

## 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°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:MgF<sub>2</sub>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).

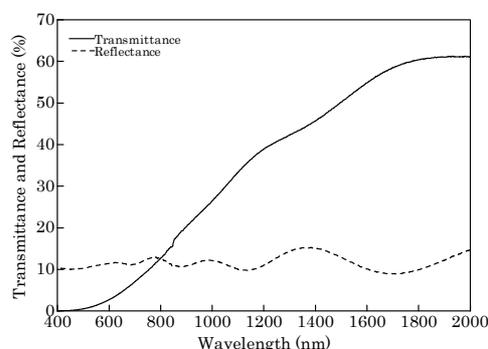


Fig.1 Optical spectrum of the Co-MgF<sub>2</sub> granular film.

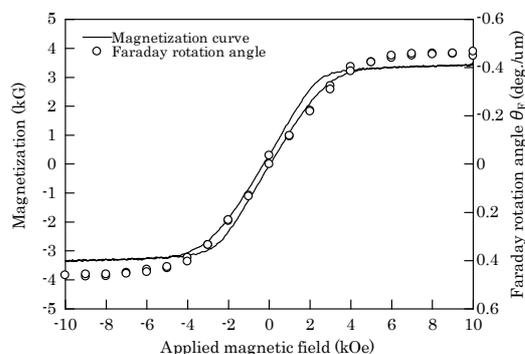


Fig.2 Magnetization curve and faraday-loop of the Co-MgF<sub>2</sub> granular film.

# 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<sub>2</sub> 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).

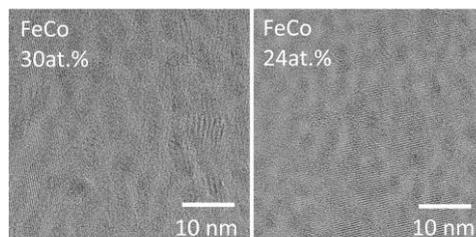


Fig.1 TEM images of FeCo-MgF films.

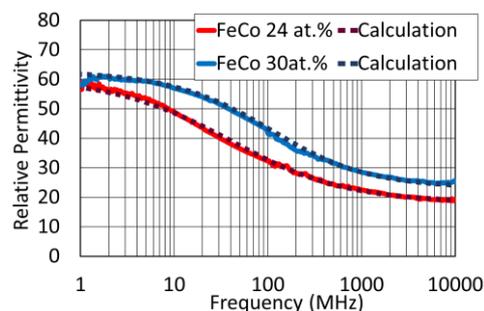


Fig.2 Frequency dependence of relative permittivity.

## 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。

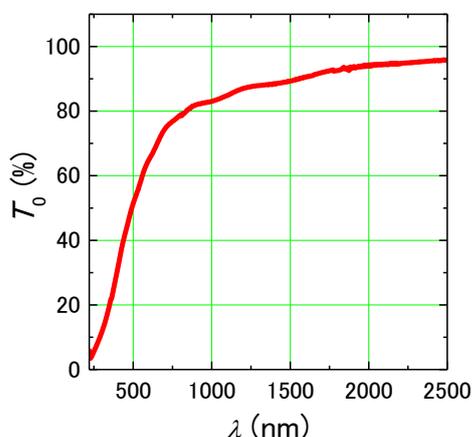


Fig.1 Optical transmittance of Fe<sub>9</sub>Co<sub>5</sub>Al<sub>19</sub>F<sub>67</sub> film.

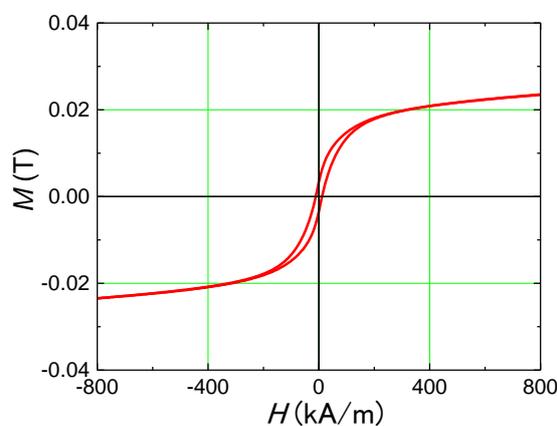


Fig.2 Magnetic curve of Fe<sub>9</sub>Co<sub>5</sub>Al<sub>19</sub>F<sub>67</sub> film.

