

## Magnetic field effects on crystallization by LLIP method

I. Yamamoto<sup>1</sup>, T. Okabe<sup>1</sup>, M. Tataru<sup>1</sup>, Y. Chiba<sup>1</sup>, T. Onotou<sup>1</sup>, and N. Hirota<sup>2</sup>

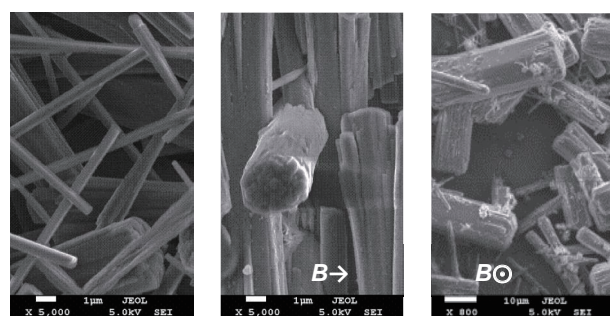
<sup>1</sup>Yokohama National University, Tokiwadai, Hodogayaku, Yokohama 240-8501, Japan

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

Application of magnetic fields to crystallization have been studied in order to make a high quality and large crystal.<sup>1-3)</sup> Liquid-liquid interfacial precipitation (LLIP) method is one of technique of crystallization from solution. Two kinds of solvent are stacked to make their interface. One is a poor solvent for desired material, and the other is a good solvent saturated with the material. In general, right solvent is stacked on heavy one to prevent the convection owing to gravity. The seed crystal is born and grown at around the two-dimensional interface because the supersaturated layer is generated due to mutual diffusion of the two liquid. The sedimentation speed is low for small crystal and accelerated with increasing size of crystal according to Stoke's law. When the grown crystal is leaved from the interface and sunk to the bottom then the growth reaction is completed. Magnetic field and its gradient are thought to be influenced the crystallization processes as follows. The generation of seed crystal and the growth rate are controlled by the magnetic field because the degree of the super-saturation depended on the diffusion of solution is controlled by Lorentz force under the influence of magnetic field. The growth direction is also controllable magnetically because the posture of crystal is controllable against the two-dimensional interface if the crystal has anisotropic magnetic susceptibility. In addition, the crystal size is controllable because the staying period at around the super-saturated layer, which corresponds the reaction period, is controllable according to apply of magnetic force parallel or antiparallel to gravity.

In the experiments, some kinds of crystal were crystallized and the magnetic field effects of the size, morphology, magnetic orientation, and quality of crystal were estimated for C60-fullerene nano-rod (FNR), NaCl salt, ice, glycine, taurine, lysozyme, thaumatin, etc. as listed in Table 1.<sup>4)</sup> For example, the long axis of FNR was oriented perpendicular to the magnetic flux as shown in Fig. 1(b). The volume of FNR was enlarged by 10 times in the homogeneous horizontal magnetic field of 13 T. Under the influence of the gradient vertical magnetic field, the volume was enlarged 100 times in the reduced gravity environment as shown in Fig. 2. The size effects were also recognized for other crystals as listed in Table 1. Moreover, changes of crystal habit and morphology were found as a magnetic field effect.

The magnetic field effect on size must be applicable to crystallization of protein for drug discovery, since crystallization for many unknown proteins is hard to make a good large crystal. If huge crystal is precipitated then the protein is analyzed easily by XRD structure analysis. A hen egg white lysozyme was crystallized by the LLIP method under the influence of magnetic field of up to 13 T. Ten times huge protein crystal was observed and its XRD structure analysis showed that the crystal kept high quality with the maximum resolution of 1.22 Å and R-merge of 4.6% (Fig. 3). The high mosaicity was



(a)  $B = 0$  T (b) Horizontal  $B = 9.6$  T (c) Vertical  $B = 7.2$  T

Fig. 1 SEM images of FNRs crystallized in (a) zero magnetic fields, (b) horizontal homogeneous field of 9.6 T, and (c) vertical field of  $B = 7.2$  T with gradient of  $dB/dz = -58$  T/m. The directions of magnetic flux were shown as allow in images (b) and (c). The scale bars indicated 1  $\mu\text{m}$  for (a) and (b), and 10  $\mu\text{m}$  for (c).

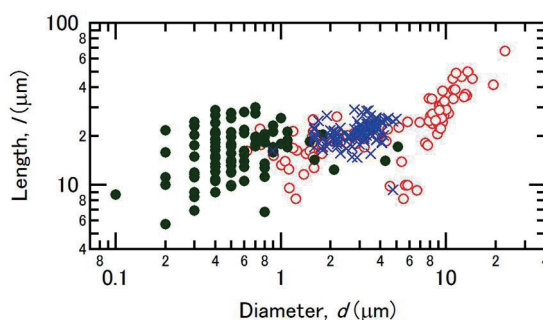


Fig. 2 Scatter plot for fullerene nano rod crystallized under the influence of magnetic fields. The symbols ●, ×, and ○, corresponded to the size for Fig. 1(a), (b) and (c), respectively.

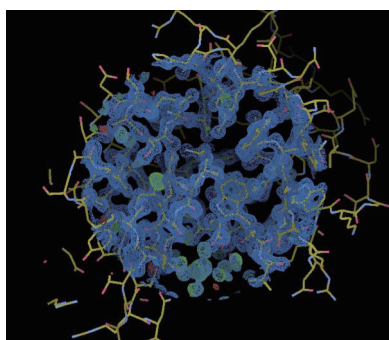


Fig. 3. The structure of lysozyme crystal precipitated under magnetic field with  $BdB/dz = -587 \text{ T}^2/\text{m}$ .



Fig. 4 Side view of the vertical interface under horizontal gradient magnetic field. the interface was indicated as broken line.

expected because the crystal aligned perfectly to magnetic flux.

In addition, a new one-dimensional reaction field was developed among a paramagnetic liquid and two kinds of diamagnetic liquid under the influence of horizontal gradient magnetic field as shown in Fig. 4. The paramagnetic liquid was forced toward the magnetic center (the left-hand direction in Fig. 4) due to horizontal magnetic force. The horizontal two-dimensional interface was changed vertical by the high magnetic field and the coexistent line among three liquids was appeared. We expect the new reaction field is available to make new low dimensional products.

Table 1. Typical experimental condition of LLIP method and the magnetic field effect

Raw material / Good solvent	Poor solvent (precipitant)	Diameter of reactor, $d$ / mm	Reaction duration	Magnetic field effect	Remarks
C60 fullerene / Toluene	2-propanol	14.5	48 hr	Size x100, Orientation	rod crystal
Ice (water) / 1-BuOH	Toluene	5.0	3 hr	Root position, Orientation, Growth rate x6	$\sim 20 \text{ }^\circ\text{C}$
Glycine / Water	EtOH	14	2 hr	Polymorph, Orientation	$0 \text{ }^\circ\text{C}$
Taurine / Water	EtOH	14	2 hr	Crystal habit, Orientation	
Thaumatococin / Acid	(Rochelle salt)	6.8	20 day	Orientation	pH = 5.0
Lysozyme / TAE	PEG4000, (CoCl <sub>2</sub> , etc.)	6.8	5 day ~ 2 month	Size x10, Orientation	negative g

Acknowledgements: This work was partially supported by JSPS KAKENHI Grant Number 16K04946 and JASRI/Spring-8 Grant Number 2016B2899. Experiments were performed at Instrumental Analysis Center of Yokohama National University and NIMS. The SAXS was measured at KEK-PF and BL38B1 in SPring-8, Japan.

#### References

- 1) S. Chandrasekhar, *Philos. Mag.* 43 (1952) pp. 501-532.
- 2) H. P. Utech and M. C. Flanagan, *J. Appl. Phys.* 37 (1966) pp. 2021-2024.
- 3) H. A. Chedzy and D. T. Hurle, *Nature* 210 (1966) pp. 933-934.
- 4) T. Onotou and I. Yamamoto, *Proc. Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields* (2016).

## Numerical simulation on structure formation of magnetic particles under magnetic fields

T. Ando<sup>1</sup>, D. Katayama<sup>1</sup>, N. Hirota<sup>2</sup>, O. Koike<sup>3</sup>, R. Tatsumi<sup>4</sup> and M. Yamato<sup>5</sup>

<sup>1</sup> College of Industrial Technology, Nihon University, Narashino 275-8575, Japan

<sup>2</sup> Fine Particle Engineering Group, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

<sup>3</sup> Products Innovation Association, Tokyo 113-8656, Japan

<sup>4</sup> Environmental Science Center, The University of Tokyo, Tokyo 113-8656, Japan

<sup>5</sup> Graduate School of Urban Environmental Sciences, Tokyo Metropolitan University, Hachioji 192-0397, Japan

This study gives an attention to structure formation of magnetic particles by dipole-dipole interaction under magnetic fields in materials processing. When magnetic field is applied to medium containing magnetic particles, the direction of magnetic moment of magnetic particles align in the same direction as the magnetic field, and magnetic particles make chain clusters by the dipole interaction among particles<sup>1</sup>. So, the magnetic field is useful tool on development of anisotropic materials.

In this time, we performed numerical simulations of the structure formation of magnetic particles whose size is on the order of micrometers in material processing, and studied the unsteady process of the formation and its feature. Figure 1 shows the schematic model of numerical simulation. The cube of simulation region is a part of the inside of the container and the periodic boundary condition for a 3D system is used. Magnetic particles are randomly dispersed in the container at the initial condition. The translational motion and the rotational motion of particles are governed by Newton and Euler equation, respectively. Here, we used DEM including the magnetic effect. About the simulation research of magnetic particles, A. Satoh has already published many studies<sup>2</sup>. He deals with magnetic particles in magnetic fluids, and particle size is on the order of tens of nanometers. Therefore, he calculates using Brownian dynamics method in which particles do not collide directly with each other. He also discusses mainly the rheology of magnetic fluid due to the structure of magnetic particle, and not structure formation in unsteady process.

One example of numerical simulation results is shown in Fig. 2. Particles aligned in the direction of the magnetic field and made the structure formation of chain cluster. We discuss the structure formed by the magnetic particles and the formation process when the concentration and particle size of the particles in dispersion medium are changed.

### Reference

- 1) M. Yamato, *et al.*, *Polymer*, **55** (2014) 6546-6551.
- 2) A. Satoh, *Introduction to Molecular-Microsimulation of Colloidal Dispersions*, Elsevier, (2003).

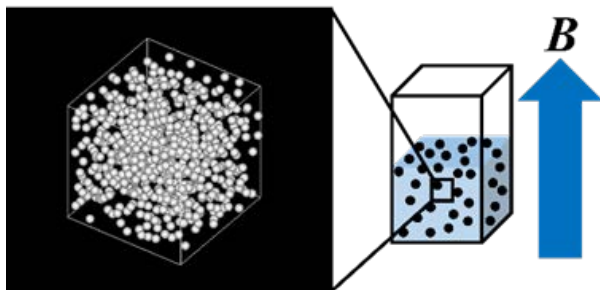
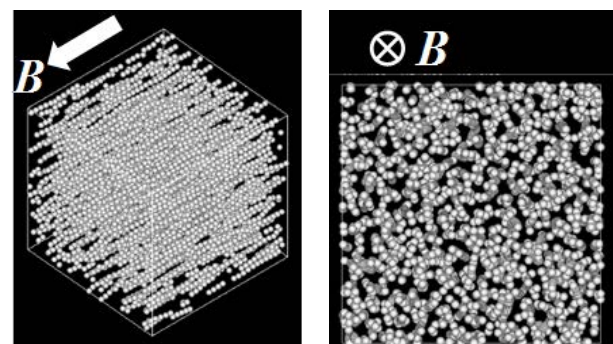


Fig. 1 Model of numerical simulation



(a) Isometric view

(b) Perpendicular section to the direction of magnetic field

Fig. 2 Result of numerical simulation

# Liquid Crystal Magneto-Electropolymerization

Hiromasa Goto

Department of Materials Science, Faculty of Pure and Applied Materials Science, University of Tsukuba

## 1. Alignment of Liquid Crystal Conjugated Polymers

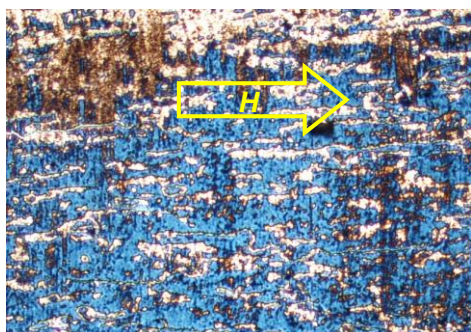
Magnetic field [1] or shear stress [2] affords to produce uniaxial alignment of liquid crystals. Orientation of liquid crystal conjugated polymer has been achieved under magnetic field. The aligned polymer thus obtained in the magnetic field shows main-chain orientation accompanied by orientation of liquid crystal substituents.

## 2. Liquid crystal electropolymerization

Electrochemical polymerization in liquid crystals has been carried out. The polymer obtained in liquid crystal matrix shows liquid crystal like morphology observable with optical microscopy [3] and scanning electron microscopy. Although the polymer shows liquid crystal like optical texture, the polymer shows no fluidity (polymer solid film). This is due to the fact that molecular collective form imprinting from liquid crystal matrix to resultant polymer in the polymerization process was occurred.

## 3. Liquid crystal chiral electropolymerization

Chiral conjugated polymers were prepared by electrochemical polymerization of achiral monomers in a chiral liquid crystal (CLC) electrolyte solution [1,2]. The polymer films prepared in chiral liquid crystal shows "Electro-driven change in optical rotation". The optical rotation degree is comparable to that of Faraday rotators. The optical rotation degree can be precisely controlled by the external voltage less than 1 V. This can be a new physical effect in optical rotators. The ellipticity of this polymer is also found to exhibit hysteresis.



**Figure 3.** A polymer prepared in liquid crystal under magnetic field.

## 4. Liquid Crystal Magneto-Electrochemical Polymerization

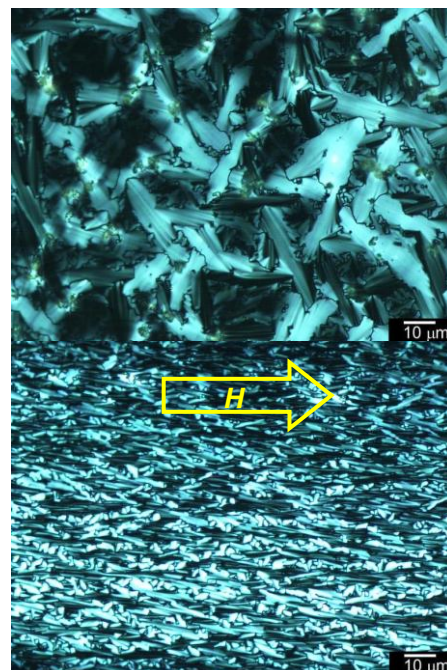
We carried out electrochemical synthesis of conducting polymers in magnetic field of 12 T. The polymer thus obtained in the oriented liquid crystal show uniaxial form. Polarized absorption spectra of the polymers confirmed anisotropy and "linear polarized electrochromism" [2]. The uniaxial optical function is controlled by application of external voltage.

## 5. Liquid crystal magnetic orientation in solvent evaporation process

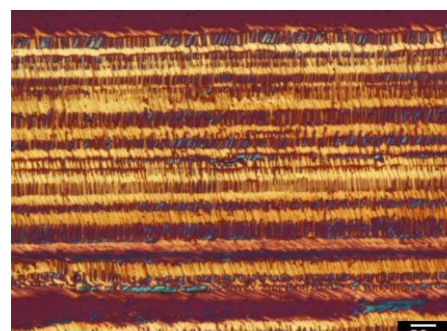
We developed a new method of magnetic orientation in solvent evaporation process via LC state to obtain aligned polymer. Uniaxial alignment of conjugated polymer in liquid crystal was achieved under magnetic field. A growth of the liquid crystal domains and magnetic orientation occur simultaneously in this process to form thin solid films with align liquid crystal order.

### Reference

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



**Figure 1.** Polarizing optical microscopy images of unoriented polymer (top) and oriented polymer with magnetic field (bottom).



**Figure 2.** Alignment of a liquid crystal conjugated polymer with shear stress.

## Composite Coatings Utilizing Magnetically Fixed Particles

Junji Sasano, Takuo Ebitani, Takamichi Yamamoto, Seiji Yokoyama, and Masanobu Izaki  
Toyohashi University of Technology, Toyohashi 441-8580, Japan

Composite coating is one of the methods to form films of composite materials utilizing electrodeposition. The electrodeposited film with co-deposited particles is augmented with additional functions which cannot be possessed by the matrix metal film alone. In general, composite coatings are formed by electrodepositing the matrix metal films co-deposited with particles from their suspended solutions. Homogeneity and amount of particles in the films, and the stability of suspended solutions depend on the characteristics of the particles and the matrix metals, so it is not easy to find the optimum condition to control these properties simultaneously. To overcome this problem, we have investigated a new method to form similar composite structures without using suspended solutions; the particles mixed with magnetic particles are fixed on the electrode by the attractive force from the magnets placed on its back side, and then, their gaps are filled with electrodeposited metal. Here, we call this method as composite coatings utilizing magnetically fixed particles (CCMFP). In this paper, we investigate alumina co-deposited nickel composite coatings as a model case of CCMFP, and show some necessity conditions to realize the formation of composite coatings by this method.

As a preliminary test, we tried to find the suitable condition for filling the gaps between nickel particles magnetically fixed on a copper working electrode with electrodeposited nickel without using alumina particles. Conventional Watts bath, which is one of the simplest nickel plating solution, was used as the electrolyte solution. The magnets for fixing the nickel particles were two types of neodymium magnets, we call them magnet A and B; the magnet A has the magnetic flux density of 360 mT with the size of  $15 \times 10 \times 5 \text{ cm}^3$  and the magnet B is a bundle of small magnets having the magnetic flux density of 213 mT with the size of  $1 \times 1 \times 5 \text{ cm}^3$  (total size:  $16 \times 14 \times 5 \text{ cm}^3$ ). (Fig. 1) Electrodeposition using magnet A, however, did not result in the formation of a uniform film. One reason was that nickel was electrodeposited mainly on the nickel particles not on the copper electrode due to the conductivity of nickel particles. This problem was overcome by increasing the contact resistivity between each particle with thermally-formed nickel oxide. Another reason was non-uniform distribution of the magnetic field, and that was evaded using the magnet B with a bundle structure. After improving these two issues, bottom-up growth of electrodeposited nickel was achieved, but even so, the roughness of the film did not improve. We thought this was because the bottom-up filling of nickel slowed down during the electrodeposition process due to the recovery of conductivity between nickel particles by the dissolution of nickel oxide. To investigate the stability of the oxide, we performed electrodeposition using solutions with different pH values; then electrochemical measurements and thermodynamic estimations revealed that the nickel oxide was easily reduced at low pH, and moderately high pH without forming precipitates of nickel hydroxide in the solution was suitable for continuing uniform bottom-up filling. Nickel-alumina composite coating was conducted under the optimized condition written above, and it was successfully formed. (Fig. 2) Although the surface roughness of the composite film and uniformity of dispersion of alumina particles need further improvement, the results demonstrate the possibility of CCMFP as a potent method for the formation of composite coatings.

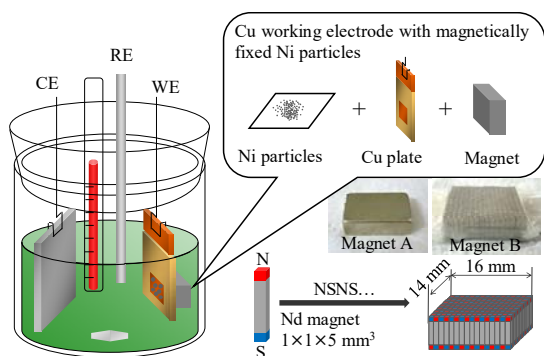


Fig. 1 Experimental setup of the three-electrode electrochemical cell for CCMFP with a Cu plate working electrode with magnetically fixed Ni particles, a Ni wire quasi reference and a Ni counter electrode. Photos of the magnet A and B, and the schematic structure of the magnet B are also presented.

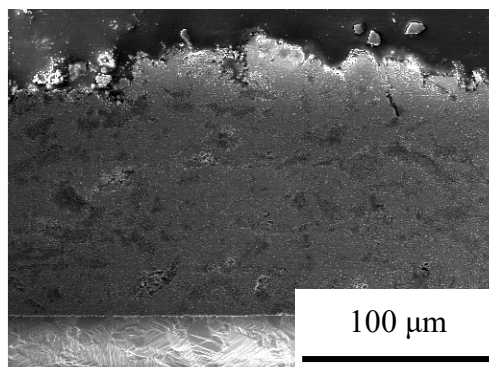


Fig. 2 Cross-sectional SEM image of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Ni composite film formed by CCMFP; darker gray parts are included  $\text{Al}_2\text{O}_3$  particles.

## High magnetic field effect on copper electrodeposition and anodic dissolution

○Y. Oshikiri<sup>1</sup>, M. Miura<sup>2</sup>, S. Takagi<sup>3</sup> and T. Asada<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Yamagata College of Industry and Technology, Yamagata 990-2473, Japan.

<sup>2</sup>Hokkaido Polytechnic College, Otaru, Hokkaido 047-0292, Japan.

<sup>3</sup>Faculty of Symbiotic Systems Science, Fukushima University, Fukushima 960-1296, Japan.

Magnetochemistry is the electrochemistry in magnetic field, which is characterized by a macroscopic solution flow called magnetohydrodynamic (MHD) flow induced by Lorentz force resulting from electrolytic current and magnetic field. Mass transport in magnetic field is strongly affected by MHD flow, so that in electrodeposition and anodic dissolution, surface morphology of electrode can be controlled by magnetic field.

Numerous microscopic flows called micro MHD flow spontaneously occur in MHD flow. In a vertical magnetic field, a macroscopic tornado-like vortex called vertical MHD flow emerges over an electrode called vertical MHD electrode (VMHDE). In electrodeposition and anodic dissolution, lots of vortexes of micro MHD flows create screw dislocations having chirality depending on the direction of magnetic field. According to this process, copper electrodes with high chiral catalytic activities have been fabricated and applied to enantiomeric reactions [1]. However, in general, because of viscosity, about 1  $\mu\text{m}$  vortexes mentioned above are impossible to rotate. For such a high performance of catalysis, something to drastically decrease the viscosity is required. One question therefore arises; what is it?

Answer is ionic vacancy created as a byproduct in electrode reaction; a polarized spherical free space of the order of 0.1 nm surrounded by oppositely charged ionic cloud, which is produced by the conservations of linear momentum and electric charge during electron transfer [2]. The average lifetime is about 1 sec [3], which is extraordinarily long comparing with a collision period of  $10^{-10}$  sec of solution particle. The most important point is its migration without entropy production, which implies that it does not interplay with other solution particles, providing inviscid flow without viscosity. In copper anodic dissolution on a copper VMHDE, microbubbles originated from ionic vacancies has been observed (Fig. 1) [4]. Furthermore, the micro MHD flows make ionic vacancies distributed in mosaic, so that on the patterned vacancy layer, drilling effect of micro MHD vortexes leads to characteristic pit formation with high aspect ratio on a copper electrode surface (Magneto-drill effect) (Fig. 2).

Electrodeposition is also strongly affected by magnetic field. Unrelated with hydrogen evolution, copper dendrites develop in high magnetic fields (Magneto-dendrite effect) (Fig. 3) [5], where in place of hydrogen molecules, nanobubbles from ionic vacancies adsorb on 3D copper nuclei, inducing remarkable dendritic growth.

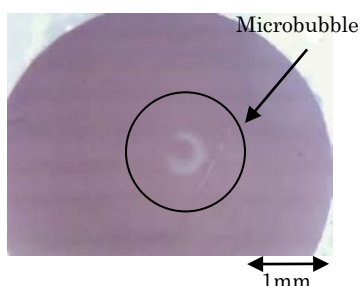


Fig 1. Microbubble globules on copper surface during copper dissolution at 8 T.

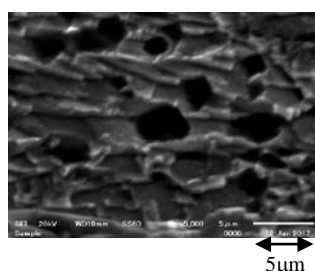


Fig. 2 Magneto-drill effect on a copper rod electrode at 10T.

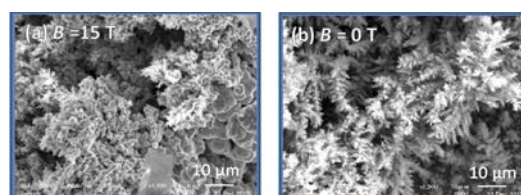


Fig. 3 Magneto-dendrite effect in copper deposition.

(a)  $B = 15$  T without hydrogen gas evolution.  
(b)  $B = 0$  T with hydrogen gas evolution.

### Reference

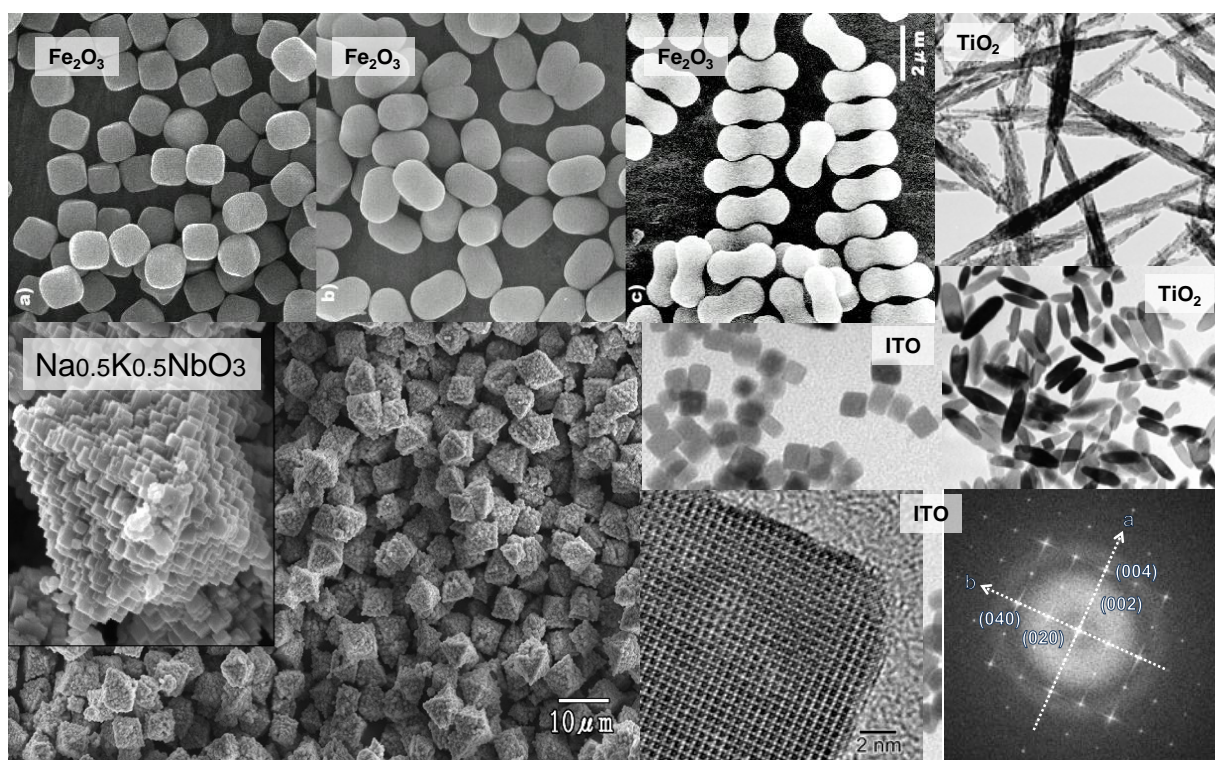
- 1) I. Mogi, R. Aogaki, & K. Watanabe: *Sci. Rep.* **3**, 2574 (2013).
- 2) R. Aogaki, et al: *Sci. Rep.*, **6**, 28927 (2016).
- 3) A. Sugiyama, et al: *Sci. Rep.*, **6**, 19795 (2016).
- 4) Y. Oshikiri, et al: *Electrochemistry*, **83**, 549 (2015).
- 5) M. Miura, et al: *Sci. Rep.*, **7**, 45511 (2017).

