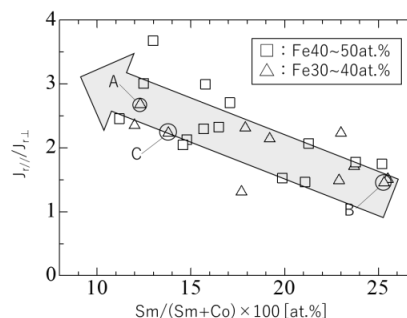


Fig.1 Dependence of remanence ratio on Sm content.

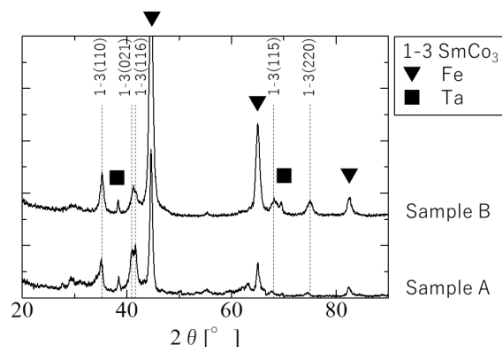


Fig.2 XRD patterns of Samples A and B.

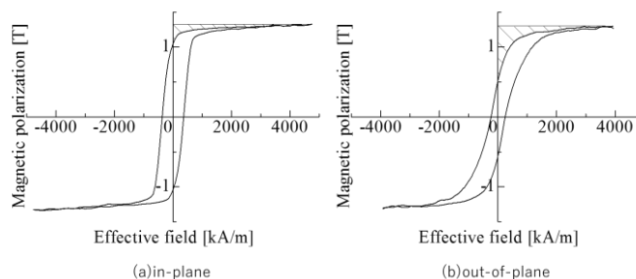


Fig.3 Hysteresis loops of Sample C.

[1] A. Tou, T. Morimura, M. Nakano, T. Yanai, and H. Fukunaga: *J. Appl. Phys.* **115**, 17A748 (2014).

[2] Ya. L. Linetsky and N.V. Kornilov: *J. Mater. Engineering and Performance* **4**, 188 (1995).

[3] Y. Furukawa, H. Koga, T. Yanai, M. nakano, H. Fukunaga: 第 39 回 日本磁気学会学術講演概要集 **189**, 10pA-9 (2015).



## 低酸素・微細 Zn 粉末による Sm-Fe-N 系 Zn ボンド磁石の高保磁力化

白岩知己<sup>1</sup>, 西島佑樹<sup>1</sup>, 松浦昌志<sup>1</sup>, 手束展規<sup>1</sup>, 杉本諭<sup>1</sup>, 庄司哲也<sup>2</sup>, 佐久間紀次<sup>2</sup>, 芳賀一昭<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>東北大, <sup>2</sup>トヨタ自動車)

High coercive Sm-Fe-N Zn-bonded magnets prepared using Zn fine powders with low oxygen content  
Tomoki Shiraiwa<sup>1</sup>, Yuki Nishijima<sup>1</sup>, Masashi Matsuura<sup>1</sup>, Nobuki Tezuka<sup>1</sup>, Satoshi Sugimoto<sup>1</sup>,  
Tetsuya Shoji<sup>2</sup>, Noritsugu Sakuma<sup>2</sup>, Kazuaki Haga<sup>2</sup>  
(<sup>1</sup>Tohoku Univ., <sup>2</sup>Toyota Motor Corporation)

### 緒言

高い飽和磁化, 異方性磁場, ならびにキュリー温度を有する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$  化合物を主相とする Sm-Fe-N 系 Zn ボンド磁石は, 高耐熱ボンド磁石としての利用が期待されている. この磁石の保磁力を向上させるためには, Sm-Fe-N 系粒子表面に現れる  $\alpha\text{-Fe}$  を Zn と反応させ非磁性化することで,  $\alpha\text{-Fe}$  を低減させる必要がある. そこで, Zn 粉末に含まれる酸素量の低減および Zn 粉末の微細化が考えられ, これによって Zn と  $\alpha\text{-Fe}$  の反応促進や組織の均一性向上が期待される. 本研究では, 水素プラズマ金属反応法 (HPMR 法) により低酸素・微細 Zn 粉末を作製し, それを用いて作製したボンド磁石の磁気特性を調べた.

### 実験方法

HPMR 法を用いて, 水素分圧  $P_{\text{H}_2} = 20\%$ , アーク電流値  $I = 100 \text{ A}$  の条件で Zn 粉末を作製した. これと Sm-Fe-N 系粉末をボールミルにより回転速度  $150 \text{ rpm}$ , 回転時間  $30 \text{ min}$  の条件で混合し,  $15 \text{ wt.}\% \text{ Zn}$  の混合粉末を作製した. また, 比較のため市販 Zn 粉末 (高純度化学社製およびイーエムジャパン社製) を用いて同様の混合粉末を作製した. その後  $2.3 \text{ MA} \cdot \text{m}^{-1}$  の磁場中,  $200 \text{ MPa}$  で圧粉体を作製し, Ar ガス雰囲気中で  $445 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $30 \text{ min}$  の熱処理をすることにより Sm-Fe-N 系 Zn ボンド磁石を作製した. 磁気特性は BH トレーサー及び VSM で, また粉末粒径はレーザー回折法ならびに TEM 像より求めた. さらに酸素分析は O/N 分析装置で, 結晶構造は XRD で評価し, 組織は SEM および TEM で観察した.

### 実験結果

Fig. 1 に, HPMR 法を用いて作製した Zn 粉末の TEM による観察像を示す. Fig. 1 より, 数十~数百 nm の粒径であることが分かり, 200 個の平均値より求めた一次粒子のメディアン径 ( $d_{50}$ ) は  $0.228 \mu\text{m}$  であった. また, この Zn 粉末の酸素量は  $0.068 \text{ wt.}\%$  であった. それに対して市販の Zn 粉末の  $d_{50}$  は, 高純度化学社製が  $3.18 \mu\text{m}$ , イーエムジャパン社製が  $0.140 \mu\text{m}$  であり, 酸素量はそれぞれ  $0.75 \text{ wt.}\%$  および  $1.5 \text{ wt.}\%$  であった. 一方, レーザー回折法を用いた粒径評価の結果, 各 Zn 粉末のメディアン径 ( $D_{50}$ ) はそれぞれ  $0.931 \mu\text{m}$ ,  $3.29 \mu\text{m}$ ,  $3.41 \mu\text{m}$  であり, 共に一次粒径より大きかったことから, Zn 粉末は二次粒子を形成していることが分かった.

これら Zn 粉末を用いて Sm-Fe-N 系 Zn ボンド磁石を作製したところ, HPMR 法により作製した低酸素・微細 Zn 粉末を用いたボンド磁石における保磁力は約  $33 \text{ kOe}$  に達し, 市販の Zn 粉末を用いて作製したボンド磁石と比べ, 高い保磁力を示すことが分かった. さらに,  $180 \text{ }^\circ\text{C}$  でも  $15 \text{ kOe}$  を超える保磁力を有することが分かった.

### 謝辞

Sm-Fe-N 系粉末をご提供頂きました, 日亜化学工業株式会社様に御礼申し上げます.

また, 本成果の一部は, 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術開発機構 (NEDO) 委託事業「未来開拓研究プロジェクト/次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発プロジェクト (MagHEM)」ならびに, 科研費 (16K14431) で得られたものである.

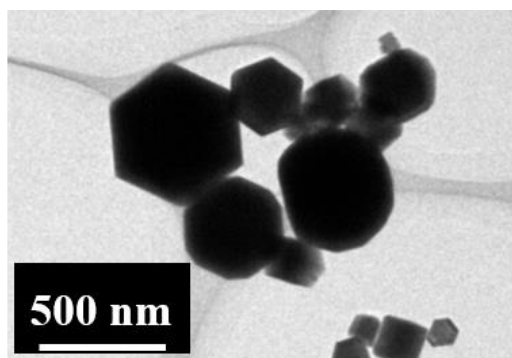


Fig. 1 Transmission Electron Microscope (TEM) image of Zn fine powder fabricated by Hydrogen Plasma Metal Reaction (HPMR) method.

## Ca還元拡散法による MnAl 合金粉末の合成

佐藤卓、門田祥悟、入江周一郎  
(TDK 株式会社)

Synthesis of MnAl alloy powder by Ca reduction diffusion process

S. Sato, S. Kadota, S. Irie  
(TDK Corporation)

### はじめに

$\tau$ -MnAl は 1958 年代に発見され<sup>1)</sup>、1980 年代には量産化・商品化に成功している比較的歴史ある磁石材料である。しかしながら、その磁気特性は第一原理計算による理論予測<sup>2)</sup>を下回っており、興味ある研究対象である。加えて、近年の希土類元素の供給不安から希土類を含まない高性能磁石としても注目を集めている。

$\tau$ -MnAl の高保磁力化の一つの方策として、粒子の微細化がある。実際、メカニカルアロイング法において作製された微細な MnAl 合金粉末において従来<sup>3)</sup>よりも大きな保磁力 4.8 kOe が報告されている<sup>4)</sup>。そこで、我々は MnAl 合金粉末の微細化のための手法として、還元拡散法に注目して研究を行った。本発表では、Ca還元拡散法により合成された MnAl 合金粉末の磁気特性及び微細構造について報告する。

### 実験方法

Mn と Al の原子比率が  $\text{Mn} : \text{Al} = x : 100 - x$  ( $x = 50.0, 52.5, 55.0, 57.5$ ) になるように MnO 原料と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  原料を秤量し、ボールミルにて混合した。混合試料を乾燥させた後に金属 Ca フレークを加え、Ar 雰囲気下の管状炉で  $1100^\circ\text{C} \cdot 2\text{h}$  の熱処理を行い、炉内から試料を引き出し Ar ガス急冷処理した。その後、得られた試料の CaO を除去し、再度 Ar 雰囲気下の管状炉にて  $400, 500, 600^\circ\text{C} \cdot 0.5\text{h}$  の熱処理をした。得られた試料の相鑑定は XRD を用い、磁気特性は VSM を用いて評価した。

### 実験結果

Fig. 1 に、 $x = 50.0 - 57.5$  における  $1100^\circ\text{C} \cdot 2\text{h}$  熱処理後の試料における XRD パターンを示す。いずれの試料も、酸化物原料の Ca による還元反応により生成される CaO に加え、MnAl 合金相が生成されていることがわかる。得られた MnAl 合金相としては、急冷処理により高温安定相である  $\epsilon$ -MnAl 相や  $\tau$ -MnAl 相が確認される一方で、低温安定相である  $\beta$ -MnAl ( $\text{Mn}_3\text{Al}_2$ ) 相や  $\gamma_2$ -MnAl ( $\text{Mn}_5\text{Al}_8$ ) 相も確認された。低温安定相は、 $x$  が小さい場合は  $\gamma_2$  相が、 $x$  が大きい場合は  $\beta$  相が生成しやすい傾向にあった。

次に、得られた  $\epsilon$  相を  $\tau$  相に相転移させるために  $x = 55.0$  の試料に  $400 - 600^\circ\text{C} \cdot 0.5\text{h}$  の熱処理を行い得られた試料の磁気特性を Fig. 2 に示す。熱処理前の磁気特性は、最大磁化が  $16.4 \text{ emu/g}$ 、保磁力は  $1.38 \text{ kOe}$  から、 $400^\circ\text{C} \cdot 0.5\text{h}$  の熱処理により、最大磁化は  $28.7 \text{ emu/g}$ 、保磁力は  $1.22 \text{ kOe}$  となり、最大磁化は 75% 程度向上したが、保磁力は減少した。さらに熱処理温度  $500, 600^\circ\text{C}$  では、最大磁化が  $23.0, 22.0 \text{ emu/g}$  となり、減少する傾向あった。

### 参考文献

- 1) H. Kono, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **13**, 1444(1958).
- 2) A. Sakuma, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **63**, 1422(1994).
- 3) T. Ohtani *et al.*, *IEEE Trans Mag.*, **MAG-13**, 1328(1977)
- 4) Q. Zeng, I. Baker and Z. C. Yan, *J. Appl. Phys.*, **99**, 08E902(2006).

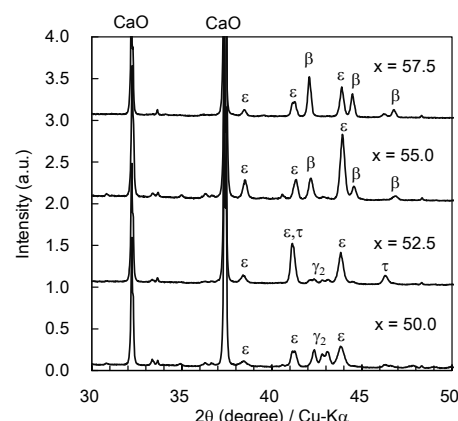


Fig.1 XRD patterns of MnAl powders ( $x = 50 - 57.5$ )

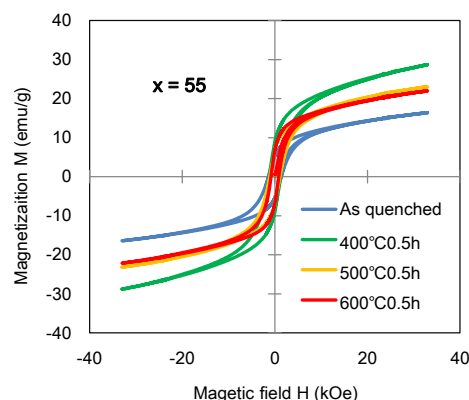


Fig. 2 MH curves of annealed samples ( $x = 55$ )

## めっき法により作製した Fe-Pt 磁石膜のクラック低減

柳井武志, 本多純也, 濱村 陵, 眞崎太郎, 高嶋恵佑, 中野正基, 福永博俊 (長崎大学)

Reduction in cracks of Fe-Pt film-magnets prepared by an electroplating method

Takeshi Yanai, Junya Honda, Ryo Hamamura, Taro Masaki, Keisuke Takashima,

Masaki Nakano, Hirotohi Hukunaga (Nagasaki University)

## はじめに

Fe-Pt 磁石は優れた磁気特性に加え, 高い耐食性や生体適合性を有するため医療・歯科用デバイスへの応用が期待される。我々のグループは過去に, 永久磁石膜の医療・歯科用応用を鑑みた電解めっき法による Co-Pt 系磁石膜作製に関する検討を行い, 定電位法を用いた塩基性めっき浴 (pH = 8) から保磁力 800 kA/m, 膜厚 1  $\mu\text{m}$  程度の Co-Pt 磁石膜を実現した<sup>1)</sup>。最近我々は, Co-Pt 合金よりも飽和磁気分極の高い Fe-Pt 合金にて, ①クエン酸をベースとする酸性浴を用いること, ②めっき時に 1 A/cm<sup>2</sup> の高電流密度を適用した定電流法を用いること, など従来とは異なる成膜アプローチにより, 厚さ 20  $\mu\text{m}$  程度までの厚膜化および保磁力 800 kA/m 程度の硬磁気特性の発現を実現した<sup>2)</sup>。酸性浴の適用により厚膜化を実現したものの, 熱処理後の試料の表面には多くのクラックが観測され, その低減が必要な状況であった。そこで本稿では, 基板の種類に着目し, クラック低減の可能性を検討したのでその結果を報告する。

## 実験方法

Fe-Pt 膜の成膜には, ジニトロジアミン白金(10 g/L), 硫酸鉄, 塩化アンモニウム(25 g/L), クエン酸(30 g/L)を用い, 硫酸鉄量によって膜組成を Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> に調整した。陽極には Pt メッシュを, 陰極兼基板には従来用いていた Ta 板の他に, Ti, Co, Ni, Cu の各板を用いた。浴温度 70°C, 電流密度 1 A/cm<sup>2</sup> の条件にて定電流めっきを行った。成膜後の Fe-Pt 膜を磁氣的に硬化させるため 700°C, 60 min の真空中熱処理を施した。

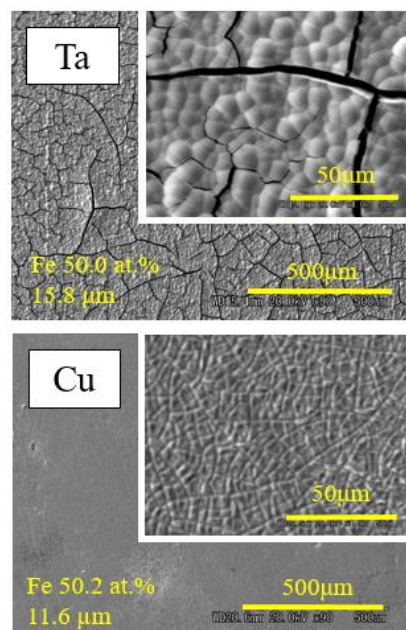
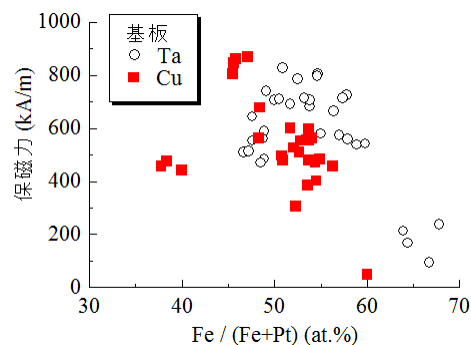
## 実験結果

Fig.1 に Ta 基板に成膜した熱処理後の Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> 膜と Cu 基板に成膜した熱処理後の Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> 膜の表面 SEM 像を示す。Fig.1 より, Cu 基板を用いることでクラックが低減することが了解される。その他の基板に関しては, Ti 基板は Ta 基板と同程度の表面状態, Co や Ni 基板は Cu 基板よりも若干クラックが多い結果となった。定量的な評価を行うため, 表面粗さ  $R_a$  を取得し, 基板の線膨張率との関係を調べたところ, 線膨張率が 10<sup>-5</sup> K<sup>-1</sup> よりも大きな基板 (Co, Ni, Cu) を用いることで, クラックの少ない Fe-Pt 膜が得られることがわかった。本結果は, Fe-Pt 膜と基板の熱膨張率の差がクラック発生 の要因であることを示唆するものである。

Fig.2 に保磁力の Fe 組成依存性を示す。得られた保磁力の最大値はともに 800 kA/m 程度であり, 基板の変更によって, 大きく保磁力が低下することはないことがわかった。

## 参考文献

- 1) N. Fujita *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **272–276** (2004) e1895.
- 2) T. Yanai *et al.*, *AIP Advances*, **6** (2016) #056014.

Fig.1 SEM images of the annealed Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> films.Fig.2 Coercivity of the annealed Fe<sub>50</sub>Pt<sub>50</sub> films as a function of Fe content.

## Effect of target composition on the barium hexaferrite (0001) thin films

Ritesh Patel<sup>1</sup>, Yuma Ikeda<sup>1</sup>, Sonia Sharmin<sup>1</sup>, Eiji Kita<sup>1,2</sup>, and Hideto Yanagihara<sup>1</sup>

<sup>1</sup>) Division of Applied Physics, University of Tsukuba, Tsukuba, Ibaraki 305-8573, Japan

<sup>2</sup>) National Institute of Technology Ibaraki College, Hitachinaka, Ibaraki 312-8508, Japan

Barium hexaferrite ( $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ ; BaM) is a magnetic oxide with the magnetoplumbite structure which has a hexagonal close-packed (hcp) oxygen frame-work structure [1]. In our previous report, the BaM(0001) thin films grown by using stoichiometric ( $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ ) target shows lower saturation magnetization ( $M_s$ )[2]. The reason for lower  $M_s$  is due to change in the composition ratio (Ba:Fe) in the deposited thin films. For applied purposes, the high quality thin film growth technique is required to achieve large magnetization comparable to the bulk. Nevertheless to say, fundamental physical properties of a film are strongly dependent on chemical composition if the film is alloy or compound. In the present study, BaM thin films were investigated by changing target composition to observe the effect on the magnetic properties.

The barium hexaferrite (BaM) (0001) epitaxial thin films were deposited on an  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (0001) substrate by radio frequency (RF) magnetron sputtering. Barium-rich ( $\text{BaFe}_{10}\text{O}_x$ ) target with a diameter of 68 mm was used. The flow rate of Ar was 10 sccm; total pressure inside the sputtering chamber was maintained at 0.41 Pa. Before the deposition, the substrate was annealed under vacuum at the growth temperature of 800 °C for 1 hour. The RF power of the sputtering process was set at 50 W. The BaM(0001) thin films of 23.5, 54.7, 73.6, 104, and 140 nm thicknesses were deposited. The BaM(0001) thin films were post-annealed in the atmosphere at 1000 °C for 10 minutes.

Figure 1(a)-(f) Shows typical  $\theta$ - $2\theta$  XRD patterns of a sapphire substrate and BaM thin films of different thicknesses after post-annealing. The dominant reflection peaks are (006), (008) and (0014), which indicate excellent  $c$ -axis orientation. However, at a higher thickness of 140 nm, BaM thin film shows the additional peaks supposedly assigned as (105), (207), and (315) with very low intensity. It is also found that the value of the lattice parameter  $c$  of the BaM thin films deviates from its bulk value 23.18 Å [ICDD PDF 01-084-0757] are shown in Fig. 1(g). In all samples of BaM(0001) thin films using the position of (008) bragg peak, the obtained value remains in the range of 23.1 to 23.18 Å. This indicates the crystallites of the thin films are under some strain. The BaM(0001) thin film of thickness 104 nm shows saturation magnetization (out-of-plane) of 379  $\text{emu}/\text{cm}^3$ , which is comparable to that of the bulk value of  $M_s = 380 \text{ emu}/\text{cm}^3$  [1]. Although the  $M_s$  in the case of stoichiometric target thin films remains almost constant ( $\sim 300 \text{ emu}/\text{cm}^3$ ) for all films [2]. The increased  $M_s$  suggest that the strong dependence on the target composition. On the other hand effective uniaxial magnetic anisotropy ( $K_u^{\text{eff}}$ ) shows the similar trend in both cases.

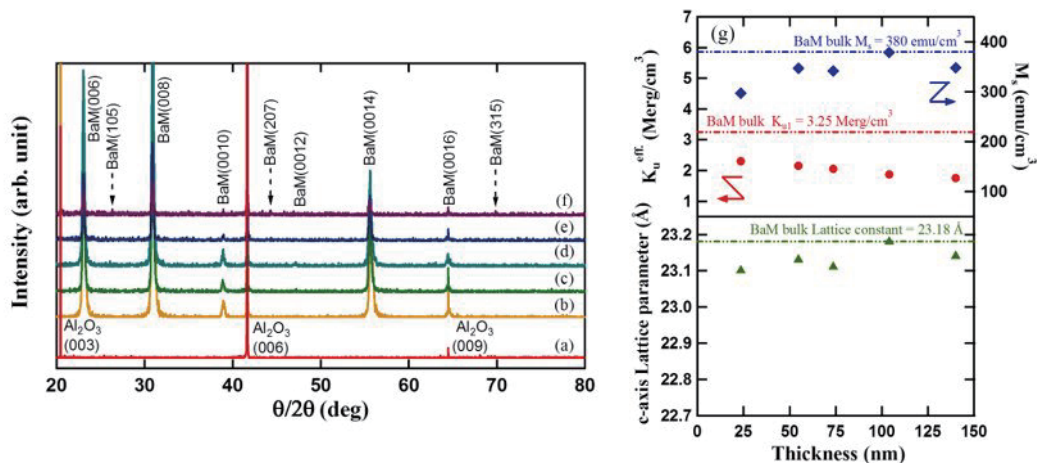


Fig. 1(a) XRD patterns of a sapphire substrate, (b-f) XRD patterns of BaM thin films with thickness of 23.5, 54.7, 73.6, 104 and 140 nm after post-annealing, (g) Plot of saturation magnetization ( $M_s$ ) (out-of-plane), effective uniaxial anisotropy ( $K_u^{\text{eff}}$ ) and  $c$ -axis lattice parameter of BaM(0001) vs different thickness.

### Reference

- 1) B. D. Cullity and C. D. Graham, Introduction to Magnetic Materials (Wiley, New York, 2009).
- 2) Y. Ikeda et al, The 64<sup>th</sup> JSAP Spring Meeting, **14p** (2017) P10-52.