# 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).

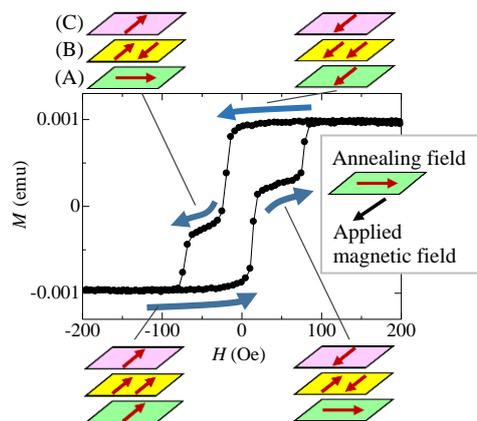


Fig.1 MH curve and the schematic image of magnetization of (A) ~ (C) layers in 90 deg

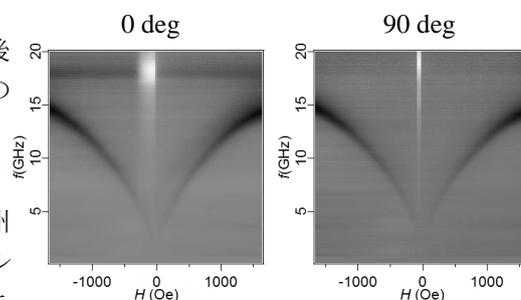


Fig.2 FMR spectral mapping

# 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.

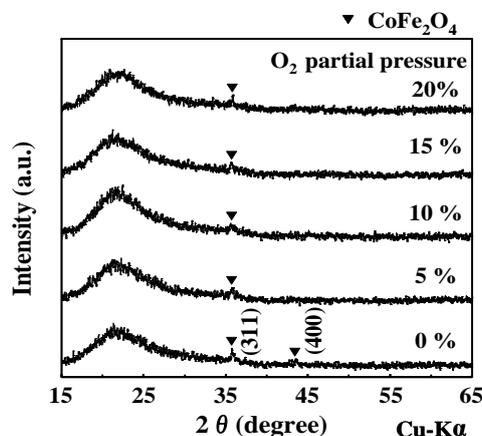


Figure 1 XRD patterns of the CFO films deposited at various O<sub>2</sub> partial pressures, then post annealed at 800°C for 2 hours in air.

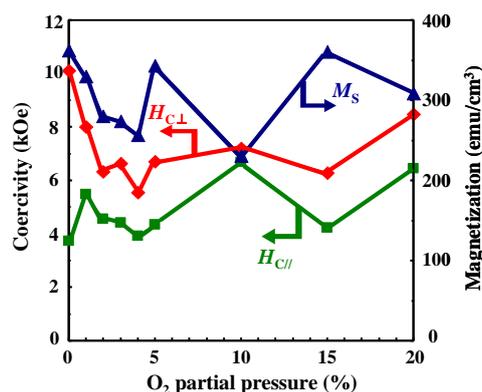


Figure 2 Magnetic properties of the CFO films deposited at various O<sub>2</sub> partial pressures, then post annealed at 800°C for 2 hours in air.

## 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.

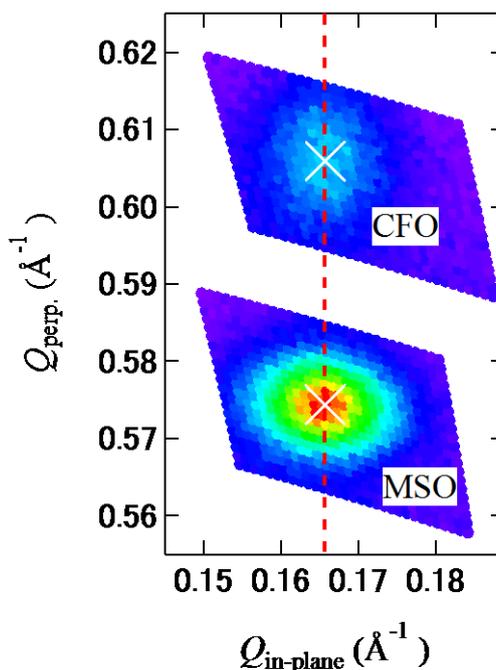


Fig. 1 RSM of CFO and MSO (115) on MgO substrates. (CFO thickness: 5 nm)

# 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、 $K_u = 6.1 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 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.

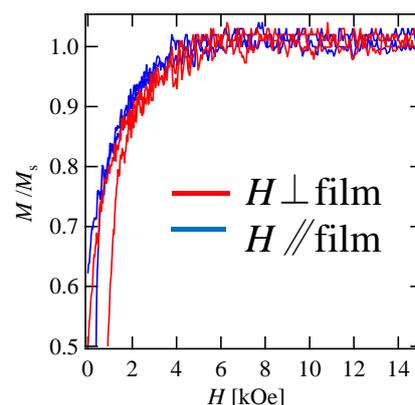


Fig. 1  $M$ - $H$  curves of CoNi on Ru deposited at RT.  $M_s = 910 \text{ emu/cm}^3$ .