## Concept and Procedure for the Synthesis of Uniform Nanoparticles in Liquid Phase with Large Quantity

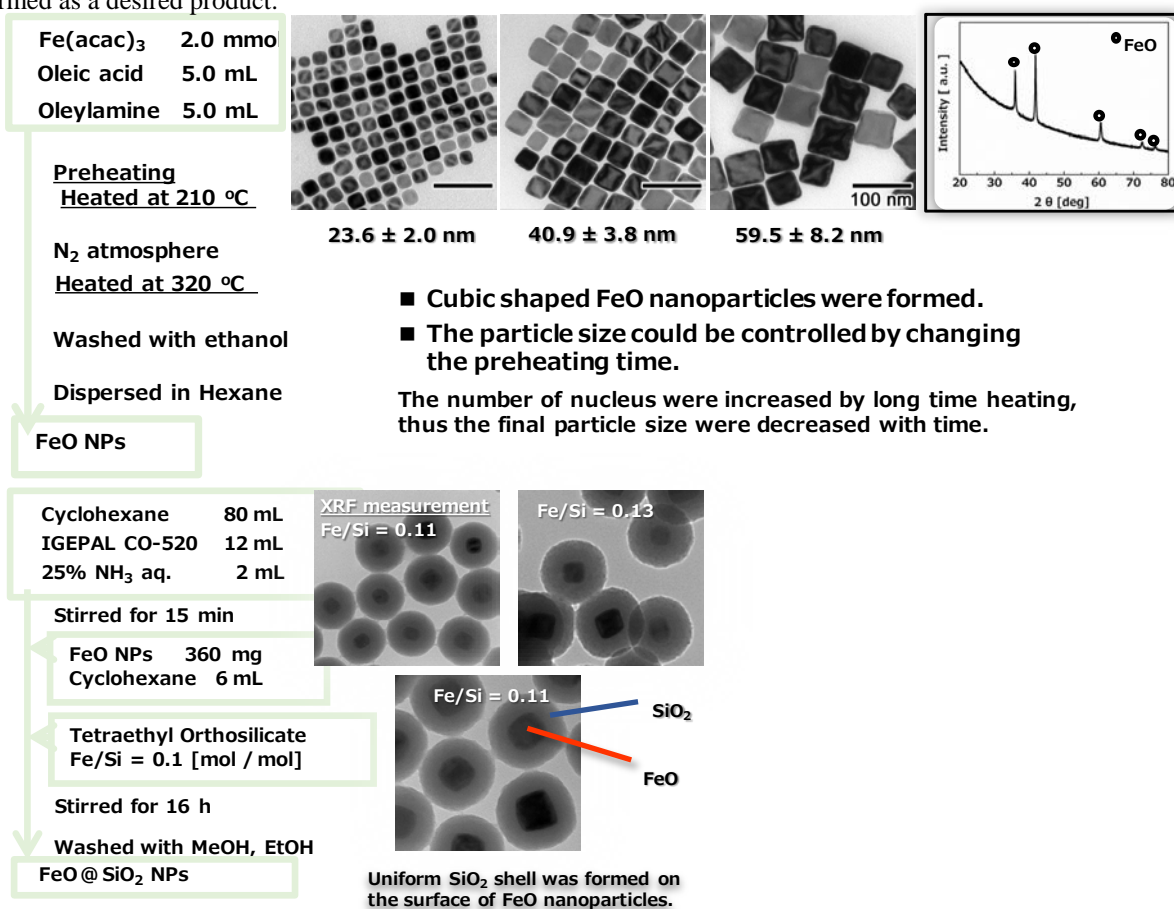
A. Muramatsu

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

Since monodispersed particles have excellent uniformity in size, shape, composition, and structure both of bulk and surface, they can be used as highly functional materials for industrial use due to unified characteristics under one standard based on their monodispersity. Among so many synthesis method of nanomaterials, Gel-Sol Method<sup>1)</sup> is unique in the production scheme from the dissolution of initially formed gel to the re-precipitation of monodispersed particles in solution phase, where the composition of ions and/or complexes are kept constant in the solution phase. For this method, particles are formed through nucleation and growth by a direct deposition of monomers onto growing particles, obeying LaMer model<sup>2)</sup>. Namely, the growth mechanism of particles is not via aggregation of primary particles. For hydrothermal processes, including Gel-Sol Method, the most important technique is to avoid tremendous coagulation between growing particles. As you know, DLVO theory<sup>3)</sup> predicts adequate conditions of particle synthesis that we usually choose dilute solution system, where electrolyte concentration is too low to lead to the rapid aggregation. In contrast, Gel-Sol system shows the concentrated solution, including initially formed gel. For this method, growing particles are strongly immobilized in very viscous gel network to completely reduce Brownian motion, a trigger for the aggregation, in which a particle collides with another one. Namely, the particle formation rate is preponderantly higher than the coagulation one of growing particles in order to prevent aggregation. In this manner, Gel-Sol method can be applied in non-aqueous solution in place of aqueous one so as to establish the combination of solvothermal synthesis with Gel-Sol method. For hydrothermal procedure, we have been experienced that materials, which is predicted stoichiometrically to form in any condition, sometimes cannot be prepared. For example,  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  cannot be formed by the hydrothermal synthesis method, where  $\text{AlOOH}$ , intermediate compound between initially formed  $\text{Al}(\text{OH})_3$  and  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  as a final product, is too stable to dissolve in aqueous solution in order to convert into  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ . For the other example, ITO, indium tin oxide, is the same case: ITO is often used as Transparent Conductive Film on various devices, such as LCD, SmartPhone, etc. Although ITO is expected to form stoichiometrically via a hydrothermal method, ITO does not be obtained in the actual synthesis process. For these cases, we choose organic solvent such as alcohol etc., in



place of water, since there is too much oxygen sources, that is, water. Namely, the synthesis of magnetic nanoparticles is exemplified<sup>4)</sup>. It is very difficult to obtain single-phase  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles, because  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase is an intermediate phase on the transformation from  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase to  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase. To prepare  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase selectively, focusing on the formation energy of  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase is important. The actual preparation method is shown as follows. First, FeO nanoparticles with the size of 24, 40 and 60 nm were synthesized by our previous method<sup>4)</sup>. As-obtained nanoparticles were coated with SiO<sub>2</sub> shell to prevent their tremendous aggregation during heat treatment. The resulting SiO<sub>2</sub> coated FeO nanoparticles were treated at 1000 - 1200 °C in the air. When 40 nm FeO nanoparticles with ca. 15 nm SiO<sub>2</sub> shell were treated, significant aggregation and increase in particle size were observed at every treatment temperatures. As-prepared nanoparticles were found the mixture of  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phases. When 40 nm FeO nanoparticles were treated to cover with ca. 40 nm SiO<sub>2</sub> shell, the particle aggregation was completely inhibited. The crystal structure was found to transform from  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase to  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase via  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> phase as the treatment temperature increased. The  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles formed at 1100 °C showed large coercivity of 20.8 kOe at 300 K. As a result, the control in change in the crystal structure with temperature, under the complete inhibition against aggregation nor the growth in size, is the most important so that  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> is selectively formed as a desired product.



#### Reference

- 1) T. Sugimoto, M. M. Khan, A. Muramatsu, H. Itoh, *Colloids Surf. A*, **79**, 233 (1993). T. Sugimoto, *Monodispersed Particles*, Elsevier, Amsterdam, pp. 376-388, (2001).
- 2) V. K. LaMer, *Ind. Eng. Chem.*, **44**, 1270-1277 (1952).
- 3) B. Derjaguin and L. Landau, "Theory of the stability of strongly charged lyophobic sols and of the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes", *Acta Physico Chemica URSS*, **14**: 633 (1941), E. J. W. Verwey and J. Th. G. Overbeek, *Theory of the stability of lyophobic colloids*, Amsterdam: Elsevier. (1948).
- 4) M. Nakaya, R. Nishida, N. Hosoda, A. Muramatsu, *Crystal Research Tech.*, **52**, 11 (2017).
- 5) M. Nakaya, R. Nishida, A. Muramatsu, *Chem. Lett.* **42**, 863 (2013).



## 8 インチ Si ウェーハ上へのフルエピタキシャル MTJ の形成

薬師寺啓、杉原敦、湯浅新治  
(産総研)

Development of fully-epitaxial MTJs on an 8-inch Si wafer

K. Yakushiji, A. Sugihara and S. Yuasa  
(AIST)

### はじめに

既存の STT-MRAM は MTJ が多結晶ベースで形成されており、メモリサイズの縮小を行う際には多結晶 MTJ の膜質バラツキやラフネスがメモリ特性のバラツキとして顕在化してしまい、それが開発障壁のひとつとなっている。もし MTJ の単結晶化が実現すれば、薄膜中に結晶粒が存在しないために膜質バラツキは究極的に小さく、また平坦性は原子層レベルにフラットであり、さらに単結晶ベースの高性能材料の利用が視野に入ってくるなど、ブレークスルーがもたらされると期待される。しかしながら、これまでは研究室レベルの数 cm の小片基板上への報告があるものの、量産時に用いる大径 Si ウェーハ上へのエピタキシャル MTJ の形成は誰も為し得ていなかった。本研究では、大径 Si ウェーハ上へのエピタキシャル MTJ 形成を試みた。

### 実験方法

ウェーハには 8 インチ径の単結晶(100)配向 Si を用いた。1%DHF (希釈フッ酸) 自動洗浄機により表面の自然酸化膜を除去し、すみやかに成膜装置 (キャノンアネルバ C-7100) に導入した後、550°C でフラッシングすることで清浄表面を得た。バリア材料としてはスピネル系 Mg-Al-O<sup>1)</sup>を用いた。

### 実験結果

図 1 に Mg-Al-O バリア表面の RHEED 像を示す。明瞭なストリークが現れており、高品位なエピタキシャル成長がなされていることが示唆される。MR 比は最大で 230% であり、RA=10 Ωum<sup>2</sup> の低 RA でも 140% 程度の高い値を示した。今回、Ni-Al シード層<sup>2)</sup>の最適チューニングと Mg-Al-O 開発が鍵となり、汎用性の高い技術で世界で初めて大径 Si ウェーハ上にエピタキシャル MTJ (面内系) の形成を実現するに至った。今後は垂直系への展開と、3次元積層技術<sup>3)</sup>を用いたエピタキシャル MTJ と CMOS 回路とのインテグレート技術開発を進めていく。

本研究は ImPACT プログラム「電圧駆動 MRAM のプロセス技術およびメモリアレイの開発」の一環で行われた。

### 参考文献

- 1) H. Sukegawa et al., Appl. Phys. Lett. 96 (2010) 212505.
- 2) J. Chen et al., APL Mater. 4 (2016) 056104.
- 3) K. Yakushiji et al., Appl. Phys. Exp. 10 (2017) 063002.

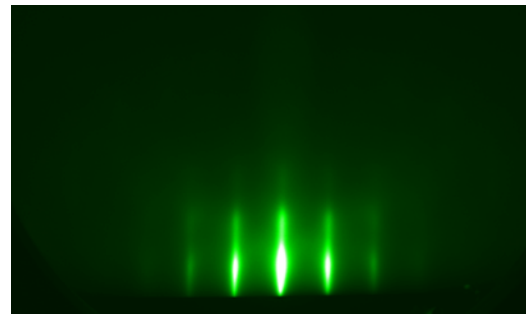


図 1 Mg-Al-O バリア表面の[100]方向 RHEED 像

## 多結晶 CoFeB/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/CoFeB 型強磁性トンネル接合における 大きなトンネル磁気抵抗効果

Ikhtiar, °介川裕章, Xiandong Xu, Mohamed Belmoubarik, Hwachol Lee, 葛西伸哉, 宝野和博  
(物材機構)

Large tunnel magnetoresistance effect in polycrystalline CoFeB/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/CoFeB magnetic tunnel junctions

Ikhtiar, °H. Sukegawa, X. Xu, M. Belmoubarik, H. Lee, S. Kasai, and K. Hono

(NIMS)

### はじめに

スピネルは MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> で表される立方晶の複合酸化物であり、強磁性トンネル接合 (MTJ) のトンネルバリアとして用いることで室温において 300%を超える大きなトンネル磁気抵抗 (TMR) 比が報告されている<sup>1,2)</sup>。とりわけ、Mg-Al 組成調整されたスピネルバリア (Mg-Al-O) では、CoFe やホイスラー合金等と格子整合性が良く、高品位の界面構造を実現できる。このため、良好な TMR のバイアス電圧依存性が得られることから高い素子出力が得られるという利点がある。しかし、高品位な MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 結晶バリアを得るためには単結晶基板上にエピタキシャル成長が必要であるため、下地の制約なしに作製可能な多結晶素子化が望まれる。本研究では CoFeB 電極とスピネルバリアの間に薄い MgO テンプレート層を導入することで、CoFeB/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/CoFeB 型の高配向多結晶 MTJ を実現し、同時に大きな TMR 比が観測されたことを報告する<sup>3)</sup>。

### 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化膜付 Si 基板上に Ta (5)/Ru (10)/Ta (5)/Co<sub>20</sub>Fe<sub>60</sub>B<sub>20</sub> (CoFeB) (5)/Co<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> (CoFe) (1)/MgO (0-0.7)/Mg-Al-O (1.2)/CoFeB (3)/Ta (5)/Ru (5)、(厚さ nm) を室温で成膜した。Mg-Al-O 層は組成が異なる焼結体ターゲット (Mg<sub>2</sub>Al-O<sub>x</sub> および MgAl<sub>2</sub>-O<sub>x</sub>) を用いて高周波スパッタによって作製した。成膜した多層膜は電子線リソグラフィを用い 200×400 nm<sup>2</sup> サイズの楕円状に微細加工した後、真空中で 5 kOe の磁場中において 500°C で熱処理を行った。

### 実験結果

MgO 挿入が非常に薄い (<0.1 nm) 場合、TMR 比は数十%程度と小さく、結晶バリアが得られないことがわかった。一方、MgO 膜厚の増大と共に TMR 比が向上し 150%以上の TMR 比がいずれの組成においても安定に得られた。MgO (0.5 nm)/Mg<sub>2</sub>Al-O<sub>x</sub> 構造において、最大 260%の TMR 比が実現された。これは、MgO 挿入層が Mg-Al-O バリア結晶化のためのテンプレートとして有効に働いたためと考えられる。また、単結晶スピネル MTJ と同様に良好な TMR 比のバイアス依存性も観察された。断面 STEM 像 (Fig. 1) から (001) 配向した CoFeB/Mg-Al-O/CoFeB 構造が得られていることが確認され、バリア界面の格子不整合も非常に小さいことがわかった。以上の結果から、極薄 MgO 挿入層の利用によって、高出力のスピネル MTJ を実用に適した多結晶素子として得られることがわかった。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じた委託により、また JSPS 科研費 (16H03852) の助成により行われた。

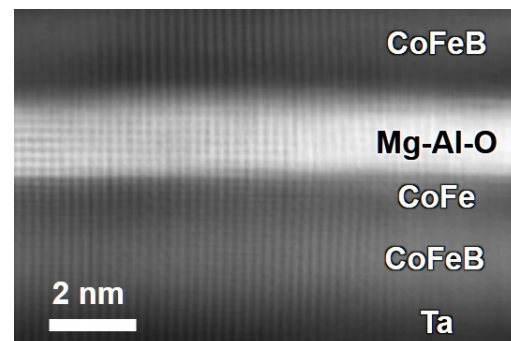


Fig. 1. Cross-sectional STEM image of a CoFeB/CoFe/MgO (0.7 nm)/MgAl<sub>2</sub>-O<sub>x</sub> (1.2 nm)/CoFeB MTJ.

### 参考文献

- 1) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012). 2) T. Scheike *et al.*, Appl. Phys. Express **9**, 053004 (2016).
- 3) Ikhtiar *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 022408 (2018).

磁気トンネル接合  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  における磁気抵抗効果の印加電圧依存性  
: 第一原理計算によるアプローチ

増田啓介, 三浦良雄  
(物材機構)

Bias voltage dependence of magnetoresistance ratio in  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  junction  
: First-principles theoretical approach  
Keisuke Masuda and Yoshio Miura  
(NIMS)

2004年の巨大磁気抵抗比の報告 [1,2] 以来,  $\text{MgO}$  トンネルバリア層を用いた磁気トンネル接合 (MTJ) について数多くの研究がなされてきた. その一方,  $\text{MgO}$  と格子不整合が大きい強磁性体について,  $\text{MgO}$  以外のトンネルバリア層を用いて同様の高い磁気抵抗比 (MR 比) を得ようとする試みが精力的に進められている. スピネルバリア  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  を用いた MTJ,  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  に関する研究はそのような試みの 1 つであり, これまでに室温で 300% 程度の高い MR 比が得られている [3]. この MTJ には, 界面での格子不整合が非常に小さい (0.1% 程度) ことや, MR 比が良好な電圧依存性を持つことなど様々なメリットが存在する.  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  と  $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$  の相違点を詳細に比較検討することは MTJ の磁気伝導特性をより深く理解する上で重要である.

本研究では, 第一原理計算を用い  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  の MR 比の印加電圧依存性について解析し,  $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$  の場合との差について考察を行った. 我々は構造を最適化した  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  と  $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$  の超格子に対し密度汎関数法と非平衡 Green 関数法を適用することで, それぞれの系の MR 比の電圧依存性を計算した. まず  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$ ,  $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$  の場合に共通した結果として, MR 比が印加電圧とともに単調に減少しある臨界電圧  $V_c$  で 0 となる振る舞いが得られた. さらにこの臨界電圧  $V_c$  について,  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  の  $V_c$  が  $\text{Fe/MgO}/\text{Fe}$  のそれに比べ顕著に大きいことがわかった. このような臨界電圧  $V_c$  の差の起源を明らかにするため, 我々は両 MTJ について透過率のエネルギー依存性及び電極のバンド構造の詳細な解析を行った. スピネル構造を持つ  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  バリアの面内格子定数は  $\text{bcc Fe}$  の面内格子定数の 2 倍であるため,  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  においては電極のバンド構造が単純な  $\text{bcc Fe}$  のバンド構造を面内で折りたたみ構造を持つ (バンド折りたたみ効果) [4,5]. 我々の解析の結果, このようなバンド折りたたみ効果によって生み出される Fe の付加的な多数スピンバンドが  $\text{Fe/MgAl}_2\text{O}_4/\text{Fe}$  における大きな臨界電圧  $V_c$  の起源であることがわかった [6].

本研究の一部は TDK 株式会社, 科研費基盤 S (16H06332), 基盤 B (16H03852), 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.

- 1) S. S. P. Parkin *et al.*, Nat. Mater. **3**, 862 (2004).
- 2) S. Yuasa *et al.*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004).
- 3) M. Belmoubarik *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**, 132404 (2016).
- 4) Y. Miura *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 024426 (2012).
- 5) H. Sukegawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184401 (2012).
- 6) K. Masuda and Y. Miura, Phys. Rev. B **96**, 054428 (2017).

# 強磁性トンネル接合における電圧誘起磁気キャパシタンス効果

海住英生、三澤貴浩、長浜太郎\*、小峰啓史\*\*、北上 修\*\*\*、  
藤岡正弥、西井準治、Gang Xiao\*\*\*\*

(北大電子研、\*北大工、\*\*茨大工、\*\*\*東北大多元研、\*\*\*\*ブラウン大学)

Voltage-induced Magnetocapacitance Effect in Magnetic Tunnel Junctions

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

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

## 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、静的なスピン蓄積や動的なスピンドイナミクスに関する新たな学術的知見を与える一方、高感度磁気センサや磁気メモリ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]。TMC効果の興味深い特徴の一つとして、電圧に対するロバスト性が挙げられる。例えば、TMCの $V_{1/2}$ (=ゼロバイアス付近のTMC比が半分になるときの電圧)はトンネル磁気抵抗(TMR)と比較して2倍程度大きいことが報告されている[5]。このようなロバスト性に関連して、本研究では、電圧に対してTMCが増大する新しい現象を見出したので報告する。

## 実験方法

超高真空マグネトロンスパッタ装置を用いて、熱酸化Si基板上にTa/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/IrMn/Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub>/Ru/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/MgO/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>/Ta/Ruから構成されるMTJを作製した。強磁性層Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>の膜厚は3 nm、絶縁層MgOの膜厚は2 nmとした。微細加工にはフォトリソグラフィとイオンミリング法を用いた。接合面積は1800  $\mu\text{m}^2$ とした。TMCおよびTMR効果の測定には、室温磁場中交流4端子法を用いた。

## 実験結果

図1にTMRとTMCのバイアス依存性を示す。TMR比はバイアス電圧の上昇とともに減少することがわかる。一方、TMC比については低バイアスにおいてやや減少するが、高バイアスでは増大する興味深い現象が観測された。これらの実験結果を説明するため、理論計算による解析を行った。TMRの計算にはZhangモデルを用いた[6]。TMCの計算には4次関数バリア近似(QBA)とスピン依存ドリフト拡散(SDD)モデル[2]を取り入れたDebye-Fröhlichモデルを用いた。その結果、図2に示すように、実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかった。これはスピンキャパシタンスが電圧誘起TMC効果に大きな影響を及ぼすことを意味する。講演ではより詳細な実験・計算結果について報告する。

## 参考文献

- [1] H. Kaiju *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **107**, 132405 (2015). [2] T.-H. Lee *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 13704 (2015).  
[3] S. Parui *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **109**, 052401 (2016). [4] H. Kaiju *et al.*: *Sci. Rep.* **7**, 2682 (2017).  
[5] A. M. Sahadevan *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **101**, 162404 (2012). [6] S. Zhang *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).

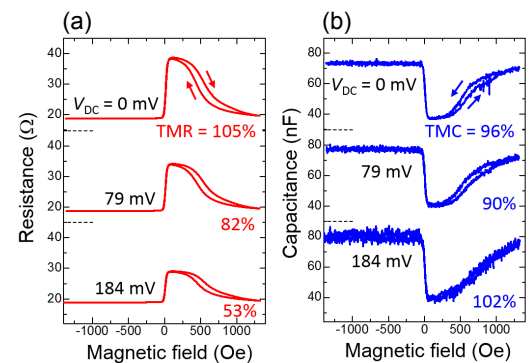


図1: (a) TMRと(b)TMCのバイアス電圧依存性

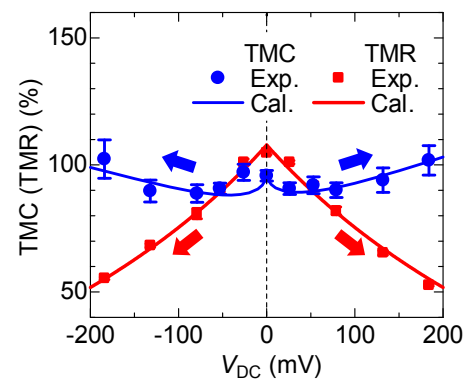


図2: TMR比とTMC比のバイアス電圧依存性

## スピントルク発振素子のパルス電圧応答

鈴木大貴<sup>1,2</sup>, 常木澄人<sup>2</sup>, 薬師寺啓<sup>2</sup>, 福島章雄<sup>2</sup>, 湯浅新治<sup>2</sup>, 安川雪子<sup>1</sup>, 久保田均<sup>2</sup>  
(千葉工大 1, 産総研 2)

### Response of pulse input in spin torque oscillator

Daiki Suzuki<sup>1,2</sup>, Sumito Tsunegi<sup>2</sup>, Kay Yakushiji<sup>2</sup>, Akio Fukushima<sup>2</sup>, Shinji Yuasa<sup>2</sup>,  
Yukiko Yasukawa<sup>1</sup>, Hitoshi Kubota<sup>2</sup>  
(ChibaTech1, AIST2)

### はじめに

スピンドYNAMIXの高速性を利用した磁気メモリやスピントルク発振素子は、次世代の機能性デバイスとして注目されている。これらのデバイスに加えて、近年ではスピンドYNAMIXの過渡的な振る舞いを利用した演算器<sup>1)</sup>にも注目が集まっている。スピンドYNAMIXの過渡的な振る舞いに関しては、磁化反転において反転が始まらない付帯時間があること<sup>2)</sup>などが議論されているが、その実験的な検証はまだ少ないのが現状である。特に、パルス電圧の入力に対するダイナミクスの実時間測定はほぼ未踏の領域である。本研究では、スピンドYNAMIXの過渡的な振る舞いを調べるために、スピントルク発振素子にパルス電圧を入力しその応答を調べた。

### 実験

実験に用いたスピントルク発振素子は FeB を自由層とした磁気渦型スピントルク発振素子<sup>3)</sup> Si/SiO<sub>2</sub>-sub./buffer/CoFe(2.5)/Ru(0.86)/CoFeB(3)/MgO(~1)/FeB(5.0)/Ta/Ru (nm) である。自励発振を励起させるために、素子に直流磁界 550 mT を膜面垂直方向に入力し、パルス電圧を入力した。入力信号源として任意波形発生器 (Keysight 33622A) を用いた。パルスの立ち上がり(下がり)時間は 5 ns とし、パルス幅は 500 ns とした。バイアスティーの低周波ポートからパルス電圧を入力し、高周波ポートからスピントルク発振素子の出力信号をリアルタイムオシロスコープ (Keysight DSOS804A) により観測した。

### 結果

図 1 (a), (b) にスピントルク発振素子に印加した矩形波信号(off 時 0 mV, on 時 400 mV) と、この時のスピントルク発振素子の出力波形を示す。スピントルク発振素子に電圧が印加されるパルスの立ち上がりでは、20 ns 以上の待機時間が生じてから、徐々に信号強度が増大する様子が観察された。発振状態での振動周期は 2 ns であり、信号増大から飽和するまでに要した緩和時間は 20 ns 以上であることがわかった。一方、パルスの立ち下りでは、入力されている電圧とほぼ同じ包絡線が得られた。発表では、印加電圧依存性など、より詳細にスピンドYNAMIXの議論を行う。

### 参考文献

- 1) J. Torejon et al., Nature 547, 428 (2017)
- 2) H. Tomita et al., Appl. Phys. Express 1, 061303 (2008)
- 3) S. Tsunegi et al., Appl. Phys. Express 7, 063009 (2014)

