

共蒸着 Co-MgF₂ 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-MgF₂ 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¹⁾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²⁾。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MgF₂を用いたCo-MgF₂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MgF₂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MgF₂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:MgF₂=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°Cとした。また、これらの試料は成膜後に真空中で500°C×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:MgF₂堆積レート比1:2、基板温度350°C、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MgF₂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-MgF₂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、強磁性的であった。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).

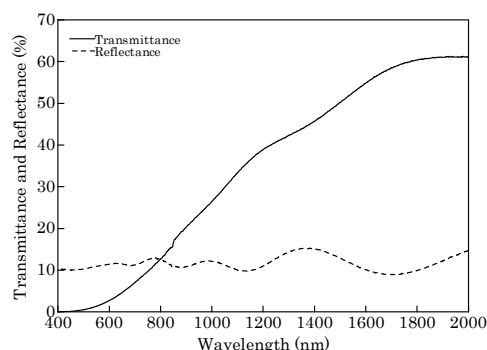


Fig.1 Optical spectrum of the Co-MgF₂ granular film.

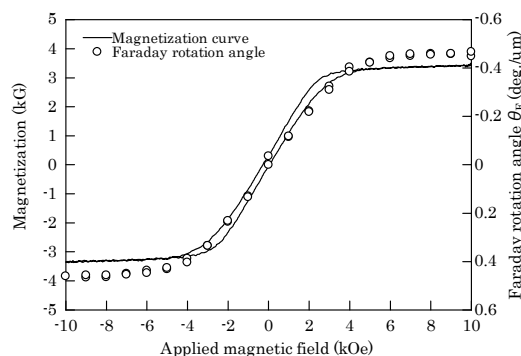


Fig.2 Magnetization curve and faraday-loop of the Co-MgF₂ granular film.

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¹、小林伸聖¹、藪上信²、荒井賢一¹

(電磁材料研究所¹、東北学院大学²)

High frequency TMD effect in FeCo-MgF nanogranular films

K. Ikeda¹, N. Kobayashi¹, S. Yabukami², K. I. Arai¹

(Research Institute for Electromagnetic Materials¹, Tohoku Gakuin University²)

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¹⁾。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 MgF₂ 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).

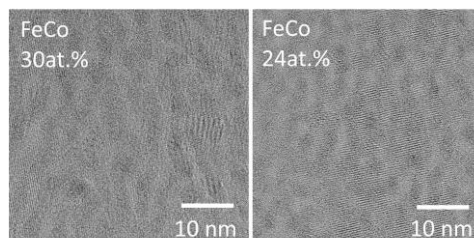


Fig.1 TEM images of FeCo-MgF films.

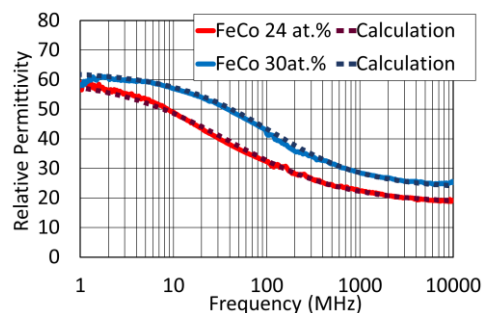


Fig.2 Frequency dependence of relative permittivity.

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 AlF₃ 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、MgF₂ 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 Fe₉Co₅Al₁₉F₆₇ 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 AlF₃ 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 AlF₃ に起因している。

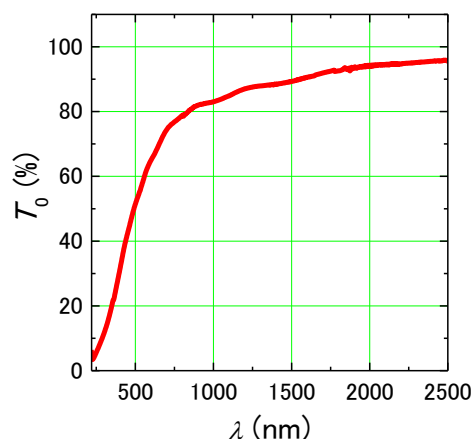


Fig.1 Optical transmittance of Fe₉Co₅Al₁₉F₆₇ film.

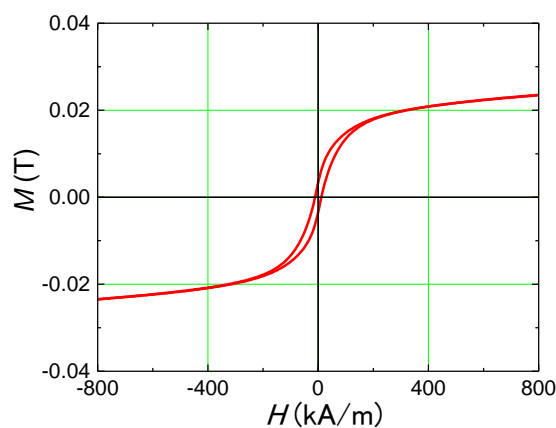


Fig.2 Magnetic curve of Fe₉Co₅Al₁₉F₆₇ film.

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^{2,3)}。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/Ir₂₂Mn₇₈ t/Co₉₀Fe₁₀ 2 (A)/Fe 1/O₂ x kL/Co₉₀Fe₁₀ 2 (B)/Cu 3/Co₉₀Fe₁₀ 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).