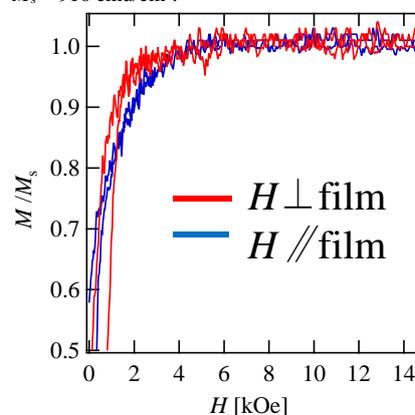


Fig. 2  $M$ - $H$  curves of CoNi on Ru deposited at  $150^\circ C$ .  $M_s = 970 \text{ emu/cm}^3$ .

## 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)

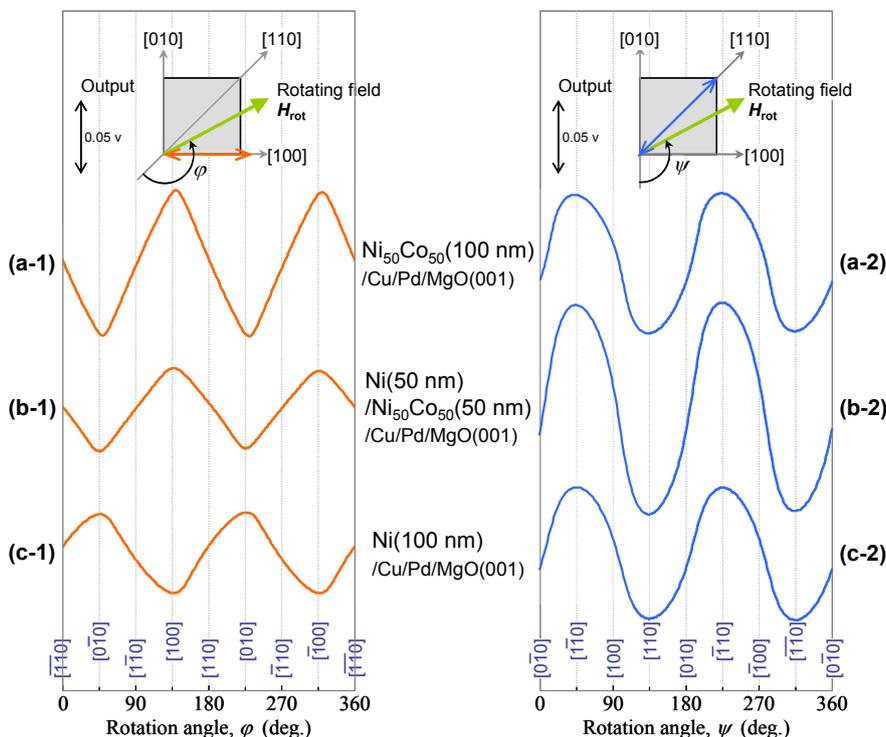
### Magnetostriction Behaviors of Single- and Poly-Crystalline Ni/Ni-Co Bi-Layer Films

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 λ<sub>100</sub><sup>3)</sup>を持つ Ni<sub>50</sub>Co<sub>50</sub> 合金と負の λ<sub>100</sub><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 λ<sub>100</sub>, Ni 単層膜に対して負の λ<sub>100</sub> 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 λ<sub>100</sub> 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 λ<sub>111</sub> 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>