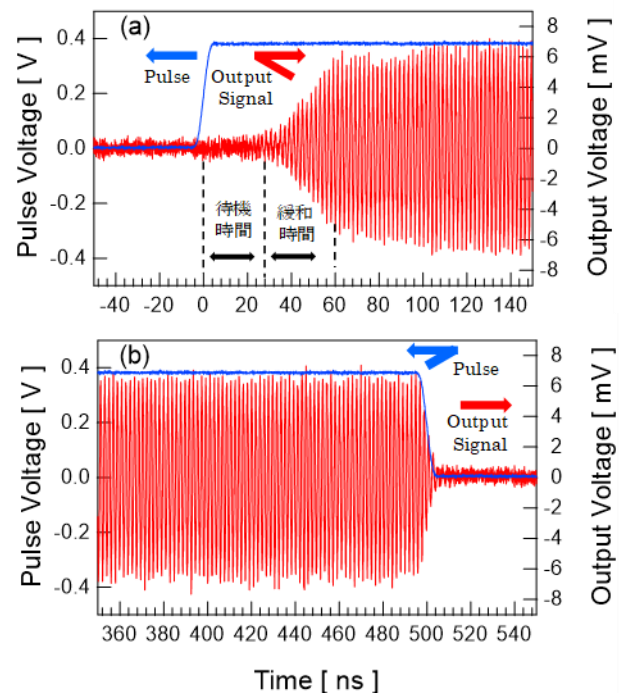


図 1 スピントルク発振素子に入力した矩形波とスピントルク発振素子の出力信号の実時間測定結果。(a)立ち上がり。(b)立ち下り。

# FeB 自由層を持つ磁気渦スピントルク発振素子の同期現象

安藤拓己<sup>1,2</sup>, 鈴木大貴<sup>1,2</sup>, 常木澄人<sup>2</sup>, 薬師寺啓<sup>2</sup>, 福島章雄<sup>2</sup>, 湯浅新治<sup>2</sup>, 安川雪子<sup>1</sup>, 久保田均<sup>2</sup>  
(千葉工大<sup>1</sup>, 産総研<sup>2</sup>)

Effect of interface modification on electrical synchronization in spin torque oscillator

°Takumi Ando<sup>1,2</sup>, Daiki Suzuki<sup>1,2</sup>, Sumito Tsunegi<sup>2</sup>, Kay Yakushiji<sup>2</sup>, Akio Fukushima<sup>2</sup>, Shinji Yuasa<sup>2</sup>,  
Yukiko Yasukawa<sup>1</sup>, Hitoshi Kubota<sup>2</sup>  
(Chiba Institute of Technology<sup>1</sup>, AIST<sup>2</sup>)

## 背景

スピントルク発振素子(STO)のダイナミクスの理解や高周波特性の改善を目指した研究が行われてきた。近年では、高周波特性の改善<sup>1,2</sup>や連想記憶装置<sup>3</sup>などの新しい応用に向けて、STOの同期現象に注目が集まっている。STOの同期現象は磁氣的<sup>1</sup>または電氣的<sup>2</sup>な相互作用により発現する。電氣的な相互作用を利用した同期現象は発振素子間距離に相互作用の強度が依存しないため、回路の冗長性が高い特徴がある。一方で、磁氣的な相互作用に比べて電氣的な相互作用は弱く、振動子間の周波数差が数 MHz 離れるだけで同期状態が解消されてしまうという課題がある。<sup>2</sup>この同期が維持できる周波数差(同期幅)に関しては、発振条件および材料依存性など関して系統的な実験が少なく、応用上の課題となっている。本研究では、優れた高周波特性を持つ FeB を自由層とする磁気渦型 STO<sup>4</sup>を基本構造として、その同期幅の系統的な評価を行った。

## 実験方法

本研究で用いた磁気渦型 STO の膜構成を図 1(a)に示す。自由層膜厚は 10 nm とし、直径 300 nm の STO を EB リソグラフィおよび Ar イオンミリングにより作製した。膜面垂直方向の磁界  $H$  および直流電圧  $V_{DC}$  を印加し自励発振を励起した。また、同期幅を評価するために基準信号源を用いた強制同期の実験を行った。この時、基準信号と STO の出力信号を完全に区別するために、基準信号の周波数  $f_{AC}$  は STO の発振周波数  $f_{STO}$  の 2 通倍近辺 ( $f_{AC} \sim 2f_{STO}$ ) を用いた。STO に注入される基準信号強度  $P_{AC}$  が -20 dBm となるように、基準信号源の出力強度を調整し実験を行った。

## 実験結果

図 1(b)に直流電圧 400 mV, 磁界 300 mT における STO の発振周波数  $f_{STO}$  の基準周波数  $f_{AC}$  依存性を示す。この直流バイアスにおける STO の発振周波数はおおよそ 512 MHz 程度である。 $f_{AC}/2$  が 511 MHz 以下および 513 MHz 以上において基準信号の周波数に依らず STO の発振周波数は 512 MHz 程度で一定となり、この基準周波数領域では STO は信号源に対して非同期状態であることがわかった。一方で、 $f_{AC}/2$  が 511.5 MHz から 512.8 MHz においては  $f_{AC}/2 = f_{STO}$  と周波数が一致していることから、STO と信号源が同期している様子が観測された。この実験から、FeB 自由層を持つ磁気渦型 STO では 1.3 MHz の同期幅を持つことがわかった。発表では、同期幅の発振条件や材料依存性についても議論を行う。

## 参考文献

- (1) S. Kaka, *et al.*, Nature **437**, 389 (2005).
- (2) R. Lebrun, *et al.*, Nat. Commun. **8**, 15825 (2017).
- (3) A. Kumar, *et al.*, Sci. Rep. **7**, 411 (2017).
- (4) S. Tsunegi, *et al.*, Appl. Phys. Express **7**, 063009 (2014).

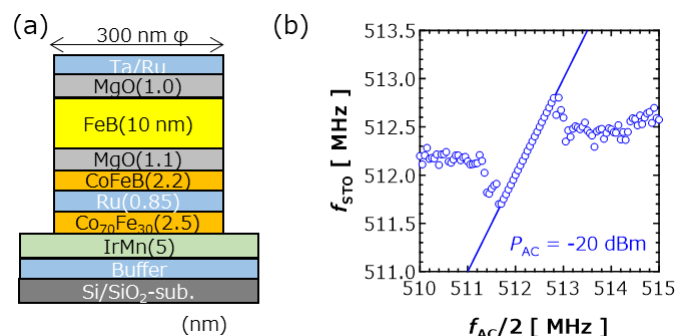


図 1(a)スピントルク発振素子(STO)の素子構造。(b)STO の発振周波数  $f_{STO}$  の基準信号周波数  $f_{AC}$  依存性。

# Energy Harvesting Based on Stress Induced Domain Wall Motion in Soft Magnetic Microwires

**S.N. Piramanayagam,<sup>1</sup> S. Bhatti,<sup>1</sup> C. Ma<sup>2</sup> and X.X. Liu<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>School of Physical and Mathematical Sciences, Nanyang Technological University, Singapore

<sup>2</sup>Department of Electrical and Computer Engineering, Shinshu University, Nagano, Japan.

Energy harvesting is getting significant interest due to the requirement of devices for the emerging internet-of-things (IoT) technology and their requirement of self-generation of power. As a supplement to solar energy based energy harvesting, generation of energy based on magnetic principles is useful. Domain wall propagation in ferromagnetic materials, as induced by stress and a pick-up voltage using coils has been investigated as an alternate form of energy harvesting. We have recently shown that power can be generated from mechanical vibrations in purely ferromagnetic structures. In this talk, we will highlight the details of micromagnetic simulation and experimental work.

For this work, we deposited soft magnetic FeCo films using facing targets sputtering (FTS). The fringing magnetic field from FTS was used to achieve a field-induced anisotropy. The use of suitable underlayers helped to reduce the coercivity of the films and to set the magnetization along the fringing field direction. Lithography was carried out in such a way to achieve microwires with an anisotropy in the orthogonal direction. Stress was applied and the change in the domain pattern was observed using bitter-pattern technique.

Figure 1 shows the changes in the domain pattern as a function of the applied stress. It can be noticed that the domains are densely packed when there was no stress applied. When the stress was increased slightly, the domains expanded. For higher values of stress, the domains disappeared completely. For practical applications, the stress could come from the bending of the substrates due to the picking up of ambient vibrations. For energy harvesting, the resultant change in the domain wall motion could lead to a change in flux and hence a voltage in the pick-up coil. We have made a prototype device with pick-up coil and have obtained voltage pulses of the order of 1 mV in a resistive load of 50 ohms.

In summary, the use of flexible substrates with low Young's modulus and a special magnetic stack enabled us to achieve significant magnetization rotation or domain wall motion even from ambient vibrations. We have exploited the rotation of magnetization or domain wall motion to induce voltages in the pickup coils.

## References

1. Bryan, M. T., Dean, J. & Allwood, D. A. Dynamics of stress-induced domain wall motion. *Physical Review B* 85, doi:10.1103/PhysRevB.85.144411 (2012).

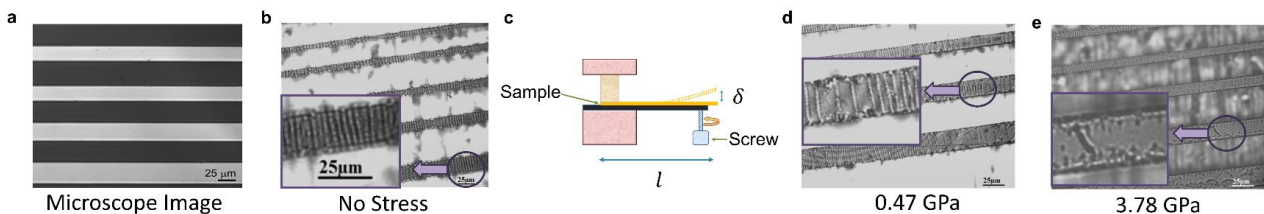


Fig 1. Domain wall images as observed by (a) optical microscope and (b,d,e) bitter-pattern technique (c) Illustration of application of stress, to induce domain wall motion.

# FePt 薄膜における異常エッティングスハウゼン効果の可視化

関剛斎<sup>1,2,3</sup>、井口亮<sup>3</sup>、高梨弘毅<sup>1,2</sup>、内田健一<sup>2,3</sup>  
 ( <sup>1</sup>東北大金研、<sup>2</sup>東北大 CSRN、<sup>3</sup>物材機構)

Visualization of Anomalous Ettingshausen Effect in an FePt thin film

T. Seki<sup>1,2,3</sup>, R. Iguchi<sup>3</sup>, K. Takanashi<sup>1,2</sup>, and K. Uchida<sup>2,3</sup>  
 ( <sup>1</sup>IMR, Tohoku Univ., <sup>2</sup>CSRN, Tohoku Univ., <sup>3</sup>NIMS)

## はじめに

異常ネルンスト効果 (Anomalous Nernst Effect: ANE) と異常エッティングスハウゼン効果 (Anomalous Ettingshausen Effect: AEE) は、強磁性体における熱磁気効果として古くから知られている現象である<sup>1)</sup>。磁化 ( $M$ ) と温度勾配 ( $\nabla T$ ) の外積方向に電圧を生じさせる現象が ANE であり、AEE では電流 ( $J_c$ ) と  $M$  によって  $\nabla T$  が現れる。これら熱磁気効果はエネルギーハーベスティング技術としての応用可能性から注目を集めており、特に ANE はバルク、薄膜を問わず様々な物質において研究が進められている。一方で、AEE の研究報告はバルク強磁性体を対象としたものに限られており<sup>2,3)</sup>、強磁性薄膜における AEE の観測は皆無である。また、スピン流 ( $J_s$ ) と  $M$  の相互作用を起源としたスピンペルチェ効果 (Spin Peltier Effect: SPE)<sup>4,5)</sup> と AEE の対称性の違いについても実証はなされておらず、温度変調のメカニズムを理解するためにも両者の寄与を明確に区別することが重要である。そこで本研究では、ロックインサーモグラフィ法<sup>5-7)</sup>を用いることで、FePt 薄膜試料における AEE の可視化を行った<sup>8,9)</sup>。AEE と SPE の対称性の違いを明確にすることを目指し、さらに、AEE で誘起される温度変調のプロファイルを明らかにすることを目的とした。

## 実験結果

AEE を可視化するための薄膜試料として、SrTiO<sub>3</sub> (100) 基板上にエピタキシャル成長させた FePt (001) 薄膜を用いた。超高真空対応マグネトロンスパッタ装置により 10 nm 厚の FePt 層を 350°C で成長させた後、微細加工プロセスにより FePt 層を 500 $\mu$ m 幅のコの字形状素子へと加工した。交流の  $J_c$  を素子に印加しながら赤外線カメラによる熱画像をロックイン検出することで、ジュール熱の寄与を取り除いた温度変化分の振幅および位相情報を得た。また、AEE と SPE の対称性を調べる目的で、参照試料としてイットリウム鉄ガーネット (YIG) 基板上に 10 nm 厚の Pt 層を成膜した YIG/Pt 素子も作製した。

素子面内方向に磁場を印加する IM 配置では、FePt 素子および YIG/Pt 素子ともに  $J_c$  の極性に依存した発熱および吸熱が観測され、類似のロックイン熱画像が得られた。一方で、面垂直方向に磁場印加した PM 配置では、FePt 素子でのみ明瞭な温度変調が観測された。PM 配置における熱画像の違いは、AEE と SPE の対称性の違いから理解することができ、FePt 素子では AEE が主要なメカニズムとなっており、YIG/Pt 素子における温度変化は SPE によって生じていることが実験的に示された。また、AEE の温度変調プロファイルを詳細に調べた結果、温度変調の空間分布が IM 配置と PM 配置で大きく異なっていることが明らかとなった。数値計算と比較した結果、熱源の分布と基板への放熱を考慮することで実験結果を再現できることがわかった<sup>8)</sup>。

## 参考文献

- 1) S. R. Boona *et al.*, *Energy Environ. Sci.* **7**, 885 (2014).
- 2) P. W. Bridgman, *Phys. Rev.* **24**, 644 (1924).
- 3) E. H. Hall, *Phys. Rev.* **26**, 820 (1925).
- 4) J. Flipse *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 027601 (2014).
- 5) S. Daimon *et al.*, *Nat. Commun.* **7**, 13754 (2016).
- 6) Y. Hirayama *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 163901 (2017).
- 7) K. Uchida *et al.*, *Nature* (2018) doi: 10.1038/s41586-018-0143-x.
- 8) T. Seki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 152403 (2018).
- 9) T. Seki *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* (accepted).



## レーストラックにおけるスカーミオン電流駆動のシミュレーション解析

右田 幸大<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 情報理工学研究科、<sup>2</sup>岐阜大学 工学部

Computer simulations of a Skyrmion motion in a racetrack

Koudai Migita<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

スカーミオンはトポロジカルな安定性を持ったナノスケールの磁化構造であり、非常に小さな電流での駆動が可能であることからスカーミオンを用いたレーストラックメモリの研究が注目されている[1,2]。レーストラックメモリではスピン電流の注入などによってスカーミオンを駆動させながらデータの読み書きを行うため、スカーミオンが存在しやすいポジションをつくることで位置制御を行うことが重要である。本研究では、イオン照射によって垂直磁気異方性を変化[3]させた磁性細線におけるスカーミオンの駆動についてマイクロマグネティックシミュレーションを用いて調査した。

## 計算条件

材料定数は PtCo の値を用い、飽和磁化  $M_s=580 \text{ emu/cm}^3$ 、磁気回転比  $\gamma=1.76 \times 10^7 \text{ rad/(s} \cdot \text{Oe)}$ 、交換スティフネス定数  $A=1.5 \mu \text{ erg/cm}$ 、損失定数  $\alpha=0.3$ 、非断熱項  $\beta=0.3$ 、DMI 定数  $D=3.0 \text{ erg/cm}^2$ 、磁気異方性定数は図 1 のように  $K_u=8.0$  または  $7.5 \text{ Merg/cm}^3$  とした[2]。磁性細線の大きさは  $490 \text{ nm} \times 100 \text{ nm} \times 0.4 \text{ nm}$  とした。このような磁性細線にスカーミオンを 1 つ配置し、スピン電流を印可して+x 方向に駆動させるシミュレーションを行った。スピン電流はパルス幅  $t_p \text{ ns}$  だけ流した後電流を切り、スカーミオンが停止する位置を調査した。

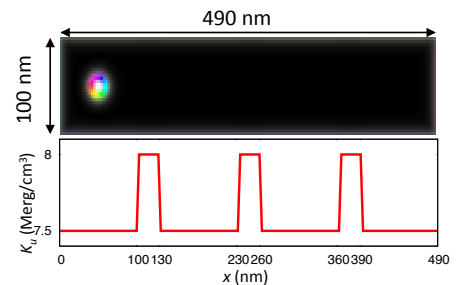


Fig.1 Schematic of the magnetic nanowire and anisotropy.

## 結果

図 2 に電流密度  $J=50 \text{ MA/cm}^2$ 、パルス幅  $t_p=2\sim 14 \text{ ns}$  におけるスカーミオンの中心位置の時間変化を示す。図 2 より、電流を切った後スカーミオンは  $K_u$  が高い領域を避けるように動き、 $K_u$  が低い領域の中心に移動してから静止していることがわかった。よって  $K_u$  が低い領域の中心をビットポジションとして定めることができる。図 3 に電流密度とパルス幅によるスカーミオンの静止位置の変化を示す。 $J=30 \text{ MA/cm}^2$  以下の場合、スカーミオンは  $K_u$  が高い領域がピンングサイトの役割を果たし移動できないことがわかった。 $J=50 \text{ MA/cm}^2$  以上の場合、スカーミオンはピンングされることがなく、パルス幅によって静止位置が変化していることがわかった。

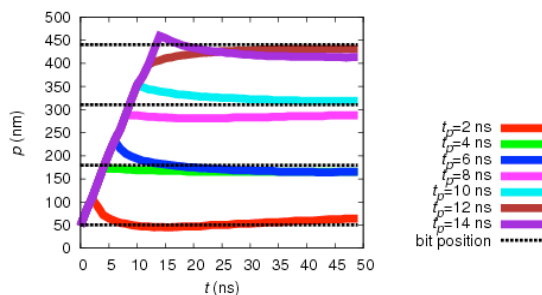


Fig.2 The trajectories of the Skyrmion at various pulse width for  $J=50 \text{ MA/cm}^2$

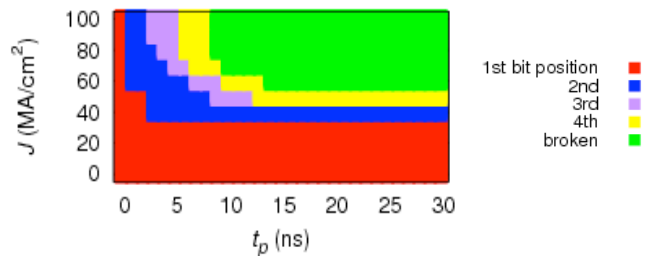


Fig.3 Stopped position of a Skyrmion at various current  $J$  and pulse width  $t_p$

## 参考文献

- [1] T. H. R. Skyrme, Proc. Roy. Soc. Lond. A 31, 556(1962) [2] J. Sampaio, et. al., Nat. Nano. 8, 839 (2013)  
 [3] C.T.Rettner, et.al., Appl.Phys. Lett., 80, 279 (2002)

## ナノマグネット・リカレントニューラルネットワークにおける 短期記憶能力と非線形演算能力

鎌開雄規, 野村 光, 古田大志, 鈴木義茂, 中谷亮一

(阪大)

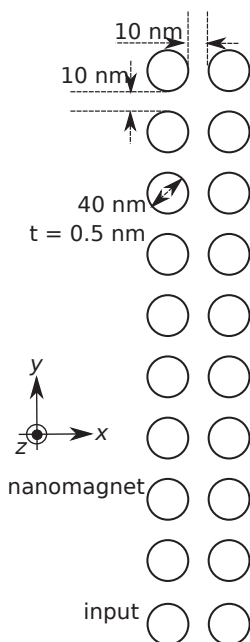
Short term memory and non-linearity in nanomagnet recurrent neural network

Y. Kuwabiraki, H. Nomura, T. Furuta, Y. Suzuki, R. Nakatani

(Osaka Univ.)

近年、ニューラルネットワークを用いた人工知能は目覚ましい成果を上げている。ディープラーニングなどの現在の人工知能の多くは、recurrent neural network (RNN)<sup>1)</sup> と呼ばれるニューラルネットワークを利用しており、計算機によりこの RNN の状態を計算している。RNN は、情報を保持する多数のノードから構成されており、ノード間には情報のやり取りを行うノード間非線形結合が定義されている。また、このノード間結合によりノード間にはクロズドループを持つ部分も存在する。このクロズドループにより、RNN は現在の情報だけでなく、過去の情報をも含んだ機械学習を可能としている。しかしながら、クロズドループを含む系の状態を計算機により計算する場合、多くの計算リソースを必要とする。現在、ディープラーニングにおける計算機の消費電力は無視できない程増大しており、その消費電力を低減させることが急務となっている。

RNN の消費電力を低減させることを目的にニューラルネットワークを何らかの物理現象で置き換える試みがなされている。これまでに RNN を拡張した reservoir computer (RC)<sup>2)</sup> を用い、光を利用した RC<sup>3)</sup>、磁性ドットのダイナミクスを使用した RC<sup>4)</sup> などが報告されている。いずれの手法も MHz から GHz 程度の周波数帯で動作する。このため、音声認識や異常振動検出といった低周波数での用途には周波数を変換して使用する必要があり、別途計算リソースを必要とする。そこで我々は、より低周波の信号を直接扱うことのできる磁性ドットアレイを用いた RNN, nanomagnet RNN (NM-RNN) を提案している<sup>5)</sup>。これまでに、NM-RNN は短期記憶能力ならびに非線形演算能力を有することが明らかとなっている。しかしながら、NM-RNN のノード数と短期記憶能力ならびに非線形演算能力との関係は未だ明らかとなっていない。そこで本研究では、マクロスピンシミュレーションを用い、NM-RNN のノード数に依存した短期記憶能力と非線形演算能力との関係を明らかにすることを目的とする。



**Fig. 1** Schematic top view of typical nanomagnet recurrent neural network

図 1 に NM-RNN の一例を示す。本研究では、 $N$  行 2 列の NM-RNN を用いる。図 1 に示した NM-RNN は、 $10 \times 2$  個の磁性ドットから構成されている。それぞれの磁性ドットは、垂直磁化膜から構成され、磁性ドット間には静磁気相互作用が働く。この静磁気相互作用により、ノード間にはクロズドループが形成される。本研究では、静磁気相互作用として、磁気双極子相互作用を仮定した。また、 $z$  軸方向に磁化容易軸をもつとし、Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を 4 次の Runge-Kutta 法にて解くことにより、各磁性体の磁化の安定状態を計算した。

本研究では、NM-RNN の性能を評価するためバイナリタスクを利用した。各磁性ドットの磁化の  $x$  成分を NM-RNN の各ノードの状態とした。情報の入力には、ランダムに生成した“0”もしくは“1”の情報を使用した。NM-RNN の状態の更新には、情報が  $+y$  の向きへと流れる様、各磁性ドットの磁気異方性定数を変化させた。

その結果、磁性ドットの数  $+y$  方向に増加させると短期記憶能力を向上させることが明らかとなった。一方で、非線形演算能力の向上は、短期記憶能力の向上と比較し緩やかなものとなった。より高性能な NM-RNN の実現には、素子の構造を変更することにより非線形演算能力を向上させることが必要となる。

本研究は総務省による委託研究「次世代人工知能技術の研究開発 II 人間の脳の演算処理メカニズムに倣った脳型演算処理技術の研究開発」のもと実施されました。

### References

- 1) H. T. Siegelmann and E. D. Sontag: *Appl. Math. Lett.*, **4**, 77 (1991).
- 2) H. Jaeger: *techreport GMD – German National Research Institute for Computer Science*, 148 (2001).
- 3) K. Vandoorne, P. Mechet, T. V. Vaerenbergh, M. Fiers, G. Morthier, D. Verstraeten, B. Schrauwen, J. Dambre and P. Bienstman: *Nature Comm.*, **5**, 3541 (2014).
- 4) J. Torrejon, et al.: *Nature*, **547**, 428 (2017).
- 5) 野村光, 中谷亮一, ペーパー フェルディナンド, 田村英一, 三輪真嗣, 後藤稔, 鈴木義茂: 応用物理学会春季講演大会 18p-D104-4 (2018).

## Selective resonance reading from double-layer recording magnetization using a spin-torque oscillator

Taro Kanao, Hirofumi Suto, Koichi Mizushima, and Rie Sato

(Corporate Research & Development Center, Toshiba Corporation, Kawasaki 212-8582, Japan)

Three dimensional (or multilayer) magnetic recording which utilizes ferromagnetic resonance (FMR) has been proposed as a method for increasing the recording density<sup>1,2,3</sup>. The recording layers have different FMR frequencies, which enables selective writing or reading of a layer by applying microwave field with a respective frequency. The microwave field is generated by a spin-torque oscillator (STO). This write operation is a multilayer version of microwave-assisted magnetization switching (MAS)<sup>4,5</sup>. The MAS has been investigated because its application for next-generation assisted recording has been expected.

The read operation utilizes changes in the STO oscillation which occur when the STO induces FMR excitation in a recording layer. This method is thus called resonance reading. The layer-selective FMR excitation has been shown in magnetic multilayer films by using a signal generator<sup>6,7</sup>. The resonance reading using the STO has been demonstrated on a sample where the STO and a recording magnetization are fabricated close<sup>8</sup>. By using micromagnetic simulation, transient magnetization dynamics during the resonance reading (from a single recording layer) has been studied and a response within a time scale of 1 ns has been shown<sup>9</sup>. Based on the obtained waveform of the STO, detection methods for the resonance reading have been proposed<sup>10,11</sup>.

Recently, we have demonstrated the selective resonance reading from double-layer recording magnetizations using the STO in micromagnetic simulation<sup>12</sup>. Figure 1 shows schematic of the STO and the recording magnetizations with double recording layers. The STO consists of a perpendicular free layer and in-plane fixed layer<sup>13</sup>. Each recording layer consists of a soft layer and a hard layer, which have lower and higher perpendicular anisotropies, respectively. The soft layers are used in the read operation, while the hard layers keep written data. The magnetizations of the soft and hard layers are directed in opposite perpendicular directions by interlayer antiferromagnetic coupling. The magnetization states of the recording layers are called up or down states depending on the magnetization direction of the soft layers. For the recording magnetizations (RMs) an external perpendicular field  $H_z^{\text{RM}}$  is applied, which makes the FMR frequencies different for the up and down states. Parameters are chosen so that following two conditions are met. The first condition is that the response of the STO for the FMR excitation in the soft layer 2 is large enough. The second condition is that the FMR frequency of the soft layer in one recording layer is unaffected by the magnetization state of the other recording layer.

Figure 2 shows the waveforms of the magnetizations obtained in the micromagnetic simulation where the STO is moved over an array of 6 recording magnetizations with staggered magnetization configuration. The time evolution of the  $y$ -components of the magnetizations are shown. The  $y$ -component of the STO corresponds to a signal by the magnetoresistive effect since the magnetization of the fixed layer is in the  $y$ -direction. The STO oscillation frequency is set near to the FMR frequency of the soft layer 2 in the down state. In Fig. 2(a), when the STO approaches the soft layer 2 in down state, the magnetization oscillation is excited. At the same time, the STO oscillation amplitude decreases owing to increased effective damping. When the STO is near the soft layer 2 in the up state, the amplitude recovers. From this difference in the oscillation of the STO, the magnetization states in the recording layers 2 can be detected. In Fig. 2(b), the magnetization directions of the recording layer 1 are opposite to those in Fig. 2(a). It is found that the waveforms are almost the same. This result means that the magnetization directions of the recording layers 2 can be detected independent of those of the recording layer 1. The independent detection of the magnetization direction in a recording layer enables the layer-selective reading as if there are two single-layered discs on one medium. In the presentation, future problems on the layer-selective resonance reading will be discussed, such as effects of stray fields between the recording magnetizations.

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

### Reference

- 1) G. Winkler *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 232501 (2009).