## La-Co 共置換 M 型フェライトの Co の価数・スピン状態： $^{59}\text{Co}$ -NMR による研究

中村裕之, 高尾健太, 岡崎秀祐, 和氣剛, 田畑吉計, 酒井宏典\*, C. Meny\*\*  
(京大工, \*原子力機構, \*\*IPCMS)

Valence and spin states of Co in La-Co cosubstituted M-type ferrite:  $^{59}\text{Co}$ -NMR study  
H. Nakamura, K. Takao, S. Okazaki, T. Waki, Y. Tabata, H. Sakai\*, C. Meny\*\*  
(Kyoto Univ, \*JARA, \*\*IPCMS)

### はじめに

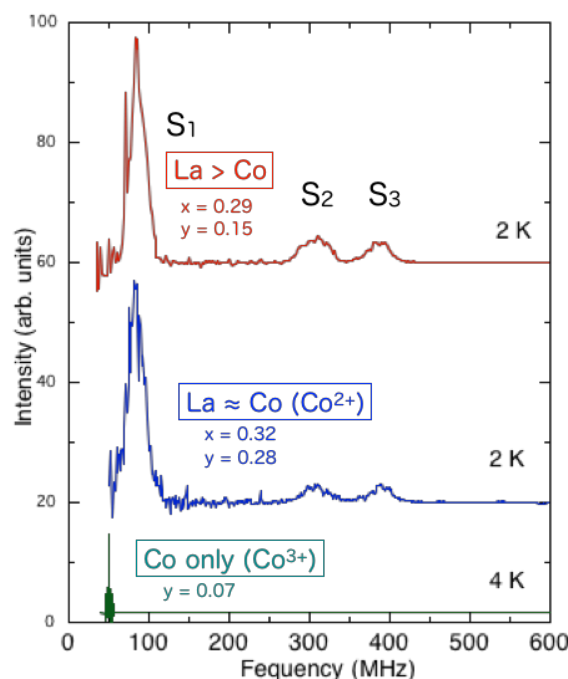
La-Co 共置換 M 型 Sr フェライト  $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-y}\text{Co}_y\text{O}_{12}$  の  $x > y$  の試料に対する  $^{59}\text{Co}$ -NMR 実験では、少なくとも 3 種の信号が観測される (占有サイトが 3 種以上ある) が、特に低周波域 (90 MHz 付近) の最も強い信号の帰属・解釈に曖昧さを残していた [1]。そこで、 $x > y$  の試料以外に組成の異なる 2 試料を用意し、それらの比較実験から低周波信号の帰属の解明を試みた。

### 実験方法

使用した試料は全て  $\text{Na}_2\text{O}$  フラックス法で作製した単結晶を粉末にしたものである。2 試料の一方は  $x$  と  $y$  がほぼ等しい試料 (育成時の酸素分圧 1 atm)。他方は Co のみ置換した試料 ( $x = 0$ ) である。ゼロ磁場の広周波数域 NMR 実験は Strasbourg の IPCMS の無同調広帯域装置を用いて行い、Co のみ置換試料の低周波域 NMR 実験は原子力機構および京大で行った。

### 実験結果

図にゼロ磁場スペクトルの結果を示す。La-Co 共置換試料では  $x > y$  と  $x = y$  で強度比も含めてほぼ同じ結果が得られた。S2, S3 の共鳴周波数は  $\text{Co}^{2+}$  のスピン磁気モーメント  $3 \mu_B$  に順当な値である ( $^{59}\text{Co}$  の核磁気回転比 10.03 MHz/T)。S1 の共鳴周波数が異常に小さい解釈としては、低スピン状態の  $\text{Co}^{3+}$  が存在する可能性と、 $\text{Co}^{2+}$  の信号であるものの軌道モーメントがつくる磁場とスピンモーメントが磁場が相殺し内部磁場が小さくなっている可能性 (通常スピン成分の超微細結合定数は負で軌道成分のそれは正) が残されていた [1]。y/x 比の異なる La-Co 共置換 2 試料の結果がほぼ同じであるという事実は、S1, S2, S3 の信号が全て  $\text{Co}^{2+}$  由来の信号であることを示唆する。また、Co のみ置換の試料中には  $\text{Co}^{3+}$  のみが存在すると考えられるので、同試料で S1, S2, S3 のいずれも観測されないという事実も、S1, S2, S3 が全て  $\text{Co}^{2+}$  由来であることを示唆する。結局、S1 の共鳴周波数が異常に小さい理由としてスピン・軌道磁場相殺説が有力となった。また、Co のみ置換試料ではさらに低い周波数に信号が観測されることから、その試料中の  $\text{Co}^{3+}$  は低スピン状態にある可能性が大きい。



[1] H. Nakamura et al., J. Phys.: Condens. Matter 28 (2016) 346002

**$^{57}\text{Fe}$ -NMR による M 型 Ca-La フェライトのスピントリップ転移の観測**高尾健太, 宇治克俊, 和氣剛, 田畑吉計, 中村裕之  
(京都大学)Observation of Spin Flip Transition of Ca-La M-type Ferrite by  $^{57}\text{Fe}$ -NMRK. Takao, K. Uji, T. Waki, Y. Tabata, and H. Nakamura  
(Kyoto Univ.)**1 背景**

六方晶マグネトプランバイトフェライト (M 型フェライト) は c 軸が磁化容易軸の一軸異方的なフェリ磁性体で, 安価で化学的に安定なため, 永久磁石材料として大量に用いられている. 現行のフェライト磁石の母材は M 型 Sr フェライトに La-Co 共置換し, 保磁力を増大したものが主流であるが<sup>1)</sup>, 近年, La-Co 置換をした M 型 Ca フェライトが Sr 系に比べて約 20% 保磁力が増大するという報告がなされ<sup>2)</sup>, 興味を持たれている. 一方, 化合物としての M 型 Ca フェライトについては,  $\text{CaFe}_{12}\text{O}_{19}$  は平衡状態図上に存在せず, Ca と La の混晶系が安定することは知られていたが, 詳細な相安定性や物性などの基本的性質は明らかではなかった. 最近我々は M 型 Ca-La フェライトの安定組成を明らかにし, また単結晶を得ることに成功した<sup>4)</sup>. 単結晶試料を用いた磁化測定からは, 磁化困難軸方向においてメタ磁性転移が起こることを明らかにした. 通常の一軸反強磁性体の場合, メタ磁性転移は磁場を磁化容易軸にかけたときに起こるが, 本系では磁化困難軸方向にかけたときに起こることが特異的である. 我々はこれまでに M 型 Ca-La フェライト単結晶試料の  $^{57}\text{Fe}$ -NMR 測定を行い, 磁場中で磁気構造が変化することを報告している<sup>5)</sup>. 本研究では, メタ磁性転移と磁気構造変化の相関を微視的に解明するため, 単結晶試料を用いて, 詳細な磁化困難軸方向の  $^{57}\text{Fe}$ -NMR スペクトル測定を行った.

**2 実験方法**

M 型 Ca-La フェライトの単結晶試料は自己フラックス法により作製した. 測定に用いた単結晶試料の組成は波長分散型 X 線分光 (WDX) で決定し  $\text{Ca}_{0.59}\text{La}_{0.51}\text{Fe}_{11.91}\text{O}_{19}$  であった. また, 磁化測定からその試料のメタ磁性転移磁場は 0.8 T (5 K) であった.  $^{57}\text{Fe}$ -NMR には平板状の単結晶試料を用い, 外部磁場を c 軸に垂直に印加した.  $H = 0 - 2$  T の範囲で磁場を固定し, 各磁場で周波数掃引スペクトルを測定した.

**3 結果および考察**

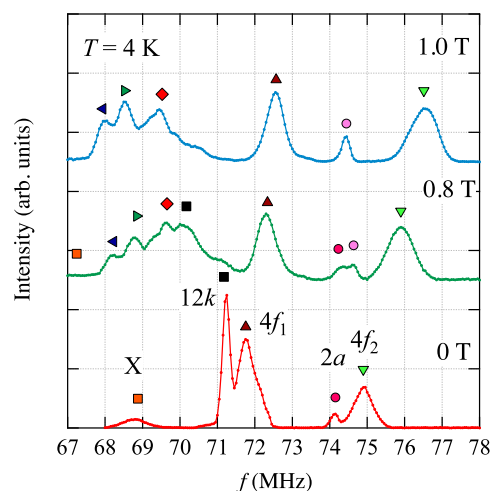
Figure 1 は  $T = 4$  K で測定した, 各磁場での周波数掃引スペクトルである.  $H = 0$  T では, 測定範囲内に 5 つのピークを観測した. 高周波側から Fe の  $4f_2$ ,  $2a$ ,  $4f_1$ ,  $12k$  各サイトからの信号に帰属される. X と表示された信号は, 通常の M 型フェライトの NMR スペクトルに相当するものがなく, Ca-La が混晶しているために生じたサテライトピークと考えられる. 磁場をかけていくと, 各ピークは磁気モーメントの方向に応じ, 高周波側 ( $4f_1$ ,  $4f_2$  down spin), 低周波側 ( $12k$ ,  $2a$  up spin) ヘシフトするが, メタ磁性転移磁場付近 (0.7 - 0.8 T) で大きく変化し, 0.8 T のスペクトルは高磁場相と低磁場相の成分が共存している. 高磁場相では,  $2a$ ,  $4f_1$ ,  $4f_2$  各サイトの信号は 1 本ずつであるのに対し,  $12k$  でのみ 3 本に分裂して観測された.

$2a$ ,  $4f_1$ ,  $4f_2$  サイトは軸対称である一方,  $12k$  サイトは軸性ではない. 磁気モーメントが c 軸を向いているときはどの各 Fe サイトでも内部磁場が等価であるためスペクトルは 1 本しか観測されない. 一方, 磁気モーメントが c 面内に向くと  $2a$ ,  $4f_1$ ,  $4f_2$  サイトでは軸性のため信号の分裂はないが,  $12k$  サイトは非等価になるため信号は 3 本に分裂する. つまり, スピントリップが起こったことを示している.

最近, 各 Fe サイトで  $3d^6(\text{Fe}^{2+})$  の状態についてスピントリップ相互作用を考慮した磁気異方性エネルギーの計算がなされ,  $2a$  と  $12k$  サイトでは c 軸およびその垂直方向の 2 箇所極小が現れることが示された<sup>6)</sup>. M 型 Ca-La フェライトは  $\text{Fe}^{2+}$  が存在するため, その  $\text{Fe}^{2+}$  の特異な異方性がスピントリップの起源となっているものと考えられる.

**References**

- 1) K. Iida et al., J. Magn. Soc. Jpn. **23** (1999) 1093.
- 2) Y. Kobayashi et al., J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall., **55** (2008) 541.
- 3) N. Ichinose and K. Kurihara, J. Phys. Soc. Japan. **18** (1963) 1700.
- 4) K. Uji et al., J. Solid State Chem., **245** (2017) 17.
- 5) 高尾健太ら, 第 39 回 日本磁気学会学術講演会 9pA-1 (2015).
- 6) 井上順一郎 (private communication)



**Fig. 1** M 型 Ca-La フェライト単結晶試料の磁場中  $^{57}\text{Fe}$ -NMR スペクトル

# SrZn<sub>x</sub>Mn<sub>2-x</sub>-W 型六方晶フェライトの磁気物性と局所構造

大田 慧, 中川 貴, 小林 義徳\*, 代永 彩夏, 清野 智史, 山本 孝夫  
(大阪大学, \*日立金属)

Study on magnetic properties and local structure of SrMn<sub>x</sub>Zn<sub>2-x</sub>-W-type hexagonal ferrite

K. Ota, T. Nakagawa, Y. Kobayashi\*, A. Yonaga, S. Seino, T. A. Yamamoto  
(Osaka University, \*Hitachi Metals, Ltd.)

## 研究目的

フェライト磁石は、低コストで化学的に安定な特長を持つため、モーター用途として多く利用されている。SrMe<sub>2</sub>-W型フェライト(SrMe<sub>2</sub>Fe<sub>16</sub>O<sub>27</sub>, Me<sup>2+</sup>:2 価の金属イオン)は、Me<sup>2+</sup> = Fe<sup>2+</sup>の場合<sup>1)</sup> Sr-M型フェライト(SrFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>)よりも飽和磁化が約10%高く、異方性磁界はSr-M型フェライトと同等なため、次世代の磁石材料として期待される。Fe<sup>2+</sup>よりもMn<sup>2+</sup>は磁気モーメントが大きいことに着目して、SrMn<sub>x</sub>Fe<sub>2-x</sub>-W型フェライトの飽和磁化を調査し、Mnの置換量が増えるにつれて磁化が低下することを報告した<sup>2)</sup>。その原因として、結晶格子内においてMn<sup>2+</sup>は、ダウンスピンサイトに占有するためと考察した。そこで、ダウンスピンサイトへの優先占有が示唆されるZnを部分置換することで<sup>3)</sup>、Mnをアップスピンサイトに占有させ、磁化を向上させることを目指した。本研究では、SrZn<sub>x</sub>Mn<sub>2-x</sub>-W型フェライトの物性評価とZnとMnの占有サイトの解析により、磁気物性と局所構造との相関関係を検証した。

## 実験

組成がSrZn<sub>x</sub>Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>16</sub>O<sub>27</sub> (x = 0, 0.5, 1, 1.5, 2)となるように、α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SrCO<sub>3</sub>, ZnO, Mn<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を秤量し、ボールミル(湿式)で2h混合した。乾燥した混合試料を坩堝に入れ、焼成温度を1523~1623 K、大気分圧で10h焼成を行った。得られた焼成粉について、PPMS (Quantum Design)を用いて3 Kの飽和磁化を、超伝導VSMを用いて室温で異方性磁界を評価した。また、あいちシンクロトロン(BL5S2)で放射光X線回折を行い、リートベルト解析にて構造解析を実施した。さらに、SPring-8のBL01B1で、広域X線吸収微細構造(EXAFS)測定を実施した。

## 実験結果

図1に作製した5試料の放射光X線回折パターンを示す。角度分解能の高い放射光X線回折測定においても、W型単相と見なせる試料が作製できていることがわかった。図2にZnの置換量に対する、3 Kの飽和磁化と室温の異方性磁界の変化を示す。Znの置換量の増加に伴い、飽和磁化は増加した。このことから、ダウンスピンサイトへのZnの占有が示唆された。また、異方性磁界はx = 1.0の試料で最小値となった。図3にリートベルト解析から得た、Znの占有数の変化を示す。この結果からもダウンスピンサイトへのZnの占有が示唆された。当日は、放射光X線回折のリートベルト解析と、EXAFSにより解析したMnとZnの占有サイトと磁気物性との相関について議論する。

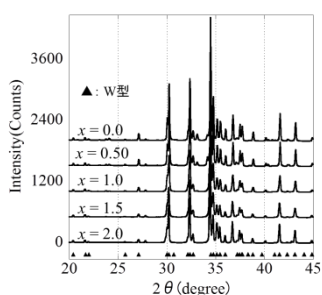


Fig1. Synchrotron X-ray diffraction pattern of SrZn<sub>x</sub>Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>16</sub>O<sub>27</sub>

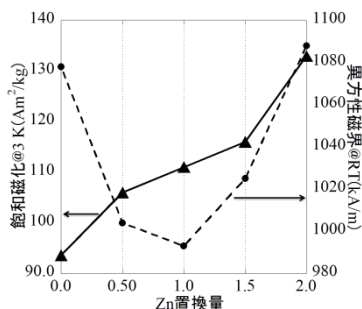


Fig2. Magnetic properties of SrZn<sub>x</sub>Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>16</sub>O<sub>27</sub>

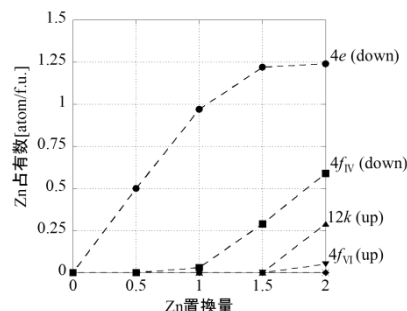


Fig3. Number of Zn per formula unit in SrZn<sub>x</sub>Mn<sub>2-x</sub>Fe<sub>16</sub>O<sub>27</sub>

## 参考文献

- 1) 佐川 真人: 永久磁石 -材料科学と応用-, pp.188, 2007.
- 2) 大田 慧: 粉体粉末冶金協会講演概要集 平成 28 年度春季大会 (2016) P.15.
- 3) 代永 彩夏: 日本磁気学会講演概要集 平成 28 年度秋季大会 (2016) P. 141.

## Fe-Ni めっき膜の磁気特性に与える塩化物イオンの影響

柳井武志, 杉原健太, 幸田一輝, 江口和樹, 高嶋恵佑, 中野正基, 福永博俊 (長崎大学)

Effect of chloride ions on coercivity of electroplated Fe-Ni films

Takeshi Yanai, Kenta Sugihara, Kazuki Koda, Kazuki Eguchi, Keisuke Takashima,  
Masaki Nakano, Hirotochi Hukunaga (Nagasaki University)

### はじめに

めっき法は常温・常圧下で成膜が可能であり、装置も簡便であることから、磁性膜作製の手段として一つの有望な成膜方法である。本研究室ではこれまでに、センサ応用を鑑みた膜厚 10-20  $\mu\text{m}$  程度の Fe-Ni 系軟磁性めっき膜に関して、様々な検討・報告を行ってきた<sup>1,2)</sup>。工業的な Ni めっきで広く用いられるワット浴では、陽極の Ni の不動態化抑制のため、例えば塩化ニッケルなどを用いて塩化物イオンがめっき浴へ供給される。一方で、過剰な塩化物イオンはめっき膜の内部応力を増加させることも知られており、磁気歪み現象を特徴とする強磁性体のめっき膜の磁気特性は塩化物イオンに影響を受けると予想される。我々のめっき膜作製過程においても通常陽極に Ni を用いることから、塩化物イオンは磁気特性に影響を与えられらる。そこで本稿では、塩化物イオン濃度を変化させためっき浴から Fe-Ni 膜を作製し、熱処理前後の保磁力の挙動に与える塩化物イオン濃度の影響を検討したのでその結果を報告する。

### 実験方法

Fe-Ni 膜の作製には定電流めっき法を用いた。Ni や Fe イオンの供給源には硫酸ニッケル、硫酸鉄や塩化鉄を使用した。塩化鉄はめっき浴内の塩化物イオン濃度を変化させるために用い、硫酸鉄を置換する形で加えた。その他、めっき浴にはクエン酸 (10 g/L)、サッカリンナトリウム (5 g/L) および NaCl (50 g/L) を添加した。陽極には Ni 板、陰極には Cu 板を用い、 $15 \times 5 \text{ mm}^2$  の  $\text{Fe}_{22}\text{Ni}_{78}$  膜を Cu 板上に成膜した。電流密度は  $0.2 \text{ A/cm}^2$ 、浴温度は  $50^\circ\text{C}$ 、成膜時間は 5 min とした。軟磁気特性改善を目的に成膜後の試料に  $300^\circ\text{C}$ , 60 min の真空中熱処理を施した。

### 実験結果

Fig.1 に保磁力の塩化鉄置換量依存性を示す。Fig.1 には熱処理前後の結果を示した。塩化鉄置換による膜組成の変化は観測されず、 $\text{Fe}_{22}\text{Ni}_{78}$  付近の組成であった。熱処理前の試料においては塩化鉄量の増加に伴い保磁力の増加が観測され、熱処理後はほぼ一様の値を示した。本結果より、熱処理を用いない場合は塩化鉄置換が少ない (塩化物イオン濃度が低い) めっき浴からの試料作製が低保磁力を得る観点からは有利であることがわかった。Fig.2 に XRD パターンとシェラーの式から算出した熱処理前後の試料の結晶粒径を示す。熱処理前の試料では、塩化物イオン濃度が低い時に粒径が小さくなる傾向が得られ、微細な粒径が as-plated 状態での低保磁力に寄与したと考えられる。また、塩化物イオン濃度が高いほど熱処理後の粒径は小さな値となった。これらの結果は、塩化物イオンが軟磁気特性やマイクロ構造に影響を与えることを示唆しており、その関連性については現在検討を継続している。

### 参考文献

- 1) T. Shimokawa *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **48** (2012) 2907.
- 2) T. Yanai *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **50** (2014) #200703.

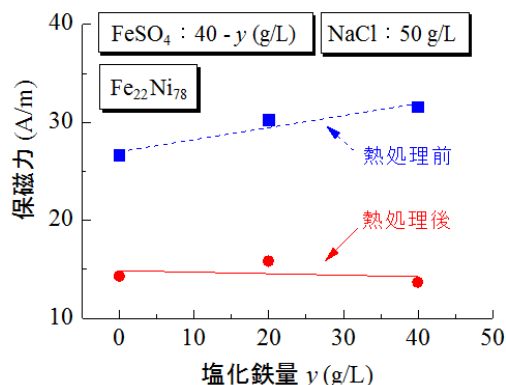


Fig.1 Coercivity of the as-plated  $\text{Fe}_{22}\text{Ni}_{78}$  films and the annealed ones as a function of  $\text{FeCl}_2$  in the plating bath.

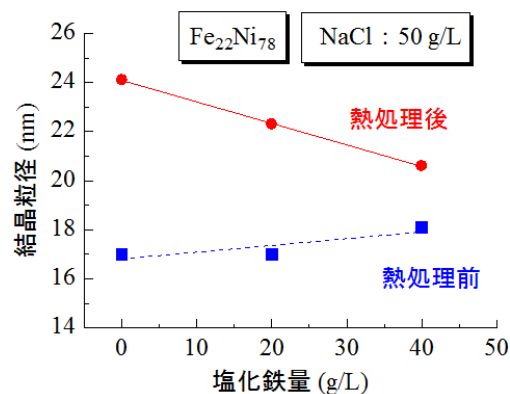


Fig.2 Grain sizes of the as-plated  $\text{Fe}_{22}\text{Ni}_{78}$  films and the annealed ones as a function of  $\text{FeCl}_2$  in the plating bath.



## 高純度 Fe-(3-7)wt%Si 合金の磁気特性

中川翔太\*, 松山和樹\*, 佐々木巖\*, 開道力\*\*, 竹澤昌晃\*\*\*, 堀部陽一\*\*\*, 恵良秀則\*\*\*, 波多聡\*\*\*\*, 久保臣悟\*\*\*\*\*, 小川俊文\*\*\*\*\*

(\*九工大生命体, \*\*北九州高専, \*\*\*九工大工, \*\*\*\*九大総理工, \*\*\*\*\*鹿大研究推進機構, \*\*\*\*\*福岡県工技セ機電研)

Magnetic Properties on Fe-(3-7)wt%Si alloys using High Purity Metallurgy

S. Nakagawa, K. Matsuyama, I. Sasaki, C. Kaido, M. Takezawa, Y. Horibe, H. Era, S. Hata, S. Kubo, T. Ogawa

(\*\*\*\*\*Kyushu Inst. of Tech, \*\*Kitakyushu National Coll. of Tech., \*\*\*\*Kyushu Univ. \*\*\*\*\*Kagoshima Univ., \*\*\*\*\*MERI-FITC)

**はじめに** 珪素鋼板の特性向上の新たな指針を得るため、その母合金である Fe-Si 合金を高純度化し、特性を調べてきた。前報<sup>1)</sup>では高純度 Fe-(4-6)wt%Si 合金の磁気特性を中心に解析・考察し、さらに詳細を報告してきた<sup>2)3)</sup>。しかしながら、この組成範囲では商用化している Fe-3wt%Si との比較や最良の軟磁気特性を持つといわれている Fe-6.5wt%Si における高純度化の効果がわかっていない。本報告では、高純度 Fe-3wt%Si、Fe-6.5wt%Si および Fe-7wt%Si の試料を作製し、測定・解析することにより、珪素鋼板で議論される組成範囲での高純度化による効果を検討し、新たな特性向上策に資する事を目的とした。

**実験方法** 試料作製方法および磁気測定方法は前報<sup>1)</sup>と同じである。予め結晶方位解析した試料を Kerr 効果顕微鏡にて磁区挙動観察した。さらに Lorentz 電子顕微鏡により磁区挙動観察および結晶相同定を行った。

**実験結果** Table 1 に磁気測定より得られた保磁力、60 Hz におけるヒステリシス損、最大透磁率などの磁気特性を示す。軟磁気特性として 6.5wt%Si 含有試料が最も優れるだけでなく、高純度化により特性が向上している事もわかる。Si 量が 3wt%から 6wt%への増加に伴い軟磁気特性が一様に向上しない事も注目される。7wt%Si 含有試料は急激に透磁率が低下するものの、保磁力やヒステリシス損は 6.5wt%と同等であり、軟磁性材料として可能性があると言える。講演ではこれら磁気特性の詳細な解析や磁区の動的特性へ及ぼす影響なども議論する。

Table 1 Magnetic properties of high purity Fe-(3-7)wt%Si

Si content	Coercivity (A/m)	Hysteresis loss (W/kg)	Max. permeability ( $\times 10^3$ H/m)
3wt%	14.96	0.750	8.14
4wt%	14.64	0.742	7.87
5wt%	17.50	0.704	7.05
6wt%	10.64	0.507	9.96
6.5wt%	7.76	0.389	36.80
7wt%	7.70	0.482	3.56

**謝辞** 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課題として九州大学微細構造解析プラットフォームの支援を受けて実施されました。また、超高分解能走査電子顕微鏡を使用させていただいた鹿児島大学自然科学教育研究支援センター機器分析施設に感謝します。

### 参考文献

- 1) レイ チェら：第 38 回日本磁気学会学術講演概要集 2aE-7 (2014) p. 85
- 2) Z. Lei et al.: Physics Procedia, **75**, 695 (2015)
- 3) Z. Lei et al.: J. Magn. Soc. Jpn., **40**, 8 (2016)

## アモルファス FeSiB 薄膜への Nb 添加効果

武内雄輝, 藤原裕司, 神保睦子\*, 前田浩二, 小林正  
(三重大工, \*大同大)

Influence of Nb addition on magnetic properties of FeSiB thin films

Y. Takeuchi, Y. Fujiwara, M. Jimbo\*, K. Maeda, T. Kobayashi  
(Mie Univ., Daido Univ.)

### はじめに

アモルファス FeSiB 合金は高飽和磁化を示す軟磁性体であり, 薄膜ヨークの有望な材料である. しかし磁歪定数が大きく, 各種センサなどへの加工時に導入される応力により磁気特性の劣化が懸念される. FeSiB 薄膜では Nb の添加により磁歪定数が減少することが知られている<sup>2)</sup>. 本研究では Nb 組成を変化させた FeSiBnB 薄膜を作製し, その磁気特性, 構造を評価したので報告する.