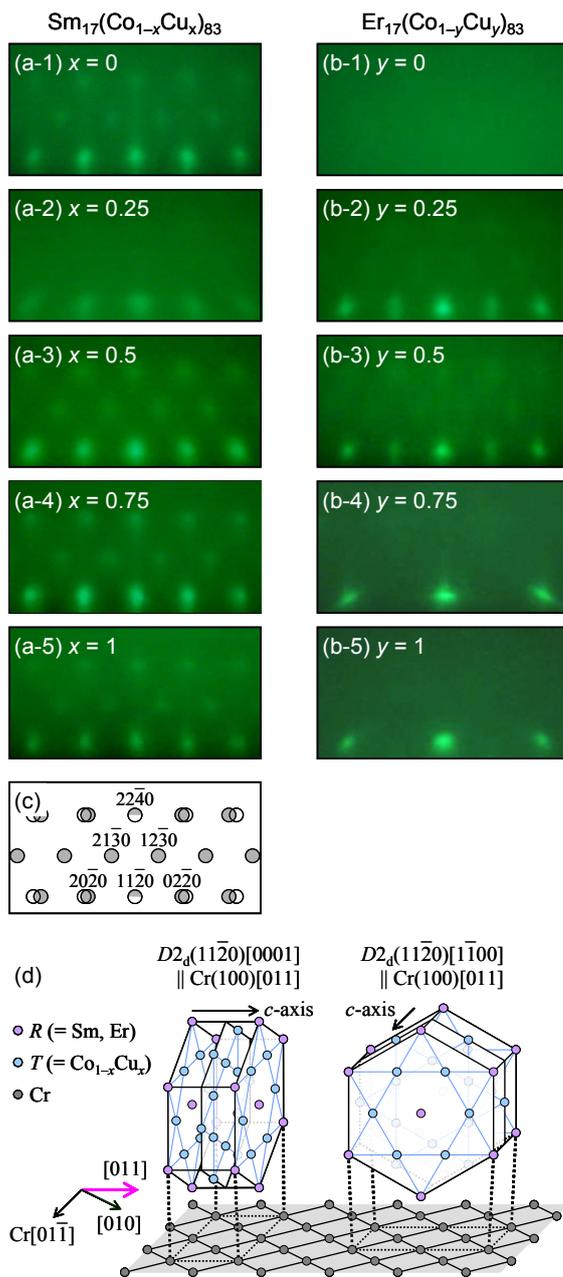
(<sup>2</sup>Kogakuin Univ., <sup>1</sup>Chuo Univ., <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**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.

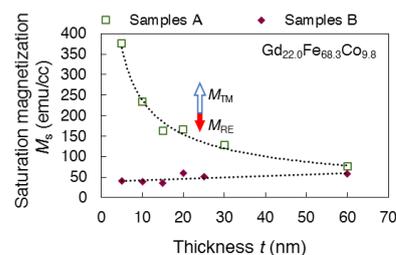


Fig.1 Thickness dependency of  $M_s$  in samples A and B measured by VSM.

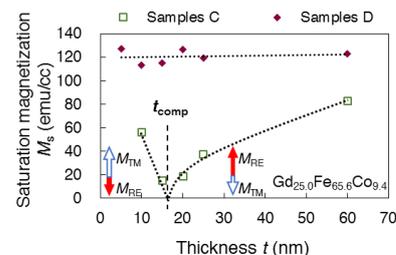


Fig.2 Thickness dependency of  $M_s$  in samples C and D measured by VSM.

# 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ε<sub>r</sub>: 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).

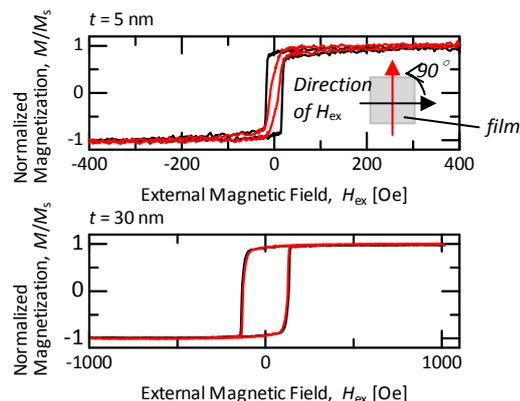


Fig. 1.  $M$ - $H$  curves of Fe-Ga films.

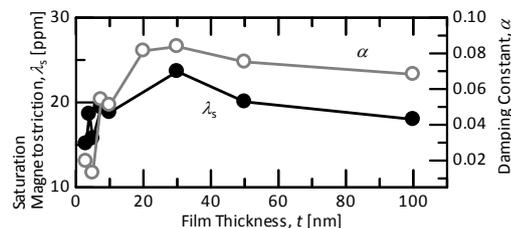


Fig. 2. Thickness dependence of  $\lambda_s$  and  $\alpha$  for Fe-Ga films.