- 2) S. Li *et al.*, J. Appl. Phys. **105**, 07B909 (2009).
- 3) H. Suto *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 07MA01 (2016).
- 4) J.-G. Zhu *et al.*, IEEE Trans. Magn. **44**, 125 (2008).
- 5) S. Okamoto *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 353001 (2015).
- 6) T. Yang *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **332**, 52 (2013).
- 7) T. Yang *et al.*, J. Appl. Phys. **114**, 213901 (2013).
- 8) H. Suto *et al.*, Nanotechnology **25**, 245501 (2014).
- 9) T. Kanao *et al.*, J. Appl. Phys. **123**, 043903 (2018).
- 10) Y. Nakamura *et al.*, AIP Advances, **8**, 056512 (2018).
- 11) Y. Nakamura *et al.*, to appear in IEEE Trans. Magn. (2018).
- 12) T. Kanao *et al.*, T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues) **2**, 10 (2018).
- 13) H. Kubota *et al.*, Appl. Phys. Express **6**, 103003 (2013).

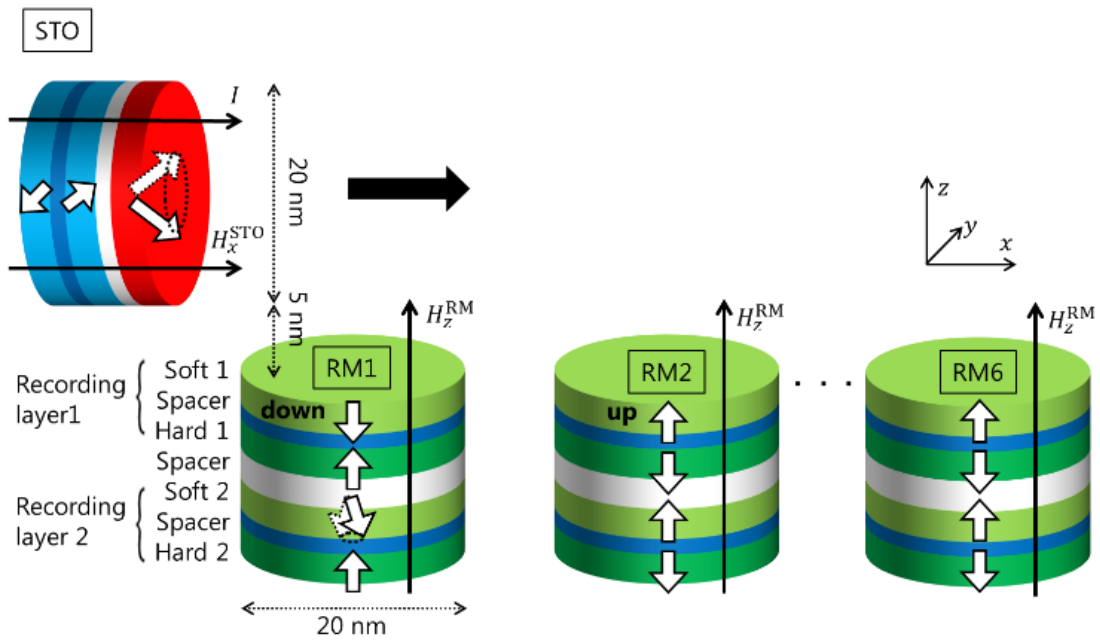


Fig. 1. Schematic of a spin-torque oscillator (STO) and recording magnetizations with two recording layers (RMs).

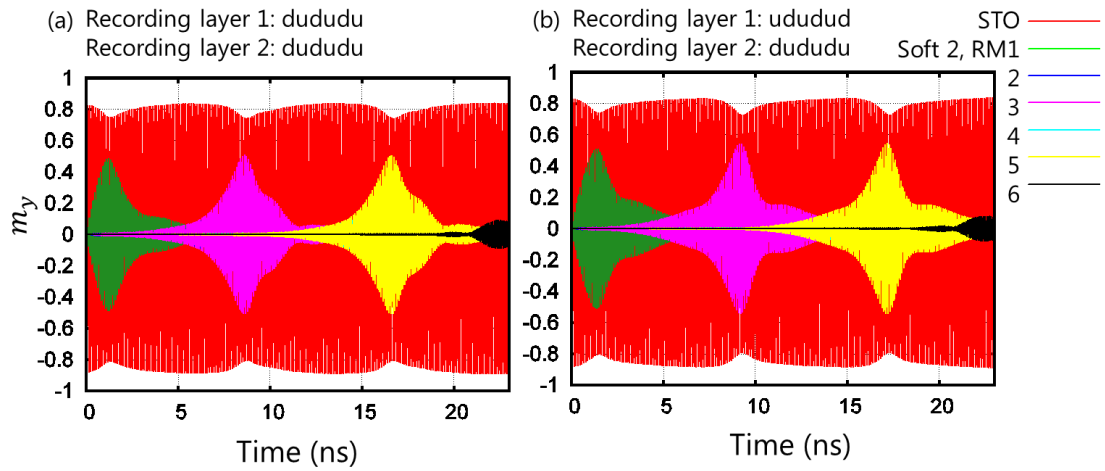


Fig. 2. Time evolution of  $y$ -components of magnetizations. In (b), magnetization directions of recording layer 1 are opposite to those in (a). Letters “u” and “d” denote up and down states of the recording layers.

# Signal processing for STO reading in three dimensional magnetic recording

Y. Nakamura<sup>1</sup>, M. Nishikawa<sup>1</sup>, Y. Okamoto<sup>1</sup>, T. Kanao<sup>2</sup>, and R. Sato<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Science and Engineering, Ehime University, Matsuyama 790-8577, Japan

<sup>2</sup>Corporate Research and Development Center, Toshiba Corporation, Kawasaki 212-8582, Japan

## 1. Introduction

Three-dimensional magnetic recording with antiferromagnetically coupled (AFC) medium<sup>1</sup> has been proposed as a candidate of the prospective recording technologies, and it uses a spin-torque oscillator (STO)<sup>2</sup> as a reading sensor as well as a write-assisting device for the microwave assisted magnetic recording (MAMR)<sup>3</sup>. The reproducing waveform in the reading process using the STO is given as temporal dynamics of magnetization calculated by the micromagnetic simulation<sup>2</sup>. However, the amount of data obtained by the simulation is too short to evaluate signal processing schemes. We proposed the envelope model to develop the data detection scheme for the temporal magnetization dynamics of a resonantly interacting STO flying over bit patterned media.

## 2. Reading based on interaction between magnetic medium and STO

The reproducing waveform in the reading process using the STO is given as temporal dynamics of magnetization calculated by the micromagnetic simulation<sup>2</sup> shown in Fig. 1. We assumed that the relative velocity between the medium and the STO, the dot diameter and pitch are 20 m/s, 20 nm and 25 nm<sup>2</sup>, respectively. The dashed line and cross symbols show the temporal magnetization dynamics normalized by the saturation level of the STO magnetization,  $A$  and the sampled envelope with each dot interval, respectively. The horizontal axis shows the time normalized by the channel dot interval  $T_c$ . The recorded data pattern is "000111000111" as shown in bottom of Fig. 1, and the STO reacts to the recorded dots for "0". As can be seen from the figure, the normalized amplitude of STO oscillation waveform decreases as the STO comes close to the recorded dots for "0". On the other hand, as it leaves from the recorded dot of "0", the amplitude increases again. Here, we focus the change of the amplitude between the detection target and the previous dot. If "0" is recorded, the difference of amplitude is negative. On the other hand, if "1" is recorded, the difference is positive. Therefore, the recording pattern can be detected by the differential amplitude of the envelope.

## 3. Read/Write channel model for signal processing

The amount of data obtained by the micromagnetic simulation is too short to evaluate signal processing systems. We proposed the envelope model to develop the data detection schemes<sup>4</sup>. The envelope model is obtained by the convolution operation of the attenuation functions for the dots of "0" and "1" shown in Fig.2 according to the data pattern. Under observation of the envelope, we noticed that the partial response channel was applicable to improve the performance. We evaluate the performances of the differential detection for the envelope and a soft-output Viterbi algorithm (SOVA)<sup>5</sup> detection for partial response class-I (PR1)<sup>6</sup> channel. In addition, we apply the idea of adding another STO with the opposite behavior to the PR channel in order to improve the reading performance. We add another STO which reacts to the recorded dot of "1". Thus, we employ the dual STO with the reaction to "0" and "1".

## 4. Performance evaluation

Figure 3 shows the bit error rate (BER) performance for the system noise ( $\text{SNR}_S$ )<sup>4</sup>. The symbols of square, triangle, and circle show the performances of the differential detection, the SOVA detection with single STO, and the SOVA detection with dual STO, respectively. The vertical and horizontal axes show the BER performance and  $\text{SNR}_S$ . As can be seen from the figure, the differential detection cannot achieve the BER of  $10^{-2}$  at  $\text{SNR}_S = 30$  dB. However the SOVA detections show better BER performance than the differential detection. Moreover, the SOVA detection with dual STO achieves the BER of  $10^{-4}$  at the required  $\text{SNR}_S$  of 25.2 dB, while the SOVA detection with the single STO needs the  $\text{SNR}_S$  of about 28.0 dB. Therefore, the SOVA detection with dual STO improves the  $\text{SNR}_S$  by about 2.8 dB compared with the SOVA detection with single STO.

## Acknowledgements

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

## Reference

- 1) H. Suto, T. Nagasawa, K. Kudo, K. Mizushima, and Rie Sato, *Nanotechnology*, **25**, 245501 (2014).
- 2) T. Kanao, H. Suto, K. Kudo, T. Nagasawa, K. Mizushima, and R. Sato., *J. Appl. Phys.*, **123**, 043903 (2018).
- 3) J. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang, *IEEE Trans. Magn.*, **44**, 125 (2008).
- 4) Y. Nakamura, M. Nishikawa, H. Osawa, Y. Okamoto, T. Kanao, and R. Sato, *AIP Advances*, **8**, 056512 (2018).
- 5) J. Hagenauer and P. Hoehner, *Proceedings of IEEE GLOBECOM*, 1680 (1989).
- 6) E. R. Kretzmer, *IEEE Trans. Commun. Technol.* **COM-14**, 67 (1966).

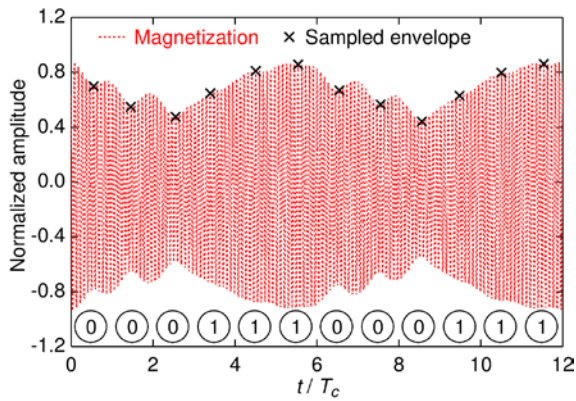


Fig. 1 Magnetization of STO and sampled envelopes.

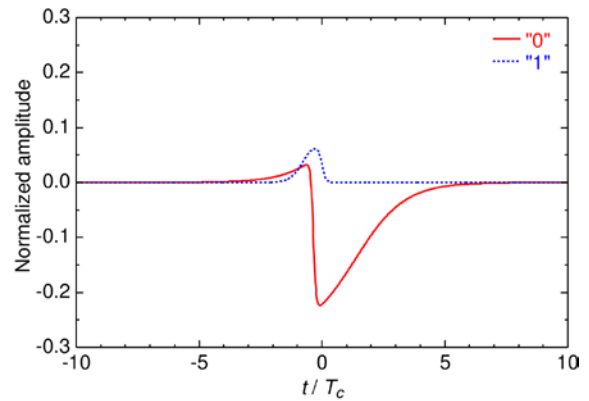


Fig. 2 Attenuation function for STO.

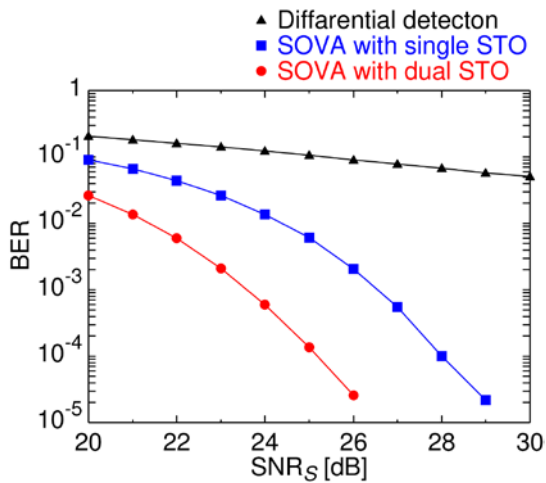


Fig. 3 BER performance.

# Microwave assisted magnetic recording on media with multiple, discrete recording layers

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), in which a spin torque oscillator (STO) is used to locally reduce the switching field of a recording medium, allowing information to be recorded on high anisotropy media, is actively being developed for use in future hard disk drives.

If a recording medium has two discrete recording layers it is possible to use MAMR to selectively record on one layer or the other by tuning the frequency of the STO to the resonance frequency of the target recording layer. Given that the spacing between the two recording layers must be small, e.g. 1 - 3 nm, magnetostatic interactions between the layers become a problem. In this work we examine the requirements for multiple layer recording and possible options to reduce the effect of magnetostatic interactions between layers, and between grains within the same layer.

## AFC media

Antiferromagnetically coupled (AFC) media were originally developed for longitudinal recording [1], however, it is also possible to make perpendicular AFC media [2]. In such structures, consisting of two magnetic layers separated by a material such as Ru or Ir, an anti-parallel alignment of the magnetisation is favoured, reducing the stray magnetic field emanating from the structure.

In addition to reducing magnetostatic interactions between AFC structures, interactions between grains in the same structure are also reduced. This results in much higher signal to noise ratios (SNR) for tracks written at high linear densities as a result of lower transition jitter [3]. An example of this is shown in fig. 1, which shows the positions of 600 transitions written on AFC and single layer (SL) media. Fits with error functions show the reduction in transition jitter when using AFC media.

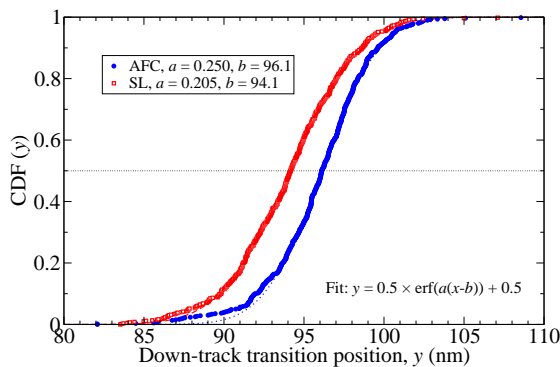


Fig. 1: Positions of 600 transitions written on AFC and single layer (SL) media. 30 nm bit length.

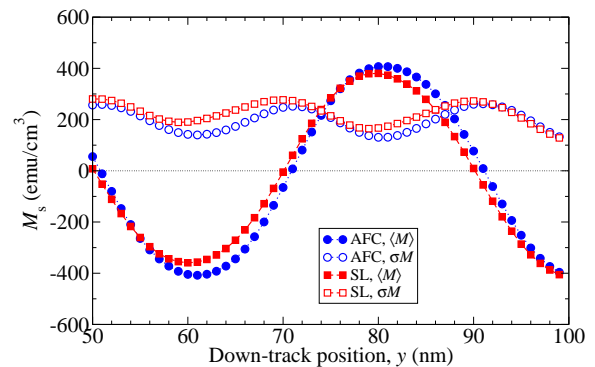


Fig. 2: Average magnetisation and standard deviation of the magnetisation of two 20 nm-long bits written on AFC and SL media. Magnetisation of AFC hard layer is shown.

A second reason for the higher SNR of AFC media is a reduction in magnetisation fluctuations within written bits. Fig. 2 shows the average magnetisation of bits written on AFC and SL media. The magnetisation of the hard layer of the AFC media is shown. The bits written on AFC media

had slightly higher average magnetisation, but the standard deviation of the magnetisation was lower, resulting in lower noise during readback.

### Media with two discrete recording layers

To select the properties of each layer in a medium containing two discrete recording layers an analysis similar to that shown in fig. 3 is carried out. For a given head field and high frequency (HF) field generated by a STO the maximum switchable  $H_k$  of grains in recording layers 1 and 2 (RL1 and RL2) is calculated. Subsequently,  $H_{k1}$  is chosen such that a grain in RL1 can be switched by a HF field of frequency  $f_1$ , but cannot be switched by  $f_2$ .  $H_{k2}$  is chosen in a similar manner.

Having determined the  $H_k$  and HF field frequencies, tracks can be written on each layer. Magnetostatic interactions between layers favour a parallel alignment of the magnetisation in RL1 and RL2 which can degrade the recording performance. To counteract this a small amount of antiferromagnetic exchange coupling,  $J_{IL}$ , can be introduced between RL1 and RL2. Fig. 4 shows the SNR of tracks written in RL1 and RL2 with and without antiferromagnetic exchange [4]. The SNR was increased when antiferromagnetic exchange was used. An alternative approach is to use AFC structures in RL1 and RL2. However, this will not completely eliminate magnetostatic interactions between the layers.

Fig. 4 also shows a strong dependence of the SNR on the write head velocity. The main cause of the SNR reduction at higher head velocities was a decrease in the magnetisation switching probability. This suggests that there is some critical part of the HF field that initiates magnetisation reversal.

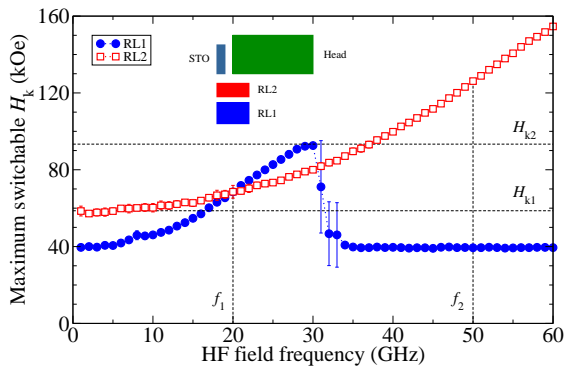


Fig. 3: Maximum switchable  $H_k$  of grains in RL1 and RL2 as a function of HF field frequency. Structure is: 7 nm RL1 / 2 nm IL / 5 nm RL2 / 3.5 nm Air / Write head

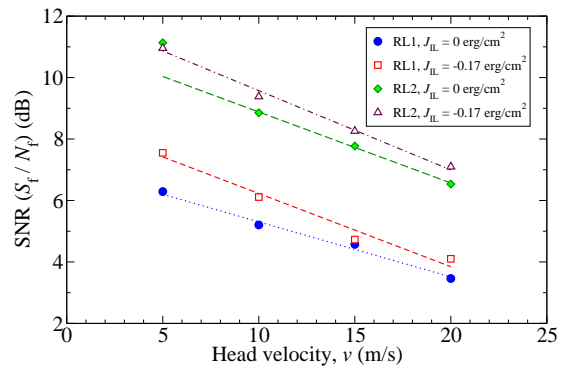


Fig. 4: SNR vs. write head velocity for 847 kfc tracks written on RL1 and RL2 with and without antiferromagnetic coupling between RL1 and RL2.

### References

- [1] N. Abarra, A. Inomata, H. Sato, I. Okamoto, and Y. Mizoshita, “Longitudinal magnetic recording media with thermal stabilization layers,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, pp. 2581–2583, 2000.
- [2] Y. Nakayama, Y. Kusanagi, T. Shimatsu, N. Kikuchi, S. Okamoto, and O. Kitakami, “Microwave-assistance effect on magnetization switching in antiferromagnetically coupled CoCrPt granular media,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 52, pp. 3201203–1–3, July 2016.
- [3] S. J. Greaves, Y. Kanai, and H. Muraoka, “Antiferromagnetically coupled media for microwave-assisted magnetic recording,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 54, pp. 3000111–1–11, Feb. 2018.
- [4] S. J. Greaves, T. Kikuchi, Y. Kanai, and H. Muraoka, “Optimising dual layer recording using antiferromagnetic exchange coupling,” *IEEE Trans. Magn.*, (accepted).



# Theory of Microwave Assisted Magnetization Reversal

Tomohiro Taniguchi

Spintronics Research Center, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology,  
Tsukuba 305-8568, Japan

Microwave assisted magnetization reversal (MAMR) has been attracted much attention from viewpoints of both fundamental physics and practical application such as a high-density magnetic recording. The basic idea of MAMR is that microwave having the frequency close to ferromagnetic resonance (FMR) frequency efficiently excites an oscillation of the magnetization around the easy axis and assists the magnetization reversal by a small direct field<sup>1)</sup>. A quantitative analysis on a relation between the switching field and microwave frequency has been made by using the Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) equation in a rotating frame<sup>2)</sup>. In the rotating frame, the microwave field is converted to a direct field proportional to the microwave frequency. This additional field in the rotating frame has been considered as an origin of the reduction of the reversal field<sup>3)</sup>. We should, however, point out that this theoretical view is insufficient to understand the mechanisms of MAMR. According to this physical picture, the reversal field is expected to be monotonically decreased with increasing the microwave frequency because the magnitude of the additional field is proportional to the frequency. The numerical simulation of MAMR, however, revealed the existence of a critical frequency, where the reduction of the reversal field is observed only for the frequency lower than the critical value<sup>1)</sup>. As can be seen in this example, it seems that the physical mechanism of MAMR is still not fully understood yet.

In this work, we present a theory of MAMR based on the LLG equation in the rotating frame<sup>4,5)</sup>. We notice that the microwave field in the rotating frame provides not only the direct field but also a torque pointing in the direction of the damping torque. Interestingly, this damping-like torque prevents the switching. In addition, this torque can be mathematically regarded as a spin-transfer torque<sup>6)</sup>. Using this analogy between MAMR and spin-transfer phenomena, we derived equations determining the switching fields in both low and high frequency regions separated by the critical frequency<sup>4)</sup>. A quantitative agreement between our theory and macrospin simulation guarantees the validity of our study. The analytical formula of the critical frequency is also obtained as<sup>5)</sup>

$$f = \frac{\gamma}{2\pi} H_K \frac{(H_{ac}/H_K)^{2/3}}{\sqrt{1 - (H_{ac}/H_K)^{2/3}}} \left[ 2 - \frac{5}{3} (H_{ac}/H_K)^{2/3} \right], \quad (1)$$

where  $\gamma$ ,  $H_{ac}$ , and  $H_K$  are the gyromagnetic ratio, magnitude of the microwave field, and magnetic anisotropy of the recording bit. The present works<sup>4,5)</sup> provide a comprehensive picture of MAMR, and will be useful for designing magnetic devices utilizing MAMR.

## Reference

- 1) J. G. Zhu, X. Zhu, and Y. Tang, *IEEE Trans. Magn.* **44** (2008) 125.
- 2) G. Bertotti, A. Magni, I D. Mayergoyz, and C. Serpico, *J. Appl. Phys.* **89** (2001) 6710.
- 3) S. Okamoto, M. Igarashi, N. Kikuchi, and O. Kitakami, *J. Appl. Phys.* **107** (2010) 123914.
- 4) T. Taniguchi, *Phys. Rev. B* **90** (2014) 024424.
- 5) T. Taniguchi, D. Saida, Y. Nakatani, and H. Kubota, *Phys. Rev. B* **93** (2016) 014430.
- 6) J. C. Slonczewski, *J. Magn. Magn. Mater.* **159** (1996) L1.

## Design and development of all-in-plane spin-torque-oscillator for microwave assisted magnetic recording

H. Sepehri-Amin, W. Zhou, S. Bosu, Y. Sakuraba, S. Kasai, and K. Hono

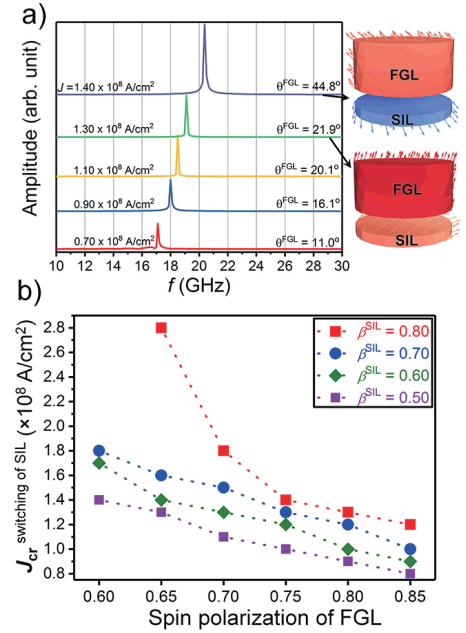
Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, National Institute for Materials Science, Tsukuba 305-0047, Japan

Microwave assisted magnetic recording (MAMR) is a promising technology to overcome the stagnated areal density increase of hard disk drives. However, its most essential part, spin-torque-oscillator (STO) specific to the MAMR application, has not been established. The STO device for MAMR should have a diameter smaller than 40 nm, total thickness smaller than 25 nm, and a capability to generate large magnetic flux,  $\mu_0 H_{ac} > 0.1$  T, with a frequency over 20 GHz at a small current density  $J < 1.0 \times 10^8$  A/cm<sup>2</sup> [1]. We have recently demonstrated experimentally mag-flip STO, that can oscillate with resonance frequency of 21-25.5 GHz and produce an  $\mu_0 H_{ac}$  of 0.15 T [2,3]. However, the main disadvantage of the mag-flip STO is its large thickness due to the need for  $\sim 10$  nm out-of-plane magnetized FePt. In addition, the required  $J$  for oscillation of mag-flip STO is over  $4.3 \times 10^8$  A/cm<sup>2</sup> that needs to be substantially reduced for the practical application [3]. In this study, we numerically demonstrate the potential of the all-in-plane STO, which composes in-plane magnetized spin-injection layer (SIL) and field-generating layer (FGL), that can possess smaller thickness and driving current density compared to the mag-flip STO.

Micromagnetic simulations showed that the magnetization direction of SIL can be switched to the opposite direction to that of the applied external magnetic field by use of spin-transfer-torque that results in oscillation of FGL with a large cone angle at a reduced  $J$ . An example is shown in Fig. 1 (a) in which when the current density increases from  $1.3 \times 10^8$  A/cm<sup>2</sup> to  $1.4 \times 10^8$  A/cm<sup>2</sup>, magnetization of SIL switches opposite to the applied magnetic field direction. Thereafter, increase of resonance frequency to 20GHz and increase of oscillation cone angle to  $\sim 45^\circ$ . We designed SIL to reduce the critical current density,  $J_{cr}$ , required for the magnetization switching of SIL. The materials with a smaller  $\mu_0 M_s$  and spin polarization ( $\beta$ ) in SIL results in reduction of  $J_{cr}$  and enables STO to oscillate with frequency of above 20 GHz with a large out-of-plane oscillation cone angle of 45-50°. The validity of this finding was studied experimentally by developing STO with different SIL materials; Heusler Co<sub>2</sub>Fe(Al<sub>0.5</sub>Si<sub>0.5</sub>) and Fe<sub>67</sub>Co<sub>33</sub>. The former showed B2 crystal structure with a large spin polarization and latter has A2 crystal structure with smaller spin polarization. The magnetization configuration of SIL and FGL in STO with  $\sim 60$  nm diameter is investigated experimentally based on the field dependent resistance change measured at room temperature and low temperature and discussed based on the micromagnetic simulations. We also found that large  $\beta$  of FGL is beneficial to reduce  $J_{cr}$  as shown in Fig. 1 (b). We studied the underlying physics for this based on the spin accumulation in SIL for different spin polarization of FGL. By increase of  $\beta^{FGL}$ , more reflected spins from FGL/Ag interface toward to SIL layer with opposite direction to the magnetization of SIL was realized that will be beneficial for magnetization switching of SIL. We will discuss how the magnetization switching of SIL lead to an increase of oscillation cone angle of FGL, reduction of  $J$  for oscillation of STO, and an increase of oscillation frequency.