### 実験方法

成膜にはDC・RFマグネトロンスパッタリング装置を使用した. 到達真空度は $5.0 \times 10^{-4}$ Pa以下であり, スパッタガス圧はAr0.43Paである. Fe<sub>77</sub>Si<sub>14</sub>B<sub>9</sub>合金上にNbチップを配置した複合ターゲットを使用し, Nbチップの数により組成を制御した. 基板にはSi(100)を使用しており, 液体窒素冷却した. 成膜中の液体窒素だまり下部の温度は約-10°Cであった. 膜厚は約300nmであり, 表面にはSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>を20nm堆積させている. 細線状への加工はリフトオフにより行った. 磁化特性はVSM, 構造はXRD, 飽和磁歪定数は光てこ法で測定した. 磁区観察には偏光顕微鏡を用いた.

### 実験結果

図1にNb 0.0-10.0 at.%試料の保磁力 Hc の熱処理温度依存性を示す. As-dep.の試料では, 概ね Nb の増加とともに Hc は減少する傾向にある. どの試料も熱処理とともに Hc は減少し, 350°C から 550°C で最小値(Hcmin)を示している. これらの変化は, 成膜時に導入された応力が熱処理により緩和した結果であると考えられる. 飽和磁化 4πMs は Nb の増加にともない, 14kG から 8kG まで減少した. また, すべての試料において, 結晶化温度以下の熱処理では 4πMs に大きな変化は見られなかった.

図2は Hcmin の Nb 組成依存性である. 一部組成については, as-dep.試料の飽和磁歪定数λsも示している. Hcmin は Nb5.4at.%までは単調に減少しているが, 以降は大きな変化は見られない. また, λsも Hcmin と同様の傾向を示している. λsの変化は Inomataらが報告している結果と同様であり, 薄膜においても Nb がλsの低減に効果的であることがわかる. Hcmin と as-dep.試料のλsが同一の傾向を示しており, Nb 添加による Hcmin の減少は, as-dep.試料のλsに関係する可能性があるが, さらに検討が必要である.

当日は, 細線状に加工した薄膜の磁気特性, 偏光顕微鏡による磁区観察の結果もあわせて報告する予定である.

### 参考文献

- 1) K. Inomata et al.: J.Magn. Magn.Mater.,31-34 (1983)1577.

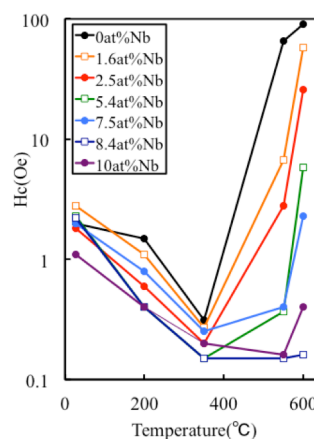


Fig. 1 Hc as a function of annealing temperature.

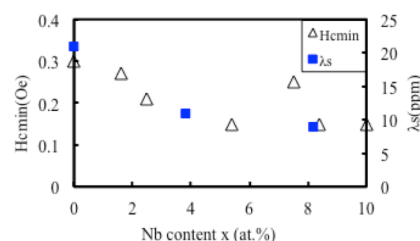


Fig.2 Hc of optimally annealed samples and λs of as-deposited samples as a function of Nb content.

# 酸溶液処理表面修飾によるFe系アモルファス合金粉の高抵抗被膜形成

藪 直希\*, 杉村 佳奈子\*, 佐藤 敏郎\*, 曾根原 誠\*, 水寄 英明\*\*,\*

(\*信州大学, \*\*長野県工業技術総合センター)

High resistive layer formation of Fe-based amorphous powder surface modified by acid solution process

N. Yabu\*, K. Sugimura\*, T. Sato\*, M. Sonehara\*, H. Mizusaki\*\*,\*

(\*Sinshu University, \*\*Nagano Prefecture General Industrial Technology Center)

## はじめに

近年、高速スイッチング・低 ON 抵抗の特徴を有する SiC/GaN パワーデバイスが注目されており、スイッチング周波数を MHz 帯以上に高周波化することで高効率と小型軽量を両立する DC-DC コンバータの実現が期待される。しかしながら、数百 kHz 帯 DC-DC コンバータに多用されているダストコアや Mn-Zn フェライトなどの磁心材料を MHz 帯スイッチングで使用することは困難であり、Ni-Zn フェライト以外に選択肢がないのが実情である。筆者らは、MHz 帯磁心材料として鉄系アモルファス合金粉（以下 Fe-AMO と記述）とエポキシ樹脂からなる鉄系メタルコンポジット磁心を提案した<sup>1)2)</sup>。磁心中の Fe-AMO 粒子を跨いで流れる渦電流の抑制を目的に、Fe-AMO 粒子表面の熱酸化被膜形成方法を確立した<sup>2)</sup>。本稿では、酸溶液処理表面修飾によって Fe-AMO 粒子表面を高抵抗化した手法について報告する。

## 実験方法

実験には水アトマイズ法で作製された平均粒径 2.57  $\mu\text{m}$  の Fe-AMO 粉末 (Fe-Si-B-C-Cr) を用いた。酸溶液処理は As-made Fe-AMO 粉末のリン酸処理および塩酸処理からなる。リン酸処理することで Fe-AMO 粒子表面から Fe が溶解し、リン酸鉄結晶が析出した。その後、塩酸処理することでリン酸鉄を溶解、除去した。リン酸水溶液の濃度は 0.25-6 [%]、処理時間は 6 h とした。塩酸水溶液の濃度は 2-5 [%]、処理時間は 0.5-4 [h] とした。

## 実験結果

Fig. 1 にリン酸処理を 5 %-6 h、塩酸処理を 5 %-4 h の条件で酸溶液処理した Fe-AMO 粒子（以下、溶液処理 Fe-AMO 粒子）の断面 SEM 像を示す。Fe-AMO 粒子表面に 2 層の被膜が形成されていることが確認できる。内側の被膜はリン酸処理、外側の被膜は塩酸処理により形成される。酸溶液処理表面修飾による Fe-AMO 粒子表面の高抵抗化は Fe ならびに Si の酸化物生成が寄与するとの考えに基づき、Fe-2p および Si-2p をターゲットにした XPS による表面分析をした。Fig. 2 に As-made Fe-AMO 粒子、溶液処理 Fe-AMO 粒子の XPS 分析結果を示す。As-made Fe-AMO 粒子では金属 Fe と Fe 酸化物ピーク、 $\text{Si}_2\text{O}_3$  に近い Si 酸化物ピークが観測される。リン酸処理によって金属 Fe ピークが消失し、Si 酸化物は  $\text{SiO}_2$  になる。その後の塩酸溶液処理によって Fe 酸化物由来のピークが消失すると共に  $\text{SiO}_2$  ピークが大きくなっていることが分かる。以上より、酸溶液処理表面修飾により Fe-AMO 粒子表面は  $\text{SiO}_2$  で覆われており、高抵抗被膜が形成されていることが示唆され、磁心材料とした場合に渦電流を抑制でき、鉄損が低減できると考えられる。

## 参考文献

- 1) R. Hirayama, et al., *Papers of Tech. Mtg. Magn. IEEJ*, MAG-16-240 (2016).
- 2) K. Sugimura, et al., *INTERMAG2017*, BU-05 (2017).
- 3) R. Alfonso, et al., *Appl. Surf. Sci.*, **70-71**, 222 (1993).

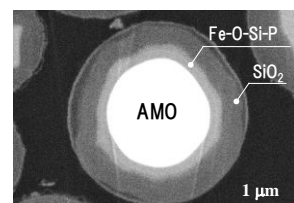
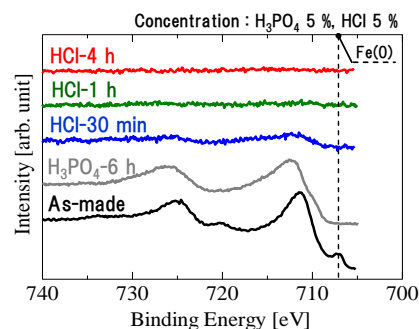
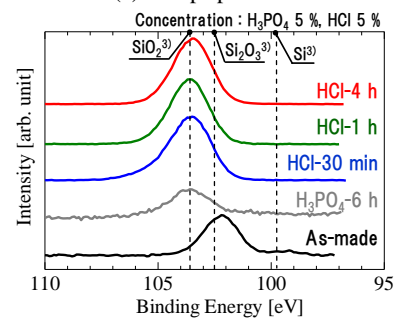


Fig. 1 Cross-sectional SEM image of surface-modified Fe-AMO particle by acid solution process.



(a) Fe-2p spectrum



(b) Si-2p spectrum

Fig. 2 XPS analysis results of surface-modified Fe-AMO particle by acid solution process.

# 裏面照射型 CMOS カメラによる広視野磁区観察装置の高性能化

○目黒 栄, \*斉藤 伸 (ネオアーク, \*東北大学)

Improvement of Wide Area Longitudinal Kerr Imaging System by Backside-illuminated CMOS Camera  
S. Meguro, \*S. Saito (Neark Corp., \*Tohoku Univ.)

**はじめに** 資源エネルギー問題, 地球温暖化問題の解決手段として省エネルギー機器の開発が求められている. モーターや変圧器によるエネルギーロスは稼働数の多さから莫大な量であり, これらの高効率化は環境負荷低減に対して急務である. この課題に対しこれらデバイスに実用されるアモルファス箔帯や珪素鋼板の特性改善が重要である. 我々はこれらの磁性材料の磁化過程解析に有用な磁化方向検出機能を有する広視野磁区観察装置を開発してきた<sup>1,2)</sup>. この装置では縮小光学系とイメージインテンシファイア (I. I.) を用いることによりセンチメートルオーダーの視野と時間分解観察を可能とした. しかしながら I. I. は高価であり, 空間分解能および S/N が I. I. の性能に左右されることが難点であった. 最近, 高感度・大受光面の裏面照射型 (BSI) CMOS センサーを採用した工業用カメラが普及してきた. そこで BSI-CMOS カメラを用いることにより広視野磁区観察装置の広視野化, 高分解能化および高 S/N 化を行ったので報告する.

**光学設計** Fig. 1 に (a) 従来の I. I. を用いた光学系と (b) 開発した BSI-CMOS カメラによる光学系を示す. (a) の従来の光学系では CCD カメラの撮像面が 1/3 インチと小さいため, 対物レンズおよび結像レンズ L2 によって 2/3 倍に縮小された像を I. I. の受光面に結像させ, 出力像をリレーレンズ L3 によりさらに 2/3 倍に縮小し撮像している. 一方 (b) の今回開発した光学系では受光面 1/1.2 インチの BSI-CMOS カメラを採用することにより対物レンズおよび結像レンズ L2 によって形成された像を I. I. を用いることなく直接撮像している.

**観察例** Fig. 2 に観察用試料として表面状態の影響を排除するため 2.5 インチガラスディスクに成膜した微結晶 FeTaN 薄膜を用いた磁区観察結果を示す. Fig. 2 (a) は従来の光学系 (Fig. 1 (a)), Fig. 2 (b) は今回開発した光学系 (Fig. 1 (b)) により撮像した磁区像である. いずれも同一の磁区を観察しており, それぞれ, 100 枚の画像積算によりノイズ低減を図り, 飽和磁界印加像との差分処理によって磁区以外の情報の除去を行っている. 従来装置の視野が 14×10.5 mm であるのに対し, 開発装置の視野は 16.5×10.3 mm であり面積比で 17% 広視野化されている. また, 空間分解能は約 2 倍, S/N は約 4 倍向上していることが確かめられた.

講演では時間分解観察に対する取り組みについても報告する予定である.

**参考文献**

- 1) S. Meguro, S. Saito, K. Akahane M. Takahashi et al., Ann. Conf. Magn. Soc. Jpn., 14pF-3 (2009), 7aF-10 (2010).
- 2) S. Meguro, K. Akahane, S. Saito, AIP Advances, 6, No. 5, 056504-1 – 056504-5 (2016).

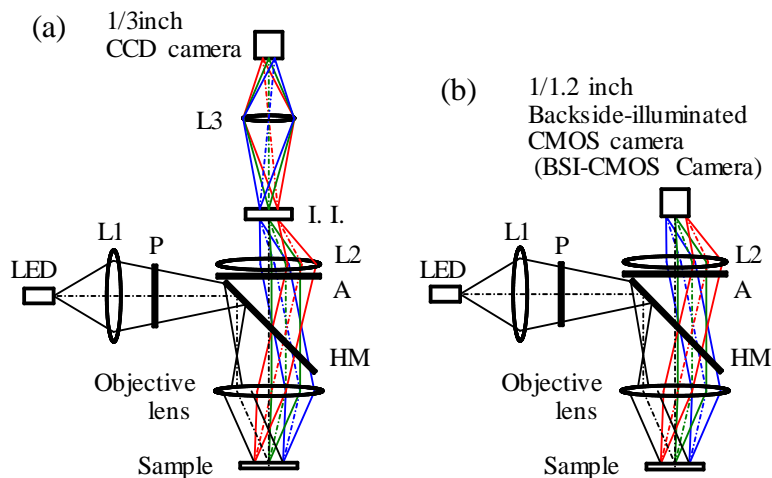


Fig. 1 Schematics of the wide area longitudinal Kerr imaging system of (a) CCD camera with I. I. system and (b) BSI-CMOS camera system, respectively

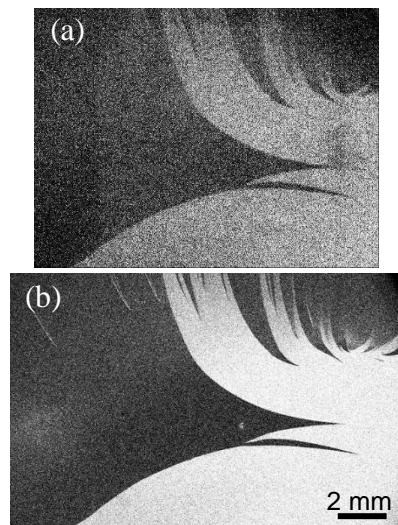


Fig. 2 Domain images for the FeTaN thin film without field obtained by (a) CCD-camera with I. I. system and (b) BSI-CMOS camera system, respectively.

# Fe<sup>2+</sup>-Ti<sup>4+</sup>, 及び Al<sup>3+</sup>置換した BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub> の作製及び磁気特性

米沢豊志、柿崎浩一、神島謙二  
(埼玉大学)

Synthesis and magnetic properties of Fe<sup>2+</sup>-Ti<sup>4+</sup> and Al<sup>3+</sup> substituted BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>

A. Yonezawa, K. Kakizaki, K. Kamishima  
(Saitama Univ.)

## 1. 緒言

M型Baフェライト(BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>)は、永久磁石材料として用いられている。この結晶構造はRブロック((BaFe<sub>6</sub>O<sub>11</sub>)<sup>2+</sup>)とSブロック((2Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>)<sup>2+</sup>)の積層構造で記述でき、その構造は非常に安定で2つのFe<sup>3+</sup>を2価、4価の遷移金属イオンによって置換できる<sup>1)</sup>。本研究ではFe<sup>2+</sup>-Ti<sup>4+</sup> およびAl<sup>3+</sup>でFe<sup>3+</sup>を置換したM型Baフェライトを作製し、その磁気特性を調査した。

## 2. 実験方法

原料粉(BaCO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)をRブロック組成(BaTi<sub>2</sub>Fe<sub>4-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>11</sub>)となるように秤量した。それらを湿式混合し、1200℃で焼成した。焼成した試料を遊星ボールミルを用いて微粉碎した。このRブロック原料とSブロック原料のマグネタイトを秤量し、24時間湿式混合した。混合粉末を加圧成形して石英管に封入し(0.5 Pa)、1300℃で本焼成を行った。結晶構造を粉末X線回折法で同定し、磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)と超伝導量子干渉型(SQUID)磁束計を用いて測定した。

## 3. 結果および考察

1300℃で本焼成した試料のX線回折図を図1に示す。xが0~4の範囲でM型結晶構造単相の試料が得られた。

室温で測定した磁化曲線を図2に示す。x=0, 1, 2の試料の磁化は飽和していない。非磁性イオンであるTi<sup>4+</sup>が化学式あたり0.7個以上入るとコリニアな磁気構造が崩れ始める<sup>1)</sup>。今回作製したx=0の試料においては化学式あたり2個のTi<sup>4+</sup>が入っているため、コリニア性が低下し、高磁場磁化率が増大したものと考えられる。一方、x=3, 4の試料では高磁場磁化率は減少した。これはAl置換によって飽和磁気モーメントが減少するとともに、Tiイオンの分布が変化し、コリニア性が変化したと考えられる。

図3に化学式あたりの磁気モーメントの値を示す。upスピンスイトに非磁性イオンが入ると、磁気モーメントは低下する。今回作製した試料において、Al<sup>3+</sup>の置換量が増加するにつれて磁気モーメントは低下している。これはAl<sup>3+</sup>がupスピンスイトに指向して入るものと考えられる。

## 4. 参考文献

1) X. Batlle *et al.*, J. Appl. Phys., Vol. 70 (1991) 1614

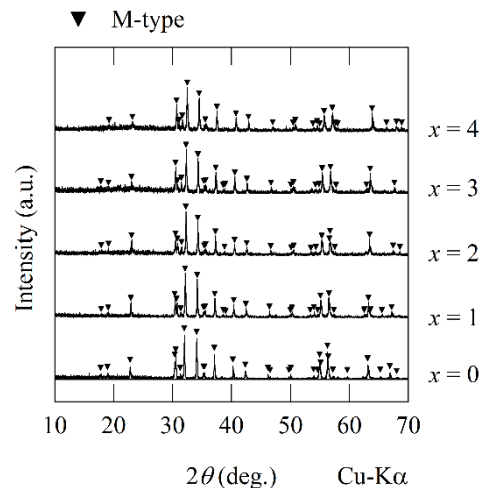


図1 BaTi<sub>2</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>2</sub>Fe<sub>8-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>19</sub> の X 線回折

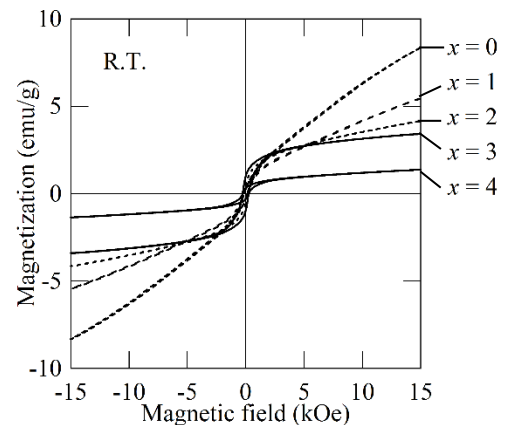


図2 BaTi<sub>2</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>2</sub>Fe<sub>8-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>19</sub> の磁化曲線

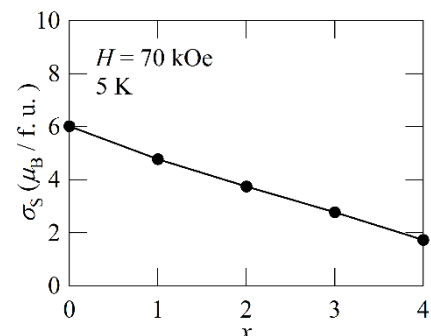


図3 BaTi<sub>2</sub>Fe<sup>2+</sup><sub>2</sub>Fe<sub>8-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>19</sub> の化学式あたりの磁気モーメント

# 結晶方位の異なる MgO 基板上に形成した エピタキシャル Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> 合金薄膜の磁歪挙動

芹澤伽那<sup>1</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・大竹充<sup>1,2</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>中央大, <sup>2</sup>工学院大, <sup>3</sup>東京藝大, <sup>4</sup>山形大)

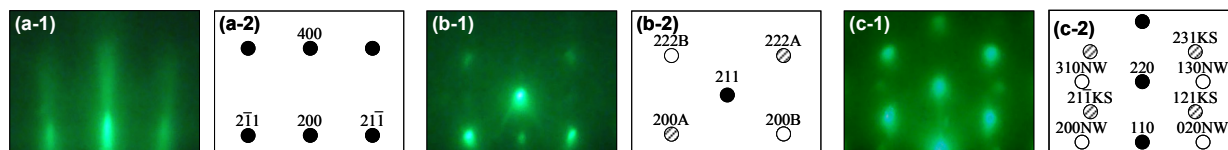
Magnetostriction Behaviors of Epitaxial Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> Alloy Thin Films Formed on MgO Substrates with Different Orientations  
Kana Serizawa<sup>1</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1,2</sup>, Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, and Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>  
(<sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts., <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**はじめに** Fe-Co 合金は代表的な軟磁性材料であり、磁気ヘッドやセンサなどの磁気応用デバイスで活用されている。デバイスの可能性検討では基本物性を正確に把握することが重要であり、基板結晶に対して方位制御が可能なエピタキシャル膜を用いて調べることが有効である。磁歪は基本磁気物性のひとつであり、デバイス性能に影響を及ぼす。これまで、多結晶 Fe-Co 膜の磁歪特性は報告されているが、エピタキシャル膜の磁歪は殆ど知られていない。本研究では、結晶方位の異なる MgO 基板上に Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> (at. %) 合金膜をエピタキシャル成長させ、回転磁界中における磁歪挙動の解析を行った。

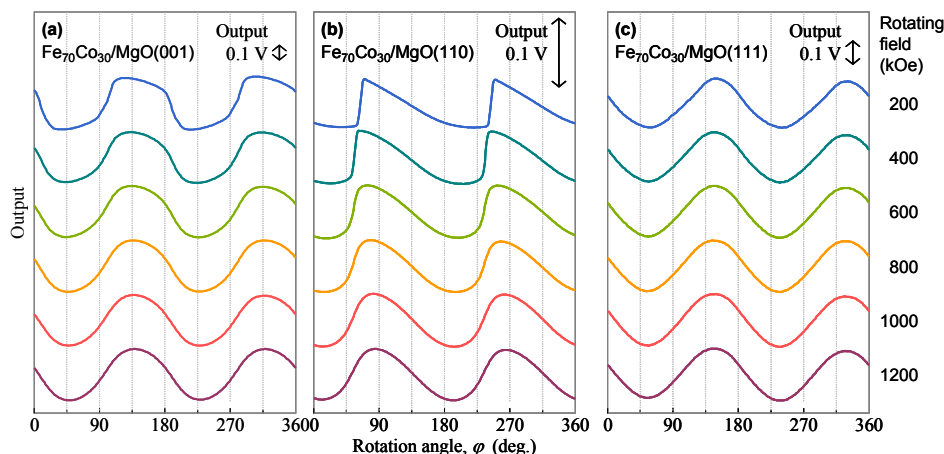
**実験方法** 膜形成には超高真空 RF マグネトロンスパッタリング装置を使用した。MgO(001), (110)単結晶基板、および、50 nm 厚の MgO(111)層をヘテロエピタキシャル成長させた Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)単結晶基板を用い、これらの基板上に基板温度 300 °C で 100 nm 厚の Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> 膜を形成した。構造評価には RHEED および XRD、磁化曲線測定には VSM、磁歪測定には片持ち梁法を用いた。

**実験結果** Fig. 1(a-1)~(c-1)に MgO(001), MgO(110), MgO(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)基板上に形成した Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> 膜の RHEED パターンを示す。それぞれ、Fig. 1(a-2)~(c-2)に示すような bcc(100), bcc(211), bcc(110)表面に対応する回折パターンが現れており、エピタキシャル成長していることが分かる。RHEED 解析から決定した結晶方位関係は Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub>(100)[011] || MgO(100)[001], Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub>(211)[1 $\bar{1}\bar{1}$ ], [111] || MgO(110)[1 $\bar{1}\bar{0}$ ], Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub>(110)[001]<sub>NW</sub>, [1 $\bar{1}\bar{1}$ ]<sub>KS</sub> || MgO(111)[1 $\bar{1}\bar{0}$ ]である。MgO(100)基板上では(100)単結晶膜、MgO(110)基板上では面垂方向に互いに 180°回転した方位関係を持つ(211)双結晶膜、MgO(111)基板上では Nishiyama-Wasserman (NW) と Kurjumov-Sachs (KS) と同様な方位関係を持つ 9 つのバリエーションから構成される(110)複合エピタキシャル膜が形成されていることが分かった。磁化曲線測定を行ったところ、(100)単結晶および(211)双結晶膜に対してはそれぞれ 4 および 2 回対称の面内磁気異方性が現れたのに対し、(110)複合エピタキシャル膜に対してはほぼ等方的な磁化曲線が観察された。Fig. 2 に回転磁界中で測定した磁歪の出力波形を示す。bcc(001)および(211)膜の場合、低磁界では、磁気異方性により印加磁界方位と磁化方向に角度差が生じ<sup>1)</sup>、波形が歪む傾向が認められ、磁界の増加に伴い、磁化が磁界方向に追従し、正弦波が観察されている。一方、bcc(110)膜に対しては、低磁界から高磁界まで正弦波が観察されている。当日は磁歪波形と磁気異方性の関係について詳細に議論する。

1) T. Kawai, T. Aida, M. Ohtake, and M. Futamoto: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **39**, 181 (2015).