## 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)

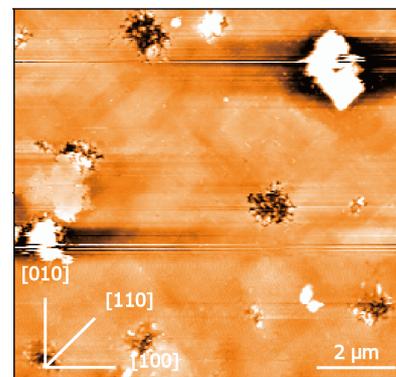


Fig. 1 Surface morphology of FeNi deposited at 300 °C

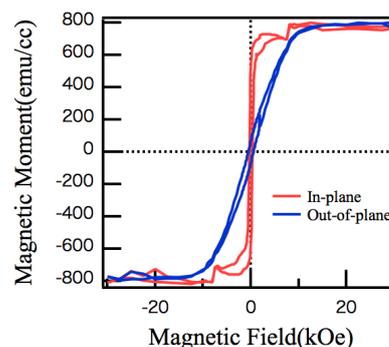


Fig. 2 Magnetization curves of FeNi deposited at 300 °C

# 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.

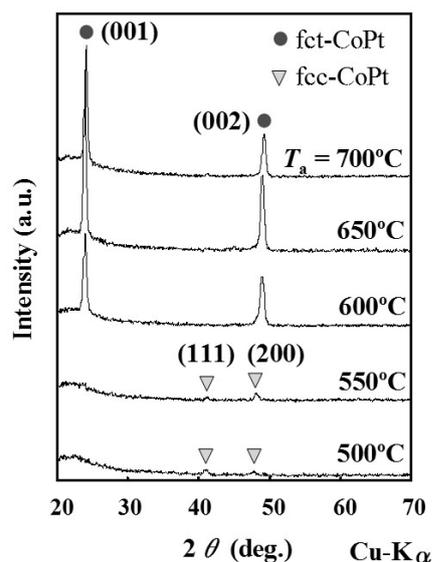


Fig. 1 XRD patterns of the PdSb-CoPt thin films, then post annealed at various temperatures for 5min. by RTA method.

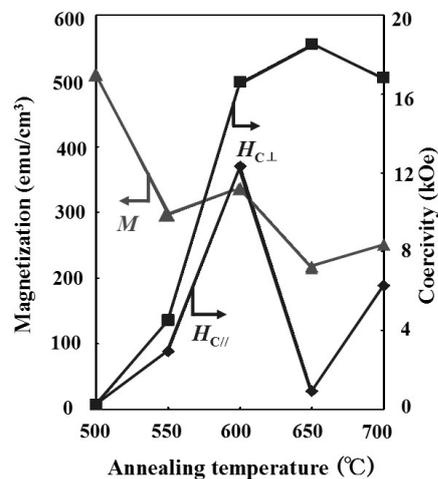


Fig.2 Dependence of magnetization and coercivity on annealing temperature for the PdSb-CoPt thin films annealed by RTA method.

# 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.)

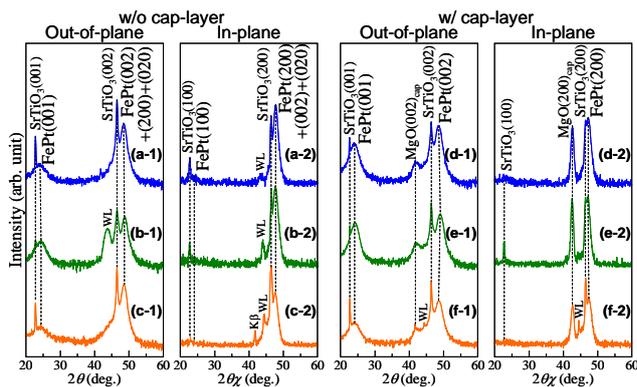
**はじめに**  $L1_0$ -FePt 規則合金は  $6.6 \times 10^7$  erg/cm<sup>3</sup> の高い  $K_u$  を持つため、高密度磁気記録媒体や MRAM への応用が検討されているが、デバイスへの応用には磁化容易軸である  $c$  軸の配向制御、規則度の向上、膜の平坦性が必要となる。これまで我々は表面エネルギーの大きな下地層上に FePt 膜を形成することで膜の表面平坦性の向上を実現したが<sup>1)</sup>、 $c$  軸の配向制御および規則度に関して問題点が残った。キャップ層を導入することで、面内方向に対する引張応力が強まり、配向制御が可能であるため<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。

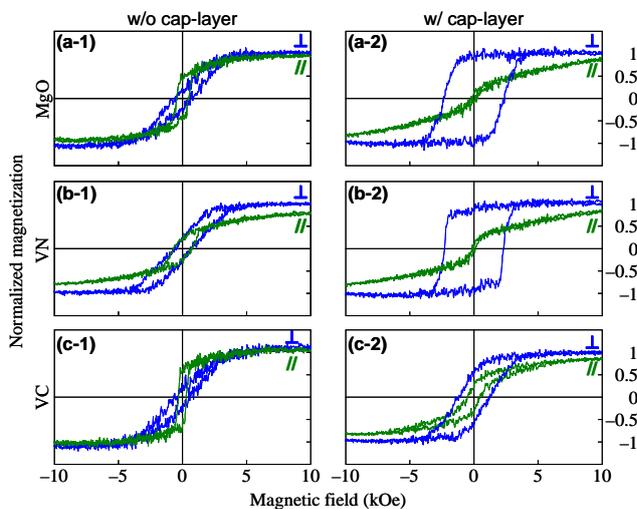
**実験結果** Fig. 1 に MgO, VN, VC 下地層上に形成した FePt 膜の面外および面内 XRD パターンを示す。キャップ層が無い場合、いずれの膜に対しても面外と面内 XRD パターンにおいて基本反射に加えて超格子反射が観察されるため、 $c$  軸が膜面内に向いた  $L1_0(100)$  および  $L1_0(010)$  バリエントが混在していることが分かる。一方、キャップ層を設けた場合、いずれの下地層を用いても面内の超格子反射が確認されず  $c$  軸が膜面直に向いた  $L1_0(001)$  バリエントのみになるように配向が制御されていることが分かる。XRD 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。