**Acknowledgement:** This work was in-part supported by Grant-in-Aids for Young Scientific Research B (17K14802).

**References:** [1] Takeo A. *et al.*, Intermag Conference 2014 (AD-02). [2] Bosu S. *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**,072403 (2016). [3] Bosu S. *et al.*, Appl. Phys. Lett. **108**,072403 (2017).



**Figure 1:** (a) RF spectra calculated from  $M_x$  oscillation of FGL for  $\beta^{SIL} = 0.80$  and  $\beta^{FGL} = 0.75$  for different  $J$ . The oscillation cone angle of FGL is also shown. (b) Critical current density required for the magnetization switching of SIL as a function of  $\beta^{FGL}$  and varied  $\beta^{SIL}$ .

## Microwave assisted switching on CoCrPt based granular media

N. Kikuchi<sup>1,2</sup>, K. Shimada<sup>3</sup>, S. Kikuchi<sup>3</sup>, K. Sato<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1,2</sup>, O. Kitakami<sup>1,2</sup>, T. Shimatsu<sup>2,3,4</sup>  
 (<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ, <sup>2</sup>CSRN Tohoku Univ, <sup>3</sup>FRIS Tohoku Univ, <sup>4</sup>RIEC Tohoku Univ.)

Microwave assisted magnetic recording (MAMR) is one of the candidate technologies to realize further recording density [1]. In MAMR, magnetization switching field is reduced by radio-frequency (rf) field with GHz frequency range so that media with higher thermal stability can be used. Magnetization switching behavior under rf field, so-called microwave assisted switching (MAS), has been widely studied experimentally and theoretically [2-5]. Analytical and numerical studies based on the macrospin model have predicted that the switching field linearly decreases with increase of rf field frequency ( $f_{rf}$ ) up to the critical frequency, at which assistance effect vanishes [2,3]. Experimental results on isolated nanostructures also follows the theoretical prediction, indicating that the MAS behavior can be well described by the macrospin model in isolated structures [4]. From practical point of view, it is important to study MAS behavior of CoCrPt granular media, in which there exist intergranular exchange/magnetostatic interaction and distribution of crystalline/magnetic properties. Experimentally reported MAS behavior of CoCrPt granular media shows different tendency from that of the macrospin model, for instance smaller assistance effect and broader frequency dependence [5]. Numerical studies on granular media have suggested that rf field with sufficiently large amplitude is required to realize large switching field reduction. Recently we have reported that MAS effect in granular media shows strong field amplitude dependence, and the coercivity reduction ratio can reach to 50 % by applying linearly polarized rf field with amplitude close to 1 kOe [6].

In this study, we present experimental results of MAS behavior on CoCrPt granular media quantitatively evaluated by detecting anomalous Hall effect (AHE). Figure 1 shows schematic structure of the prepared sample. CoCrPt granular film of 15 nm in thickness was patterned into a rectangular shape of  $1.0 \times 3 \mu\text{m}^2$ , with four terminal electrodes for AHE measurement. A gold line of 1.0  $\mu\text{m}$  in width for rf field application was fabricated underneath the structure separated by a  $\text{SiO}_2$  layer of 100 nm in thickness. In-plane linearly polarized magnetic field was generated by applying rf pulsed current with frequency  $f_{rf} = 2 - 25$  GHz to the gold line. The maximum field amplitude was evaluated to be 950 Oe at the sample position. The rf field was applied as pulses with fixed duration of 20 ns to minimize heating effect due to Joule heating. All AHE curves were measured by detecting AHE as a function of dc field along film normal. Figure 2 shows normalized AHE curves measured as a function of dc field  $H_{dc}$ . Coercivity decreases with increase of rf field frequency, without significant change of the slope of AHE curves. The coercivity reaches minimum value of 2.4 kOe at  $f_{rf} = 18$  GHz, which is almost half of the coercivity for without rf field (4.7 kOe).

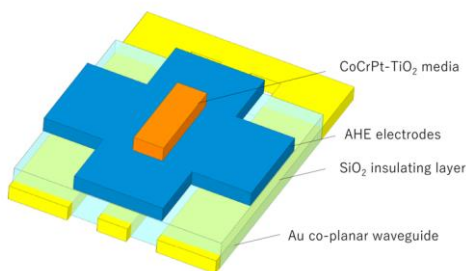


Fig. 1 Schematic illustration of fabricated sample

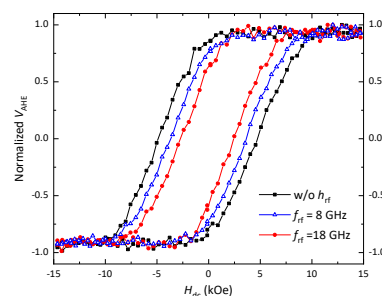


Fig. 2 AHE curves of CoCrPt media measured with rf field ( $f_{rf} = 8, 18$  GHz) and without rf field.

### Reference

- 1) J.-G. Zhu, *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 125 (2008).
- 2) G. Bertotti, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 724 (2001).
- 3) S. Okamoto, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **107**, 123914 (2010)
- 4) M. Furuta, *et al.*, *APEX* **6**, 053006 (2013).
- 5) S. Okamoto, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 202405 (2013).
- 6) K. Shimada *et al.*, MORIS 2018 Technical Digest, Tu-P-01 (2018)

# Microwave-Field-Induced Magnetization Excitation and Magnetization Switching of an Antiferromagnetically Coupled Magnetic Bilayer with Perpendicular Magnetization

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

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

## I. Background

Antiferromagnetically coupled (AFC) media that consists of two antiferromagnetically coupled magnetic layers has been explored for magnetic recording [1]. Because the AFC media reduces the dipolar interaction, it improves the reliability of writing and the stability of data. In microwave-assisted magnetic recording (MAMR), which is a candidate for next-generation magnetic recording [2,3], the dipolar interaction raises other concerns. MAMR utilizes large-amplitude ferromagnetic resonance (FMR) excitation in media magnetization to assist writing, and the dipolar interaction leads to the distribution in FMR frequency and the collective magnetization excitation in multiple grains. In this respect, AFC media is considered to be advantageous for MAMR [4,5]. In this study, we fabricate an AFC magnetic dot consisting of two Co/Pt multilayers and investigate magnetization excitation and switching in a microwave field.

## II. Experimental setup

Figure 1 shows the experimental setup. A magnetic film consisting of two Co/Pt multilayers with a Ru layer between them is deposited. The two magnetic layers are designed to have different anisotropy by controlling the Co thickness, and the one with higher anisotropy is referred to as a hard layer and the one with lower anisotropy is referred to as a soft layer. This magnetic film is then patterned into dots of two different size (a larger dot for magnetization excitation and a smaller dot for magnetization switching). Magnetization excitation and switching of the magnetic dot is studied by applying a  $z$ -direction magnetic field ( $H_z$ ) from an external electromagnet and an in-plane circularly polarized microwave field from two coplanar waveguides fabricated on top of the magnetic dot. The detailed experimental setup is described in Ref [6].

## III. AHE-FMR measurement of the AFC magnetic dot

Figure 1 shows the anomalous Hall effect (AHE) voltage of the AFC magnetic square dot with a side length of 500 nm. In the remanent state, an antiferromagnetic configuration is realized. By applying a microwave field, an increase or decrease of the AHE voltage appears, indicating that the FMR excitation of the magnetic dot occurs. For the counterclockwise (CCW) microwave field, the decrease of the AHE voltage due to the FMR excitation of the soft layer appears at  $H_z = 0$  and +4 kOe because CCW is the rotation direction of the FMR excitation of the  $+z$ -direction magnetization. The dip is wider in the antiferromagnetic configuration at  $H_z = 0$  kOe than in the ferromagnetic configuration at  $H_z = +4$  kOe. The different width may be attributed to the interaction between the hard and soft layers. For the clockwise (CW) microwave field, the increase of the

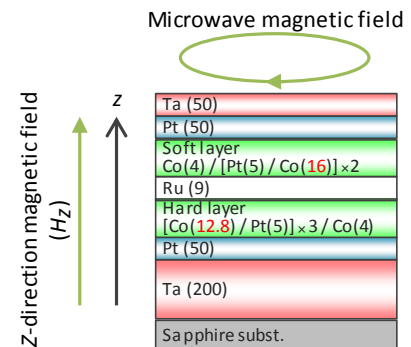


Fig. 1. Stacking structure of the magnetic film consisting. Thicknesses are given in angstroms

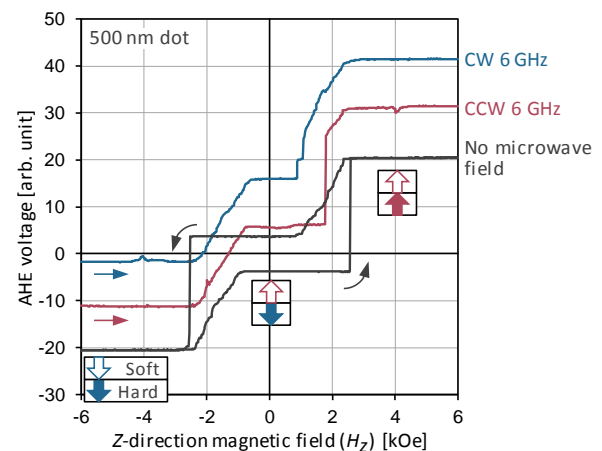


Fig. 2. AHE voltage versus  $H_z$  obtained without a microwave field and with a microwave field rotating CCW and CW.

AHE voltage due to the FMR excitation of the soft layer at  $H_z = -4$  kOe and assisted switching of the hard layer occurs at  $H_z = +1$  kOe.

#### IV. Microwave-assisted magnetization switching of an AFC magnetic dot

Figure 3 shows the switching field of the hard layer ( $H_{sw}$ ) as a function of the microwave field frequency ( $f_{rf}$ ) obtained for an AFC magnetic circular dot with a diameter of 80 nm. The rotation direction of the microwave field is mostly CW except for the plot depicted by cross in which the rotation direction is CCW. For the microwave field amplitude ( $H_{rf}$ ) range of 43 – 170 Oe,  $H_{sw}$  decreases almost linearly as  $f_{rf}$  becomes higher and suddenly increases at a critical frequency. As  $H_{rf}$  increases, the microwave assistance effect increases, and a large  $H_{sw}$  decrease to approximately 1 kOe is demonstrated. For  $H_{rf} = 213$  Oe and  $f_{rf} = 12 - 14.5$  GHz, a part of the hard layer reverses, resulting in a magnetic domain configuration. This switching behavior is similar to that reported for a single layer perpendicular magnetic dot [3,6]. When the microwave field rotates CCW, FMR excitation of the soft layer is expected. However, no significant change in  $H_{sw}$  is observed, showing that the soft layer excitation has little effect on hard layer switching. The  $H_{sw}$  decrease for CCW and  $f_{rf} = 3 - 5$  GHz shows the  $f_{rf}$  dependence similar to that in the CW microwave and is attributed to the fact that the polarization is not perfectly circular and a small CW component exists. These results show that the large microwave assistance effect is obtained for the AFC bilayer, which is not hindered by the additional soft layer.

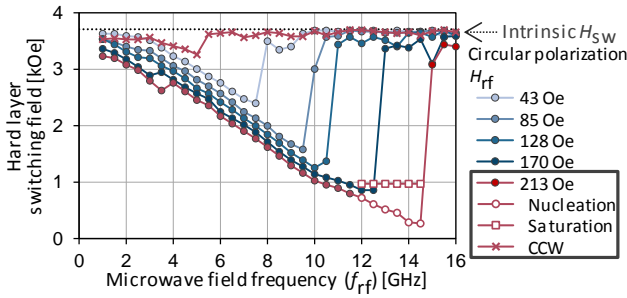


Fig. 3.  $H_{sw}$  versus  $f_{rf}$  obtained by applying a circularly polarized microwave field.

#### Reference

- [1] E. E. Fullerton, et al., “Antiferromagnetically coupled magnetic media layers for thermally stable high-density recording”, *Appl. Phys. Lett.* 77, 3806 (2000).
- [2] J.-G. Zhu, et al., “Microwave assisted magnetic recording”, *IEEE Trans. Magn.* 44, 125 (2008).
- [3] S. Okamoto, et al., “Microwave assisted magnetic recording technologies and related physics”, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 48, 353001 (2015).
- [4] S. Greaves, et al., “Antiferromagnetically coupled media for microwave-assisted magnetic recording”, *IEEE Trans. Magn.* 54, 3000111 (2018).
- [5] Y. Nakayama, et al., “Microwave-assistance effect on magnetization switching in antiferromagnetically coupled CoCrPt granular media”, *IEEE Trans. Magn.* 52, 3201203 (2016).
- [6] H. Suto, et al., “Subnanosecond microwave-assisted magnetization switching in a circularly polarized microwave magnetic field”, *Appl. Phys. Lett.* 110, 262403 (2017).

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

## 鉄系超伝導体母相 CaFeAsF への La ドーピング

興水亮一, 金安航大, 山口道太郎, 神原陽一

慶應義塾大学,

Synthesis of La doped Iron-Based superconductor mother compound CaFeAsF

R. Koshimizu, K. Kaneyasu, M. Yamaguchi, Y. Kamihara

Keio Univ.

### 緒言

2008年にKamiharaらは, LaFeAsOのOサイトにFを置換することで超伝導転移温度( $T_c$ )が26Kの高温超伝導体となることを報告した[1]. さらに2017年にKaneyasuらは $\text{Ca}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAsO}_{1-y}\text{F}_y$ について $x=0.25, y=0.50$ において $T_c=31.5$ Kを報告した[2].

本研究では,  $\text{Ca}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAsO}_{1-y}\text{F}_y$ において $(x, y)=(1.0, 1.0)$ であるCaFeAsFを母相とし, Laをドーピングした $\text{Ca}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAsF}$ について, 合成試行を行うことを目的とする.

### 方法

#### ・多結晶試料の合成

固相反応により,  $\text{Ca}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAsF}$ の多結晶試料の合成を行った. La, Fe, Asを化学量論比で $\text{La}:\text{Fe}:\text{As}=2:3:3$ となるように秤量し, これらを石英管に真空封入し, 熱処理した. 以降これを $2\text{La}-3\text{Fe}-3\text{As}$ とする. 次にCa, Asを化学量論比で $\text{Ca}:\text{As}=1:1$ , Fe, Asを化学封入量論比で $\text{Fe}:\text{As}=2:1$ となるように秤量し, これらをそれぞれ石英管内に真空封入し, 熱処理してCaAs,  $\text{Fe}_2\text{As}$ を得た.  $2\text{La}-3\text{Fe}-3\text{As}$ ,  $\text{LaF}_3$ , CaAs,  $\text{Fe}_2\text{As}$ ,  $\text{CaF}_2$ を化学量論比に基づき秤量, 摩砕混合した後, 石英管に真空し, CaFeAsFとなる $x=0$ については $1000^\circ\text{C}$ ,  $\text{Ca}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{FeAsF}$ となる $x=0.5$ については $1050^\circ\text{C}$ で熱処理した.

#### ・多結晶試料の評価

X線回折装置(Rigaku Co., Ltd., RINT2500Ultra18, Cu K  $\alpha$  radiation)を用いて, 試料のXRDパターンを測定し, 結晶相および異相の同定を行った. また $x=0$ について, 最小二乗法を利用して格子定数を計算した.

### 結果

CaFeAsFのXRDパターンをFig. 1に示す. CaFeAsFの回折ピークがあり, 主相であった. 異相として $\text{CaF}_2$ と $\text{FeAs}$ が確認された. 格子定数は $a=b=0.387903(2)$  nm,  $c=0.858532(3)$  nmであった.

#### まとめと今後の展望

固相反応により $\text{Ca}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAsF}(x=0 \text{ and } x=0.5)$ を合成して, XRDパターンを測定し相同定を行った.  $x=0$ ではCaFeAsFが得られたが,  $x=0.5$ については目的物質である $\text{Ca}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{FeAsF}$ は得られなかった. 今後は, 得られた試料の低温での電気抵抗率, 磁化の測定と, 仕込み組成の条件を $x=0.25, 0.75$ と変化させて $\text{Ca}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAsF}$ を合成し, 相同定を行う.

### 参考文献

- [1] Y. Kamihara *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008).
- [2] K. Kaneyasu, M. Matoba, Y. Kamihara, The 2017 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, Massachusetts, USA, Nov 2017.
- [3] P. Cheng *et al.*, *Europhys. Lett.* **85**, 67003 (2009).

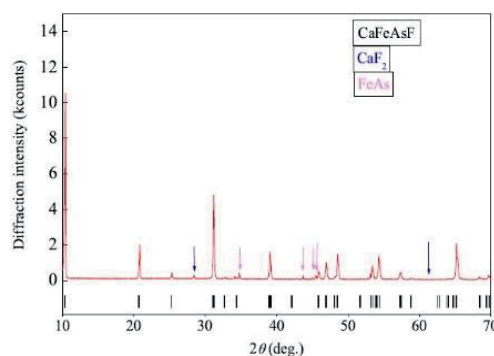


Fig. 1 XRD patterns for CaFeAsF. Vertical bars at the bottom denote the calculated positions of Bragg diffractions of CaFeAsF.

# 鉄系超伝導体 $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$ を用いた丸状およびテープ状 超伝導線材の評価

岩崎秀<sup>1</sup>, 高野義彦<sup>2</sup>, 的場正憲<sup>1</sup>, 神原陽一<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 慶應義塾大学, <sup>2</sup> 物質・材料研究機構

Evaluation of superconducting round wires and tapes using iron-based superconductor  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$

S. Iwasaki<sup>1</sup>, Y. Takano<sup>2</sup>, M. Matoba<sup>1</sup>, Y. Kamihara<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Keio Univ., <sup>2</sup> National Institute for Materials Science

## 緒言

鉄系超伝導体 [1] のひとつである  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  の超伝導転移温度 ( $T_c$ ) は 37.2 K であり, 絶対零度での上部臨界磁束密度 ( $\mu_0 H_{c2}$ ) は 200 T 以上と高い値が見積もられている [2]. このため, 高磁場下での使用に向けた応用が期待されている. また, ペロブスカイトに関連する局所構造を有し, 酸素欠損量 ( $\delta$ ) によりその電氣的・磁気的特性が変化することが報告されている [3].

本研究では,  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  に着目し, 線材作製において powder-in-tube (PIT) 法により作製された  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  PIT 線材の性能を上昇させることを目的とする.

## 方法

仕込みで  $\delta = 0.00$  とした  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  の多結晶試料を固相反応により合成した. 得られた多結晶に対し, X 線回折により相同定を行い, 直流四端子法により電気抵抗率 ( $\rho$ ) を測定した.

得られた多結晶試料を用いて PIT 法により丸状およびテープ状の PIT 線材を作製した. 得られた PIT 線材に対し, 長手方向断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察し, 直流四端子法により電気抵抗率を測定した. また, 4.2 K において,  $V$ - $I$  特性を測定した.

## 結果と考察

合成された多結晶試料について,  $\rho < 10^{-7} \Omega \text{ cm}$  となる温度として定義された  $T_c^{\text{zero}}$  は,  $T_c^{\text{zero}} \sim 24 \text{ K}$  であった. また, 異相として  $\text{Sr}_2\text{VO}_4$ ,  $\text{SrVO}_6$ ,  $\text{FeAs}$ ,  $\text{Fe}_2\text{As}$  が存在した. 作製された PIT 線材の  $T_c^{\text{zero}}$  は 15.0 K であった. この値は多結晶試料の  $T_c^{\text{zero}}$  に比べ  $\sim 9 \text{ K}$  低い. これは, 線材に対する焼成の際に  $\delta$  が増加したことに起因すると考えられる. また, SEM 像より丸状 PIT 線材では空隙率が 12.8% であったのに対し, テープ状では 2.6% であった. Figure 1 に, 4.2 K における丸状およびテープ状の  $V$ - $I$  特性を示す.  $V$ - $I$  特性における電界基準を  $1 \mu\text{V}/\text{cm}$  としてこれよりも電圧値が大きくなった電流値の値を臨界電流 ( $I_c$ ) とした. これより求まる超伝導臨界電流密度 ( $J_c$ ) は  $J_c = 285 \text{ A cm}^{-2}$  であった. 丸状では  $I_c$  が 0.25 A 未満であることから, 空隙が減少したことにより  $I_c$  が上昇したと考えられる.

PIT 線材のさらなる  $J_c$  の上昇のためには, PIT 線材中の超伝導体が詰まっている部分である超伝導コア部の  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  の酸素欠損量を最適化することが課題である.

## 参考文献

- [1] Y. Kamihara, et al., J. Am. Chem. Soc. **130**, 3296 (2008).
- [2] X. Zhu et al., Phys. Rev. B **79**, 220512 (2009).
- [3] Y. Tojo et al., arXiv: 1802.03907.

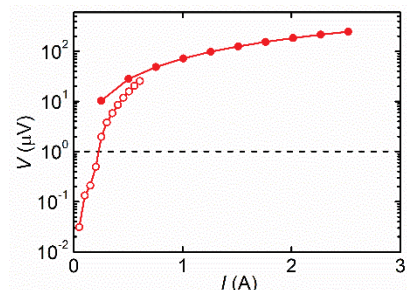


Fig. 1 Voltage ( $V$ )-current ( $I$ ) curves at 4.2 K for superconducting  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  round wire (●) and tape (○).

鉄系 21113 化合物  $\text{Sr}_2T_M\text{FeAsO}_{3-\delta}$  の合成および輸送特性

山口道太郎, 藤岡弘孝, 大塚貴史, 瀬戸誠\*, 北尾真司\*, 的場正憲, 神原陽一  
(慶應大, \*京都大)

Synthesis and transport properties of Iron-based 21113 compounds  $\text{Sr}_2T_M\text{FeAsO}_{3-\delta}$   
M. Yamaguchi, H. Fujioka, T. Otsuka, M. Seto\*, S. Kitao\*, M. Matoba, and Y. Kamihara  
(Keio Univ., \*Kyoto Univ.)

## 1 はじめに

鉄系超伝導体は  $\text{FePn}$  面 ( $\text{Pn} = \text{P, As}$ ) のキャリア伝導層とキャリアブロック層から構成される。中でも、化学組成比より 21113 系と呼ばれる結晶系に分類される物質は、ペロブスカイト類似のキャリアブロック層に由来する長い  $c$  軸長 ( $\sim 1.57 \text{ nm}$ ) を持ち、空間群  $P4/nmm$  の正方格子をとる。この結晶系に分類される  $\text{Sr}_2\text{VFeAsO}_{3-\delta}$  は  $37.2 \text{ K}$  の超伝導転移温度を示す<sup>1)</sup>。一方、 $\text{V}$  を  $\text{Cr}$  に置換した  $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$  は母相では超伝導を示さず<sup>2)</sup>、 $\text{Cr}$  サイトへの  $\text{Ti}$  ドーピングにより超伝導を示す<sup>3)</sup>。この系の超伝導発現機構について議論になっている。また、1111 系、122 系において、磁気秩序相と超伝導相は非共存という報告がある<sup>4)</sup>。本研究では、 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$  の合成および結晶相、輸送特性の評価を報告する。

## 2 実験方法

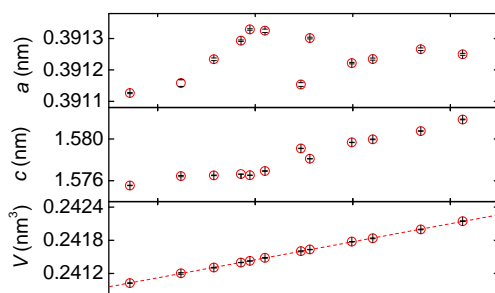
石英管を用いた固相反応により、仕込み酸素欠損量  $d = -0.10-0.40$  の  $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-d}$  の多結晶試料を合成した。X 線回折 (XRD) 装置 (Rigaku Co., Ltd., RINT2500Ultra18,  $\text{Cu K}\alpha$  radiation) により、結晶相同定を行った。さらに、最小二乗法を利用して格子定数 ( $a, c$ ) と格子体積 ( $V$ ) を求めた。

ヘリウム循環式 GM 冷凍機 (Sumitomo Heavy Industries Ltd., SRDK-101D) を用いた電気抵抗率測定装置により、四端子法で電気抵抗率の温度依存性を測定した。また、 $^{57}\text{Fe}$  メスバウア分光測定 ( $^{57}\text{Co}$  線源) を行い、 $\text{Fe}$  副格子の磁気秩序を調べた。スペクトルの解析には、“Moss Winn”を用いた。

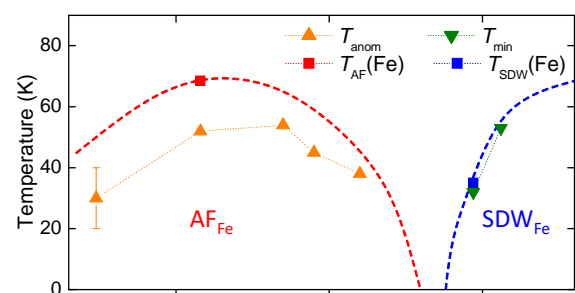
## 3 結果および考察

XRD パターンの測定結果より、 $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_3$  が主相であり、異相として  $\text{FeAs}$ ,  $\text{FeAs}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{As}$ ,  $\text{Sr}_4\text{Cr}_3\text{O}_9$ ,  $\text{SrO}$  が確認された。比較的異相の少ない  $d = 0.15, 0.20, 0.40$  の試料より、 $\delta$  と  $V$  の線形関係を仮定して  $\delta - V$  較正直線を定め、各試料の  $\delta$  を半定量的に決定した。得られた  $\delta$  と  $a, c, V$  の関係を Fig. 1 に示す。

電気抵抗率の測定結果より、 $30-50 \text{ K}$  にキックが存在した。 $0.12 < \delta < 0.21$  の試料ではキック温度 ( $T_{\text{anom}}$ ) 以下で電気抵抗率は減少し、 $0.25 < \delta < 0.26$  の試料ではキック温度 ( $T_{\text{min}}$ ) 以下で電気抵抗率は増加した。 $^{57}\text{Fe}$  メスバウアスペクトルの測定結果より、 $\delta = 0.16$  の試料では、 $60-77 \text{ K}$  で線幅が増大し、 $40 \text{ K}$  以下で磁気分裂による sextet を示した。 $\delta = 0.25$  の試料では、 $30 \text{ K}$  以下で線幅が増大し、sextet を示さなかった。このことから、 $\delta = 0.16$  の試料の  $\text{Fe}$  副格子は反強磁性 (AF) であり、 $\delta = 0.25$  の試料の  $\text{Fe}$  副格子はスピ...



**Fig. 1** Calibrated oxygen deficiency ( $\delta$ ) dependence of lattice constants ( $a, c$ ) and lattice volumes ( $V$ ) of  $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$ . Black lines in red plots show standard deviation of the values.



**Fig. 2** Phase diagram of  $\text{Sr}_2\text{CrFeAsO}_{3-\delta}$  in terms of  $\delta$  and temperature.  $T_{\text{AF}}(\text{Fe})$  (red square),  $T_{\text{SDW}}(\text{Fe})$  (blue square),  $T_{\text{anom}}$  (upward orange triangles),  $T_{\text{min}}$  (downward green triangles) are plotted against  $\delta$ .

## 参考文献

- 1) X. Zhu, *et al.*, Phys. Rev. **B 79**, 220512 (2009).
- 2) H. Ogino *et al.*, Supercond. Sci. Technol. **22**, 075008 (2009).
- 3) X. Zhu *et al.*, Sci. China Ser. G **52**, 1876 (2009).
- 4) S. Kitao *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 103706 (2008).