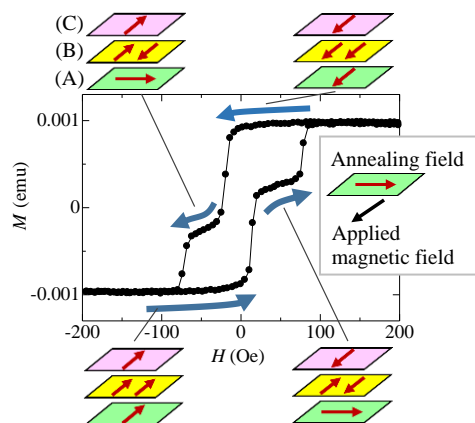


Fig.1 MH curve and the schematic image of magnetization of (A) ~ (C) layers in 90 deg

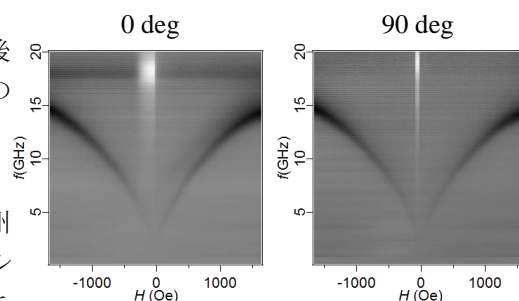


Fig.2 FMR spectral mapping

スパッタ法により成膜した CoFe₂O₄ 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 CoFe₂O₄ 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。CoFe₂O₄(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 O₂ 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^φ)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 6.0×10⁻⁷ Torr 以下に排気後、Ar および O₂ 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/cm² 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 CoFe₂O₄ 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 CoFe₂O₄ 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 CoFe₂O₄ 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/cm³ 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²⁾。

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.

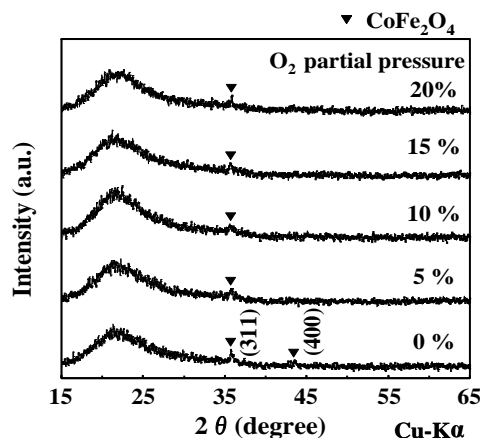


Figure 1 XRD patterns of the CFO films deposited at various O₂ partial pressures, then post annealed at 800°C for 2 hours in air.

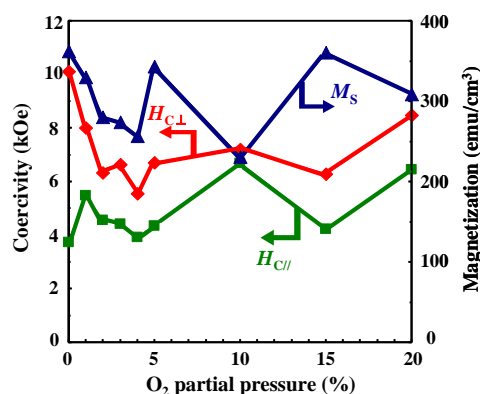


Figure 2 Magnetic properties of the CFO films deposited at various O₂ partial pressures, then post annealed at 800°C for 2 hours in air.

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¹, 井上 順一郎¹, 介川 裕章², Sonia Sharmin¹, 柳原 英人¹

(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. Onoda¹, J. Inoue¹, H. Sukegawa², S. Sharmin¹, and H. Yanagihara¹

(Univ. of Tsukuba¹, NIMS²)

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 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, MgAl_2O_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]. どちらの基板の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 Mg_2SnO_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°C , 酸素流量 8 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 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.

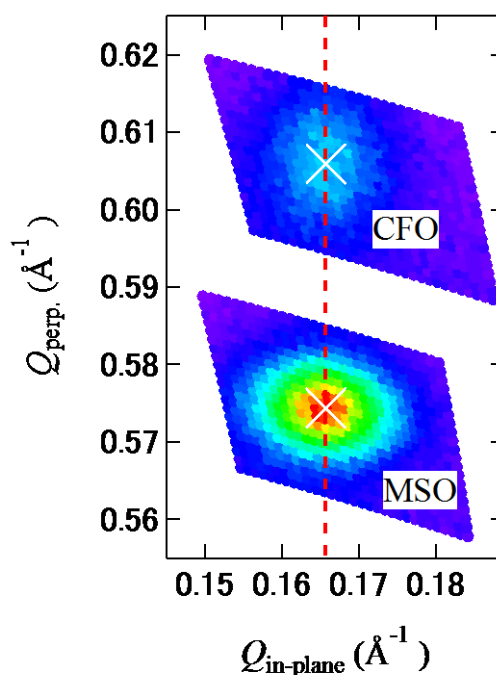


Fig. 1 RSM of CFO and MSO (115) on MgO substrates. (CFO thickness: 5 nm)