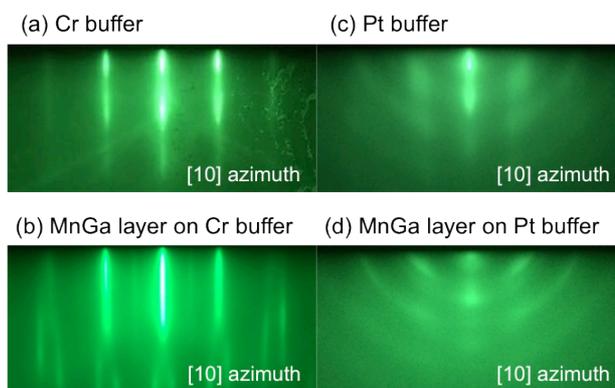


Fig.1 RHEED patterns of  $Mn-Ga$  thin films.

## 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

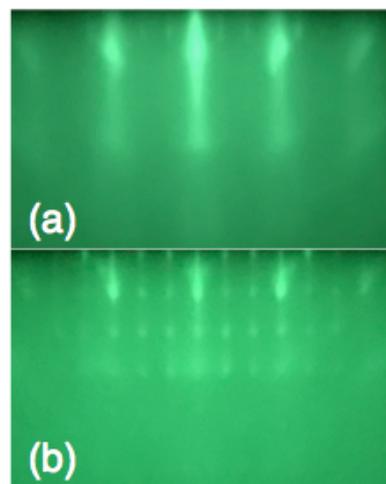
MnGa 合金薄膜はチューナブルな飽和磁化(200 ~ 600 emu/cm<sup>3</sup>)、高結晶磁気異方性(~ 10<sup>7</sup>erg/cm<sup>3</sup>)<sup>1)</sup>、高スピン分極率(~ 88%)<sup>2)</sup>を示し、貴金属や希土類元素を含まない新規永久磁石材料やスピントロニクスデバイスの次世代材料として魅力的な特性を持っている。MnGa 合金薄膜は現在盛んに研究が行われているが、蒸着法を用いた MnGa 合金薄膜の報告はわずかしかない。本研究では、超高真空蒸着法を用いて Fe バッファ層の膜厚変化に伴う Mn<sub>x</sub>Ga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

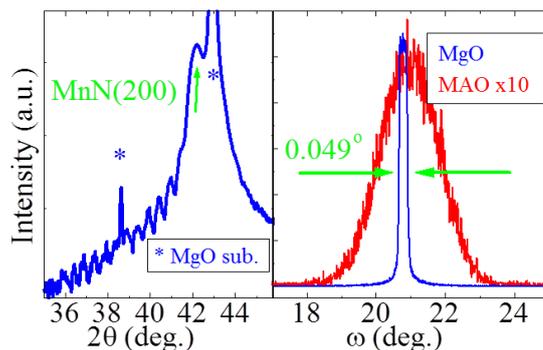


Fig.1. Out-of-plane XRD pattern of MnN deposited on MgO sub. (blue line) and MAO sub. (red line)

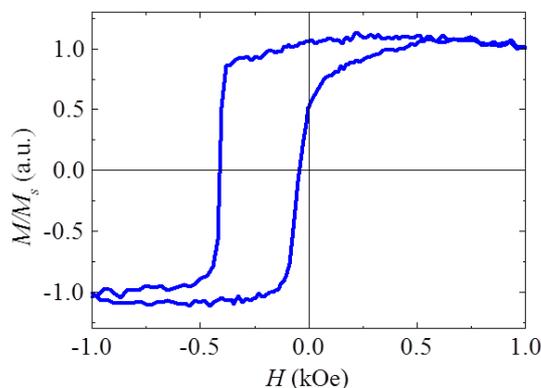


Fig.2. M-H loops of MgO sub./MnN/Co<sub>3</sub>Fe bilayer, measured at 300 K after annealing at 400 °C in the field of 10 kOe.