## 二次元近藤格子系 $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$ の磁気構造の解明

安藤弘喜, 谷中慎太郎, 井田和則, 金道浩一\*, 小濱芳允\*, 的場正憲, 神原陽一  
慶應義塾大学, 東京大学物性研究所\*

Analysis of magnetic properties for two dimensional Kondo lattice  $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x$   
K. Ando, S. Taninaka, K. Ida, K. Kindo\*, Y. Kohama\*, M. Matoba, Y. Kamihara  
Keio Univ., \* Univ. of Tokyo

### 緒言

4f電子を有するCe化合物の中で,  $\text{Ce}_2\text{O}_2$ 層と $\text{Fe}_2\text{P}_2$ 層からなる二次元近藤格子系 $\text{CeFePO}$ を母相とした $\text{CeFe}_{1-x}\text{Cr}_x\text{PO}$  [1] (正方晶, P4/nmm)を研究対象とした.  $x = 0.1, 0.2$ の試料は10 K未滿でCe由来の強磁性を発現し [1],  $x = 0.5$ の試料は25 K以下で常磁性からFe由来のスピン密度 (SDW) に相転移することがわかっている [2].

本研究では, Néel 温度及び, 10 K 付近で比熱の温度微分が極大を持つ原因が Shottky 比熱による寄与であることを解明した.

### 方法

$\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$  について, 比熱測定の解析では Ce 4f が結晶場分裂によって生じるエネルギー準位を 3 準位系と仮定した. Schottky 比熱の変数  $\Delta_1, \Delta_2$  の値を様々に変えることで基底状態と第一励起状態, 第二励起状態とのエネルギーギャップの選定を行った.

### 結果と考察

$\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$  の  $T = 0 - 30$  K における比熱と Schottky 比熱, 格子比熱, 電子比熱及び理論値の和を Fig. 1 に示す [3].

カーブフィッティングを行った結果, Schottky 比熱  $\Delta_1 = 30$  K,  $\Delta_2 = 60$  K の理論値の0.35倍に対して電子比熱  $\gamma = 68.3 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ , 格子比熱  $\beta = 0.2 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-4}$  のとき測定値と良い一致を示した. また10 K 付近における比熱の温度微分の極大は Schottky 比熱に起因していることが分かった.

$\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$  の  $T = 0 - 30$  K における,  $C_p/T$  versus  $T$  の関係を Fig. 2 に示す. また Néel 温度は  $T_N = 5.95(3)$  K とわかった.

### 参考文献

- [1] T. Okano, *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 17E123 (2015).
- [2] K. Ida, master's thesis, Keio University, (2017).
- [3] K. Ida, *et al.*, (unpublished).
- [4] Y. Kohama, *et al.*, J. Phys. Soc. **77**, 094715 (2008).

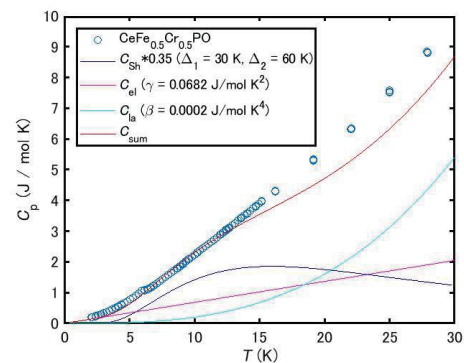


Fig. 1 Comparing experimental and Schottky specific heat. The blue plot is heat capacity for  $\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$ , and other lines are  $C_{\text{electron}}$ ,  $C_{\text{lattice}}$ , and  $0.35 * C_{\text{Schottky}} (\Delta_1 = 30 \text{ K}, \Delta_2 = 60 \text{ K})$ .  $C_{\text{sum}}$  represents sum of these.

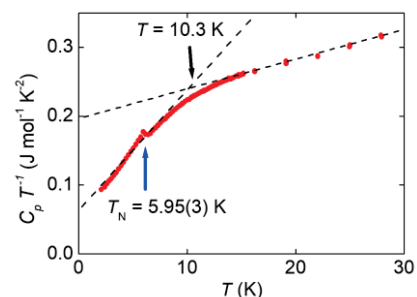


Fig. 2  $C_p/T$  versus  $T$  for  $\text{CeFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{PO}$ .

# バイオテンプレートによる $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ マイクロワイヤの作製及び機能性検証

岩竹翼, 村田陽, 松本裕介, 的場正憲, 神原陽一  
(慶應大学)

Synthesizing and verifying the function of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  micro-wire with biotemplate.  
(Keio Univ.)

## 緒言

生体鋳型合成によるバルク超伝導体の作製は、前駆体物質と生成物質の均質性が高く、マイクロスケールでの加工が可能である[1]. 2009年, D.Walshらはデキストランを生体鋳型とした合成により作製した  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO)マイクロワイヤの磁化測定により超伝導転移を報告した[2]. 一方、磁気センサとして用いられる超伝導量子干渉素子(SQUID)のデバイス応用において、超伝導マイクロワイヤは素子材料として有用である[3]. そこで、生体鋳型合成法による YBCO マイクロワイヤの超伝導体としての応用可能性を広げるため、生体鋳型により作製された YBCO マイクロワイヤの輸送特性と、形状における昇温速度依存性を明らかにする。

## 方法

$\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (Strem Chemicals),  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  (Sigma Aldrich),  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$  (Sigma Aldrich)を化学量論比で秤量し、純水と混合攪拌した。その溶液に Dextran ( $\text{H}(\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5)_x$ )[1] (Sigma Aldrich) を加え再度攪拌した後、試料をファイバ状に伸張した。伸張後に大気中で乾燥させた。乾燥後、 $920^\circ\text{C}$  で4時間熱処理をした。この時、昇温速度を  $0.1\sim 30^\circ\text{C}/\text{min}$  で変化させ、9個の試料を合成した。 $0.5^\circ\text{C}/\text{min}$  で焼成した試料について X線回折(XRD)にて結晶相の同定を行なった。また、各試料について走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて表面構造の観察を行なった。撮影した SEM 像を ImageJ[4]を用いて各ワイヤの形状を測定し、昇温速度と形状の関係を調べた。

## 結果と考察

XRD 測定の結果、いずれの試料も直方晶系 YBCO 結晶相を持つ。 $0.1^\circ\text{C}/\text{min}$ ,  $30^\circ\text{C}/\text{min}$  で焼成した試料の SEM 像を Fig. 1 に示す。また、撮影した SEM 像から ImageJ を用いて測定した試料の長さの平均値および、直径の平均値と昇温速度の関係を Fig. 2 に示す。Fig. 2 よりマイクロワイヤの形状には昇温速度依存性がある。

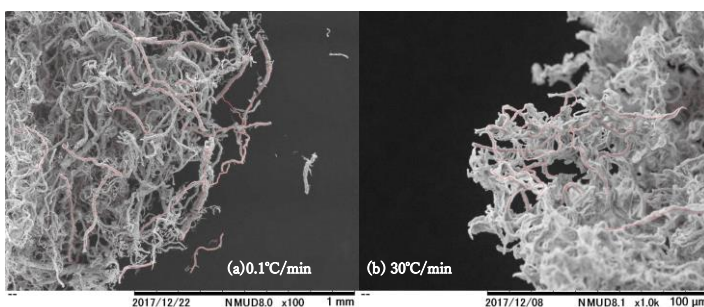


Fig. 1 SEM images of YBCO micro-wire calcined by (a)  $0.1^\circ\text{C}/\text{min}$  and (b)  $30^\circ\text{C}/\text{min}$ . Red lines indicate the points that are measured with ImageJ.

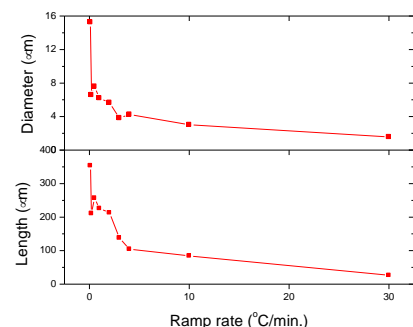


Fig. 2 Diameter and length of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  micro-wire versus ramp rate.

## 参考文献

- 1) S. R. Hall *et al.*, Supercond. Sci. Technol. **25**, 035009, (2012).
- 2) D. Walsh, *et al.*, Supercond. Sci. Technol. **22**, 015026, (2009).
- 3) C. Carr, *et al.*, Supercond.Sci.Technol.**11**, 1317-1322, (1998).
- 4) W. S. Rasband, ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, <http://rsb.info.nih.gov/ij/>, (1997-2012)

# 超伝導体上に形成された磁壁を有する強磁性ナノワイヤの トポロジカル超伝導体におけるマヨラナ束縛状態

市村雅彦、廣川真男  
(日立研開、広島大工)

Majorana Bound States in Topological Superconductor  
with Ferromagnetic Nanowire including Domain Wall  
Masahiko Ichimura, Masao Hirokawa  
(Hitachi R&D Gr., Inst. of Eng., Hiroshima Univ.)

近年、トポロジカル絶縁体/超伝導体に代表される一群のトポロジカル物質が注目を集めている。トポロジカル物質が(真空を含む)トポロジカルに自明な物質と接するとき、その界面においてトポロジカル不変量が不連続に変化し、ギャップが消失する。トポロジカル超伝導の場合、超伝導特有の電子・ホール対称性を反映し Majorana 束縛状態(MBS)が出現することが理論的に予測されている[1,2]。MBS は安定な量子ビットとして機能し、トポロジカル量子計算と呼ばれる独特の量子計算を可能とすることが期待されている。

トポロジカル超伝導のモデルとしてよく用いられるのが、s-波超伝導体上に形成されたスピン軌道相互作用の強い半導体ナノワイヤに外部磁場を印加した系である[3]。我々は、トポロジカル超伝導形成の容易さを勘案し、s-波超伝導体上に形成された磁壁を有する強磁性ナノワイヤを考察する。その際、磁壁幅が長さのパラメータとして導入されることにより、トポロジカル超伝導領域の長さとの競合、特にエッジ状態の担い手に興味を持たれる。

磁壁を有する強磁性体は、ゲージ変換により空間変化する有効スピン軌道相互作用を生じる[4]。この空間変化を一定値に置き換えれば Oreg らのモデル[3]と等価となる。本講演では、有限系におけるエッジの効果を数値的に調べ、今回のモデルにおけるトポロジカル超伝導の出現には磁壁幅が重要なパラメータであることを述べる。また、磁壁幅を含めたトポロジカル超伝導出現条件下で、MBS の局所状態密度、および局所スピン密度を調べた結果、ワイヤの両エッジからバルク中央に向かい指数関数的に減衰する MBS が対を成して形成されることがわかった。

## 参考文献

- 1) A. Yu Kitaev, Ann. Phys. (N.Y.) **303**, 2 (2003).
- 2) Lian Fu and C. L. Kane, Phys. Rev. Lett. **100**, 096407 (2008).
- 3) Yuval Oreg, Gil Refael, and Felix von Oppen, Phys. Rev. Lett. **105**, 177002 (2010).
- 4) T.-P. Choy, J. M. Edge, A. R. Akhmerov, and C. W. J. Beenakker, Phys. Rev. B **84**, 195442 (2011).

## パーシステントホモロジーを活用した磁区構造解析

山田拓洋<sup>1,3</sup>, 鈴木真悟<sup>1</sup>, 鈴木雄太<sup>1,6</sup>, 上野哲郎<sup>5</sup>, 三俣千春<sup>3</sup>,  
小野寛太<sup>6</sup>, 大林一平<sup>2</sup>, 赤木和人<sup>2,3</sup>, 平岡裕章<sup>2,3,4</sup>, 小嗣真人<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>東理大, <sup>2</sup>東北大 AIMR, <sup>3</sup>NIMS MI<sup>2</sup>I, <sup>4</sup>理研 AIP センター, <sup>5</sup>量研, <sup>6</sup>高エネ研)

Analyzing magnetic domain structure using persistent homology

T. Yamada<sup>1,3</sup>, S. Suzuki<sup>1</sup>, Y. Suzuki<sup>1,6</sup>, T. Ueno<sup>5</sup>, C. Mitsumata<sup>3</sup>,  
K. Ono<sup>6</sup>, I. Obayashi<sup>2</sup>, K. Akagi<sup>2,3</sup>, Y. Hiraoka<sup>2,3,4</sup>, M. Kotsugi<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>Tokyo Univ. of Sci., <sup>2</sup>AIMR Tohoku Univ., <sup>3</sup>NIMS MI<sup>2</sup>I, <sup>4</sup>AIP center RIKEN, <sup>5</sup>QST, <sup>6</sup>KEK)

### はじめに

近年、マテリアルズインフォマティクスの発展を背景に、情報科学を材料研究に取り入れる動きが活発化している。材料の保磁力および磁気異方性はダイナモの発電効率を特徴付ける重要な機能であるが、磁区の形状情報からこれらの物性を議論することはこれまで困難であった。そこで形状データの位相幾何学情報を記述可能な「パーシステントホモロジー(PH)<sup>[1]</sup>」を磁区形状に適用し、磁区形状から磁性体の物理量の推定が出来ないかと考えた。本研究では磁性体の外部磁場変化と温度変化に伴う磁区像のパーシステンス図の振る舞いについて調査したためその結果について報告する。

### 実験方法

Kerr 顕微鏡を用いて YIG ガーネット単結晶薄膜を測定し磁区像(Fig. 1a)を得た。測定の際には試料直下にコイルを設置し外部磁場を変化させながら複数枚の磁区像を得た。また、磁場を固定した状態で試料温度を変化させながら複数枚の画像を取得した。取得した磁区画像から HomCloud<sup>[2]</sup>を用いてパーシステンス図 (PD) (Fig. 1b) を作製し、磁場及び温度変化と PD との関係の比較を行った。また、PD の要素のうち対角線近傍以外のものの Birth と対応する点を磁区像に戻した(Fig. 1c)。

### 結果

Fig. 1(b)より対角線付近に大きなピークを持つことから磁区像にはストライプ構造が多く、Birth 軸方向に広がりを持つことから磁区幅にばらつきがあることが分かる。また、同一試料から得られる平均輝度が同一で磁区形状が異なる磁区像からはおおよそ同一の PD が得られ、印加磁場が異なると PD も異なることから磁区像における PD の磁化依存性が示唆された。Fig. 1(c)の結果より PD 上で対角線から離れた要素は、磁区において単位面積当たりの静磁エネルギーが変化すると考えられる分岐点や終端点を含むことが確認できた。

### 参考文献

- [1] Edelsbrunner, H., Letscher, D., and Zomorodian, A. (2002) Topological persistence and simplification. *Discrete and Computational Geometry*, 28(4):51-533, 2002.  
[2] I. Obayashi, HomCloud, [https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/hiraoka\\_lab/homcloud/index.en.html](https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/hiraoka_lab/homcloud/index.en.html)

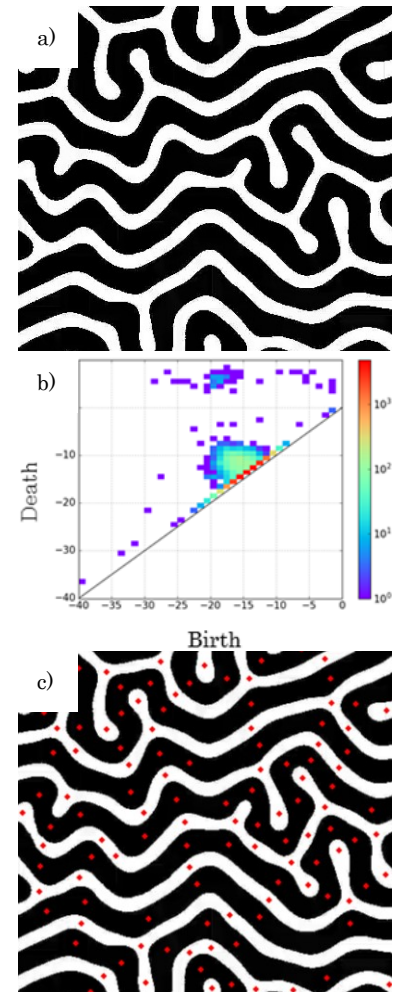


Fig. 1 取得後二値化した磁区画像(a), 磁区画像から作製したPD(b), 及びPDの要素を磁区像上に戻した結果(c)

# FePt/ Fe ナノコンポジット試料のポストアニールによる 磁気特性と磁区構造観察

佐藤 匠、大和田 奏、土井正晶、嶋敏之  
(東北学院大学)

Effect of post-annealing on the magnetic properties and magnetic domain structure of  
FePt/ Fe nano-composite films  
T. Sato, K. Ohwada, M. Doi and T. Shima  
(Tohoku Gakuin University)

## 概要

希土類磁石、特に高い最大エネルギー積  $(BH)_{\max}$  を有している Nd-Fe-B 焼結磁石は、ハイブリッドカー (HV) ・電気自動車 (EV) 等のモータ、センサー、ハードディスクドライブ (HDD) 等の磁気記録媒体等の様々な分野で応用されている。しかしながら、それらの磁石のキュリー温度は低いことから熱減磁が生じ易く、また希土類元素を含んでいることから環境ならびに地理偏在性等の問題を有している。そのため、Nd-Fe-B 焼結磁石を超える新たな高性能磁石の開発が近年切望されている。ナノコンポジット磁石は高い保磁力を有する硬質磁性相と高い飽和磁化を有する軟質磁性相の二相間で交換結合を生じる磁石であり、今日まで数多くの研究が行われてきた。しかしながら磁気特性の向上のためにさらなるブレークスルーが必要とされている。本研究では、微細加工によりリング形状の FePt 及び FePt/ Fe のナノコンポジット試料を作製し、熱処理温度を変化させ試料の磁気特性を詳細に調べた。

## 実験方法

試料は超高真空多元スパッタリング装置を用いて作製した。はじめに MgO (100) 単結晶基板の上にシード層として Fe を 1 nm、バッファ層として Au を 40 nm を室温において成膜し、その後 300 °C で 1 時間熱処理を行った。次に FePt 薄膜を 500 °C において 10 nm 成膜を行った後、500 °C で熱処理を行った。FePt リングパターン及び FePt/ Fe ナノコンポジット試料は電子線リソグラフィ装置 (EBL) と Ar イオンエッチング装置を用いて FePt 薄膜表面上に作製した。リング形状試料の外径は 2.0  $\mu\text{m}$  に固定し、内径を 0.8~1.8  $\mu\text{m}$  まで変化させたパターンを作製した。その際のエッチング時のイオンビーム入射角度は 0°, 20°, 85° と変化させた。このように FePt 10nm 単層膜を用いて FePt リング形状試料及び FePt リング/ Fe コアナノコンポジット試料を作製した。試料の結晶構造は X 線回折装置 (XRD) 、パターンの形状は原子間力顕微鏡 (AFM) 、磁区構造は磁気力顕微鏡 (MFM) 、磁気特性は超伝導量子干渉磁束計 (SQUID) および磁気光学カー効果測定装置 ( $\mu$ -MOKE) を用いて評価・観察を行った。

## 実験結果

試料は  $L1_0$  型 FePt の基本反射ピークである (002) 及び超格子反射ピークである (001) および (003) が明瞭に確認され、加工前の試料において保磁力は 2.4 kOe、飽和磁化は 1000 emu/  $\text{cm}^3$  が得られた。AFM による試料形状評価より FePt/ Fe ナノコンポジット試料は全てのパターンにおいて目立ったバリは確認されないことから、良好にエッチングされたことが確認された。また MOKE での磁気特性の測定結果より、全てのパターンにおいて加工前の 2.5 kOe から加工後の 4.5 ~ 6 kOe と保磁力の増加が確認された。FePt リング形状試料と同様に内径の増大に伴いカー回転角の減少が確認された。また、内径が 1.2, 1.4  $\mu\text{m}$  のナノコンポジット試料において残留磁化状態において "Bull's eye" 的な磁区構造が明瞭に確認され、磁場印加方向を変化させて磁区構造を評価した際に、明瞭な磁化反転が確認された。

## 参考文献

- 1) Skomski, R, Coey, J.M.D. (1993), Phys. Rev. B, vol. 48, pp. 15812-15816, (1993)
- 2) R. Kurosu, A. Sugawara, H. Iwama, M. Doi, and T. Shima, IEEE Magn. Lett, vol 8 no. pp.1701-7471, (2017)

# 有機金属分解法による $\text{Sm}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜の作製と評価

浦川諒大<sup>1</sup>、山本匠<sup>1</sup>、婁庚健<sup>1</sup>、西川雅美<sup>1</sup>、河原正美<sup>2</sup>、石橋隆幸<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>長岡技術科学大学、<sup>2</sup>(株)高純度化学研究所)

Characterization and preparation of  $\text{Sm}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  thin films

by metal organic decomposition (MOD) method

R. Urakawa<sup>1</sup>, T. Yamamoto<sup>1</sup>, G. Lou<sup>1</sup>, M. Nishikawa<sup>1</sup>, M. Kawahara<sup>2</sup>, T. Ishibashi<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Nagaoka Univ. of Tech., <sup>2</sup>Kojundo Chem. Lab.)

## はじめに

これまでに我々は、優れた磁気光学特性を示す  $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜を作製することに成功し、磁気異方性などの磁気特性を評価してきた。一方、Nd、Y、Gd 以外の希土類を用いた高濃度 Bi 置換ガーネットは研究例がない。そこで今回は、希土類元素に Sm を用いた  $\text{Sm}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (SBIG) 薄膜を  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG) 単結晶基板上に作製し、その磁気光学特性を評価した結果について報告する。

## 実験方法

GGG (111) 基板上に MOD コート剤 ( $\text{BiFeSm-04}(2.5/5/0.5)$ ), 高純度化学研究所) を滴下し、スピコータで 3000 rpm、30 sec の条件で塗布した。その後に 100 °C のホットプレートで乾燥させ、450 °C のホットプレートで仮焼成を行った。この操作を 5 回繰り返した後に本焼成を行った。今回の実験ではこの本焼成の温度を 510 – 690 °C まで 20 °C ずつ変化させた。作製したサンプルについて、Faraday 回転角を測定した。

## 実験結果

Fig. 1 に、SBIG 薄膜の Faraday スペクトル、Fig. 2 に波長 520 nm で測定した Faraday ヒステリシスを示す。本焼成温度が上がるにつれて Faraday 回転角は増加し、690 °C の時に約 3° となり、Sm を用いたガーネットでもこれまでに報告された Nd、Y などと同様の Faraday 回転角が得られることがわかった。また、Faraday ヒステリシスでは、本焼成温度が上がるにつれて飽和磁場が低下し、垂直磁気異方性が強くなったことから、111 方向が磁化容易軸であると考えられる。以上の結果から、Sm を希土類に用いた高濃度 Bi 置換ガーネットが作製可能であることがわかった。

謝辞：本研究の一部は、科研費基盤研究 (A) (18H03776) の助成により行われた。

## 参考文献

- 1) M. Sasaki, et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 055501

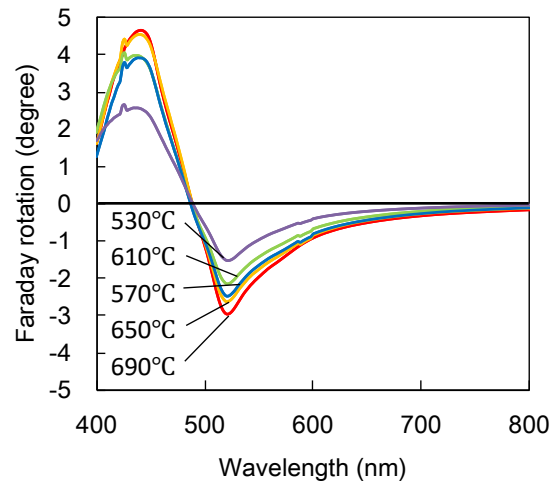


Fig. 1 Faraday spectra of SBIG thin films crystallized at 530 – 690 °C.

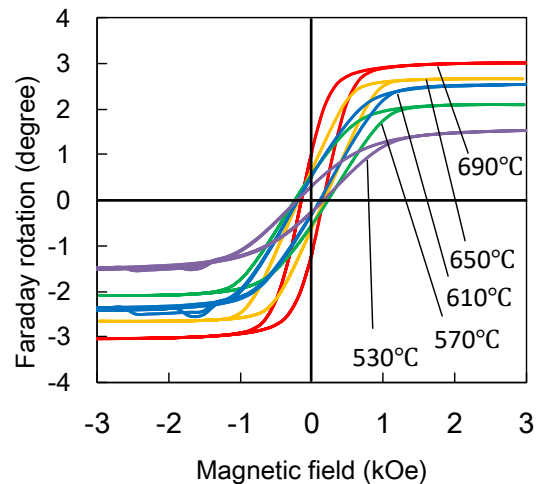


Fig. 2 Faraday hysteresis of SBIG thin films measured at a wavelength of 520 nm.

## 有機金属分解法による $\text{Pr}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜の作製と評価

藤枝崇周<sup>1</sup>、木村優太<sup>1</sup>、婁庚健<sup>1</sup>、西川雅美<sup>1</sup>、河原正美<sup>2</sup>、石橋隆幸<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>長岡技術科学大学、<sup>2</sup>(株)高純度化学研究所)

Characterization of  $\text{Pr}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  thin films prepared by metal organic decomposition method

T. Fujieda<sup>1</sup>, Y. Kimura<sup>1</sup>, G. Lou<sup>1</sup>, M. Nishikawa<sup>1</sup>, M. Kawahara<sup>2</sup>, T. Ishibashi<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Nagaoka Univ. of Tech., <sup>2</sup>Kojundo Chem. Lab.)

### はじめに

我々は、これまでに  $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (NBIG) 薄膜を作製することに成功し、優れた磁気光学特性および高周波特性を示すことを報告してきた。ガーネット中の  $\text{Nd}^{3+}$  の磁気モーメントは  $\text{Fe}^{3+}$  と平行であるが、 $\text{Pr}^{3+}$  の場合にも同様の磁気モーメントの向きを持つと期待される。しかしながら、Pr ガーネットの報告はほとんどなされていない。特に、Bi を多く含む Pr ガーネットの報告はなされていない。そこで今回は、 $\text{Pr}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (PBIG) 薄膜を  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG) 単結晶基板上に作製し、評価した結果について報告する。

### 実験方法

GGG (111) および GGG (100) 基板上に、MOD コート材 ( $\text{BiFePr-04}$  (2.5/5/0.5), (株) 高純度化学研究所) を滴下し、スピンドーターで 3000 rpm, 30 秒の条件で塗布した。その後 100°C のホットプレートで 10 分間乾燥させ、450°C のホットプレートで 10 分間仮焼成を行なった。この操作を 5 回繰り返した後に、本焼成を 3 時間行なった。今回の実験では、この本焼成の温度を GGG (111) 基板では 510–810°C、GGG (100) 基板では 670–730°C の範囲で、それぞれ 20°C ずつ変化させた。作製したサンプルについてファラデー回転角を測定した。

### 結果と考察

Fig. 1 と Fig. 2 に、それぞれ GGG (111)、GGG (100) 基板上に作製した PBIG 薄膜のファラデーヒステリシスを示す。いずれの場合にも、本焼成温度の上昇ともなるとファラデー回転角は増加し、700°C 付近で最大となった。また、GGG (111) の場合では、角形に近いヒステリシスを示し、GGG (100) の場合では、保磁力がほとんど見られなかった。以上の結果から、作製した PBIG 薄膜は 111 方向に磁化容易軸を持つと考えられる。詳細は当日報告する。

**謝辞** 本研究の一部は、科研費基盤研究 (A) (18H03776) の助成により行われた。

### 参考文献

1) M. Sasaki et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 055501.