**Fig. 1** (a-1)–(c-1) RHEED patterns observed for Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> films formed on MgO substrates of (a-1) (100), (b-1) (110), and (111) orientations. (a-2)–(b-2) Schematic diagrams of RHEED patterns simulated for (a-2) bcc(100), (b-2) bcc(211), and (c-2) bcc(110) surfaces.



**Fig. 2** Output waveforms of magnetostriction measured for Fe<sub>70</sub>Co<sub>30</sub> epitaxial films of (a) (001), (b) (211), and (c) (110) orientations measured under different rotating magnetic fields.

# FeSiB フリー層を有するスピバルブ型 GMR 歪みセンサ

橋本 侑也, 山本 直樹, 加藤 剛志, 大島 大輝, 岩田 聡

名古屋大学

Spin-Valve GMR Magnetic Strain Sensor with FeSiB Free Layer

Y. Hashimoto, N. Yamamoto, T. Kato, D. Oshima, S. Iwata

Nagoya University

## はじめに

GMR 素子は 2 端子の抵抗として扱うことができるため、磁気記録以外にも多様な磁気センサとして利用する研究が行われている。スピバルブ構造を持つ GMR 素子に対して、磁化自由層の磁化方向を歪みによって変化させると、歪みセンサとして利用することができる<sup>1)</sup>。磁性材料に歪みを加えると磁歪の逆効果により磁気異方性が変化するが、本研究ではフリー層の磁化方向を交流磁界で変調することで、この磁気異方性の変化を高感度で検出するとともに、外乱磁界に強い歪みセンサを試作した。

## 実験方法

超高真空スパッタ装置により直流磁界中で、Ta (2) / Mn<sub>80</sub>Ir<sub>20</sub> (10) / Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> (3) / Cu (2.2) / (Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)<sub>92</sub>B<sub>8</sub> (1.5) / Fe<sub>72</sub>Si<sub>14</sub>B<sub>14</sub> (20) / Ta (5) / sub. を作製した。カッコ内の数値は膜厚 (nm) で、sub. は 0.1 mm 厚のカバーガラス基板を表している。成膜した試料をフォトリソグラフィおよび Ar イオンエッチングにより幅 100 μm、長さ 1200 μm の細線状に加工した。素子の磁化容易軸を細線の短辺方向とし、直流磁界  $H_{DC} = 10 \sim 50$  Oe により、FeSiB フリー層磁化を困難軸方向に回転させた。次に容易軸方向に実効値 0.6 Oe、1 kHz の交流磁界  $H_{AC}$  を印加し、フリー層の磁化を振動させた (Fig.2)。この振動に伴い素子の抵抗値が変化して 1 kHz の信号電圧が現れる。GMR 素子はブリッジ回路に組み込み、ブリッジバランスの崩れを計装アンプによって増幅したものを出力信号電圧  $V_{out}$  とした。Fig.1 のような片持ち梁構造となるように固定した GMR 素子に歪みを印加すると、フリー層に歪みによる磁気異方性が誘導され、フリー層磁化の振動振幅が変化し、 $V_{out}$  の歪み依存性が得られる。

## 実験結果

Fig.3 は  $H_{DC} = 10$  Oe のときの歪み  $\epsilon$  に対する出力電圧  $V_{out}$  をプロットしたものである。また図中に FeSiB フリー層の一軸異方性と歪み誘導異方性から、歪み  $\epsilon$  と  $H_{AC}$  印加時の出力電圧をシミュレーションした結果も示す。FeSiB の実効異方性磁界は 10 Oe 以上で  $H_{DC} = 10$  Oe ではこれを打ち消すには不十分であるが、Fe<sub>72</sub>Si<sub>14</sub>B<sub>14</sub> は正の磁歪定数 ( $\lambda = 3.0 \times 10^{-5}$ ) を示すため、 $\epsilon > 0$  の場合、歪み誘導異方性により、フリー層の異方性磁界が打ち消され、磁化振動振幅が大きくなり、出力電圧が増加する。さらに  $\epsilon$  を増すと磁化振動振幅は減少する。出力電圧が線形である範囲 ( $-0.6 \times 10^{-4} < \epsilon < 0$ ) のゲージ率  $K = (\Delta V / V) / \epsilon$  は 8.1 と得られた。これは一般的な金属歪みゲージの 4 倍である。さらに、 $H_{DC}$  の印加角度を調整することで、 $K = 46$  が得られることを確認した。

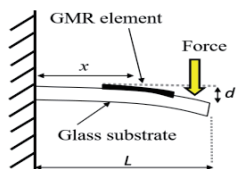


Fig.1 Schematic drawing of the experimental setup.

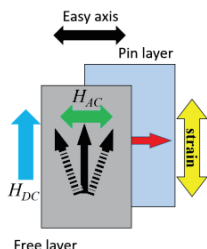


Fig.2 Top view of the GMR element showing directions of the easy axis,  $H_{DC}$ , magnetizations of pin and free layers, and applied strain.

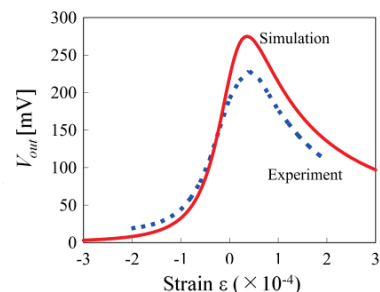


Fig.3 Experimental and simulated output voltage  $V_{out}$  as a function of the applied strain  $\epsilon$  under  $H_{DC} = 10$  Oe.

## 参考文献

- 1) S. Dokupil et al., J. Magn. Magn. Mat., 290-291, 795 (2005).

## SmCo 薄膜を用いたミアンダコプレーナ線路型薄膜センサ

藪上 信, 植竹宏明, 小野寺英彦, 小林伸聖\*, 早坂淳一\*, 荒井賢一\*  
(東北学院大学, \*電磁材料研究所)

Meandering coplanar line type thin film sensor using SmCo film  
S. Yabukami, H. Uetake, H. Onodera, N. Kobayashi\*, J. Hayasaka\*, K.I. Arai\*  
(Tohoku Gakuin University, \*Res. Inst. For Electromagnetic Materials)

**1 はじめに** SmCo 薄膜磁石により磁性薄膜へバイアスさせるコプレーナ線路型センサ素子を開発した。

**2 計測方法** Fig. 1 は SmCo 薄膜磁石の上に作製したミアンダコプレーナ型線路によるセンサ素子の写真を示したものである。これまでセンサ素子に使用する磁性薄膜へ直接バイアス電流を通电させることで、センサを駆動することを試みたが、バイアス電流が 1.2A 程度と消費電力を低減する課題があったり。そこで本報告では CoNbZr 薄膜の下に SmCo 薄膜磁石を積層して、バイアスを与えた。ミアンダコプレーナ構造のセンサ素子はガラス基板(25 mm × 25 mm, 1 mm 厚)上に SmCo 薄膜磁石(1.25 $\mu$ m 厚)、SiO<sub>2</sub> 薄膜(2 $\mu$ m 厚)、アモルファス CoNbZr 薄膜(1 mm × 2.95 mm, 1  $\mu$ m 厚)を成膜し、SrTiO 薄膜(0.75  $\mu$ m 厚)を介して Cu 薄膜によるミアンダコプレーナ線路(110  $\mu$ m 幅, ギャップ 20  $\mu$ m, 3.5  $\mu$ m 厚)をそれぞれリフトオフにより作製した。磁性薄膜の直下には微調整バイアス用電極として Cu 薄膜を成膜した。CoNbZr 薄膜へは回転磁界中熱処理(300 $^{\circ}$ C, 2 時間 0.3 T)の後、静磁界中熱処理(200 $^{\circ}$ C, 1 時間)を施して、Fig. 1 の左右方向へ磁気異方性を付与した。キャリア信号はコプレーナの中心導体流れ、CoNbZr 薄膜には導通しない。バイアス磁界は CoNbZr 薄膜内には磁化困難軸方向(Fig. 1 の上下方向)へ印加させる。バイアス磁界が異方性磁界と近い値の際に、キャリアの位相変化および振幅変化が最大値となると考えられる。センサの評価には市販のウェハプローブ(GSG-40-150)とマグネットを用いてゆっくりと磁界を変化させて、ネットワークアナライザ(R3767)の透過法測定によりキャリアの位相変化を S<sub>21</sub> から求めた。周波数範囲は 300 kHz-8 GHz とし、バンド幅は 1 kHz, 平均化回数は 16 回とした。

**3 計測結果** Fig. 2 は Fig. 1 のセンサにおいて、バイアス磁界に対する、キャリアの位相変化を示したものである。キャリア周波数は 1.5 GHz ~ 3 GHz を表記した。位相変化感度は約 1 Oe で 70 degree/Oe 得られた。SmCo 磁石を着磁せずに評価した際には、位相変化感度が最大になる磁界は約 10 Oe 程度であ

り、SmCo 磁石により約 9 Oe のバイアス磁界が付与され、高感度な動作点が低磁界にシフトしたと考えられる。

**謝辞** 本研究の一部は JST COI TOHOKU プロジェクトの研究成果である。また本研究の一部は科研費(16H04378)の研究成果である。

**参考文献** 1) 藪上 信, 植竹宏明, 森谷健太, 富並剛, 小野寺英彦, “バイアス通电によるミアンダコプレーナ薄膜磁界センサの開発”, 電気学会論文誌 A, Vol. 137, No. 8 (2017, 印刷中).

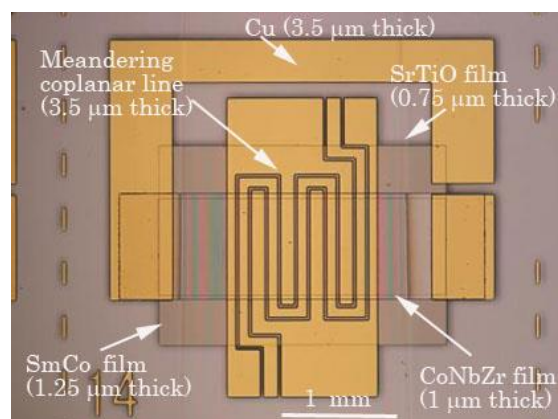


Fig. 1 Schematic view of the sensor.

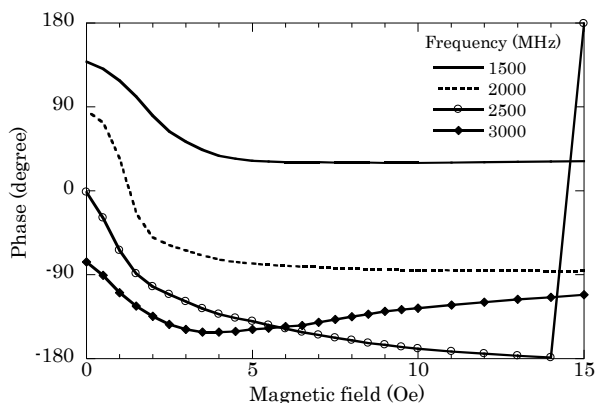


Fig. 2 Phase difference and phase change as a function of applied bias field.



## 六方晶フェライト単結晶の高周波透磁率評価

長内 史也, 薮上 信\*, 山田 洋, 内海 重宜\*\*, 安川 雪子\*\*, 吉田 栄吉\*\*\*\*, 遠藤 恭\*\*\*\*, 島田 寛\*\*\*\*  
 (仙台高等専門学校, \*東北学院大学, \*\*諏訪東京理科大学, \*\*\*千葉工業大学,  
 \*\*\*\*東北大学, \*\*\*\*\*東栄科学産業)

High frequency permeability measurement of hexagonal ferrite single crystal

F.Osanai, S. Yabukami\*, H. Yamada, S. Utsumi\*\*, Y. Yasukawa\*\*, S. Yoshida\*\*\*\*, Y. Endo\*\*\*\*, Y. Shimada\*\*\*\*  
 (National Institute of Technology Sendai College, \*Tohoku Gakuin University, \*\*Tokyo University of  
 Science Suwa, \*\*\*Chiba Institute of Technology, \*\*\*\*Tohoku University, \*\*\*\*\*Toei Scientific Industrial co., ltd.)

1 はじめに 六方晶フェライトは次世代高周波磁気素子への応用が期待され、その高周波磁気特性に関する研究が行なわれている。本研究では、六方晶フェライトとして組成調整したBaフェライトを選択し、その高周波磁気特性を検討した。具体的には、インピーダンス整合を考慮したマイクロストリップ (MSL) 型プローブをBaフェライト単結晶に近接させて透磁率計測を行い、強磁性共鳴周波数、共鳴線幅、ダンピング定数について検討した。

2 計測方法 測定対象試料は、組成および濃度が異なる10種類のBaフェライト単結晶である。なお、本概要では、試料面内 (C 面) 方向に非常に弱い容易軸を有するBa(Fe<sub>0.864</sub>Sc<sub>0.136</sub>)<sub>12</sub>O<sub>19</sub> (6 mm × 3 mm, 厚さ 1 mm) の結果について紹介する。

Fig. 1 は高周波透磁率計測システムの構成、およびMSL型プローブとBaフェライトの配置関係を模式的に示した図である。同軸ケーブルを介してネットワークアナライザ(アジレントテクノロジー製N5227A)に接続したMSL型プローブをヘルムホルツコイル内に設置した。高周波磁界をBaフェライトの磁化困難軸方向に励起するように、ポリスチレンフィルムを介してMSL導体に試料の磁化困難軸面を近接配置させた。

はじめにDCバイアス磁界H<sub>dc</sub>を印加せず、Baフェライトをヘルムホルツコイル内に配置しない状態でSパラメータ測定を行った(バックグラウンド測定)。次に、MSLプローブとBaフェライトの配置関係を注意しながら、BaフェライトをMSLに近接配置し、DCバイアス磁界(0~1500 Oe程度)を高周波磁界と直交するように印加してSパラメータ測定を行った(メイン測定)。メイン測定とバックグラウンド測定との差分により透過係数(S<sub>21</sub>)を評価し、(1), (2)式により透磁率に換算した。

$$Z_s = 100(1 - S_{21})/S_{21} \tag{1}$$

$$\mu_r = K \frac{1}{f} (X - jR) \tag{2}$$

ここで、Z<sub>s</sub>は磁性体の等価的インピーダンス、Rは抵抗、Xはリアクタンス、fは周波数、Kは定数である。

3 計測結果 Fig. 2 に一例としてDCバイアス磁界500,1000,1500 Oe印加時のBa(Fe<sub>0.864</sub>Sc<sub>0.136</sub>)<sub>12</sub>O<sub>19</sub>の透磁率(虚数部)の周波数特性を示す。なお、絶対値

は未補正である。外部磁界の増加とともに、強磁性共鳴周波数(f<sub>r</sub>)は5.1 GHzから10.95 GHzへと高周波帯域へシフトし、共鳴線幅(Δf<sub>r</sub>)は4.3 GHzから0.43 GHzへと狭くなった。f<sub>r</sub>に関しては、Baフェライトの異方性磁界より求めたf<sub>r</sub>の理論値(約4.2 GHz)と近くなった。Δf<sub>r</sub>に関しては、その挙動は外部磁界の増加にともない異方性分散が収まり磁化が一斉回転モードになっていることを表している。また、ダンピング定数に関しては、DCバイアス磁界が十分に強く一斉回転モードになる領域で、その値はおおよそ0.02となった。今後は他のBaフェライトについても同様の評価を行う。

参考文献 1) S. Yabukami, K. Kusunoki, H. Uetake, H. Yamada, T. Ozawa, R. Utsumi, T. Morizumi, Y. Shimada, *Journal of the Magnetics Society of Japan*, Vol. 41, No. 2, pp. 25-28 (2017).

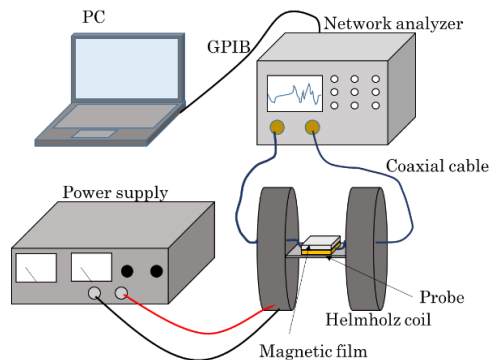


Fig. 1 Schematic diagram of measurement system.

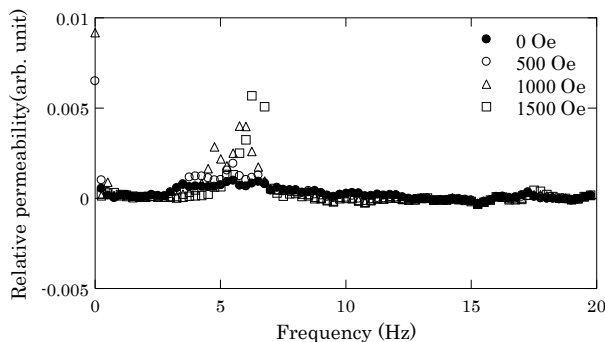


Fig. 2 Imag. permeability of Ba(Fe<sub>0.864</sub>Sc<sub>0.136</sub>)<sub>12</sub>O<sub>19</sub>

# 基本波型FGを用いる勾配磁界センサの高平衡化法

笹田一郎

(笹田磁気計測研究所)

Balancing Method for Fundamental-Mode Orthogonal Fluxgate (FM-OFG) Gradiometer

Ichiro Sasada

(Sasada Magnetic Instruments Laboratory)

## はじめに

グラディオメータは磁界の局所的な乱れを高感度に検出する。基本波型直交フラックスゲート (FM-OFG) を用いると、グラディオメータはマグネトメータをわずかに作り変えるだけで得られる<sup>(1)</sup>。同じようにして作成したセンサヘッドを2個用いて、励磁側は直列に、検出側は差動に結線するだけで回路は全く同じものを用いることができる。グラディオメータの高性能化には、雑音特性はもとより、一様磁界に対する感度を可能な限り抑制することが重要である。FM-OFGのセンサヘッドの磁界に対する感度は直流バイアス電流を大きくすると感度が低下し、小さくすると感度が増大することを利用して、平衡度を高めることができる。補助的な電源を用いる方法はすでに参考文献で報告しているが、本稿では、受動素子のみで調整する方法を発表する。

## 調整方法

Fig. 1に調整回路を付加したグラディオメータの励磁側回路を示す。U字型をしているのがアモルファスワイヤコアである。この方法では、交流電流成分 $I_{ac}$ は2つのコアに共通に流れ、直流バイアス電流の一部がLR受動素子回路に分流する。可変抵抗で分流する直流電流の大きさを調整することで、バイアス電流の大きさを独立に調整できる。インダクタは交流電流を阻止するためのものである。

## 実験結果

実験に用いた平行グラディオメータ (ベースライン12 mm) は、Uの字に曲げたアモルファス磁性ワイヤコアと、その周囲に巻かれた1000ターンのソレノイド検出コイルからなるが、長さは共に30 mmである。センサヘッドの励磁は100 kHzで実効値12mA, 直流バイアス電流は40 mAとしている。実効値 $1.27 \mu\text{T}$ , 周波数20 Hzの一様磁界を印加した時のグラディオメータの出力波形を高平衡化調整なしと、調整ありの場合についてFig. 2に示している。マグネトメータ

( $0.25\text{V}/1 \mu\text{T}$ ) の出力に対する抑圧比は前者で168、後者で2480に達する。

## 参考文献

- 1) Ichiro Sasada and Shoumu Harada, Fundamental Mode Orthogonal Fluxgate Gradiometer, IEEE Trans. Magn., Vol. 50, No. 11 (2014) 4007404

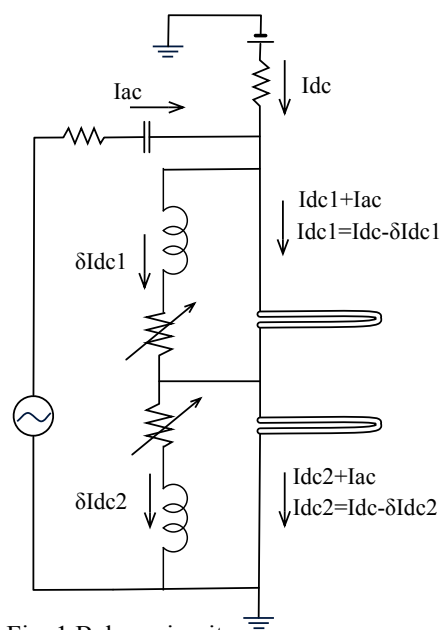


Fig. 1 Balace circuit

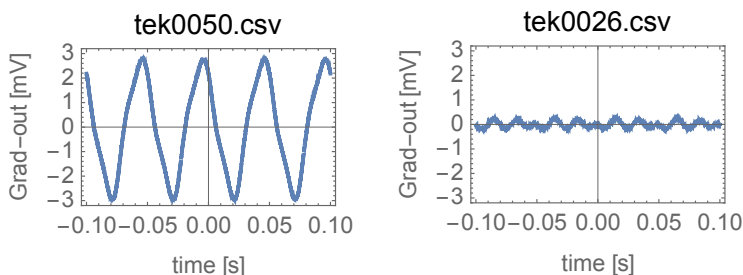


Fig. 2 Waveforms of the gradiometer no adjustment (left) and with adjustment (right).

# 張力印加した磁性コアの磁区構造制御による フラックスゲート磁気センサの小型化

宮田大史<sup>\*,\*\*</sup>、山本竜馬<sup>\*\*</sup>、森本祐治<sup>\*\*</sup>、竹澤昌晃<sup>\*\*</sup>  
(\*エムティアイ、\*\*九工大)

Miniaturization of Fluxgate Sensors by Magnetic Domain Structure Control of Tensioned Core Materials

H. Miyata<sup>\*,\*\*</sup>, R. Yamamoto<sup>\*\*</sup>, Y. Morimoto<sup>\*\*</sup>, M. Takezawa<sup>\*\*</sup>

(\*MTI Co., Ltd., \*\*Kyushu Inst. of Tech)

## はじめに

我々は、フラックスゲート磁気センサの感度が、そのコア材料の磁区構造を制御することにより改善できることを報告している<sup>1)</sup>。本研究では、センサ長を 20 mm から 5 mm まで小型化した際のセンサ出力の低下を、張力印加による磁区構造制御によって抑制することを試みた。この際の磁性コアの磁区構造と、センサ出力の関係を調べたので報告する。

## 実験方法

観察試料は  $\text{Fe}_{81}\text{B}_{13.5}\text{Si}_{3.5}\text{C}_2$  アモルファス薄帯で、飽和磁歪は  $35 \times 10^{-6}$ 、飽和磁束密度は 1.6 T である。この試料に 15 MPa の張力を印加した際の磁区構造を Kerr 効果顕微鏡で観察した。また、励磁コイルに 1~10kHz, 10 mA の電流を通电した際の出力電圧を測定してセンサ感度を調べた。

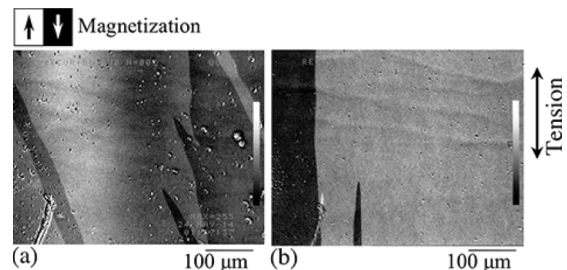


Fig. 1 Domain images (a) with and (b) without tension.