# 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), 熊谷洸平 (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)

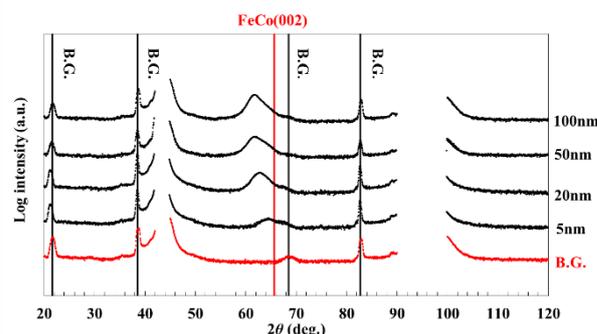


Fig.1 Out of plane XRD spectra of MgO/FeCoVC/SiO<sub>2</sub> films as a function of film thickness.

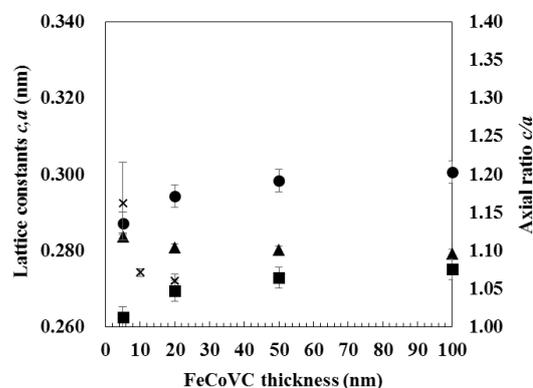


Fig.2 Film thickness dependences of lattice constants  $c$  (●),  $a$  (▲) and axial ratios  $c/a$  (MgO/Rh/FeCoVC/SiO<sub>2</sub> ■, MgO/FeCoVC/SiO<sub>2</sub> ×).

# 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).

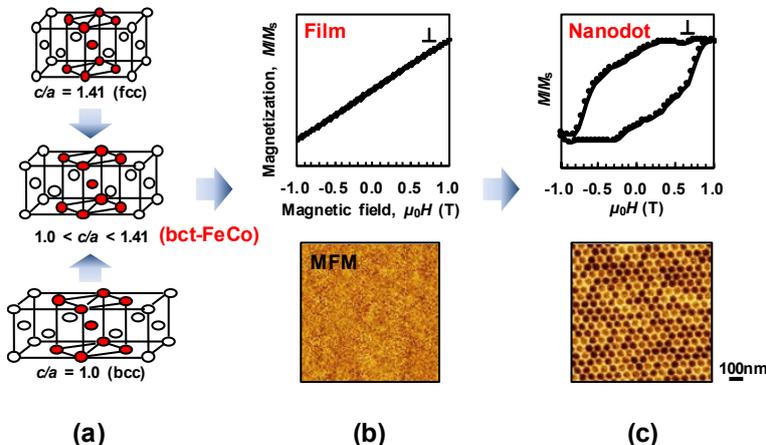


Fig. 1. (a) Schematic image of bct structure. Magnetic properties of (b) bct Fe<sub>45</sub>Co<sub>45</sub>Al<sub>10</sub> film ( $t = 20$  nm) and (c) nanodots with  $D = 50$  nm. (Samples were demagnetized before MFM measurements.)

# 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)

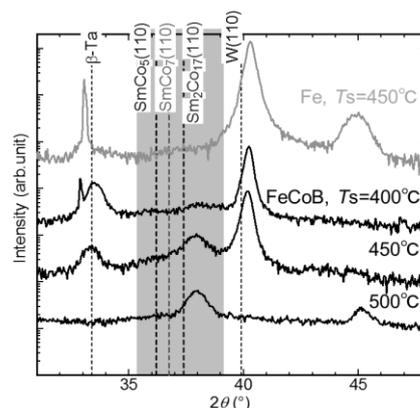


Fig.1 XRD pattern of [FeCoB, Fe/SmCo<sub>5</sub>]<sub>3</sub> multilayers

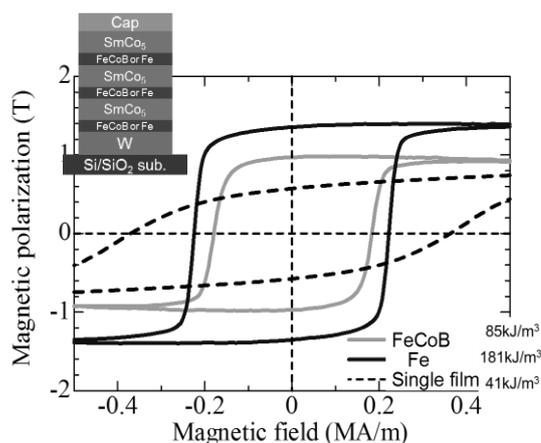


Fig.2 J-H loop of [FeCoB, Fe/SmCo<sub>5</sub>]<sub>3</sub> multilayers prepared at  $T_s = 450^\circ\text{C}$