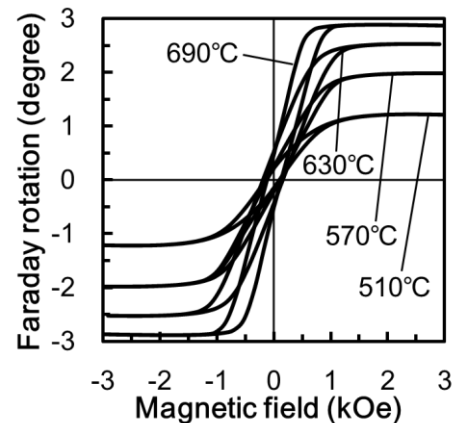


Fig. 1 Faraday spectrum of PBIG thin films on GGG (111) substrates

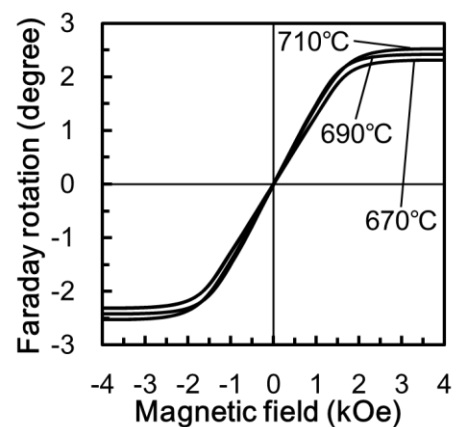


Fig. 2 Faraday hysteresis of PBIG thin films on GGG (100) substrates

# 長方配列 Au 粒子/Bi:YIG 構造体の光学および磁気光学応答の FDTD シミュレーション

板橋悠人<sup>1</sup>, J. Schlipf<sup>1,2</sup>, 大木敬介<sup>3</sup>, 斉藤伸<sup>3</sup>, 後藤太一<sup>1,4</sup>, 中村雄一<sup>1</sup>, P. B. Lim<sup>1</sup>,  
I. Fischer<sup>2</sup>, J. Schulze<sup>2</sup>, 内田裕久<sup>1</sup>, 井上光輝<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>豊橋技科大, <sup>2</sup>University of Stuttgart, <sup>3</sup>東北大, <sup>4</sup>JST さきがけ)

FDTD simulation of optical and magneto-optical response for composite structure with rectangularly arranged Au particles/Bi:YIG

Y. Itabashi<sup>1</sup>, J. Schlipf<sup>1,2</sup>, K. Ooki<sup>3</sup>, S. Saito<sup>3</sup>, T. Goto<sup>1,4</sup>, Y. Nakamura<sup>1</sup>, P. B. Lim<sup>1</sup>, I. Fischer<sup>2</sup>,  
J. Schulze<sup>2</sup>, H. Uchida<sup>1</sup>, M. Inoue<sup>1</sup>

(<sup>1</sup>Toyohashi Univ. of Tech., <sup>2</sup>University of Stuttgart, <sup>3</sup>Tohoku Univ., <sup>4</sup>JST PRESTO)

## はじめに

透明な磁性体である磁性ガーネットはファラデー効果を利用した光アイソレータなどに用いられており、デバイスの高度化や応用のために、より大きな回転角を持つ材料の開発が望まれている。周期配列 Au 粒子を磁性ガーネット (Bi:YIG) 薄膜内に作製し、局在型表面プラズモン共鳴を利用することでファラデー効果が増大できる<sup>1)</sup>。また長方配列した Au 粒子と Bi:YIG との複合膜では、プラズモン共鳴が起こっている波長以外で大きなファラデー回転角が得られている<sup>2)</sup>。本研究では、この長方配列構造の光学および磁気光学応答について、FDTD シミュレーションを用いて考察をする。

## 光学および磁気光学応答

Fig. 1(a)に、電子線描画装置を用いて作製した x 方向 200 nm, y 方向 250 nm 周期の長方配列 Au 粒子を示す。この上に Bi:YIG を成膜した複合構造体を解析に用いた。入射した光の偏光面の角度を周期構造に対して 0, 30, 45, 60, 90 deg. と変化させて測定した透過率とファラデー回転スペクトルを Fig. 1b と 1c に示す。透過率ではプラズモン共鳴による光吸収の波長が変化し、入射光の偏光面の角度が 45 度のときに透過率は増加し、さらにファラデー回転角が最も大きくなった。

FDTD 法を用いた計算結果を Fig. 2 に示す。ここで用いたモデルでは、Au 粒子の直径が 120 nm, Bi:YIG の厚さが 91 nm, 境界条件を x 方向と y 方向で周期的境界、膜厚方向を完全吸収境界とした。偏光面の周期構造に対する角度が 45 deg. の時に最もファラデー回転角が大きくなった。これは実験結果と一致する。また実験と計算どちらも角度を 0 から 45 deg. に変えると、直線偏光から円偏光に近づくことが分かった。これは Au 粒子が長方配列をしていることによる形状の効果である。この試料の磁気光学効果の増大は、形状効果により結果として生じたものであると考えられる。

## 参考文献

- 1) H. Uchida et al., J. Phys. D: Appl. Phys., **44**, 064014 (2011).
- 2) 川口佑磨他, 第 41 回日本磁気学会学術講演会概要集 19pA-4 (2017).

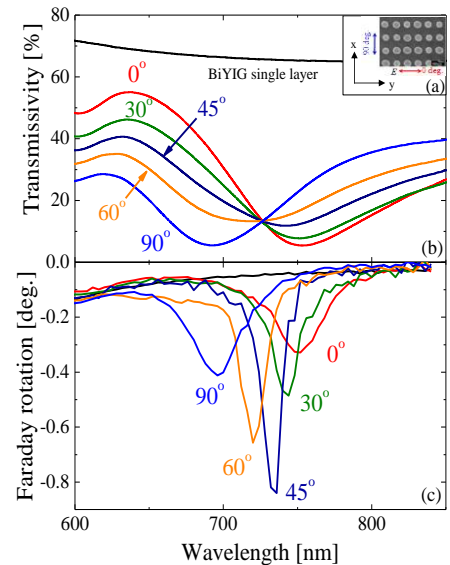


Fig.1 (a) A top view of fabricated Au particles, (b) transmissivity and (c) Faraday rotation spectra of composite structure.

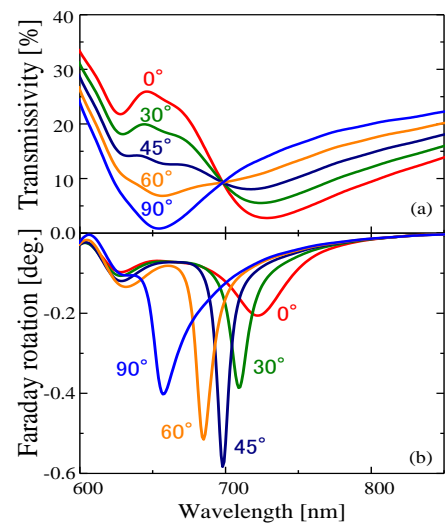


Fig.2 Calculated (a) transmissivity and (b) Faraday rotation spectra using FDTD.



# CoPt-Ag ナノ構造体における局在プラズモン共鳴と磁気光学特性

山根治起、安川雪子\*、武田啓輔\*、伊佐地育圭\*、小林政信\*  
(秋田産技センター、\*千葉工大)

## Magneto-optical properties and plasmonics on CoPt-Ag perpendicular magnetic nanostructures

H. Yamane, Y. Yasukawa\*, K. Takeda\*, Y. Isaji\*, M. Kobayashi\*  
(Akita Ind. Tech. Center, \*Chiba Inst. Tech.)

### はじめに

プラズモン共鳴あるいはフォノン結晶による磁気光学効果の増大が注目されている。我々は、光検知方式を用いた新たな化学センサの開発を目的として、磁性ナノ構造体の磁気光学特性について検討を進めている。垂直磁気異方性を有する CoPt 層と Ag 微粒子で構成された CoPt-Ag ナノ構造体では、飽和磁場に比べて小さな印加磁場で、極 Kerr 回転角が増加する特異な現象が観測される<sup>1,2)</sup>。これは、Ag 微粒子に近接する CoPt 層の磁気光学極性の反転に起因するものであり、局在プラズモン共鳴の影響と考えている。本研究では、CoPt-Ag ナノ構造体における特異な磁気光学物性の起源を解明することを目的とした検討を行った。

### 実験方法

試料は、マグネトロンスパッタ法および熱処理による凝集現象を用いてガラス基板上に作製した。最初に、Ru 下地層 (100 nm) に、厚さが 3 nm の Al 添加 ZnO 界面層 (AZO) を介して、Ag (5 nm) 薄膜を室温にて成膜する。その後、真空中で熱処理 (500°C, 60 分) を行うことで Ag の微粒子構造を形成する。さらに、その上に hcp(001)-Co<sub>30</sub>Pt<sub>70</sub> 膜 (5 nm) を、AZO 界面層 (2 nm) を介して成膜する。膜表面形状は、走査型電子顕微鏡 (SEM) により、また、磁気光学特性は、極 Kerr 効果により波長 250~900 nm の範囲で測定した。

### 実験結果

図 1 は、波長: 400 nm で測定した CoPt-Ag ナノ構造体の極 Kerr ループである。飽和磁場に比べて小さな印加磁場 (約 2 kOe) において、Kerr 回転角が最大となる特異な磁気光学特性が観測される。SEM 像から、試料表面には、大きさが 50~200 nm の微粒子が形成されていることが分かっている。このことから、CoPt 層は、Ag 微粒子 (Particle) あるいは Ru 連続膜 (Matrix) を下地とする 2 種類に分類することができ、この場合、各 CoPt 層の Kerr 回転角 ( $\theta_{\text{particle}}$ ,  $\theta_{\text{matrix}}$ ) は、以下の式から求められる。

$$\theta_{\text{particle}} = (\theta_{\text{MAX}} - \theta_{\text{S}}) / 2, \quad \theta_{\text{matrix}} = (\theta_{\text{MAX}} + \theta_{\text{S}}) / 2$$

図 2 は、上式より求めた、Ag 微粒子上の CoPt 層の磁気光学スペクトルであり、図 2 (b) には、同様の手法により求めた楕円率の結果を示している。また、比較として、厚さが 100 nm の Ag 連続膜上に形成した CoPt 層 (5 nm) についても示している。下地の Ag の形状が変わることで、回転角、楕円率ともに、磁気分光スペクトルが大きく変化していることが分かる。Ag 連続膜上では、Ag の吸収 (プラズマ) 端での Kerr 回転角の増幅が見られ、このとき楕円率の極性が反転する。一方、Ag 微粒子上では、波長: 345 nm 付近で Kerr 回転角の極性が反転し、その前後で極大を示している。ここで、分光光度計による測定から、CoPt-Ag ナノ構造体は、波長: 370 nm 付近に、微粒子化ともなう新たな吸収ピークを有することが分かっている。以上のことから、CoPt-Ag ナノ構造体における、Kerr 回転角の短波長側での正の極大は、Ag 連続膜の場合と同様に Ag 吸収端での増幅効果、一方、長波長側での負の極大は、Ag 微粒子での局在プラズモン共鳴に起因する増幅と考えられる。本研究は、科研費の助成を受けて実施した。

### 参考文献

- 1) H. Yamane *et al.*, J.J.A.P. **54**, 06FJ09 (2015)
- 2) H. Yamane *et al.*, A.P.L. **106**, 052409 (2015)

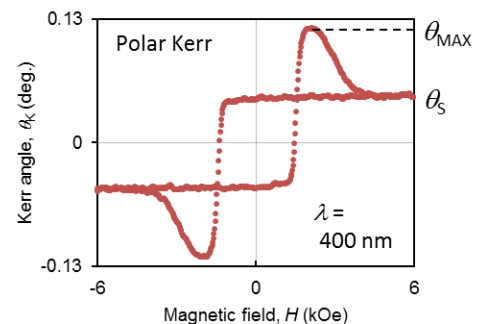


Fig.1 Polar Kerr loop for CoPt-Ag nanostructures.

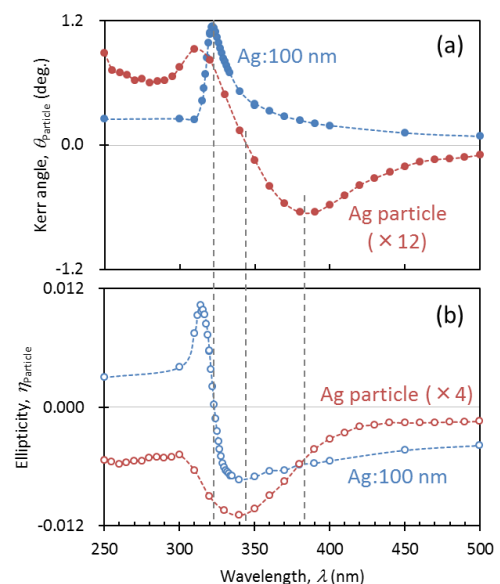


Fig.2 Kerr rotation and ellipticity spectra for CoPt-Ag nanostructures.

# Co<sub>2</sub>FeSi/MgO 積層膜における垂直磁気異方性の基板温度依存性

スタットラー 嘉也, 松下 瑛介, 高村 陽太, 中川 茂樹  
(東京工業大学 工学院 電気電子系)

Substrate temperature dependence of perpendicular magnetic anisotropy of Co<sub>2</sub>FeSi/MgO multilayers

Y. Stutler, E. Matsushita, Y. Takamura, S. Nakagawa

(Dept. of Electrical and Electronic Eng., Sch. of Eng., Tokyo Inst. of Tech.)

## はじめに

垂直磁気異方性(PMA)を有する磁気トンネル接合(p-MTJ)において極めて高いトンネル磁気抵抗比を実現するために、スピン分極率が100%のハーフメタル強磁性体(HMF)薄膜にPMAを発現させる研究が盛んに行われている。これまで我々は、HMFと期待されるフルホイスラー合金Co<sub>2</sub>FeSi(CFS)をMgOと接合させた二層構造に注目し、MgOとの界面磁気異方性<sup>1,2)</sup>によりCFSにPMAを付与できることを示してきた<sup>3,4)</sup>。このPMAはCFSの成膜温度 $T_S$ に依存し、例えば、350°Cで成膜するとPMAは消失した<sup>4)</sup>。本研究では、CFSの $T_S$ を系統的に変化させてCFS/MgO二層構造を作製し、磁化特性と結晶構造を詳細に評価することで、磁気異方性の変化の起源を調べた。

## 実験方法

すべての試料は、対向ターゲット式スパッタ法を用いてMgO(100)単結晶基板上に作製した。試料の積層構造は、基板/Cr(40nm)/Pd(50nm)/CFS(0.6nm)/MgO(2.7nm)/キャップとした。Cr層とPd層の成膜は室温で行い、CFS層の成膜温度 $T_S$ は、25°C, 200°C, 300°C, 350°Cと変化した。CFS表面は、室温において酸素分圧2.0Paの雰囲気中に10分間曝露し、その後MgO層とキャップ層をそのままの温度で成膜した。また、界面以外の磁気異方性を議論するための試料として、比較的厚いCFS層を持つ基板/Cr(40nm)/Pd(50nm)/CFS(30nm)/キャップの積層構造も作製した。MgO層はRFスパッタ、それ以外の層は全てDCスパッタで成膜した。試料の磁化特性は振動試料型磁力計(VSM)で評価し、面内方向の $M-H$ 曲線からPMA定数を算出した。

## 実験結果

Fig. 1に、CFS(0.6nm)/MgO構造の試料のPMA定数 $K_{\perp}$ の $T_S$ 依存性を示す。 $K_{\perp}$ は、 $T_S = 200^\circ\text{C}$ で一旦増加したが、その後減少し、350°Cで0となった。界面の作製条件はすべて同一であるため、この $T_S$ 依存性はCFS層に内在するPMA定数 $K_{\perp}^b$ の変化によるものと我々は考えた。そこで、30nm厚のCFS膜を用いて $K_{\perp}^b$ の評価を行った。 $K_{\perp}^b$ は、 $T_S$ に依存はしたが、CFS(0.6nm)/MgO構造の $K_{\perp}$ に比べて3桁ほど小さい値であった(Fig. 2)。

これらの結果から、CFS(0.6nm)/MgO構造の $K_{\perp}$ の $T_S$ 依存性はCFS層の薄膜内部のPMAによる寄与では説明できないことが分かった。界面構造の変化が異方性に大きく影響したと考えられる。発表当日は、界面磁気異方性について詳細な解析を行った結果も含め報告する。

## 参考文献

- 1) S. Ikeda *et al.*: *Nat. Mater.*, **9**, 721 (2010).
- 2) Z. Wen *et al.*: *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 242507 (2011).
- 3) Y. Takamura *et al.*: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17C732 (2014).
- 4) K. Shinohara *et al.*: *AIP Advances*, **8**, 055923 (2018).

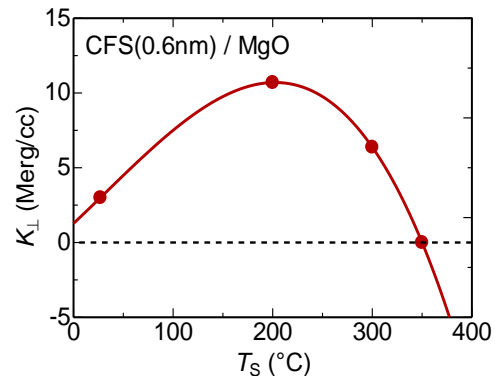


Fig. 1.  $T_S$  dependence of  $K_{\perp}$  of CFS/MgO bilayers.

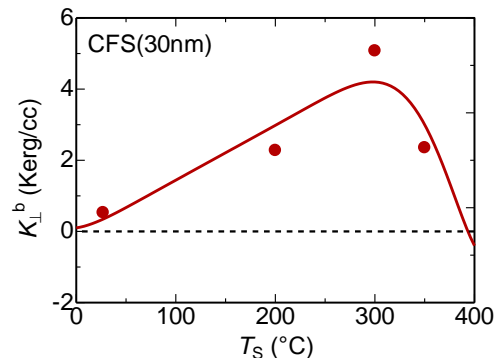


Fig. 2.  $T_S$  dependence of  $K_{\perp}^b$  of 30-nm-thick CFS layers.

## Perpendicular magnetic anisotropy and the crystal structure of C38-type MnGaGe films

Mingling Sun<sup>1,2</sup>, Takahide Kubota<sup>1,3</sup>, Yoshiaki Kawato<sup>4</sup>, Yoshiaki Sonobe<sup>4</sup>, Koki Takanashi<sup>1,3</sup>  
 (Institute for Materials Research, Tohoku University<sup>1</sup>, School of Engineering, Tohoku University<sup>2</sup>,  
 Center for Spintronics Research Network, Tohoku University<sup>3</sup>, Samsung R&D Institute Japan<sup>4</sup>)

### Introduction

It has been a consensus in industry and academia that magnetoresistive random access memory (MRAM) is one of promising memories in the near future. From the viewpoint of materials development, the exploration of materials possessing small saturation magnetization ( $M_s$ ) and perpendicular magnetization with high uniaxial magnetocrystalline anisotropy energy ( $K_u$ ) are necessary for increasing the capacity of the core of MRAM called magnetic tunnel junction (MTJ) [1]. So far, the most successful case is CoFeB/MgO/CoFeB perpendicularly magnetized MTJs, which has achieved tunnel magnetoresistance (TMR) ratio of over 120% at room temperature [2]. Meanwhile, some other hopeful materials were also attempted, such as  $L1_0$ -FePt alloys with extremely large  $K_u$  [3] and Co-based Heusler alloy utilizing interface magnetic anisotropy [4]. However,  $M_s$  values of all those materials are relatively high. Here, we focus on C38-type perpendicularly magnetized MnGaGe films. MnAlGe which has a similar crystal structure with MnGaGe was deposited on a single-crystal (001) MgO substrate successfully [5]. Relatively small  $M_s$  of about 250 emu/cm<sup>3</sup> and moderate  $K_u$  of about  $5 \times 10^6$  erg/cm<sup>3</sup> are of the interest for the application to MTJs. For giga-bit-class MRAMs, the reported  $K_u$  for the MnAlGe film is still small, and the study of C38-type perpendicularly magnetized film is still limited. Therefore, in this work, we have determined to study perpendicular magnetization of epitaxially grown MnGaGe films.

### Experimental

All the metallic layers were deposited by using an ultrahigh-vacuum magnetron sputtering system. The MgO layer was deposited by using an electron beam evaporation system. MnGaGe layer with a thickness of 100 nm was deposited on MgO (001) substrate directly by co-sputtering technique using a MnGa target and a Ge target. The surfaces of the samples were capped by MgO (2 nm)/Ta (5 nm) layers. By adjusting output power of MnGa and Ge targets or changing Ar gas pressure, 5 series of samples were fabricated, which were: Mn<sub>26</sub>Ga<sub>23</sub>Ge<sub>51</sub>, Mn<sub>28</sub>Ga<sub>38</sub>Ge<sub>34</sub>, Mn<sub>30</sub>Ga<sub>37</sub>Ge<sub>33</sub>, Mn<sub>33</sub>Ga<sub>36</sub>Ge<sub>31</sub> and Mn<sub>35</sub>Ga<sub>32</sub>Ge<sub>33</sub>. Subsequent annealing processes were carried out using a vacuum furnace at 300 °C, 400 °C and 500 °C. After the preparation, vibrating sample magnetometer (VSM) and x-ray diffraction (XRD) measurements were carried out to characterize the magnetic properties and crystal structures, respectively.

### Results and discussions

Composition dependence of MnGaGe thin film was investigated systematically. Except the Mn<sub>26</sub>Ga<sub>23</sub>Ge<sub>51</sub> films, the  $M_s$  values were close to that of the bulk sample [6] after annealing at the temperature higher than 300 °C. In addition, the Mn<sub>33</sub>Ga<sub>36</sub>Ge<sub>31</sub> thin films exhibited perpendicular magnetization for the post-annealing temperature ranging from 300 °C to 500 °C. Furthermore, from the results of XRD measurements, epitaxial growth with (001)-orientation was observed in the Mn<sub>33</sub>Ga<sub>36</sub>Ge<sub>31</sub> films with annealing. On the other hand, (110)-orientation also appeared in other samples most of which exhibited in-plane magnetization. It is proposed that the stoichiometry is crucial for the epitaxy of MnGaGe film onto MgO substrate and the perpendicular magnetization.

### Reference

- [1] H. Yoda, *Toshiba Review*, **66**, 20 (2011).
- [2] S. Ikeda, *et al.*, *Nat. Mater.*, **9**, 721 (2010).
- [3] M. Yoshikawa *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **44**, 2573 (2008).
- [4] M.-l. Sun *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **43**, 2600404 (2017).
- [5] S. Mizukami, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 142405 (2013).
- [6] R. Y. Umetsu, *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **50**, 1001904 (2014).

# Cu 及び Pt を用いたスピン渦度結合によるスピン流生成

栗宗 勇貴<sup>A</sup>, 能崎 幸雄<sup>A,B</sup>  
(慶大理工<sup>A</sup>, 慶大スピン研<sup>B</sup>)

Spin current generation via spin vorticity coupling using Cu and Pt

Yuki Kurimune<sup>A</sup>, Yukio Nozaki<sup>A,B</sup>

(<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center)

## はじめに

スピン渦度結合(spin vorticity coupling, SVC)とは、スピンと力学的回転による渦度が結合し、スピンと渦度の向きによってポテンシャルエネルギーに差が生じる現象である。この SVC を用いて、松尾らは表面弾性波の力学的回転からスピン流を生成する手法を提案した[1]。松尾らの計算によれば、SVC によるスピン流の大きさは、伝導体の伝導率やスピン緩和時間に比例し、スピン軌道相互作用(spin-orbit interaction, SOI)の弱い Cu や Al がスピン流生成源に適している。一方で松尾らは最近、流体を用いた SVC によるスピン流生成において、[1]とは別の SOI が寄与しない機構が存在することを理論的に示した[2]。そこで本研究では、SVC 効果における SOI の寄与に注目し、スピン流生成源として SOI の弱い Cu と SOI の強い Pt を用いて、表面弾性波によって生成されたスピン流の定量的な比較を行った。

## 実験方法

測定を行った素子の模式図を Fig.1 に示す。LiNbO<sub>3</sub> 圧電基板上に 1 対のすだれ状電極(IDT)を形成し、IDT 間に NiFe(20 nm)/Cu(200 nm)または NiFe(20 nm)/Pt(200 nm)を成膜した。IDT に交流電圧を印加し、表面弾性波を二層膜に注入すると、非磁性層に SVC 由来の交流スピン流が生成される。これが検出層である NiFe 層に注入されることで、スピントランスファートルクによりスピン波が励起される。スピン波が励起されると透過マイクロ波が減衰するので、これをベクトルネットワークアナライザを用いて S<sub>21</sub>信号として測定した。

## 実験結果

Fig.2 は表面弾性波が励起される周波数に固定したときの、透過マイクロ波の吸収強度  $\Delta P^{\text{norm}}$  の磁場依存性を表す。実線と破線は、それぞれ NiFe(20 nm)/Cu(200 nm)と NiFe(20 nm)/Pt(200 nm)の結果である。Fig.2 より、スピン波の励起周波数が表面弾性波の周波数と一致する磁場においてマイクロ波の吸収が見られた。吸収強度の大きさは、NiFe/Cu が NiFe/Pt よりも約 8.4 倍大きくなったが、スピン流の寄与を評価するには、Barnett 磁場が直接 NiFe 層の磁化を揺さぶる寄与を考慮する必要がある。当日は、松尾らの微視的理論により導出されたスピン流の式に基づき、マイクロ波吸収量のスピン流による寄与を定量的に考察する。

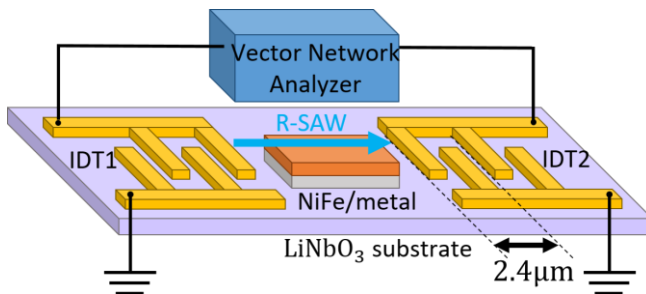


Fig.1 Experimental setup for observing spin wave excited by spin current injection.

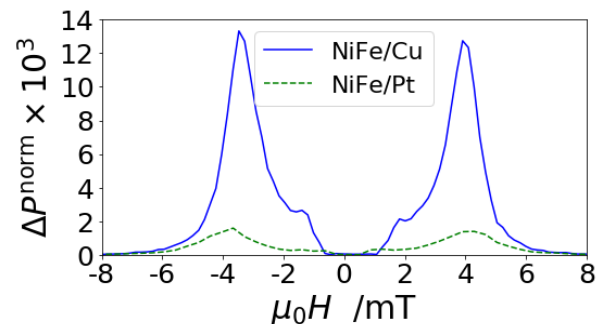


Fig.2 Magnetic field dependence of microwave absorption in NiFe/Cu (solid line) and NiFe/Pt (dashed line).

## 参考文献

[1] M. Matsuo *et al.*, Phys. Rev. B87, 180402(R) (2013). [2] M. Matsuo *et al.*, Phys. Rev. B96, 020401(R) (2017).