## 結果と考察

Fig.1 に Fe 基アモルファス薄帯の磁区観察結果を示す。Fig.1 より張力印加前後で磁区構造が変化していることが分かる。張力印加前は磁区コントラストが薄く灰色であり、磁化が上下ではなく斜め方向を向いているが、張力印加後は磁区コントラストが濃くなり、磁化が上下方向にそろったストライプ状の磁区構造が観察された。これは Fe 基アモルファス薄帯の磁歪が大きく、逆磁歪効果により励磁方向を磁化容易軸に誘起できた結果だと考えられる。

Fig. 2 に 10 mm と 20 mm 長のセンサの感度の周波数依存性を示す。▲で示す張力印加無しの 20 mm 長のセンサ感度と比較して、■で示す張力印加無しの 10 mm 長のセンサ感度は 60%程度に低下している。一方で、●で示す張力を印加した 10 mm 長のセンサでは、張力無しの 20 mm 長センサの 2 倍程度の感度が得られており、張力印加による磁区構造制御によって、センサの小型・高感度化を実現できたことが分かる。

Fig. 3 に 5 mm 長センサの感度の周波数依存性を示す。この場合も、張力印加によってセンサ感度を向上でき、約 3 倍になっていることが分かる。しかし、張力を印加した場合でも 10 mm 長センサと比較して感度は 3%程度に急激に低下している。これは反磁界により材料端部で磁壁移動が起きにくくなるためだと考えられるが、張力印加によってセンサ長を 5 mm まで小型化した場合でも、十分に検出可能なセンサ感度が得られることを明らかとした。

## 参考文献

- 1) H. Miyata, et al., *J. Magn. Soc. Jpn.* **38**, 169 (2014).

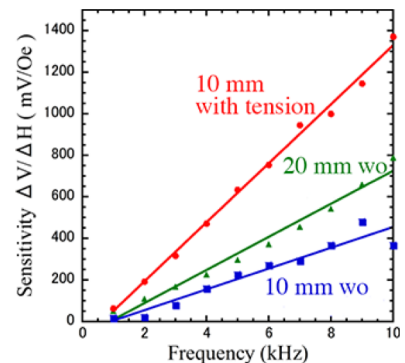


Fig. 2 Frequency dependence of sensitivity of 10- and 20-mm-long sensors.

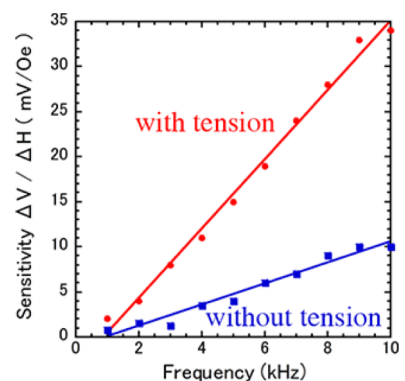


Fig. 3 Frequency dependence of sensitivity of a 5-mm-long sensor.

# イットリウム鉄ガーネットの磁化ダイナミクスを利用した高感度磁気センシングの基礎検討

神田哲典、室賀翔<sup>1</sup>、遠藤恭<sup>2</sup>、黒澤孝裕<sup>3</sup>

(大島商船高専、<sup>1</sup>豊田高専、<sup>2</sup>東北大、<sup>3</sup>秋田県産業技術センター)

Sensitive measurements of magnetization dynamics in yttrium iron garnet for magnetic sensor applications

T. Koda, S. Muroga<sup>1</sup>, Y. Endo<sup>2</sup>, T. Kurosawa<sup>3</sup>

(National Inst. of technology Oshima college, <sup>1</sup>National Inst. of technology Toyota college, <sup>2</sup>Tohoku Univ., <sup>3</sup>AIT)

## はじめに

近年、生体磁場検出等に向けて室温で動作する高感度磁気センシング技術の研究開発が活発に行われている。このような用途に向けて、本研究では、低磁気ダンピング定数のイットリウム鉄ガーネット(YIG)の強磁性共鳴近傍の条件下で外部磁場変化に伴う非線形な磁化ダイナミクス変化を利用し、磁場変化を高感度に捉えることを試みたので報告する。

## 実験方法

試料には(111)ガドリウムガリウムガーネット (GGG) 単結晶基板上に液相エピタキシャル法で成長された膜厚 10 $\mu\text{m}$  の YIG(111)単結晶膜を用いた。試料上に高周波伝送路として、フォトリソグラフィ法で非対称型のコプレナーウェイブガイド (グランド幅 175 $\mu\text{m}$ 、信号線幅 100 $\mu\text{m}$ 、信号線間隔 45 $\mu\text{m}$ ) を形成した。-10dBm の高周波電力をこの伝送路を用いて YIG 上に入力し、反射波の磁場に対する応答を評価した。磁化ダイナミクスを誘起するための高周波電力の周波数は GHz 帯域と高いため、位相変化の時間分解能を高めることが可能な Double Mixer Time Difference (DMTD) 法を用いた測定系を構築し [1]、反射波の電力と位相を RF ロックインアンプにより計測することで磁化ダイナミクスを評価した。

## 実験結果

図 1(a)には磁場掃引した際の磁化ダイナミクスの高周波周波数依存性の測定例を示す。反射電力スペクトルの形状は周波数に大きく依存し、特定の周波数において磁場掃引に対して急峻な変化を示すことがわかる。この周波数によって大きくスペクトルが変化する原因は特定されていないが、コプレナーウェイブガイドの寸法を系統的に変えると周波数依存性も系統的に変化することから、信号線、グランド線のそれぞれにおいて励起された局所的な磁化の歳差運動によって発生するスピン波同士の干渉効果による共振が発生していると推定している。

図 1(b)には最も急峻なスペクトルを示す印加周波数 6.6 GHz での DMTD 法を用いた位相変化の測定結果を示す。磁場による位相変化は強磁性共鳴が起こる磁場近傍で顕著となり、最大で 27° /Oe の比較的大きな磁場に対する位相変化が検出された。講演では周波数依存性の原因に関する考察と、位相の磁場依存性を中心に報告する予定である。

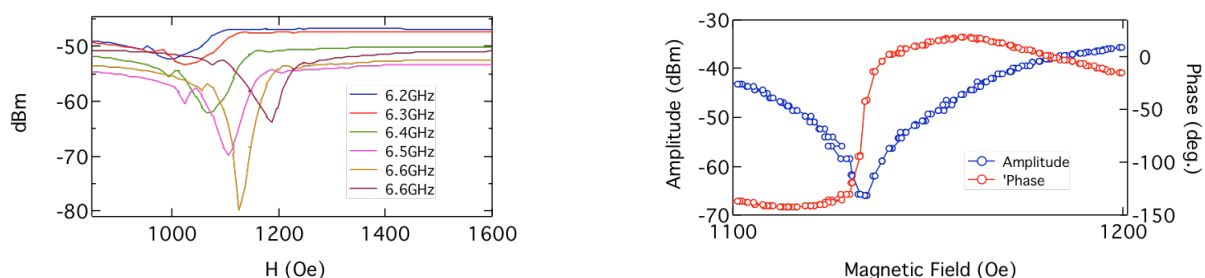


Fig. 1 (a) Magnetic field dependence of reflected wave power. (b) Magnetic field dependence of power and phase.

謝辞 本研究にあたり、株式会社グラノプトから測定試料の御協力を頂きました。ここに感謝致します。

参考文献 1) S. Yabukami *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 38, (2014) 25.

# 逆磁歪効果型薄膜歪センサの振動センサへの応用

久保 結人, 荒井 薫, 栢 修一郎, 石山 和志  
(東北大学 電気通信研究所)

Application of strain sensor using inverse-magnetostriction effect to vibration sensor

Y. Kubo, K. Arai, S. Hashi, K. Ishiyama  
(RIEC, Tohoku Univ.)

## はじめに

近年、老朽化が進行した建造物の数は増加しており、建造物の損傷や崩落の危険性が高まっている。しかし、その点検方法は目視やハンマー等による打音点検など人の手による検査が中心となっている[1]。本研究では、現在広く行われている人の手による打音検査に代わる、橋梁等の微小振動を検出できる超高感度振動センサの開発を目標としている。

これまで、磁歪膜と導体層の積層構造からなる逆磁歪効果を利用した歪センサの検討を行ってきた[2]。このセンサは、センサ素子への歪印加時の磁化変化に伴う透磁率変化を、高周波通電時の素子のインピーダンス変化として検出するものであった。今回、その歪センサの振動センサへの応用を目指し、歪印加時の透磁率変化に伴う高周波電流通電時の素子の位相変化に着目し、その位相変化を電圧変化として検出できる回路を作成した。さらに、Fig. 2のように、歪センサを片もち梁構造とし、外部振動に伴い片もち梁が振動する構造とした。これにより、外部振動による片もち梁の振動で、素子に歪が印加され、透磁率変化に伴う位相変化を電圧として検出できるような振動検出システムを構成した。本報告では、その振動検出の特性について報告する。

## 実験方法

素子の作製には RF スパッタ、リフトオフ法を用いた。Fig. 1 に示すように、非磁性金属層の Mo 膜を磁性層の  $\text{Fe}_{72}\text{Si}_{14}\text{B}_{14}$  膜で挟み込んだ積層構造にした。また、Mo、 $\text{Fe}_{72}\text{Si}_{14}\text{B}_{14}$  とともに同一の 1 ターンミアンダ形状に成膜した。Si ウェハの厚みは  $200\mu\text{m}$ 、Mo の膜厚は  $2.0\mu\text{m}$ 、 $\text{Fe}_{72}\text{Si}_{14}\text{B}_{14}$  の膜厚は  $0.7\mu\text{m}$  とした。成膜後に  $360^\circ\text{C}$ 、 $240\text{kA/m}$  の回転磁場中のみで熱処理を行い、積層膜への残留応力を利用して磁性膜長手方向に異方性を誘導した。

Fig. 2 に振動検出実験の模式図を示す。素子の電極側をジグ上に固定し、片もち梁状にして、加振器によりジグを加速度  $2.5\text{m/s}^2$ 、 $5.0\text{m/s}^2$  の正弦波で振動させた。Si ウェハ先端には、機械的共振周波数を下げるために  $1\text{g}$  の錘を固定した。また、素子へのキャリア通電電流の周波数は  $150\text{MHz}$  とし、位相検出回路を用いて振動を検出した。

## 実験結果

加振時の検出電圧の周波数特性を Fig. 3 に示す。加振周波数を  $20\text{Hz}$ ~ $200\text{Hz}$  まで変化させ、位相検出電圧は peak to peak 電圧とした。加振周波数  $150\text{Hz}$  で検出電圧が最大になり、加振加速度  $5.0\text{m/s}^2$  において、 $0.3\text{V}$  の検出電圧を得た。この点は片もち梁の機械的共振点と考えられる。今回の実験で、片もち梁型の歪センサが振動センサへ応用可能であることが明らかとなった。今後、さらなる振動検出感度の向上のため、片もち梁構造やセンサ素子構造を検討する。

## 謝辞

本研究の一部は、国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) の「先端計測分析技術機器開発プログラム」による支援によって行われた。

## 参考文献

- [1] 国土交通省：「道路の老朽化対策の本格実施に関する提言」(2014)。
- [2] Y. Suwa, et al., IEEE Trans. Magn. 46, 666 (2010)。

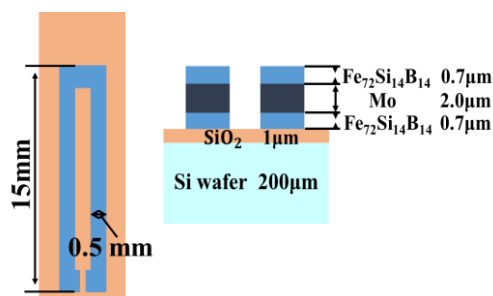


Fig. 1 Schematic diagram of the sensor element.

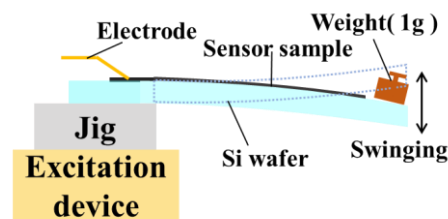


Fig. 2 Experimental setup of vibration detection.

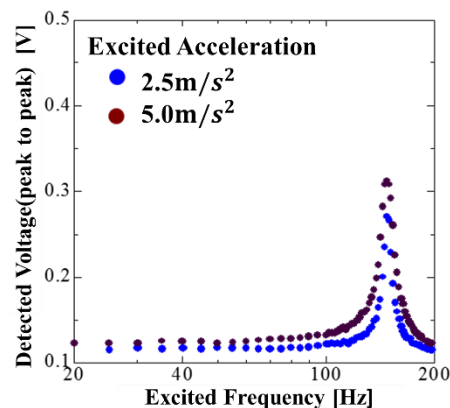


Fig. 3 Frequency characteristic of detected voltage in excitation.

# 導体層を用いた積層型 MI センサ素子の検討

楠 洸介, 横山 広雄, 栢 修一郎, 林 禎彰, 石山 和志  
(東北大学電気通信研究所)

Study on Lamination Structured Magneto-Impedance Sensor Using Conductive Layer

K. Kusunoki, H. Yokoyama, S. Hashi, Y. Hayashi and K. Ishiyama  
(Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University)

## 1. はじめに

高周波キャリア電流を通電した高透磁率磁性材料の外部磁界印加時の透磁率変化を介し、大きなインピーダンス変化を得る磁界センサは、生体磁気計測などへの応用を目指して、さらなる高感度化の研究が進められている<sup>1,2)</sup>。磁性膜に直接キャリア電流を通電する場合、高周波帯域での表皮効果を利用するため、素子の寸法にもよるが、数百Ω以上の高インピーダンスになりキャリア電流量によっては熱雑音の影響を受け易く感度低下の恐れがある<sup>3)</sup>。そこで本研究では、キャリア通電用に低抵抗率の導体層を設けた積層構造の磁界センサ素子について高感度化の検討を行った。

## 2. 実験方法

素子の作製には RF スパッタ、リフトオフ法を用いた。Fig. 1 に示すように、導体層として1ターンのミアンダ形状の Mo(モリブデン)膜を、また、その上下に長方形の  $\text{Co}_{85}\text{Nb}_{12}\text{Zr}_3$  アモルファス磁性層(幅 100  $\mu\text{m}$ 、長さ 5 mm)をガラス基板上に成膜した。膜厚は導体層、磁性層ともに 1.0  $\mu\text{m}$  とした。成膜後に 400  $^{\circ}\text{C}$  で回転磁界(3 kOe)および、静磁界(3 kOe)を印加して熱処理を行い、素子幅方向に異方性を誘導した。また、インピーダンスの計測にはネットワークアナライザを用いた。

## 3. 結果

Fig. 3 に幅 100  $\mu\text{m}$  の積層構造型センサへ 200 MHz のキャリア電流を通電した際の外部磁界-インピーダンス特性を示す。外部磁界は素子長手方向へ-16 Oe から+16 Oe まで印加した。約 6 Oe 付近で 37.6  $\Omega$  のインピーダンスの最大値を示し、概ね低インピーダンスを実現できている。この磁界印加範囲におけるインピーダンスの変化量は最大で 23.6  $\Omega$  で、変化率は約 169 % となった。外部磁界が 5 ~ 6 Oe の範囲で最も急峻なインピーダンス変化を示し、その傾きは約 35.4  $\Omega/\text{Oe}$  となった。また、約 -2 ~ 2 Oe の範囲に緩やかなインピーダンスの変化が見られる。これは、Fig. 3 に示す磁区構造写真において、素子長手方向への印加磁界が大きくなるほど、還流磁区が成長し、キャリア電流から発生する励磁磁界に対して直交する成分が増加したことが原因と考えられる。これらの結果を考慮し、Kerr 効果顕微鏡による磁界印加時のセンサ素子の磁区構造変化の観察、およびインピーダンスの測定結果から、導体層を設けた磁界センサ素子のさらなる感度向上のための素子構造を検討する。

### 参考文献

- 1) H. Uetake, et al., IEEE Trans. Magn., 51, 4005003 (2015).
- 2) H. Kikuchi, et al., J. Magn. Magn. Master., 420, 269 (2016).
- 3) H. Mawatari, et al, J. Magn. Soc. Jpn., 27, 414-418 (2003).

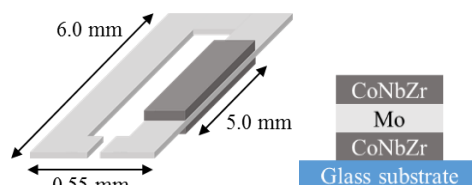


Fig. 1 Schematic diagram and cross sectional view of the sensor

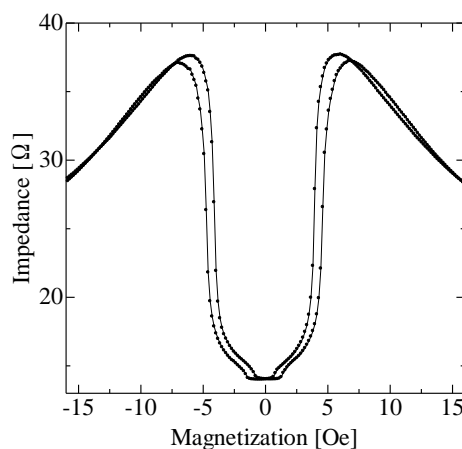


Fig. 2 Impedance change of the sensor element

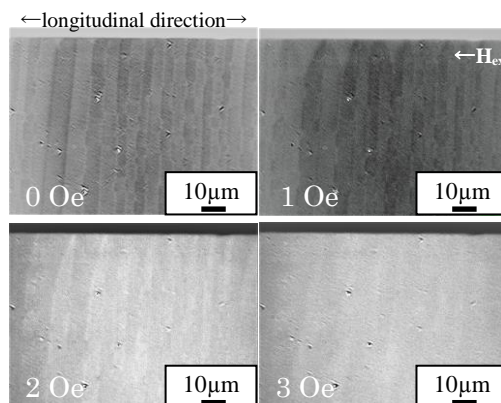


Fig. 3 Domain structure of the sensor element

# MI センサによる複合磁気ワイヤの磁壁移動速度の測定

棚村祐悟、星山弘樹、竹渕哲聡、藤永直矢、山田努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

Measurement of domain wall velocity in magnetic wire using MI sensor  
Yugo Tanamura, Hiroki Hoshiyama, Akitoshi Takebuchi, Naoya Fujinaga,  
Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura  
(Yokohama National University)

## はじめに

熱ひねり加工を施した FeCoV 複合磁気ワイヤは、大バルクハウゼンジャンプと呼ばれる高速な磁壁移動によって急峻な磁化反転を生じ、検出コイルを設置することでこの磁化反転からパルス出力が得られる。この出力は無電源で得られることや外部磁界の時間変化に依存しないなどの特徴を有しており、エネルギー・ハーベスティング素子への応用が着目されている。本研究では、MI センサを用いて複合磁気ワイヤに生じる磁壁の移動速度を測定した。

## 実験方法

本研究では、長さ 20 mm の FeCoV 複合磁気ワイヤを用いた。二つの MI センサ(AICHI MI 社 MI-CB-1DH)をワイヤの近傍に置き、励磁用磁石をワイヤに対して水平に近づけ(Fig.1)、磁壁移動により生じる漏れ磁束のピークの時間差から磁壁移動速度を計算した。一方向の磁壁を観測するために励磁位置に対して片一方に二つの MI センサを配置した。また励磁位置を変え磁壁移動速度の変化を測定した。

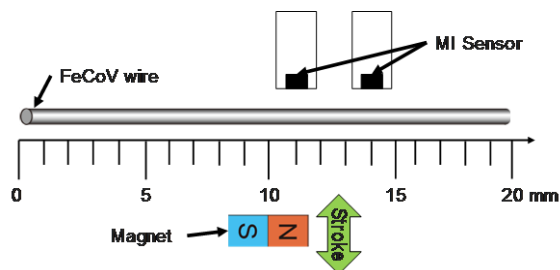


Fig. 1 Configuration of magnetic wire, magnet and MI sensor.

## 実験結果

ワイヤの中心を励磁し、検出コイルを用いた磁壁移動速度の測定結果を Fig.2 のようになる。これは同じ励磁位置では励磁磁場を変化させても同じ磁壁移動速度が得られることを示す<sup>3)</sup>。次に MI センサを用いた測定結果を Fig.3 に示す。励磁位置がワイヤの中心に近づくにつれて磁壁移動速度が上昇することが得られた。検出コイルを用いた場合においても移動速度が上昇していることが得られた。MI センサを用いることで検出コイルと同様に磁壁移動速度を測定できることを示した。

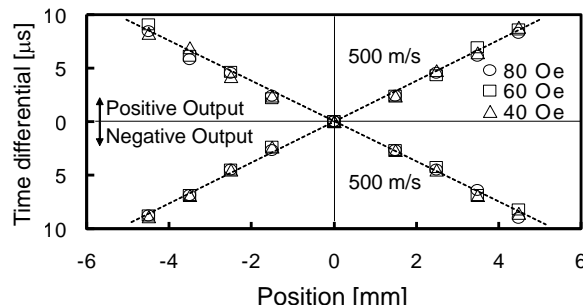


Fig. 2 Time difference measured by detection coil.

具体的な励磁方法や MI の位置等の詳細は当日発表する。

謝辞：FeCoV 磁性線は、ニッコーシ株式会社様のご好意により、提供いただいたものです

## 参考文献

- 1) J. R. Wiegand, et al., U.S. Patent 3,820,090, 1974.
- 2) R. Malmhall, K. Mohri, F. B. Humphrey, T. Manabe, H. Kawamura, J. Yamasaki, I. Ogasawara, *IEEE Trans. Magn.* **23**, 3242 (1987).
- 3) H. Tanaka, et al., *IEEE Trans Magn*, 43(6), 2399, 2007.

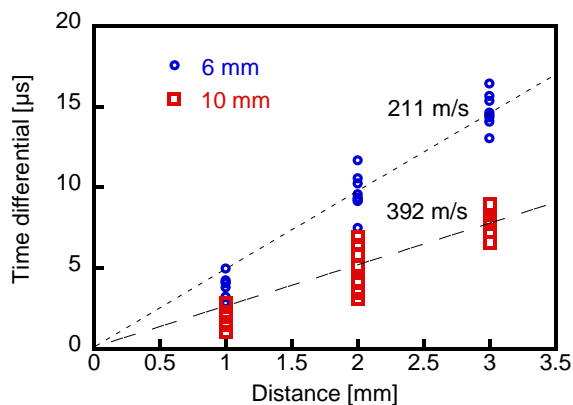


Fig. 3 Time difference measured by MI sensor.

# Wiegand パルスを用いたエネルギーハーベスティングによる ホール素子の無電源駆動

藤永直矢、竹渕哲聡、山田努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

Battery-less operation of Hall sensor by energy harvesting from a single Wiegand pulse  
Naoya Fujinaga, Akitoshi Takebuchi, Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura  
(Yokohama National University)

## はじめに

ひねり加工を施した FeCoV ワイヤ (以下、複合磁気ワイヤと記述する) に、一定以上の強度の磁場を印加すると大バルクハウゼンジャンプを伴う急峻な磁化反転が生じる<sup>1,2)</sup>。検出コイル等を用いることによりこの磁化反転からパルス電圧出力を得ることができ、Wiegand パルスと呼ばれている。このパルス出力は印加磁場の時間変化率に依存しないといった特徴を持つために、回転センサ等へ応用されてきた。近年、集積回路への給電が可能との報告もなされている<sup>3)</sup>。我々はエネルギー・ハーベスティング素子としての応用に着目し、本稿では複合磁気ワイヤを電源として用いた場合のホール素子の無電源駆動を試みた。

## 実験方法

長さ 20 mm、線径 0.25 mm の複合磁気ワイヤに 3000 turn の検出コイルを巻いた。ローターに装着した  $3 \times 3 \times 5 \text{ mm}^3$  の NdFeB 磁石を複合磁気ワイヤ近傍で動かすことで励磁を行い、磁化反転を誘導した<sup>4)</sup>。複合磁気ワイヤの磁化反転によって検出されたコイルのパルス出力をホール素子 (THS119, Toshiba) の駆動電源として使用した。評価を行うために、ホール素子に 100-300 mT の直流磁場を印加し、複合磁気ワイヤを電源として用いた場合の出力波形を観測した。また複合磁気ワイヤを電源として用いた場合と直流安定化電源を用いた場合でのホール素子の出力特性の比較を行った。

## 実験結果

複合磁気ワイヤのパルス出力を電源として用いた場合と直流安定化電源を用いた場合のそれぞれのホール素子の出力特性を Fig. 1 に示す<sup>5)</sup>。この時、ホール素子に入力される電流最大値はどちらも 1.3 mA である。ホール素子の出力波形は入力波形と同様な波形が観測され、素子に印加する直流磁場を変化させると、磁場の大きさに対応した出力波高値が観測された。複合磁気ワイヤを電源として用いた場合においても、直流磁場に対して、ホール素子の出力電圧が比例であることが観測された。これらの結果より複合磁気ワイヤを用いたホール素子の無電源駆動が確認された。その他のセンサやデバイス、IoT 分野でのエネルギー・ハーベスティング素子としての応用が期待される。

謝辞：FeCoV 磁性線は、ニッコーン株式会社様のご好意により、提供いただいたものです。

## 参考文献

- 1) J. R. Wiegand, and M. Velinsky, U.S. Patent 3,820,090, 1974.
- 2) A. Matsushita, S. Abe, *IEEJ Trans. A*, **99**, 46, 1979.
- 3) <https://www.ichaus.de/product/iC-PM>
- 4) A. Takebuchi, T. Yamada, and Y. Takemura, *J. Mag. Soc. Jpn.*, **41**, 24, 2017.
- 5) Y. Takemura, N. Fujinaga, A. Takebuchi, and T. Yamada, *IEEE Trans. Magn.*, accepted for publication, 2017.