# 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.

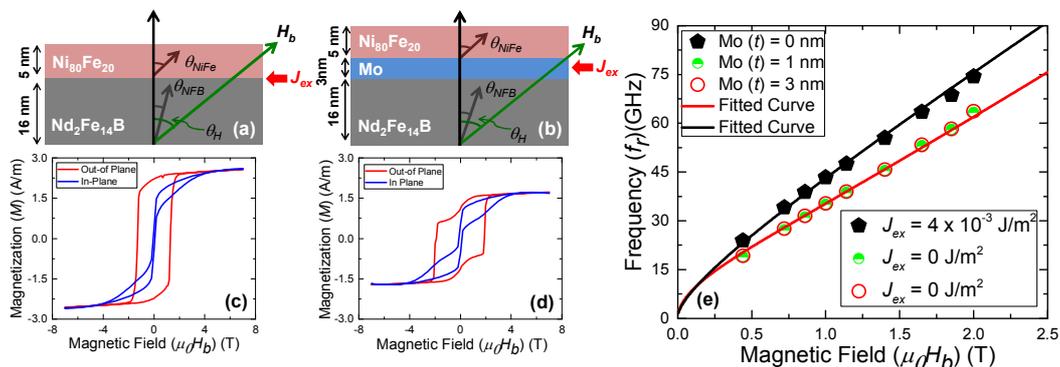


Figure 1: Schematic diagram of Nd-Fe-B/Ni-Fe bilayer coupled system and their corresponding magnetization curve Mo ( $t = 0$  nm) (a), (c) and Mo ( $t = 3$  nm) (b), (d). (e) Calculated and observed  $f_r$  as a function of  $\mu_0 H_b$  for Mo ( $t = 0, 1$  and  $3$  nm).

## 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ない。

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

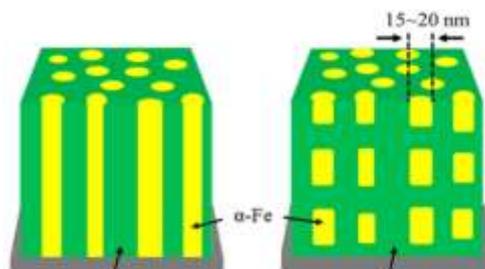


Fig.1 Schematic diagram of the cross-sectional microstructure.

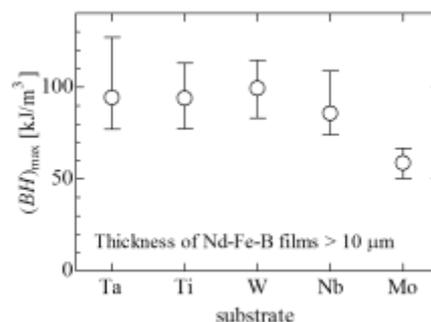


Fig.2  $(BH)_{\max}$  values of each film deposited on various metal substrates.

## 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 程度のチャンパー内で回転する 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).

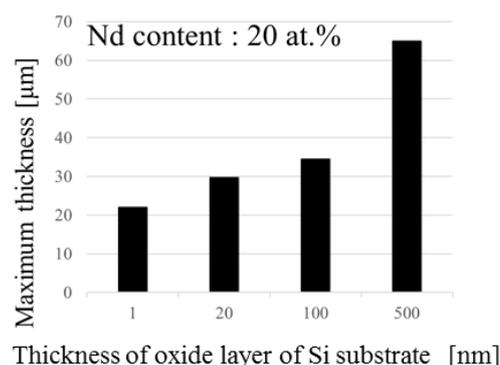


Fig.1 Relationship between each thickness of oxide films and maximum thickness of Nd-Fe-B thick film magnets.

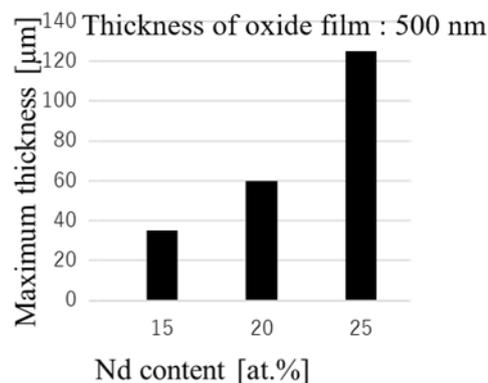


Fig2. Relationship between each Nd content and maximum thickness of Nd-Fe-B thick film magnets.