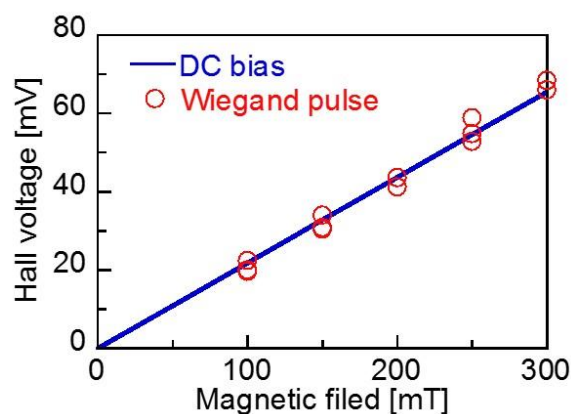


Fig. 1. Hall voltages depending on the intensity of the applied magnetic field. The Hall sensor was operated by conventional DC bias current at 1.3 mA or a single Wiegand pulse voltage<sup>5)</sup>.



# 複合磁気ワイヤを用いたエネルギーハーベスティング素子のフェライトコアによる高出力化

酒井貴史、竹渕哲聡、山田努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

Higher output voltage from energy harvesting element using compound magnetic wire with ferrite core  
Takafumi Sakai, Akitoshi Takebuchi, Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura  
(Yokohama National University)

## はじめに

磁気ワイヤ等における大バルクハウゼンジャンプを伴う急峻な磁化反転は、検出コイルにパルス電圧を誘起する<sup>1-3)</sup>。この電圧を出力とする Wiegand センサが広く研究されてきた<sup>1-3)</sup>。熱ひねり加工処理を施した複合磁気ワイヤにおいても、外部電力が不要であり、外部磁界の時間変化に依存しないパルス出力が得られるなどの特徴を有しており、エネルギーハーベスティング素子への応用が着目されている<sup>4,5)</sup>。本稿では、複合磁気ワイヤの両端部にフェライトコアを設置したことによる出力の変化を観測したので報告する。

## 実験方法

FeCoV 複合磁気ワイヤに 200 turn の検出コイルを巻き、その外側を覆うように交流磁場励磁用コイルを設置した。励磁用コイルに電流を流し、40~80 Oe でワイヤ中央を励磁した。その後、フェライトコア(ビーズ)を両端に1つずつ設置して行い、出力電圧と出力を得るために必要な磁場強度の変化を測定した。

## 実験結果

ワイヤを交流励磁した際のパルス出力電圧を Fig. 1 に示す。フェライトビーズを設置した場合、設置していない場合よりも高い波高値が観測された。これは、フェライトビーズによってワイヤ端部まで励磁され、ワイヤ内部の反転する磁化の量が増加したため、出力が増加したと考えられる。Figure 2 は、パルス出力が生じる、即ち複合磁気ワイヤの磁化反転が生じる印加磁場強度を示している。フェライトビーズを設置すると、出力を得るために強い磁場を印加する必要があることが観測された。詳細は当日報告する。

謝辞：FeCoV 磁性線は、ニッコーシ株式会社様のご好意により、提供いただいたものです

## 参考文献

- 1) J. R. Wiegand and M. Velinsky, U.S. Patent 3,820,090, (1974).
- 2) R. Malmhall, K. Mohri, F. B. Humphrey, T. Manabe, H. Kawamura, J. Yamasaki, I. Ogasawara, *IEEE Trans. Magn.* **23**, 3242, (1987).
- 3) S. Abe and A. Matsushita, *IEEE Trans. Magn.*, **31**, 3152, (1995).
- 4) R. Serizawa, T. Yamada, S. Masuda, S. Abe, S. Kohno, F. Kaneko, Y. Takemura, *Proc. IEEE Sens. 2012*, 1878, (2012).
- 5) A. Takebuchi, T. Yamada, Y. Takemura, *J. Mag. Soc. Jpn.*, **41**, 34, (2017).

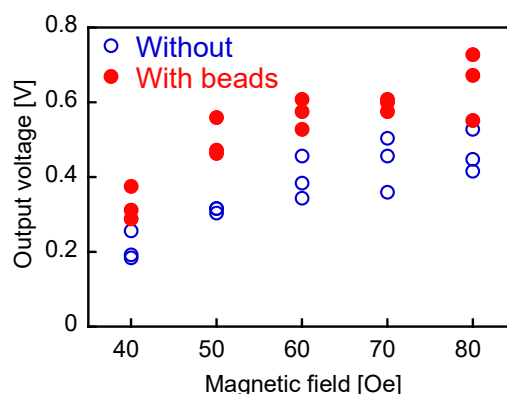


Fig. 1 The output voltage measured by detection coil.

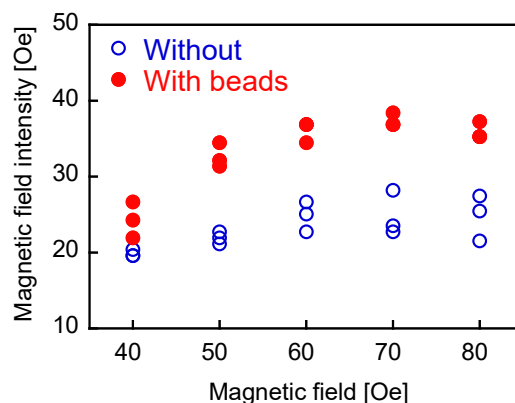


Fig. 2 The magnetic field intensity for magnetization reversal of magnetic wire.

# 磁気ワイヤを用いた鼓動検出等が可能な無電源 0.6 mm 振動センサ

松澤一平、竹渕哲聡、山田努、竹村泰司  
(横浜国立大学)

0.6 mm vibration sensor without power supply using magnetic wire for detection of heart beat

Ipeei Matsuzawa, Akitoshi Takebuchi, Tsutomu Yamada, Yasushi Takemura

(Yokohama National University)

## はじめに

FeCoV 複合磁気ワイヤは熱ひねり加工を施すことにより、外部磁場の変化速度に依存せず大バルクハウゼンジャンプと呼ばれる急峻な磁化反転を起こす。この磁化反転は、検出コイルによりパルス出力として取り出すことができ、発電素子として用いることが可能となる。今回我々は、微小振動を検出可能な無電源センサとしての応用に着目した。本稿では、パルス出力を得るために必要な最小ストローク量を調査することを目的とし、磁石の大きさやワイヤ-磁石間距離の変化に対する最小ストローク量を測定した。

## 実験方法

長さ 11 mm、0.25 mm 径の FeCoV 複合磁気ワイヤに巻数 300 turn の検出コイルを巻きつけた。ワイヤの長手方向に対し、励磁用磁石の着磁方向が垂直になるように配置し、ワイヤに対して平行に励磁用磁石をストロークさせた(Fig. 1)。このとき、出力を得られる最小ストローク量 Stroke [mm]を測定した。同様なことを、ワイヤ-磁石間距離 Distance [mm]と磁石の着磁方向長さを変えて行った。

## 実験結果

上記の実験結果を Fig. 2 に示す。Distance が小さいほど、Stroke が小さくなり、着磁方向に長さを持つ磁石の Stroke が小さくなる結果を得た。ワイヤの出力に必要な磁場強度を  $H_r$  [Oe]としたとき、ワイヤの長手方向に  $-H_r$  と  $H_r$  を交互に印加する必要がある。Distance や磁石の着磁長さによって  $-H_r$  と  $H_r$  の距離が変わるため、Stroke が変化したと考えられる(Fig. 3)。同じ Distance において、Fig. 3 に示すように着磁方向に長い磁石のほうが、 $-H_r$  と  $H_r$  の距離が近くなり、小さい振動を検出することができる。

最後に、1 mm 以下の最小ストローク量に注目して測定を行った結果、 $4 \times 4 \times 12 \text{ mm}^3$  において最小ストローク量 0.6 mm で出力を観測することができた。よって、1 mm 以下の微小振動による無電源センサとしての有用性が示された。

謝辞：FeCoV 磁性線はニッコーシ株式会社様のご好意により、提供いただいたものです。

## 参考文献

- 1) J. R. Wiegand, et al., U.S. Patent 3,820,090, 1974.
- 2) S. Abe, et al., IEEE Trans Magn., 33, 3916, 1997.
- 3) A. Takebuchi, T. Yamada, Y. Takemura, J. Mag.Soc. Jpn., 41, 34, 2017.

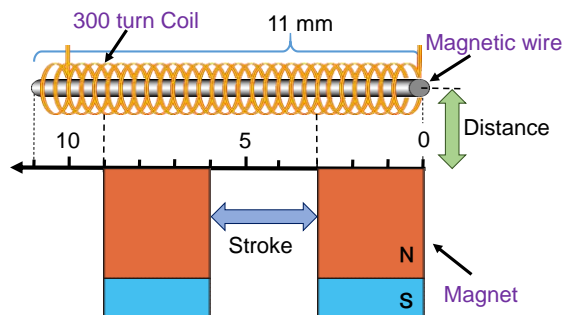


Fig. 1 Configuration of magnetic wire, detection coil and magnet.

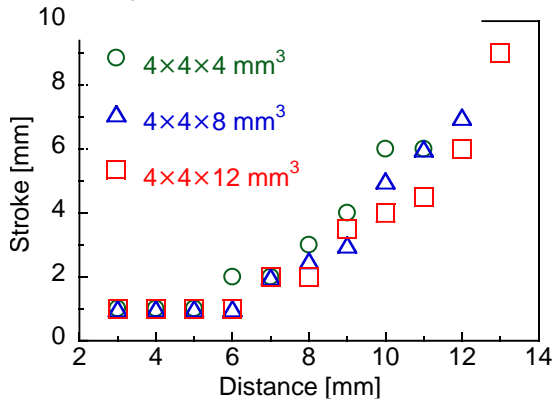


Fig. 2 The length of minimum stroke depending on the distance between magnetic wire and magnet.

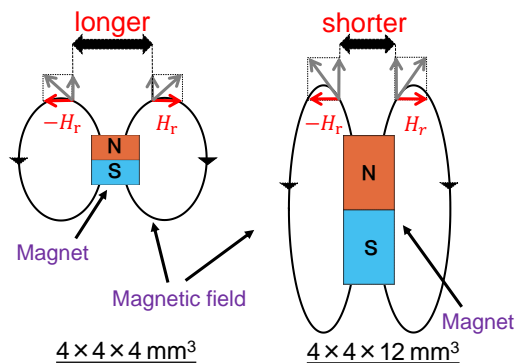


Fig. 3 The Magnetic field about each magnet.

# パルスレーザバースト変調による高周波回路素子の近傍磁界分布測定

松本悠人, 立岡大青, 荒井薫, 栢修一郎, 林禎彰, 石山和志  
(東北大学電気通信研究所)

Measurement of near magnetic field around high frequency circuit element  
using burst modulated pulsed laser

Y. Matsumoto, D. Tatsuoka, K. Arai, S. Hashi, Y. Hayashi, K. Ishiyama  
(RIEC Tohoku University)

## 1. はじめに

高周波近傍磁界計測用プローブとして一般的にループコイルが用いられている[1]が, 金属製のため本来の磁界分布を乱してしまう[2]. そのため本研究では, 金属プローブに比べ磁界を乱しにくい磁気光学結晶のガーネットとパルスレーザを利用し, ストロボ法により交流磁界の位相情報を含んだ低侵襲な高周波近傍磁界計測システム[3]について検討を行っている.

これまでの原理検証実験では被測定磁界側をバースト変調させ高感度な測定を行ってきた[3]が, 測定対象が実際の集積回路等の場合, この方法は適応困難である. そこでパルスレーザ側をバースト変調し, レーザ発振と被測定磁界の相対位相を制御し差分計測する手法を提案し, MSL などの近傍磁界分布測定などをこれまで行ってきた[4].

本報告では, 回路基板上の高周波パワーアンプ近傍の磁界分布をパルスレーザバースト変調方式で測定し, 更なる高感度な測定を目指しノイズの要因等を検討した.

## 2. 実験方法

Fig. 1 にパルスレーザバースト変調方式での装置構成を示す. パルス幅が約 40ps のパルスレーザを 100MHz で発振させ, 光路に 7.7kHz の回転チョッパを挿入してバースト変調させた. 測定対象には Fig. 2 の回路基板を用い, 高周波パワーアンプに 1GHz, 10dBm の RF 信号を入力したときのアンプ近傍から発生する磁界を計測した.

## 3. 実験結果

パワーアンプ近傍 5mm 四方の磁界分布計測結果を Fig. 3 に示す. 素子構造からも妥当な磁界分布計測結果と確認できる. ノイズの要因として, チョッパの回転数のジッタが考えられるが, 最適な変調方法や変調器の検討により, 更なる高感度な測定が期待できる.

謝辞  
本研究に用いたガーネットをご提供いただいた長岡技術科学大学石橋隆幸教授に深く感謝いたします.

本研究は東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究「磁気光学効果を利用した磁界計測システム」の成果の一部である.

## 参考文献

- 1) R. Paul: Introduction to Electromagnetic Compatibility 2<sup>nd</sup> edition, p. 10-11, John Wiley, NewYork (2006).
- 2) M. Takahashi, et al., J. Appl. Phys. 107, 09E711 (2010).
- 3) H. Nasuno, et al., IEEE Trans. Magn., 47, 4011 (2011).
- 4) 松本, 他, 電気学会マグネティックス研究会資料, MAG-16-216, 17 (2016).

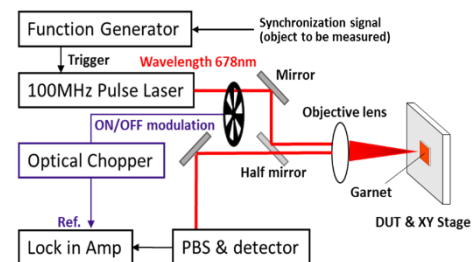


Fig. 1 Configuration diagram of pulsed laser burst modulation



Fig. 2 DUT "RF power amplifier"

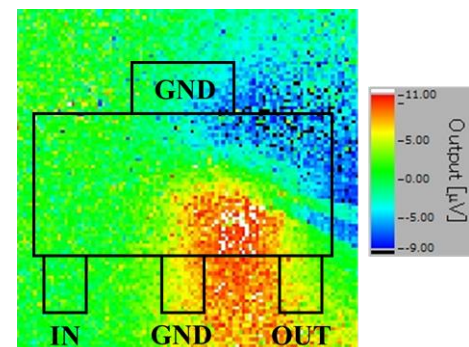


Fig. 3 Measurement result

# 磁性薄膜における磁気ひずみ新規高周波計測法の開発

遠藤 恭<sup>1</sup>, 森 修<sup>2</sup>, 薮上 信<sup>3</sup>, 内海 良一<sup>2</sup>, 島田 寛<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 東北大, <sup>2</sup>(株)東栄科学産業, <sup>3</sup> 東北学院大)

Development of New Measurement Method for Magnetostriction of Magnetic Thin Film

Yasushi Endo<sup>1</sup>, Osamu Mori<sup>2</sup>, Shin Yabukami<sup>3</sup>, Ryoichi Utsumi<sup>2</sup>, Yutaka Shimada<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> Tohoku Univ., <sup>2</sup> Toei Scientific Industrial Co.,Ltd, <sup>3</sup> Tohokugakuin Univ.)

## はじめに

近年, 磁性薄膜の磁化ダイナミクスは磁気物性から磁気デバイス応用まで幅広い分野で注目されている. この磁化ダイナミクスを理解する上で, そのダンピング定数 ( $\alpha$ ) は主要なパラメータのひとつである. 我々の研究グループではこれまでに Ni-Fe 膜や Ni-Fe-M 膜 (M: 添加元素) における  $\alpha$  と磁気ひずみとの相関関係を明確にしてきた<sup>1-3</sup>. これらのパラメータの相関関係をより詳細に把握するためには,  $\alpha$  と磁気ひずみとを同時に計測する必要がある. 本研究では, 磁性薄膜として Ni-Fe を選択し, 高周波伝送線路型プローブを Ni-Fe 膜に近接させ, 応力負荷および無負荷による強磁性共鳴周波数の違いから飽和磁気ひずみを評価できる計測法を開発し,  $\alpha$  との関係を検討した.

## 実験方法

50 nm 厚の Ni<sub>0.78</sub>Fe<sub>0.22</sub>(Ni-Fe)膜は, 0.15 mm 厚のガラス基板上に DC マグネトロンスパッタを用いて作製した. 作製した試料における磁気ひずみの新規高周波計測は次の通りである. 高周波伝送線路型プローブにはインピーダンス整合を考慮した 2 ポートのマイクロストリップ線路 (Microstripe Line: MSL) 型プローブを用いた. 作製した Ni-Fe 膜を湾曲した試料台に配置して引っ張り応力を付与すると, 膜内部の異方性が変化する. この応力負荷された Ni-Fe 膜表面に, MSL プローブを近接配置して, 強磁性共鳴周波数 ( $f_{\text{res}}$ ) を計測する. 応力負荷時と無負荷時での Ni-Fe 膜の  $f_{\text{res}}$  の違いから, その飽和磁気ひずみを求める. なお, 本計測の際には, Ni-Fe 膜の磁化困難軸方向を MSL の幅方向と平行にする.

## 結果および考察

図 1 は応力負荷の有無による 50 nm 厚の Ni-Fe 膜における  $\text{Re}[\Delta s_{21}]$  の周波数特性である. 与えた歪みは厚さの変化が約 0.329 mm 程度であり, 曲率半径は約 0.189 m と算出した. 応力負荷による  $f_{\text{res}}$  の変化は, 外部磁界強度の増加にともない応力の向きに関係なく 123 MHz から 58 MHz となった. これらの変化は, 薄膜容易軸方向へ応力負荷により発生する誘導磁気異方性によるものである. すなわち, 薄膜容易軸方向へ引っ張り応力を与えると  $f_{\text{res}}$  が高周波帯へ移動している. これらの値を用いて飽和磁気ひずみを算出すると, 2.7 ppm であり, 光てこ法により評価した値 (5 ppm)<sup>1</sup> とほぼ同等である. また,  $\alpha$  に関しては, 応力無負荷時には 50 Oe 以上の外部磁界ではほぼ一定となった. その値は 0.0075 である. この値はバルクの結果と一致している. 当日, 他の Ni-Fe 膜の結果について報告する.

## 謝辞

本研究の一部は, 宮城・仙台富県チャレンジ応援基金事業の成果である. 本研究の一部は, 東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター, 東北大学国際集積エレクトロニクス開発センターの支援のものと行われた. また, 本研究の一部は, 科研費基盤研究 (B) (No. 26289082, No. 17H03226), 科研費特別研究員奨励費 (No. 17F17070) の補助のもとで行われた.

## 参考文献

1) Y. Endo et al., J. Appl. Phys., 109, 07D336 (2011)., 2) Y. Endo et al., IEEE Trans. Magn., 47, 3324 (2011)., 3) Y. Endo et al., IEEE Trans. Magn., 48, 3390 (2012).

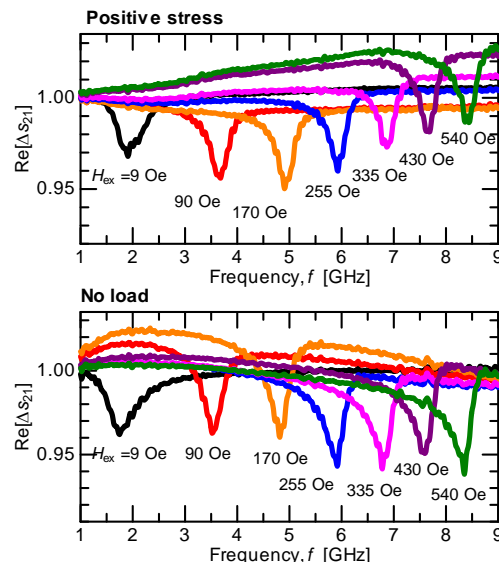


Fig. 1. Frequency dependence of FMR spectrum in 50-nm thick Ni-Fe film with and without stress loading.

# ウェハレベルの磁性薄膜高周波特性評価法の開発

森 修, 遠藤 恭\*, 島田 寛\*, 藪上 信\*\*, 内海 良一  
(東栄科学産業, \*東北大学, \*\*東北学院大学)

Development of magnetic thin film high frequency characteristic evaluation method of wafer

O. Mori, Y. Endo\*, Y. Shimada\*, S. Yabukami\*\*, R. Utsumi

(Toei Scientific Industrial co., ltd, \*Tohoku University, \*\*Tohoku Gakuin University)

1 はじめに インピーダンス整合を考慮したマイクロストリップ型プローブをウェハ上に製膜された磁性膜に近接させて計測する透磁率評価法と同時に、磁性膜に応力負荷による磁気共鳴周波数の変化から磁歪も評価できる高周波特性計測法を開発した。

2 計測方法 500 nm 厚の Co-Zr-Nb 膜の作製には RF スパッタを用いた。ウェハは 0.2 mm 厚の 4 インチ Si 基板を用いた。また、応力負荷した磁歪の新規計測は下記の通りである。高周波伝送線路型プローブにはインピーダンス整合を考慮した 2 ポートのマイクロストリップ線路 (Microstripe Line : MSL) 型プローブ<sup>1)</sup>を用いた。Fig. 1 のように、作製した Co-Zr-Nb 膜を円弧状のアルミ治具に沿わせて固定し、引っ張り応力を付与すると、膜内部の異方性が変化する。この応力負荷された Ni-Fe 膜上部に、MSL プローブを、ポリスチレンフィルムを介して近接配置して、Co-Zr-Nb 膜における強磁性共鳴周波数  $f_r$  の変化を評価する。なお、本計測の際には、Co-Zr-Nb 膜の磁化困難軸方向を MSL の幅方向と平行にする。

3 計測結果 Fig. 2 は応力負荷の有無による 500 nm 厚の Co-Zr-Nb 膜の磁化困難軸方向へ RF 磁界を印加した際の  $S_{21}$  から等価的な抵抗成分である  $(1-S_{21})/S_{21}$  実部を評価した結果である。破線は無負荷時の状態、実線は応力負荷時の状態を示している。応力負荷時のウェハの曲率は 278 mm であった。応力負荷による  $f_r$  の変化は、外部磁界強度の増加にともない 30 MHz から 4 MHz へと低周波数帯域へシフトした。これらの値と(1)式を用いて磁歪  $\lambda_s$  を算出した。

$$(f_{r+}^2 - f_{r0}^2)/f_{r0}^2 = \left( \frac{3\lambda_s h_s E_f}{2rM_s} \right) / (H_{kf} + H_{ex}) \quad (1)$$

ただし、 $f_{r0}$  は無負荷時の強磁性共鳴周波数、 $f_{r+}$  は応力負荷時の強磁性共鳴周波数、 $r$  は曲率半径、 $M_s$  は飽和磁化、 $H_{ex}$  は印加した外部磁界、 $H_{kf}$  は薄膜の内部磁界、 $h_s$  はウェハ厚さ、 $E_f$  は薄膜のヤング率である。Fig. 3 は  $(f_{r+}^2 - f_{r0}^2)/f_{r0}^2$  と  $1/(H_{kf} + H_{ex})$  の関係をプロットしたグラフである。これらのパラメータは線形

関係となっていて、(1)式によるフィッティングが可能である。したがって、フィッティングにより得られた傾きが  $(3\lambda_s h_s E_f / 2rM_s)$  にあたるので、各パラメータを用いて磁歪  $\lambda_s$  を算出したところ、 $-7.2 \times 10^{-7}$  であった。また、短冊形ガラス基板に同条件で作製した Co-Zr-Nb 薄膜に関して光てこ法により磁歪を測定したところ、その値は  $-1.3 \times 10^{-6}$  であった。このように、新規に開発した計測法において得られた結果は、光てこ法と同等の結果となった。当日は、他の膜厚の試料の評価に加えて、磁歪と透磁率の同時測定評価を行った結果についても紹介する。

謝辞 Co-Zr-Nb 膜に関しては、東北大学電気通信研究所の石山和志教授、栢修一郎准教授にご提供いただきました。ここに深謝します。本研究の一部は宮城・仙台富県チャレンジ応援基金事業の成果である。

参考文献 1) S. Yabukami, K. Kusunoki, H. Uetake, H. Yamada, T. Ozawa, R. Utsumi, T. Mori izumi, Y. Shimada, "Permeability Measurements of Thin Film Using a Flexible Microstrip Line-Type Probe Up To 40 GHz", *Journal of the Magnetism Society of Japan*, Vol. 41, No. 2, pp. 25-28 (2017).



Fig. 1 Schematic of measurement system.

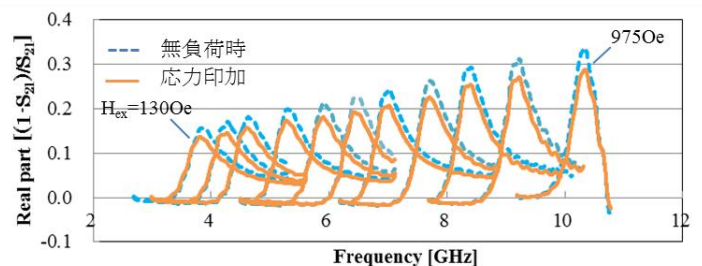


Fig. 2 FMR of CoZrNb film (4inch Wafer, 500nm thick).

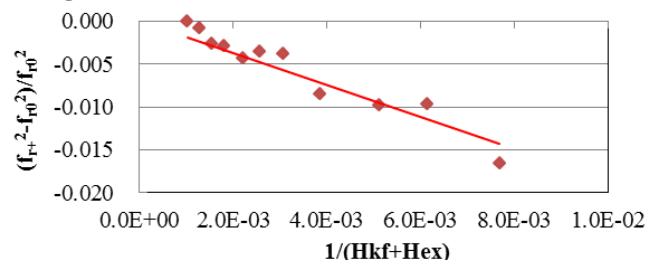


Fig. 3 Magnetic field dependence of resonance frequency.

# フェライト装荷逆L型広帯域UHFアンテナの等価回路

三枝淳平、篠田航平、米原正道、中原和宏、栗巣普揮、山本節夫  
(山口大)

Equivalent circuit of ferrite loaded inverse L type wide band UHF antenna  
J. Mieda, K. Shinoda, M. Yonehara, K. Nakahara, H. Kurisu, and S. Yamamoto  
(Yamaguchi Univ.)

## はじめに

筆者らは既に、スマートフォンに内蔵可能な地上波デジタルTV放送受信アンテナを提案・試作し、470 MHz から610 MHzに至る非常に広い周波数帯域にわたって実用的な性能が得られることを実証した<sup>1)</sup>。本研究ではそのアンテナ(フェライトを装荷した逆L型アンテナ)の等価回路について調査した。

## アンテナの構造

スマートフォンに内蔵するアンテナは、アンテナエレメントに基板 GND も含めた全体で、ダイポールアンテナ的に動作する。Fig.1 に示すように、スマートフォンの基板 GND 面に、2 本のスリットを互いに逆向きに入れることによって、アンテナ給電部から見たときの基板 GND 長を確保している。誘電体基板上にパターンニングしたアンテナエレメントの上に、フェライト棒を置く(これをサンドイッチ型と称している)ことによって、波長短縮効果によって短いアンテナエレメント長で共振するように設計している。フェライトとしては、(周波数 400 - 800 MHz において比透磁率 3 - 3.1, 比誘電率 4.6, 磁氣的損失 0.039 - 0.04, 誘電正接 0.022 のものを想定した。

## アンテナの等価回路

電圧定在波比(VSWR)の周波数特性から、サンドイッチ型アンテナでは550 MHz から720 MHz, まで170 MHz の良好な帯域幅を発現していること、さらに、この広帯域は複共振の発現によってもたらされていることがわかった。このアンテナの動作原理を等価回路の観点から検討した。一般的なダイポールアンテナは、等価回路に置き換えるとRLC直列共振回路で表現される。前述のサンドイッチ型アンテナの2.4 GHzまでのスミスチャートをFig.2に示す。スミスチャートの中心部付近に複共振による滞留がみられる。このアンテナの等価回路は、Fig.3のように、ダイポールアンテナの等価回路に並列インダクタンスが挿入された形となることがわかった。このため、動作としては直列共振の途中で並列共振が起きており、この多モード共振のため複共振の滞留が存在している。提案アンテナの広い帯域幅はこの複共振の活用によって達成された。

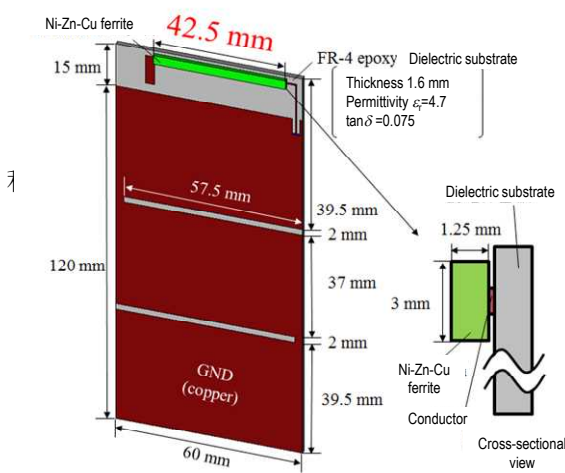


Fig.1 Structure of antenna.

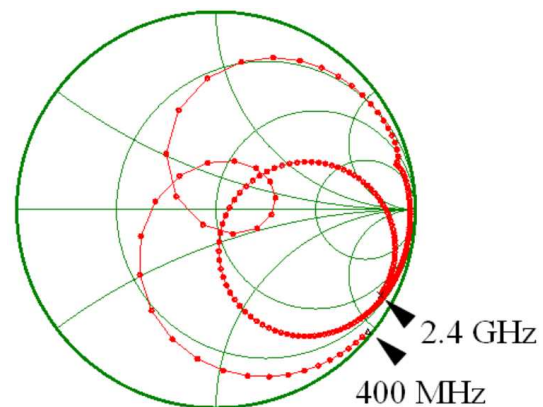


Fig.2 Smith chart of the antenna.

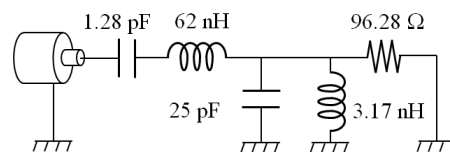


Fig.3 Equivalent circuit of the antenna.

## MSL で測定した短冊試料の複素透磁率の反磁界補正

武田 茂, 山崎真之介\*

(有) Magnontech, \*キーコム (株)

Demagnetization correction of complex permeability of magnetic slab measured by MSL

S. Takeda, and S. Yamasaki\*

(Magnontech, Ltd., \*KEYCOM Corp.)

**はじめに** これまで、我々は短絡伝送線路を用いて複素透磁率を測定する方法を報告してきた 1)。これには大きく分けて、短絡同軸線路と短絡マイクロストリップ線路 (MSL) の二種類がある。前者の試料はトロイダル形状であり、後者の試料は短冊試料である。前者は円周方向の反磁界は無視できるが、後者は試料端の反磁界の影響を強く受ける。この反磁界補正の方法の概要はすでに ICF11 で報告した。今回、測定帯域を拡大し、精度を上げ、より微細構造が議論できるようになったので報告する。

**測定器具** Fig.1 に短絡同軸線路を、Fig.2 に短絡マイクロストリップ線路の概略構造断面図を示す。前者はトロイダル試料( $a=3\text{mm}\phi$ ,  $b=7\text{mm}\phi$ ,  $l_1=0.33\text{mm}$ )が内外導体に緊密に接触した状態で挿入されている。後者は短冊状試料( $l_2=1\text{mm}$ ,  $w=16\text{mm}$ ,  $d=0.33\text{mm}$ )が MSL の短絡部の角の部分に固定される。それぞれの試料は厚み 0.33mm の同じ NSS (Noise Suppression Sheet) から切り出されたものであり、同じ物性値を持っている。これらの器具の S11 から実効透磁率を導き出す方法は既に報告した。ただし、前者の場合は、円周方向の反磁界はゼロであり、かつ結合係数 $\eta=1$  であることから絶対測定が可能である。これより導出された透磁率を真の透磁率 $\mu_t$  と仮定する。ところが、後者の場合は、短冊試料の長辺方向に磁化されるが反磁界が作用し、測定される実効透磁率 $\mu_e$  はこれを含んだものとなる。

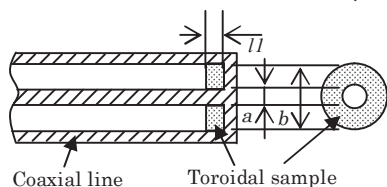


Fig.1 Short circuited coaxial line

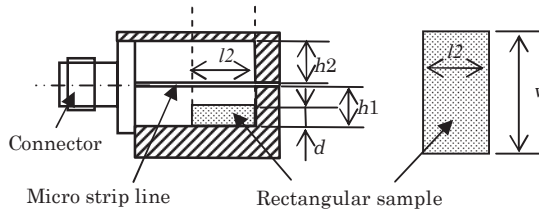


Fig.2 Short circuited micro strip line

**反磁界補正理論** 真の透磁率 $\mu_t$  と反磁界係数  $N$  を含んだ透磁率 $\mu_e$  の関係は、次の式により与えられる 2)。 $\mu_t = (1-N)\mu_e / (1-N\mu_e)$  --- (1) この式は複素透磁率にも成立し、実数部、虚数部に相当する式を導くことができる。 $N$  をパラメータに MSL の結果を計算し、同軸線路の結果に合わせるとするのが主眼である。これにより MSL で測定した場合の反磁界係数  $N$  を逆問題として決定することができる。この  $N$  は、第一近似として材料によらないとすれば、同じ形状の未知の材料の真の複素透磁率を短冊試料の測定結果から推定することができる。これは実用上極めて有効であると考えた。

**実験結果** Fig.3(a) は MSL による測定結果を、(b) は同軸線路による測定結果を示す。(c) は MSL の結果を反磁界係数  $N=0.04$  として補正し、同軸線路の結果と比較したものである。1GHz 以下の両者は極めてよい一致を示した。1GHz 以上で両者に差が見られたが、これは MSL と同軸線路の構造上の違いによるものである。精度が向上し、このような微細構造の差異が見られるようになった。

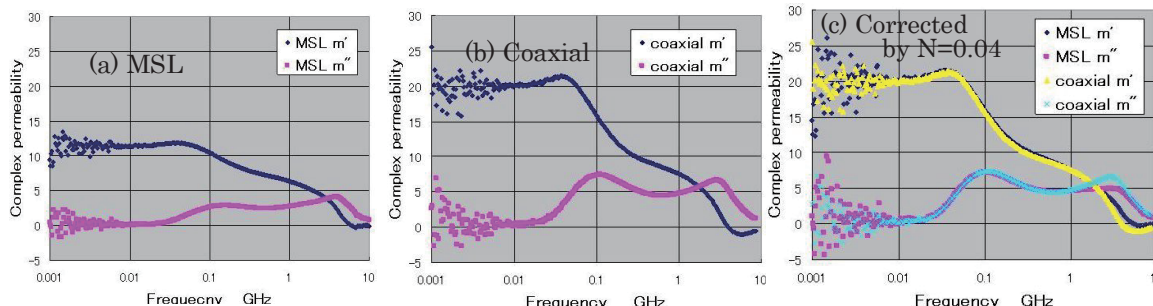


Fig.3 Measurement results ; (a) as measured by MSL, (b) as measured by Coaxial, (c) comparison between the corrected MSL result by  $N=0.04$  and the coaxial result.

**参考文献** 1) S. Takeda, T. Hotch, S. Motomura, and H. Suzuki, *Journal of the Japan Society of Powder & Powder Metallurgy*, vol.61, (2014), No.S1, S303-307,  
2) 大田恵造著「磁気工学の基礎(I)」共立出版、p.41, (1973)

# 負の透磁率材料を用いた円形多層線路における表皮効果抑制の検証

森山 竜太, 鮎澤 祥史, 黒川 勇太, 中山英俊  
(長野工業高等専門学校)

Consideration of Skin Effect Suppression in Cylinder Multi-layer Transmission Line  
with Negative Permeability Material

Ryuta MORIYAMA, Yasufumi AIZAWA, Yuta KUROKAWA and Hidetoshi NAKAYAMA  
(National Institute of Technology, Nagano College)

## はじめに

高周波線路では表皮効果による損失の増大が、低損失化の大きな課題である。同課題を解決する革新的手法として、負の透磁率材料を用いた表皮効果抑制に関する研究<sup>1),2)</sup>が進められ、山口らの先行研究により、その抑制効果が実証された<sup>1)</sup>。同研究では、薄膜積層構造による矩形断面線路の表皮効果抑制の設計指針を示したが、矩形線路は複雑な電磁界メカニズムであるため、最適設計を見出す詳細な検討は有限要素法解析等に頼らざるを得ない。本研究では、負の透磁率材料の適用効果の原理的検証のため、まずは円形断面線路を対象にして理論検証を行っており、以前に2層モデルについて報告した結果を踏まえて、多層モデルに展開して検証した結果を報告する。

## 負の透磁率材料を用いた高周波伝送線路理論

本研究では原理検証のため、最も単純な円形断面構造の線路を対象に、Fig. 1 に示す電磁界モデルで検討した。同心円状の多層線路の電流密度分布は、電磁界理論式の導出により式(1)で求められる<sup>3)</sup>。正の透磁率材料は、導電率 $\sigma_1$ 、透磁率 $\mu_1 > 0$ として、負の透磁率材料は、導電率 $\sigma_2$ 、透磁率 $\mu_2 > 0$ として、それぞれの内部の電流密度  $i_{z1}(r)$  および  $i_{z2}(r)$  は式(1)により算出できる(なお、3層目以降も同様にして求められる)。

$$i_{z1}(r) = \frac{k_1 I_1 J_0(k_1 r)}{2\pi a J_1(k_1 a)}, \quad i_{z2}(r) = \frac{\sigma_2 J_0(k_1 a) k_1 I_1 J_0(k_2 r)}{\sigma_1 J_0(k_2 a) 2\pi a J_1(k_1 a)} \dots (1)$$

ここで、 $k_1$  および  $k_2$  は各材料特性に基づく係数であり、 $J_0$  および  $J_1$  は Bessel 関数を示す<sup>3)</sup>。

## 結果と考察

Fig. 2 に、2層および4層構造の円形断面線路の電流密度分布  $i_z(r)$  の一例を示す。設定条件は、最外層の半径  $r_{max} = 8 \mu\text{m}$ 、周波数  $f = 3 \text{ GHz}$  とし、2つの材料の導電率を Cu と同等( $\sigma_1 = \sigma_2 = 5.81 \times 10^7 \text{ S/m}$ )とし、比透磁率の大きさが1である正/負の透磁率材料( $\mu_{r1} = +1, \mu_{r2} = -1$ )を想定した。2層および4層構造の各半径を調整し、損失が小さくなる条件を検討した結果である。Fig. 2 (b)に示される電流密度の位相  $\angle i_z(r)$  が各層の境界面で変曲し、位相変化を相殺することにより、低損失化が図れた。以前に報告した2層に対して、4層では更に低損失な特性が得られた。

## 謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 17K14674 および総務省 SCOPE 若手ワイヤレス研究者等育成型 165104001 の助成を受けており、ここに感謝申し上げます。

## 参考文献

- 1) Yamaguchi et al.: MWE 2008 Microwave Workshop Digest, 207-210 (2008).
- 2) Moriyama et al.: Digest of the 40th Annual Conf. Magn. Jpn., 40, 82 (2016).
- 3) Mizuno et al.: The Papers of Technical Meeting on Magn., IEE Jpn., MAG-06-82~87, 7-15 (2006).

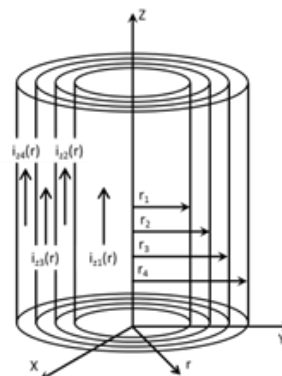
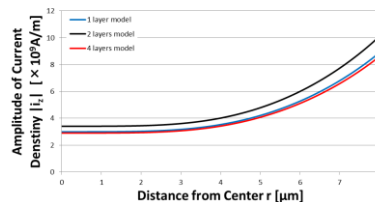
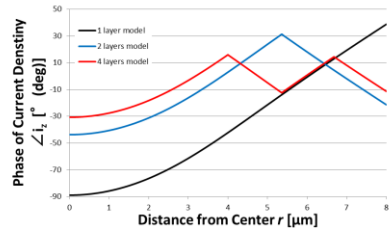


Fig. 1 Structure of cylinder transmission line.



(a) Intensity of current density



(b) Phase of current density

Fig. 2 Current density vs. distance from the center ( $f = 3 \text{ GHz}, r_{max} = 8 \mu\text{m}$ ).



## 交番磁気力顕微鏡を用いた NdFeB 焼結磁石の可逆的な磁壁移動の検出

曹 永澤、趙 越、吉村 哲、榎 智仁\*、西内 武司\*、齊藤 準  
(秋田大、日立金属\*)

Detection of reversible magnetic domain wall movement by alternating magnetic force microscopy for NdFeB sintered magnets

Y. Z. Cao, Y. Zhao, S. Yoshimura, \*T. Maki, \*T. Nishiuchi, H. Saito  
(Akita Univ., \*Hitachi Metals, Ltd.)

**はじめに** 磁性材料の特性向上には、磁気特性や磁気物性と構造との相関の解明に加えて、磁区構造を把握し制御することが重要となる。本研究で用いる交番磁気力顕微鏡(alternating magnetic force microscopy; A-MFM)は、磁区観察に広く用いられている磁気力顕微鏡(MFM)をベースとして開発された、高い空間分解能を有し機能性に優れた手法である<sup>1)</sup>。本報告ではA-MFMの新たな機能として、可逆的な磁壁移動を高感度で検出・画像化する手法を提案する。

**方法** A-MFMは、探針の磁化を交流磁場の印加により周期的に変化させることで、試料から発生する磁場を、探針試料間の交番磁気力を利用して計測する。A-MFMでは超常磁性探針を用いることで、磁場の計測方向を探針に印加する交流磁場の方向に固定した磁場計測を行うことができる。A-MFMでは通常は探針に印加する交流磁場により試料磁化が変化しない範囲で、試料から発生する直流磁場を計測しているが、交流磁場により試料磁化が変化する場合、試料から発生する交流磁場の計測も同時に可能になる。磁場による試料磁化の変化には、試料磁化の磁化回転と磁壁移動があるが、本研究では磁壁移動の検出に着目し、交流磁場による可逆的な磁壁移動の検出を試みた。観察試料として、消磁状態のNdFeB異方性焼結磁石(中程度の配向度)のab面を用いて、試料面に垂直方向に交流磁場を印加して、直上の自作したCo-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系超常磁性探針を励磁し、試料から発生する試料面に垂直方向の直流磁場と交流磁場を大気雰囲気下で同時計測した。

**結果** 図1に、ab面における垂直磁場の、(a)直流磁場像、(b)交流磁場像を示す。圧粉成形時の磁場の印加方向は図の水平方向である。図中の点線は結晶粒界の位置である。試料空間に印加した交流磁場の振幅は800 Oeである。直流磁場像では、結晶粒内で、多磁区構造が明瞭に観察されている。交流磁場像では、直流磁場像の明暗の境界に位置する磁壁の可逆的な移動に伴って発生する交流磁場を観察できる。図では磁壁の場所の違いにより移動幅や交流磁場強度が異なることがわかる。磁壁移動は振幅200 Oe以上で検出された。この値は試料面に垂直方向に直流磁場を印加したときに磁壁が移動を始める磁場と同様であった。従来の磁壁移動の検出には直流磁場を変化させながら磁壁位置を比較することが必要であったのに対して、本手法では、像の比較なしに、磁壁移動を高感度で計測できるので、本手法は、磁壁移動の容易さや、磁壁のピンング箇所等を評価する上で、有用と考えている。講演では、A-MFMで得られる直流磁場像および交流磁場像の計測信号を、可逆的な磁壁移動をモデル化して行ったシミュレーション結果と比較することで、計測理論を検討した結果についても報告する。

**参考文献** 1) H. Saito, まぐね/*Magnetics Jpn.*, 11, 214 (2016).

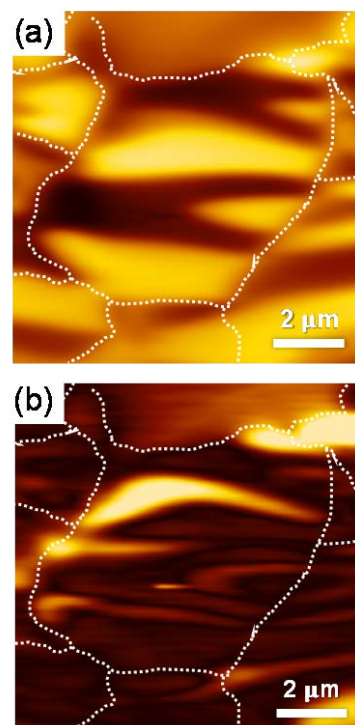


図1 A-MFMによる試料面に垂直方向の、(a)直流磁場像、(b)交流磁場像

# 交番磁気力顕微鏡を用いた強磁場イメージングに向けた 高磁化率・超常磁性 Co-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> グラニューラー合金薄膜の作製

鈴木 雄大, Cao Yongze, 吉村 哲, 齊藤 準  
(秋田大学)

Fabrication of superparamagnetic Co-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> granular films with high susceptibility  
for alternating magnetic force microscopy for high magnetic field imaging  
Y. Suzuki, Y. Z. Cao, S. Yoshimura, H. Saito  
(Akita Univ.)

**はじめに** 我々は、試料表面近傍での磁場計測を実現することで空間分解能を向上させた交番磁気力顕微鏡 (alternating magnetic force microscopy; A-MFM) を開発した<sup>1,2)</sup>。本手法を用いたハード磁性材料の直流磁場計測には、通常は飽和磁化の大きなソフト磁性探針を使用し、探針磁化を交流磁場印加により周期的に変化させて探針試料間に交番磁気力を発生させ、この交番磁気力が誘起する探針振動の周波数変調現象を利用する。しかしながら、永久磁石等の強磁場発生試料の磁区観察では、ソフト磁性探針の磁化が試料からの強い磁場により飽和し、交流磁場を印加しても磁化が変化せず探針振動に周波数変調が生じない問題が発生する。この解決には、磁化が飽和しない、高磁化率の超常磁性薄膜ならびにそれを用いる探針の開発が必要となる。

我々は、これまで超常磁性薄膜として Co-Ag グラニューラー合金薄膜<sup>3)</sup>を Si 探針母材に 100 nm 成膜した超常磁性探針を作製することで永久磁石の A-MFM 観察に成功している<sup>4)</sup>。超常磁性探針の空間分解能向上には、計測感度を維持した上で探針の先鋭化が求められ、高磁化率・超常磁性薄膜の開発による成膜膜厚の低減が必要となる。このため本研究では、FeCo 系グラニューラー合金薄膜の非磁性マトリックス材料の検討を行った。

**方法** 本研究では、FeCo 系グラニューラー合金薄膜の非磁性マトリックス材料として新たに Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用い、本グラニューラー合金薄膜を、強磁性ターゲットとマトリックス材料用の非磁性ターゲットを用いた 2 元同時マグネトロンスパッタリングにより熱酸化膜付き Si 基板上に 100 nm の膜厚で室温成膜した。薄膜の磁化曲線を振動試料型磁力計 (VSM) により測定し、磁化曲線から磁化率  $\chi$  および磁化曲線の線形性 FWHM を評価した。 $\chi$  は  $\pm 100$  Oe の範囲における磁化曲線の平均の傾きとして算出し、FWHM は、磁化曲線の傾きがゼロ磁場付近のそれに対して半分になるときの印加磁場の値として算出した。

**結果** Fig.1 に各種超常磁性薄膜の室温での  $\chi$  と FWHM の関係を示す。薄膜作製では薄膜の強磁性元素含有量をマトリックス材料ターゲットへの印加電力を一定にし、強磁性ターゲットへの印加電力を変えて変化した。いずれのマトリックス材料の場合でも、強磁性元素の含有量が增大すると、 $\chi$  が大きくなり FWHM が減少するトレードオフが見られた。これは、各磁化曲線におけるランジュバン関数のフィッティングの結果から、磁性粒径が増大したことによると考えられ、例えば Co-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の場合、Co 含有量の 20 vol% から 40 vol% への増加に伴い、Co 粒径が平均 9 nm から 20 nm に増大したと見積もられた。40 vol% 以上の Co 含有量の Co-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜では、磁化曲線にヒステリシスが見られ、強磁性と超常磁性との混相になった。 $\chi$  の最大値  $1.7 \times 10^{-5}$  H/m は、超常磁性単相が得られる最大 Co 含有量 (40 vol%) で得られた。この  $\chi$  は、超常磁性薄膜でこれまでに報告されている Co<sub>36</sub>Al<sub>22</sub>O<sub>42</sub> ( $0.26 \times 10^{-5}$  H/m)<sup>5)</sup>と比較して 7 倍程度大きい。

マトリックス材料が Ag, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の場合に、超常磁性単相が得られる最大の Co 含有量は、各々、23, 33, 40 vol% となり、その順番で  $\chi$  も大きくなった。この原因として、Gd が高い酸素親和性を有することによる Co の酸化の抑制、微細組織の変化、が考えられ、後者については講演で詳細を述べる予定である。

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

2) 伊藤, 他 第 35 回日本磁気学会学術講演概要集, 27pD-2. 3) 吉村, 他 第 38 回日本磁気学会学術講演概要集, 4pA-6.

4) 中山, 他 第 38 回日本磁気学会学術講演概要集, 4pA-10. 5) K. Yakushiji et al., *J. Magn. Magn. Mater.*, **212**, 75-81 (2000).

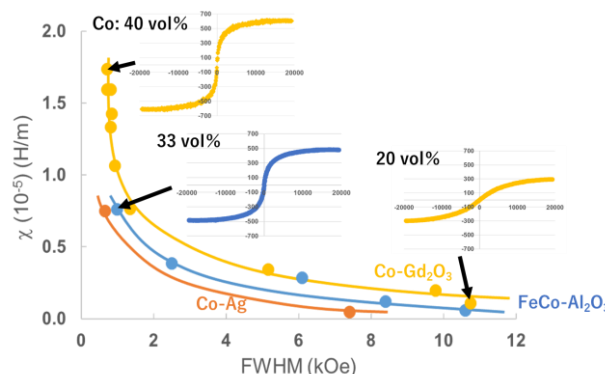


Fig.1 Relationship between susceptibility and linearity of  $M-H$  curves for each superparamagnetic films.

# 交番磁気力顕微鏡用高分解能ソフト磁性探針の開発

## — 高磁歪・Fe系非晶質磁性薄膜の極薄化 —

赤石 悠輔, M. Makarova, K. Srinivasa Rao, 吉村 哲, 齊藤 準

(秋田大学)

Development of high resolution soft magnetic tips for alternating magnetic force microscopy:  
thin Fe-based amorphous films with high magnetostriction

Y. Akaishi, M. Makarova, K. Srinivasa Rao, 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を実現した、交番磁気力顕微鏡 (Alternating Magnetic Force Microscopy; A-MFM)を開発して、垂直磁気記録媒体の磁区観察を行い、高い飽和磁化と低い飽和磁場を有する FeCoSiB 非晶質薄膜(25 nm)を Si 探針母材に成膜したソフト磁性探針を用いることで、5 nm 程度の高い空間分解能を得ている<sup>1)</sup>。FeCoSiB 非晶質合金は飽和磁歪定数  $\lambda_s$  が  $10^{-5}$  オーダーと大きいにも関わらず高い空間分解能が得られているが、そのメカニズムは現在のところ不明である。

本研究では、Fe系非晶質合金探針の空間分解能をさらに向上させることを目的として、FeCoSiB 非晶質合金探針、および FeCoSiB 非晶質合金と同等の磁歪を示し、さらに耐蝕性が優れる FeCoB 非晶質合金探針を、磁性膜厚を減少させて作製し、熱処理ならびに磁場中熱処理を施す。得られた結果を低磁歪の CoZrNb 非晶質合金 ( $\lambda_s$  は  $10^{-7}$  以下) を成膜した探針の場合と比較することで、高分解能化のメカニズムを検討する。

**方法** 先端がピラミッド形状の Si 探針母材にターゲット組成が Fe<sub>56</sub>Co<sub>24</sub>Si<sub>10</sub>B<sub>10</sub>, Co<sub>80</sub>Zr<sub>15</sub>Nb<sub>5</sub> の磁性膜をそれぞれ 6, 8, 15, 25 nm の膜厚でスパッタリング法を用いて成膜し、非晶質ソフト磁性探針を作製した。熱処理は磁場印加機構を持った熱処理装置を使用した。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-SiO<sub>2</sub> 垂直磁気記録媒体 (記録密度 500 kfc) を使い、探針試料間距離 2~3 nm で直流磁場観察を行った。探針に印加する交流磁場の周波数は 89 Hz とし、振幅を 50~200 Oe の範囲で変化させた。

**結果** Fig.1 に一例として熱処理前の磁性膜厚が 8 nm の FeCoSiB 探針に、交流磁場振幅 200 Oe を印加して観察した CoCrPt-SiO<sub>2</sub> 垂直磁気記録媒体の直流磁場像とその空間周波数スペクトルを示す。Fig.2 に熱処理前の FeCoSiB 探針および CoZrNb 探針に対して、直流磁場像の空間周波数スペクトルから評価した磁気記録ビットの信号強度の磁性膜厚依存性を示す。FeCoSiB 探針では、磁性膜厚を 6 nm まで薄くしても信号強度が減衰しないが、低磁歪 CoZrNb 探針では膜厚の低減に伴い、記録ビットの信号強度が大きく減少し、膜厚 8 nm の探針では膜厚 25 nm の探針と比較し、測定感度が 10 分の 1 以下になった。Fig.1 から空間分解能を最小検出波長の半値で評価すると、3 nm 程度であった。本探針で高い信号強度が得られた原因として、交流磁場印加により発生する磁歪による応力が探針先端に集中し、先端部の磁化状態を周期的に変化させていることを考えている。膜厚を減少させて先端を先鋭化させても検出感度が低下しない探針は、空間分解能の向上に有効となる。

講演では、Fe系高磁歪非晶質合金探針の高分解能に及ぼす熱処理効果についても報告し、高分解能化のメカニズムを提案する予定である。

**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).

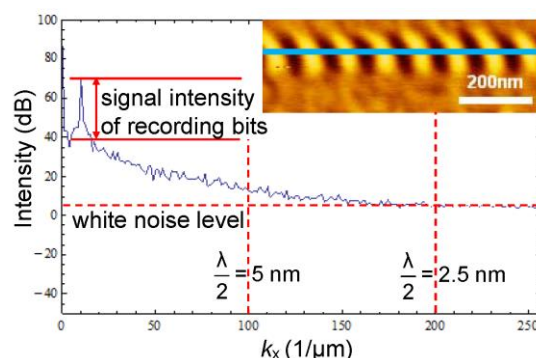


Fig. 1 A-MFM image of CoCrPt-SiO<sub>2</sub> perpendicular magnetic recording medium obtained using the tip coated with 8 nm thick FeCoSiB soft magnetic film (inset). Power spectrum of the line profile.

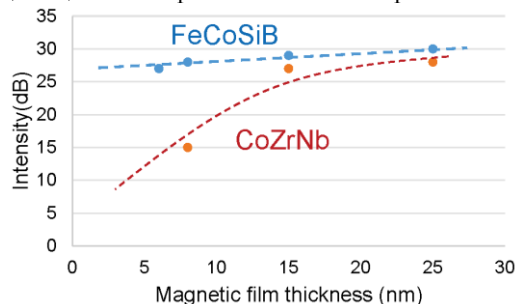


Fig. 2 Dependence of A-MFM signal intensity on the thickness of coating magnetic film for the soft magnetic MFM tips.

# パルス磁場印加・磁気力顕微鏡を用いた 磁気力顕微鏡探針の磁化曲線計測

工藤 開世, K. Srinivasa Rao, 吉村 哲, 齊藤 準

(秋田大学)

Measurement of magnetization curve of MFM tips by pulse magnetic field MFM

K. Kudo, K. Srinivasa Rao, S. Yoshimura, H. Saito

(Akita Univ.)

**はじめに** 磁性材料の特性向上には、巨視的な磁気特性に加えて、微視的な磁気特性の分布を知ることが重要となる。微視的な磁気特性の評価は、種々の磁気イメージング手法を用いて磁場中で磁区観察することにより広く行われている。ここで永久磁石等の保磁力の大きな磁性材料では強磁場が必要になる。本研究では、磁気力顕微鏡(MFM)にパルス磁石を組み込むことで、磁区観察後に任意の場所で局所的な磁化曲線を計測できる装置の開発を目的として、磁性探針と試料との相互作用により得られる MFM 信号の解釈に必要な、MFM 探針の磁化曲線の計測方法を最初に検討した。

**方法** Fig.1 に実験装置の模式図を示す。MFM に観察試料を設置せずに、MFM 内の加振した MFM 探針にパルス磁場を印加した。パルス磁場の印加方向は、試料ホルダーの試料面に垂直方向である。パルス磁場印加に伴う探針振動の位相変化をロックインアンプで検出し、オシロスコープで信号を計測した。実験に用いた MFM 探針は、自作した FePt-MgO 系ハード磁性探針である。本探針はプラズマ酸化した Si 探針母材に FePt-MgO 薄膜をマグネトロンスパッタリング法により成膜後、熱処理して作製した。

**結果** 一例として、磁性膜厚が 30 nm の FePt-MgO 系ハード磁性探針について、Fig.2(a)にパルス磁場  $H_z$  の時間変化を、Fig.2(b)にパルス磁場印加後の振動位相  $\theta$  の時間変化を示す。ここで  $z$  方向はパルス磁場の印加方向とした。磁性探針は、測定前にパルス磁場の印加方向と逆向きに 60 kOe で着磁した。 $\theta$  は探針磁化  $M_z$  と磁場  $H_z$  の勾配と次式の関係がある。

$\theta(t) \propto M_z(t) (\partial^2 H_z(t) / \partial z^2)$  図に見るように、 $\theta$  はパルス磁場印加後に負方向 (斥力方向) に増加した後に、正 (引力方向) に変化する。ここで  $\theta$  がゼロになる磁場は  $M_z$  がゼロになる保磁力に対応している。

Fig.3(a)に  $\theta$  の  $H_z$  に対する変化を示す。 $\theta$  に係わる前式の  $(\partial^2 H_z(t) / \partial z^2)$  は、 $H_z(t)$  と同様にパルス磁石に流れる電流に比例して変化するので、 $(\partial^2 H_z(t) / \partial z^2) \propto H_z(t)$  の関係が成り立ち、 $\theta$  を  $H_z$  で除することにより、 $\theta(t) / H_z(t) \propto M_z(t)$  となり、 $\theta(t) / H_z(t)$  を評価することで、探針磁化  $M_z$  の計測が可能になることがわかる。Fig.3(b)に  $\theta / H_z$  のパルス磁場印加に伴う変化を示す。図に見るように、 $\theta / H_z$  曲線はハード磁性材料に特徴的な磁化曲線の形状を示すことがわかる。一方、探針をパルス磁場と同方向に着磁した探針では、磁化値がほぼ一定となる  $\theta / H_z$  曲線も得られている。MFM 探針の磁化曲線を評価することはこれまででは容易ではなかったが、本手法を用いることにより MFM 探針の磁気特性を、成膜した磁性材料の平坦膜の磁気特性と比較することが可能となる。本手法は MFM 探針を開発する上で有用なツールになると考えられる。

学会では、上記の MFM 探針の磁化曲線測定法の詳細とともに、本手法により磁気特性を評価した MFM 探針を用いて、永久磁石試料の局所的な磁化曲線の計測をパルス磁場印加 MFM により検討した結果についても報告する予定である。

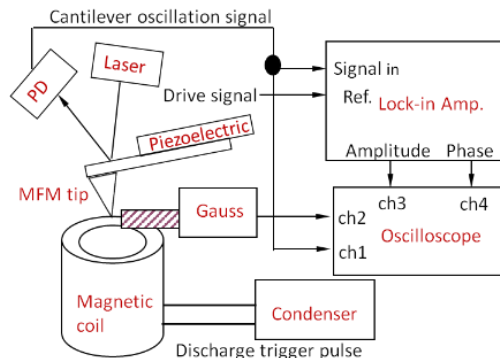


Fig.1 Schematic diagram of pulse magnetic field MFM

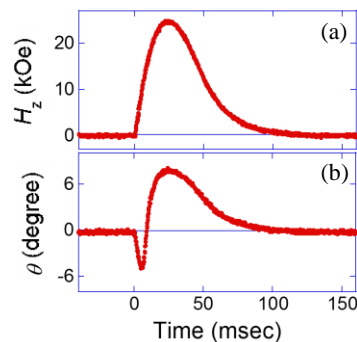


Fig.2 Time dependence of (a) applied pulse magnetic field and (b) MFM phase signal for FePt-MgO hard magnetic MFM tip.

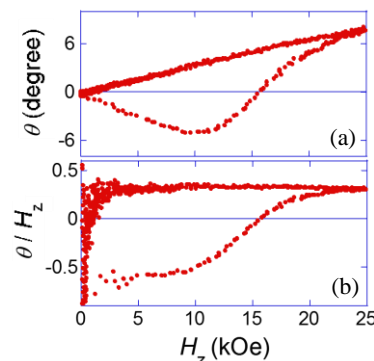


Fig.3 Magnetic field dependence of (a) MFM phase signal  $\theta$  and (b)  $\theta / H_z$  for FePt-MgO hard magnetic MFM tip.

# 脳磁計のセンサ位置精度が信号源推定に与える影響

小山大介, 足立善昭, 上原 弦  
(金沢工業大学 先端電子技術応用研究所)

Influence of Sensor Positioning Accuracy on Signal Source Estimation of Magnetoencephalography

Daisuke Oyama, Yoshiaki Adachi, and Gen Uehara

(Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology)

**はじめに** 近年, 冷媒による冷却が不要な磁気センサの高感度化が進み, 脳磁図等の生体磁気計測への応用に関する研究が進められている. これらのセンサは生体磁気計測に一般的に使われている超伝導磁気センサに比べて感度が劣るが, 信号源に近づけられることが利点として挙げられている. 著者らはこれまでに, 脳磁計ファントムを利用した計測実験により, 室温磁気センサによる脳磁図計測の実現可能性について検証した<sup>1)</sup>. 他方, 脳磁計においては実際の磁気センサの位置が設計した場所とは異なったり, 機械的な位置と実効的な感度点の位置が異なったりする場合がある. センサが信号源に近い場合には, 遠い場合に比べて磁場勾配が大きいので, センサの位置ずれの影響を大きく受ける事が示唆されていた. そこで本研究では, 脳磁計のセンサ位置精度が信号源推定精度に与える影響をシミュレーションによって明らかにした.

**実験方法** 1)で報告した脳磁計用ファントムと室温磁気センサを用いた実験に合わせ, 信号源である等価電流双極子(Equivalent Current Dipole: ECD)とその周辺に円筒面状に配置した54チャンネルのセンサアレイによるシミュレーション実験を行った. Fig. 1にECDとセンサアレイの配置を示す. 本研究では,  $z$ 軸からの距離( $r$ )が76 mmと96 mmの2種類のセンサアレイについて比較する. 前者は室温磁気センサによる脳磁計を, 後者は一般的なSQUIDによる脳磁計を想定したセンサアレイ配置である.

まず, 設定した各センサ位置に対して擬似乱数を用いて最大  $e_p$  の位置ずれを与えて仮想的なセンサ配列を構成し, Sarvas の式<sup>2)</sup>により各センサが検出する磁気信号の大きさを計算する. 次に, 計算した磁気信号の大きさと元のセンサ位置情報を用いて逆問題を解き, 信号源位置を推定する. 得られた信号源位置と最初に設定したECD位置とのずれを信号源推定誤差とする.  $e_p$ の値を0.1~5.0 mmとしてそれぞれに対して擬似乱数の値を変えながら100回繰り返し, 各  $e_p$  値における信号源推定誤差の平均値を導出した.

**実験結果** Fig. 2にシミュレーション結果を示す.  $r=76$  mm, 96 mm 双方の場合において, センサ位置ずれが大きくなるにつれて信号源推定誤差も大きくなる. 特に  $r=76$  mm の場合にはセンサ位置ずれが2 mmを超えると急激に信号源推定誤差も大きくなっていることが分かる. 本結果から, センサを信号源に近い位置に配置する場合には, センサ位置をより高い精度で決める必要があることが分かった.

## 参考文献

- 1) D. Oyama, Y. Adachi, and G. Uehara: *Journal of the Magnetics Society of Japan*, early access 1706R001 (2017)
- 2) J. Sarvas: *Physics in Medicine and Biology*, **32**, 11 (1987)

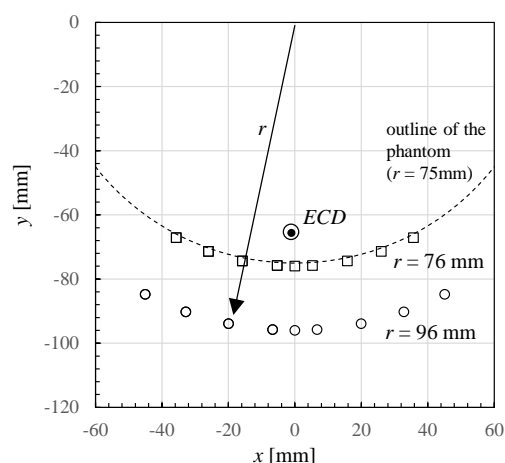


Fig. 1 Positions of the signal source (ECD) and the sensors. The squares and circles indicate the sensor positions with  $r=76$  mm and 96 mm, respectively.

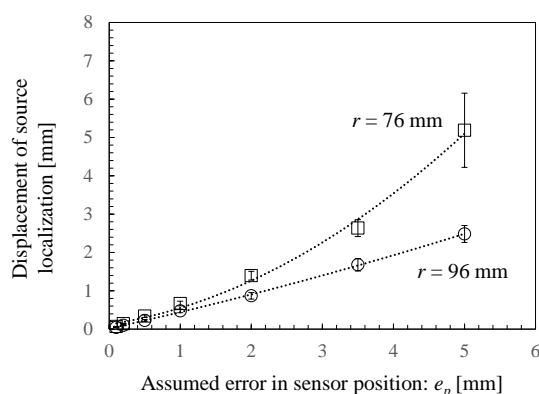


Fig. 2 Displacement of source localization as a function of the error in sensor position

## $10^5$ dyne·cm 対応トルク磁力計による 六方晶 Co バルク単結晶の一軸性トルク曲線の計測

°中村 壮太<sup>a)</sup>, 佐藤 和也<sup>a)</sup>, 金野 志保<sup>a)</sup>, 五月女 容之<sup>a)</sup>, 日向 慎太郎<sup>a)</sup>,  
菊地 敏明<sup>b)</sup>, 玉川 克紀<sup>c)</sup>, 小川 智之<sup>a)</sup>, 斎藤 伸<sup>a)</sup> (<sup>a)</sup>東北大学, <sup>b)</sup>ハヤマ, <sup>c)</sup>玉川製作所)

Uniaxial torque curve of hexagonal Co bulk single crystal  
measured by torque magnetometer capable for  $10^5$  dyne·cm

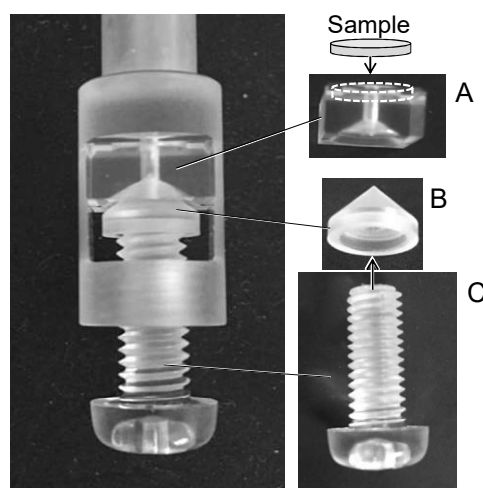
°Sota Nakamura<sup>a)</sup>, Kazuya Sato<sup>a)</sup>, Shiho Kinno<sup>a)</sup>, Yoshiyuki Sotome<sup>a)</sup>, Shintaro Hinata<sup>a)</sup>, Toshiaki Kikuchi<sup>b)</sup>,  
Katsuki Tamakawa<sup>c)</sup>, Tomoyuki Ogawa<sup>a)</sup>, and Shin Saito<sup>a)</sup> (<sup>a)</sup>Tohoku University, <sup>b)</sup>Hayama, <sup>c)</sup>Tamakawa.)

**はじめに** 強磁性体バルク単結晶の結晶磁気異方性の評価は、材料固有の磁気特性を導出するために重要である。磁気異方性の評価は、通常振動試料型磁力計により測定した磁化容易/困難方向に磁化を飽和させるのに要するエネルギー差や、トルク磁力計により測定されるトルク曲線の各高調波成分の飽和振幅によって評価される。特に後者は単磁区状態での測定となり、交換結合エネルギーを考慮する必要がないことから、高精度の測定を行う際に用いられる。しかしながら、高い飽和磁化を有する Co ( $\sim 1420$  emu/cm<sup>3</sup>)<sup>1)</sup> のようなバルク単結晶試料の測定においては、わずかな磁界勾配においても巨大な引き付けが発生し、試料棒の鉛直軸からのずれおよび試料のホルダからの脱離が生じるため、測定が非常に困難となる。本研究では、引き付けによる影響を抑制する機構を設けたバルク試料用のトルク磁力計を用い、試料固定法を工夫して実際に  $10^5$  dyne·cm のトルク振幅を有する六方晶 Co バルク単結晶のトルク曲線を計測したので報告する。

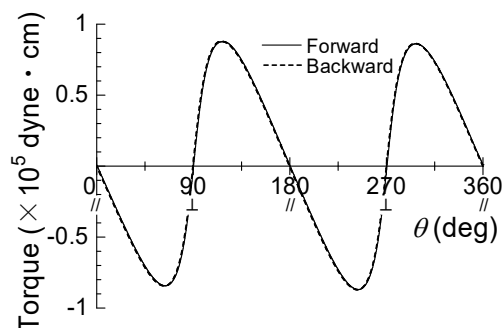
**装置構成** 試料棒の鉛直軸からのずれについては、引き付けを抑制しつつ、磁気トルクには極力影響を与えない機構を採用している。本機構では試料棒に 2 つのベアリングが固定されており、アイリスシャッターがそのベアリングを周囲から押さえつける。試料ホルダからの試料の脱離については、試料固定ホルダの構造を改良することで抑制を行なった。Fig. 1 には改良した試料取付機構を示す。本機構は A) 試料大に円盤状の段付け加工がされた直方体部品 (底から円錐状の穴が空けられている)、B) 円錐状部品、および C) 試料固定用ねじで構成されている。試料は A の窪み上に嵌め込まれ、厚みの半分が A から飛び出した状態となる。これによりひきつけによる水平方向への脱離は抑制される。固定は C のねじを締めることで B が押し上げられ、B により A が押し上げられ、試料がホルダの上面に圧迫されることにより行われる。この際、ねじによる圧力は部品 B と A の円錐部品の噛み合わせによって円錐の接触面へと分散される。そのため A は均等な圧力を試料に伝え、十分な摩擦力を以って試料を圧迫する。

**実験結果** Fig. 2 には実際に本機構を用いて測定したトルク曲線を示す。試料は厚さ 0.5 mm、直径 6 mm の円盤状六方晶 Co 単結晶試料であり、*c* 軸は円盤の面内方向である。測定は外部磁界 20 kOe を試料面内方向に印加し、電磁石を正/逆転させ、光てこ法によってトルク振幅を評価した。図から、雑音の少ない振幅約  $10^5$  dyne·cm の正弦波的な  $2\theta$ トルク曲線が得られていることがわかる。これはトルク磁力計によってほぼ飽和した六方晶 Co の一軸結晶磁気異方性に起因するトルク曲線を測定できたことを示唆している。また、試料の一軸結晶磁気異方性をトルク  $2\theta$  成分の飽和振幅から導出したところ、 $5.7 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> となり、文献値  $6.0$  erg/cm<sup>3</sup><sup>2)</sup> とほぼ同様の値をとった。講演では試料棒の鉛直軸からのずれを抑制するアイリスシャッター機構についてもより詳細に紹介する。

**参考文献** 1) A. J. P. Meyer and P. Taglang, C. R. Hebd. *Seances Acad. Sci.* **231**, 612 (1950). 2) R. Pauthenet, Y. Barnier, and G. Rimet, *J. Phys. Soc. Jpn.* **17**, 309 (1962).



**Fig. 1** Sample holder for the torque magnetometer. A) Rectangular component with cone- and disk-shaped hole, B) conical component, C) screw.



**Fig. 2** Magnetic torque curves with  $H = 20$  kOe for Co bulk sample.