## 弱スピノ軌道相互作用材料の接合界面を用いたスピノ流生成実験

洞口 泰輔<sup>A</sup>、能崎 幸雄<sup>A,B</sup>( <sup>A</sup>慶應大、<sup>B</sup>慶應スピノ研)

Spin Current Generation Using an Interface between Weak SOI materials

T. Horaguchi<sup>A</sup>, Y. Nozaki<sup>B</sup>( <sup>A</sup>Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center)**研究背景**

スピノ流は、電荷の移動なしに磁化にトルクを与える角運動量輸送現象として省電力磁気デバイスへの応用が期待されている。従来、スピノ流生成には Pt などスピノ起動相互作用 (SOI) の大きな重金属でのスピノ依存散乱 (スピノホール効果) や磁性体中での磁化ダイナミクスの励起・緩和 (スピノポンピング) が用いられてきた。しかし近年、非磁性体表面を伝播する音波 (表面弾性波;SAW) を用いたスピノ流生成[1]や自然酸化銅中での巨大な電流→スピノ流変換[2]が報告されており、スピノ軌道相互作用の小さな材料を用いたスピノ流生成に期待が高まっている。前者については SAW による格子回転とともに運動する電子の巨視的回転とスピノのスピノ渦度結合 (SVC) によるスピノ流生成理論が松尾らによって提唱されている[3]。一方、後者に関しては、銅が酸化により SOI を発現するとの報告もあるが、Pt に匹敵する巨大なスピノ流生成効率の説明には至っていない。本研究では、Pt に比べてスピノホール角が小さく、スピノホール効果によるスピノ流生成に不向きな Cu と Si を接合させた 2 層構造膜に対し、スピノトルク強磁性共鳴法 (ST-FMR) [4]によりスピノ流評価を行った。

**実験方法**

ST-FMR はスピノ流に起因するスピノトランスファートルクの寄与と電流により発生するエルステッド磁場の寄与が強磁性共鳴スペクトル上でそれぞれ対称型関数 (Lorentzian) と反対称型関数 (Dispersion) として分離することを利用し、入力電流に対するスピノ流生成効率を見積もるホモダイナ検波法の一つである。我々は ST-FMR 法を用いたスピノ流由来トルクの測定により、スピノ軌道相互作用の小さな材料界面でのドリフト速度の渦度由来スピノ流観測を行った。

**実験結果**

Figure 1 に sub./NiFe(8 nm)/Cu(10 nm)/Si(10 nm) の細線(幅 10  $\mu\text{m}$ ) の ST-FMR 測定結果を示す。青線は対称型関数と反対称関数の線形和で表される関数でのフィッティング結果である。スピノ流の寄与が現れる対称型関数の振幅が有限な値となっており、Cu/Si2 層膜でのスピノ流生成が示唆された。詳細な測定結果及び定量評価については当日報告する。

**参考文献**

- 1) D. Kobayashi et.al, Phys. Rev. Lett. 119, 077202 (2017)
- 2) H. An et.al, Nat. Commun. 7, 13069 (2016)
- 3) M. Matsuo et.al, Phys. Rev. B 96, 020401(R) (2017)
- 4) L. Liu et.al., Phys. Rev. Lett. 106, 036601 (2011)

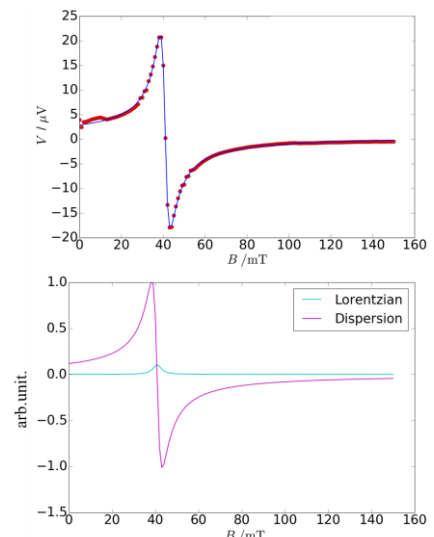


Fig.1 ST-FMR spectrum measured for sub./NiFe(8)/Cu(10)/Si(10) strip.

# 表面弾性波の不均一スピン依存散乱効果を用いた スピン流生成実験

山本 晃弘<sup>A</sup>, 能崎 幸雄<sup>A,B</sup>  
(慶大理工<sup>A</sup>, 慶大スピン研<sup>B</sup>)

Spin current generation using non-uniform spin dependent scattering in surface acoustic waves

Akihiro Yamamoto<sup>A</sup>, Yukio Nozaki<sup>A,B</sup>

(<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center)

## はじめに

最近、表面弾性波を用いたスピン流が生成されることが小林らによって確認された[1]。これはスピン渦度結合というスピンと力学的回転の相互作用を利用して、強磁性体/非磁性体の二層膜上にレイリー型表面弾性波(Rayleigh Surface Acoustic Wave, RSAW)を注入し、交流スピン流を観測したものである。RSAWとは物体表面を伝播する波で、振幅が物体表面に対して垂直な方向に変化する。その他にも表面弾性波にはラブ型表面弾性波(Love Surface Acoustic Wave, LSAW)が存在し、これは振幅が物体表面に対して平行に変化する。本研究では、このLSAWでもスピン渦度結合によるスピン流生成が可能かどうかを調べるため、強磁性体/非磁性体の二層膜上にRSAWとLSAWの二種類の表面弾性波を注入し、交流スピン流の生成を試みた。

## 実験方法

測定した素子の構造を Fig. 1 に示す。圧電基板として広く用いられるタンタル酸リチウム(LiTaO<sub>3</sub>)基板上に、超高真空蒸着器を用いて厚さ 30 nm、くし幅 600 nm の Au すだれ状電極 IDT を作製した。その後、強磁性層(20 nm)/Cu(200 nm)をスパッタ成膜した。一方の IDT に交流電流を印加し表面弾性波を励起させ、表面弾性波の伝播方向に外部磁場を印加した状態で二層膜表面を通過した表面弾性波を他方の IDT で観測した。スピントランスファートルクによるスピン波吸収によって表面弾性波が励起される周波数において表面弾性波の減衰が起こるかどうかを観測した。表面弾性波の伝播強度測定は、ベクトルネットワークアナライザ(VNA)を用いて行った。

## 実験結果

IDT に周波数の異なる交流電流を印加しながら  $S_{21}$  信号を測定した後、逆フーリエ変換により frequency domain データを time domain データに変換した結果を図 2 に示す。表面弾性波の伝播速度の違いから、RSAW と LSAW の両方が LiTaO<sub>3</sub> 基板上に励起されていることが確認できた。図 3 に示すように、RSAW が励起される周波数において、LiNbO<sub>3</sub> 基板を用いた先行研究[1]と同様に RSAW 由来のスピン流が励起した FMR が観察された。当日は、LSAW のスピン流生成特性についても発表する。

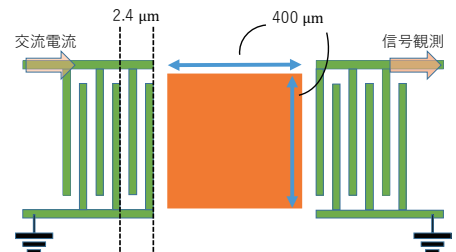


図 1 素子構成の簡易図

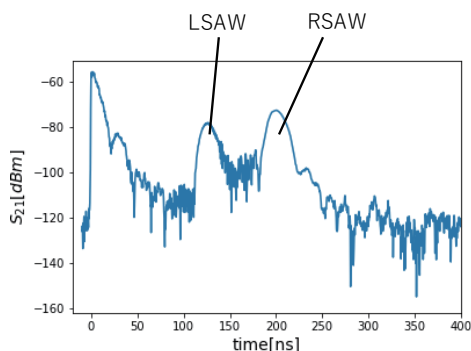


図 2 表面弾性波の観測信号強度

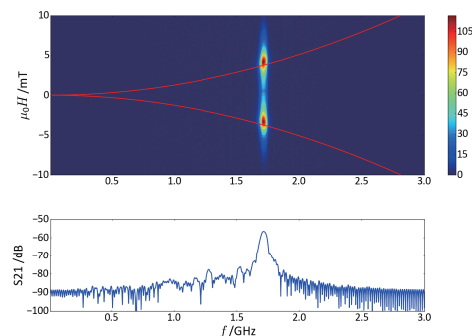


図 3 RSAW の吸収強度

[1] D.Kobayashi et al., Phys. Rev. Lett. 119, 077202(2017)

# 素子サイズと参照層の膜厚が垂直磁気異方性 MTJ 素子の熱安定性に与える影響

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

Effect of size and reference layer's thickness on thermal stability of p-MTJ

T. Tanaka, C. Yoshida, A. Furuya, Y. Uehara, K. Shimizu, J. Fujisaki, T. Ataka, H. Shitara, T. Hirahara H. Oshima\*  
(Fujitsu Limited, \*Fujitsu Laboratories Limited)

垂直磁気異方性を持つ磁気トンネル接合素子(p-MTJ)は磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)の候補としてこれまでに精力的に研究されている。MRAMの実用化における重要な指標の一つとしてMTJ素子に記録されるデータの熱安定性指数 $\Delta$ がある[1]。この $\Delta$ を計算する方法として、String法やNudged elastic band法を用いたマイクロマグネティックシミュレーションがあり、例えばChaves-O'Flynnらによる報告がある[2]。MTJ素子では参照層からの漏れ磁界がフリー層に与える影響は無視できないが、MTJ素子の多層構造をモデル化することで漏れ磁界の効果を考慮し $\Delta$ を評価する計算はほとんどなされていない。本発表では10層からなる二重MgOバリアMTJをモデルに用いたマイクロマグネティックシミュレーションを行い、参照層の厚さと素子サイズがフリー層の熱安定性に与える影響について調べた。

計算に用いたMTJ素子の構造をFig. 1に示す。CoPtの積層数 $n$ を変えることで参照層の膜厚を変化させた。エネルギー障壁はString法を用いて評価した[3]。String法とは2つの安定状態を結ぶ経路の内、最大エネルギーが最も小さくなる経路を探索する手法である。求められた経路を用いてP(AP)状態からAP(P)状態へのエネルギー障壁を計算し $\Delta$ を求めた。

Fig. 2(a)はMTJ素子の直径と参照層の膜厚を変えた場合のオフセット磁界 $H_{\text{offset}} = (H_{c,P \rightarrow AP} + H_{c,AP \rightarrow P})/2$ を表している。ここで $H_{c,P \rightarrow AP}$ ( $H_{c,AP \rightarrow P}$ )はP(AP)状態からAP(P)状態への反転時の保磁力である。参照層の膜厚と直径によってオフセット磁界が変化することがわかる。これはフリー層に加わる漏れ磁界が変化するためと考えられる。Fig. 2(b)、(c)にP(AP)状態からAP(P)状態への指数 $\Delta_{P \rightarrow AP}$ ( $\Delta_{AP \rightarrow P}$ )のサイズ依存性を示す。参照層の膜厚が厚い(薄い)ときは、 $\Delta_{AP \rightarrow P} > \Delta_{P \rightarrow AP}$  ( $\Delta_{AP \rightarrow P} < \Delta_{P \rightarrow AP}$ )となる。これはフリー層に加わる漏れ磁界により対称性が破れてP状態とAP状態の安定性が変化するためと考えられる。特に $n=10$ (2)の時に $\Delta_{P \rightarrow AP}$ はサイズ増加に従って飽和する傾向を示した。Fig. 2(d)は $\Delta = (\Delta_{P \rightarrow AP} + \Delta_{AP \rightarrow P})/2$ のサイズ依存性を表している。Fig. 2(b)、(c)では $\Delta_{P \rightarrow AP}$ は膜厚の影響によりサイズ依存性が大きく変化した、それらとは異なり $\Delta$ のサイズ依存性は膜厚にほとんどよらないことがわかる。

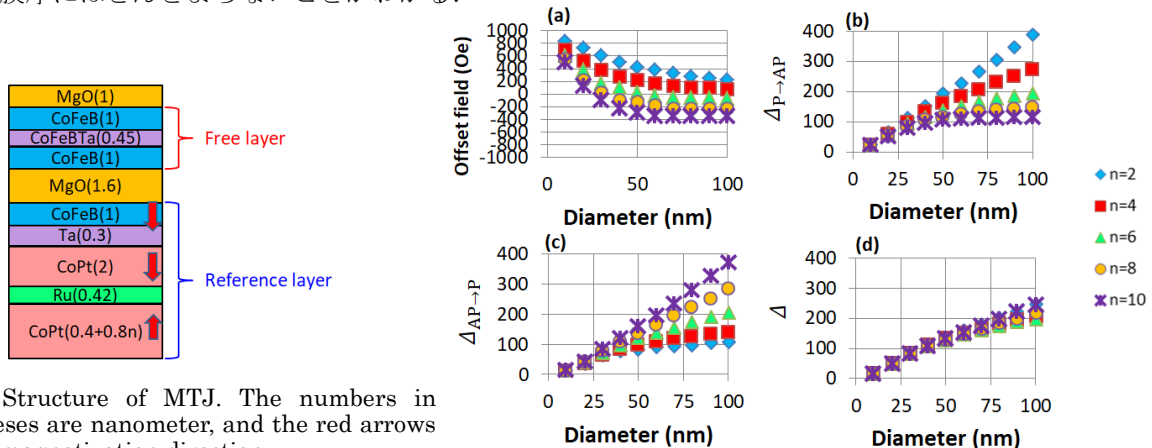


Fig. 1. Structure of MTJ. The numbers in parentheses are nanometer, and the red arrows indicate magnetization direction.

Fig. 2. (a) Offset field. (b)-(d) Index of the energy barrier.

- 1) H. Sato, S. Ikeda, and H. Ohno, Jpn. J. Appl. Phys. 56, 0802A6 (2017)
- 2) G. D. Chaves-O'Flynn, G. Wolf, J.Z. Sun, and A. D. Kent, Phys. Rev. Appl. 4, 024010 (2015)
- 3) W. E. W. Ren, and E. Vanden-Eijnden, J. Chem. Phys. 126, 164103 (2007)

## 希土類-遷移金属フェリ磁性体/4f金属ヘテロ接合におけるスピン軌道トルク

笠谷雄一<sup>1,3</sup>, 吉川大貴<sup>1</sup>, 二川康宏<sup>2</sup>, 塚本新<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>日大理工, <sup>2</sup>日大院理工, <sup>3</sup>学振PD)

Spin-Orbit Torque in rare earth-transition metal Ferrimagnet/4f-metal Heterostructures

Y. Kasatani<sup>1,3</sup>, H. Yoshikawa<sup>1</sup>, Y. Futakawa<sup>2</sup> and A. Tsukamoto<sup>1</sup>(<sup>1</sup>College of Science and Technology, Nihon Univ., <sup>2</sup>Graduate School of Science and Technology, Nihon Univ., <sup>3</sup>JSPS Research Fellow)

## 1 はじめに

近年、強磁性体/重金属界面で生じるスピン軌道トルク (SOT) について、様々なスピントロニクス分野で盛んに研究が行われている。SOTはフェロ磁性体/5d重金属界面だけではなく、GdFeCo/Ptのような希土類-遷移金属 (RE-TM) フェリ磁性体/5d重金属接合<sup>1)</sup>や、Gd/Co/Ptのような4f金属を用いた系<sup>2)</sup>においても測定されている。本研究では、我々は4f金属のスピン軌道相互作用に着目し、RE-TMフェリ磁性体/4f金属ヘテロ接合におけるSOTについて明らかにする。

## 2 実験方法

Si基板上に、Au(20 nm)/X(5 nm)/GdFeCo(10 nm)/SiN(100 nm) (X = Gd, Tb) からなるRE-TMフェリ磁性体/4f金属ヘテロ接合膜をRFスパッタリングにより作成した。電子線リソグラフィ装置を用いて、幅5  $\mu\text{m}$ 、長さ100  $\mu\text{m}$ のホールバー形状に加工した。外部磁場を掃引しながら、信号発生器を用いて  $V = V_{\text{in}} \sin 2\pi ft$  (大きさ  $V_{\text{in}}$ 、周波数  $f$ ) で振動する電圧を印加し、ロックインアンプを用いて電流と垂直に生じるホール電圧を測定した。ホール電圧の基本波成分および二次高調波成分の外部磁場依存性より、damping-like SOTの大きさと有効スピンホール角を求めた。(ハーモニクホール電圧測定)

## 3 結果および考察

Fig. 1にホール電圧の基本波成分  $V_{1f}$  および二次高調波成分  $V_{2f}$  の、膜面内で電流と平行に印加した外部磁場  $H_{\text{ext}}$  依存性を示す。Gd/GdFeCo、Tb/GdFeCoのそれぞれにおいて  $V_{1f}$  の符号は同じ、 $V_{2f}$  の符号は互いに逆向きであることがわかった。この結果より、Gd/GdFeCoとTb/GdFeCoで生じるdamping-like SOTの向きは互いに逆向きであることが示唆される。

$V_{1f}$  および  $V_{2f}$  の外部磁場依存性より求めた、Gd/GdFeCo、Tb/GdFeCoおよび参照試料として作成したPt/GdFeCoにおける有効スピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  をFig. 2に示す。Gd、Tbを接合した場合、スピン軌道相互作用が大きいとされるPtに比べて、有効スピンホール角が約10倍程度大きくなった。また、GdとTbで有効スピンホール角の符号が反転しているが、これはGd ( $4f^7 5d^1$ ) では4f軌道がちょうど半閉殻であるのに対し、Tb ( $4f^9$ ) では4f軌道にさらに2つ電子が加わるためであると考えられる。

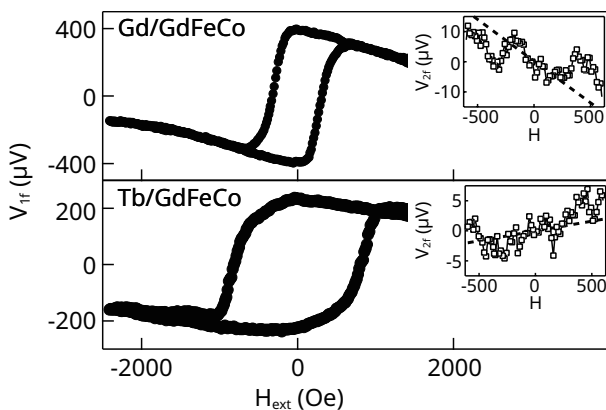


Fig. 1 In-plane magnetic field dependence of 1st and 2nd harmonic Hall voltage.

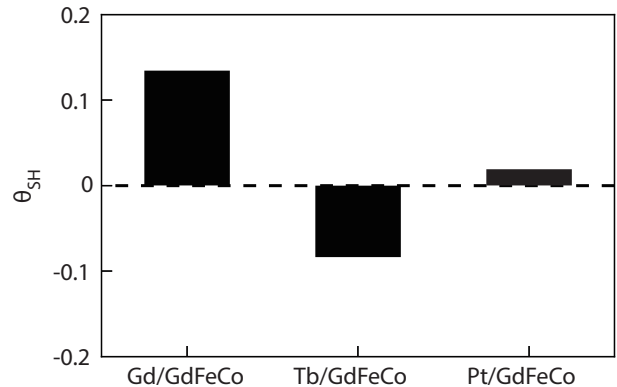


Fig. 2 Effective spin hall angle of Gd/GdFeCo, Tb/GdFeCo and Pt/GdFeCo (reference).

## 謝辞

本研究は、平成25-29年度文部科学省私立大学戦略的基盤形成支援事業 (S1311020) および平成30-32年度JSPS特別研究員奨励費の助成により行われた。

## References

- 1) W. S. Ham, S. Kim, D.-H. Kim, K.-J. Kim, T. Okuno, H. Yoshikawa, A. Tsukamoto, T. Moriyama and T. Ono, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 242405 (2017).
- 2) K. Ueda, C.-F. Pai, A.-J. Tan, M. Mann, and G. S. D. Beach, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 232405 (2016).



# 界面ジャロシンスキー守谷相互作用による 細線中に閉じ込めた磁気渦ダイナミクスの変調

後藤 勇喜<sup>A</sup>, 能崎 幸雄<sup>A,B</sup>  
(慶大理工<sup>A</sup>, 慶大スピン研<sup>B</sup>)

Dynamical Modulation of Magnetic Vortex in Nanostrips  
Using Interfacial Dzyaloshinskii-Moriya Interaction

Y. Goto<sup>A</sup> and Y. Nozaki<sup>A,B</sup>

(<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center)

## はじめに

界面ジャロシンスキー守谷相互作用 (IDMI) は強磁性薄膜と重金属薄膜の界面に現れる。IDMI ではスピンの直交する時エネルギーが低くなるため、ハイゼンベルグ相互作用と IDMI が競合することによってねじれた磁化構造が安定化することが知られている。一方で、強磁性薄膜円盤において交換エネルギーと静磁エネルギーの競合により磁化がねじれた磁気渦構造が安定化する。磁気渦は渦構造を保ったまま磁気渦中心が巡回運動する TM モードの存在が知られており、その固有周波数は円盤の膜厚と直径に依存する。TM モードは交流電流や磁場により励起することができるが、最近 Liu らによって DMI が TM モードの周波数を変調するというシミュレーション結果が示された。[1]そこで我々は、DMI による TM モードの変調を実験により観察し、マイクロマグネティクス計算の計算結果と比較することにより、DMI の定量的評価を試みた。

## 実験方法

図 1 のように直径  $1 \mu\text{m}$  の円盤をシリコン基板上に NiFe(25 nm)/Pt(9 nm) で製膜した。次に Cu(70nm) の電極を円盤端に接続し、交流電流を 50 MHz から 400 MHz の周波数範囲で印加した。TM モードの励起は円盤に現れる整流電圧を測定することにより観測した。また、図 3 のように磁化を飽和させることで V 字型細線上に渦磁壁を生成し同様に渦の TM モードを励起する実験を行った。円盤状の試料サイズに合わせた条件下でシミュレーションによる計算を行い、DMI の大きさに対してどのような変調が起こるのかを調べた。

## 実験結果

図 2 は NiFe/Pt および NiFe からなる円盤の TM モードの整流スペクトルを表したものである。大きな IDMI が存在すると考えられる NiFe/Pt において TM モードの固有周波数が 10 MHz 低下していることがわかる。シミュレーションによる結果より、渦の直径が小さいほど DMI による変調量が大きく観測されることが予測されるため、当日は V 字型細線中の渦磁壁に関して行った TM モードの変調についても共に発表を行う。

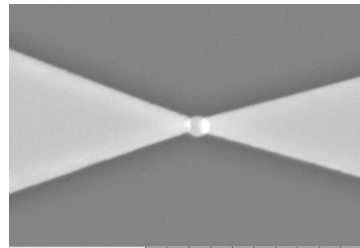


図 1 : 円盤と電極接続の SEM 画像

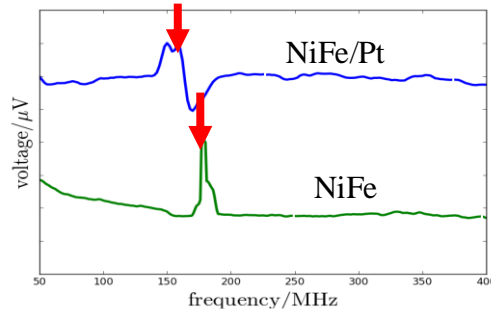


図 2 : NiFe/Pt と NiFe 円盤における整流スペクトル

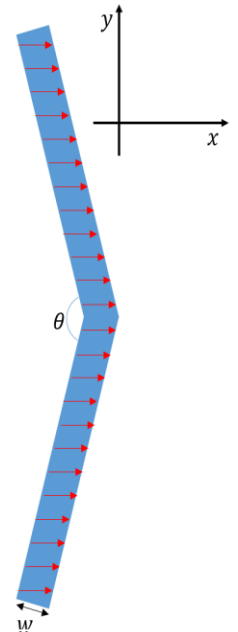


図 3 : V 字型細線

## 参考文献

[1]Y. Liu, M. Jia, H. Li, and A. Du, J. Magn. Magn. Mater., **401**, pp. 806-811 (2016).

# 反強磁性磁気構造に作用するスピントロニクスへの評価

増田啓人<sup>1</sup>、関剛斎<sup>1,2</sup>、窪田崇秀<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 CSRN)

Characterization of Spin Hall Torque Acting on Antiferromagnetic Structures

H. Masuda<sup>1</sup>, T. Seki<sup>1,2</sup>, T. Kubota<sup>1,2</sup>, and K. Takanashi<sup>1,2</sup>  
 (<sup>1</sup>IMR, Tohoku Univ., <sup>2</sup>CSRN, Tohoku Univ.)

## はじめに

反強磁性体の持つ低い磁場感受率や高い磁気共鳴周波数を積極的に活用する反強磁性スピントロニクスが近年注目を集めている<sup>1)</sup>。反強磁性スピントロニクスにおける課題の一つが、反強磁性磁気構造の磁化方向を効率的に操作する手法を確立することである。磁場感受率の低い反強磁性体に対して有効になると考えられるのが、電流通電によって発生するスピントロニクス効果の利用である。これまでの研究では、バルク反強磁性体とスピントロニクス効果の大きい非磁性物質 (Pt, Ta, W など) を組み合わせた系を用いて、電流と反強磁性磁気構造の相互作用が調べられてきた。しかしながら、バルク反強磁性体は磁区構造の制御性に乏しく、磁場による磁気構造の初期化が不可能などの技術的な問題点があり、磁気構造を制御しやすい系での系統的な研究が必要となっている。

反強磁性と電流の相互作用を系統的に調べるための一つの系として、Co-Gd アモルファス合金が考えられる。Co-Gd アモルファス合金では、Co と Gd の磁気モーメントが反平行に結合するため、合金組成を調整することで、マクロな磁気特性に対し支配的となる元素を制御できる。また、磁化が補償する組成が存在するため、補償フェリ磁性体となる組成では擬似的な反強磁性構造と電流の相互作用を調べることが可能となる。

そこで本研究では、組成を様々に変化させた Co-Gd アモルファス合金層と非磁性 Pt 層を積層化させた Co-Gd / Pt 薄膜試料を作製し、磁気特性および磁気伝導特性を評価した。特に、Pt 層のスピントロニクス効果を起源とするスピントロニクス磁気抵抗 (SMR) について組成依存性を調べ、異方性磁気抵抗効果 (AMR) の組成依存性と比較することで、反強磁性磁気構造に作用するスピントロニクス効果の理解を目指した。

また、Co-Gd / Pt 薄膜試料に加え、人工反強磁性体である反強磁性結合人工格子の作製を試み、人工格子におけるスピントロニクス効果の影響についても検討を行った。

## 実験結果

超高真空対応スパッタリング装置を用いて、熱酸化 Si 基板上に Cr (4 nm) / Co<sub>100-x</sub>Gd<sub>x</sub> (30 nm) / Pt (4 nm) の積層構造を有する薄膜試料を作製した。成膜温度は室温とした。Gd 濃度  $x$  を増やすに連れ磁化の値は単調に減少し、 $x = 24$  at.% 近傍で磁化補償点となることが明らかとなった。これは  $x = 24$  at.% を境に、Co-dominant な Co-Gd 合金から、Gd-dominant な Co-Gd 合金へと変化していることを意味している。AMR の組成依存性を調べた結果、 $x$  の増加に対してその符号が反転することが明らかとなった。一方で、SMR は組成によらず同じ符号を示した。この結果は、AMR と SMR が全く異なる散乱メカニズムで生じていることを示唆しており、補償フェリ磁性体においてもスピントロニクス効果が磁化に作用することが示された<sup>2)</sup>。

講演時には、反強磁性結合人工格子におけるスピントロニクス効果の評価についても議論する予定である。

## 参考文献

- 1) T. Jungwirth, X. Marti, P. Wadley, and J. Wunderlich, *Nature Nano.* **11**, 231 (2016).
- 2) W. Zhou, T. Seki, T. Kubota, G. E. W. Bauer, and K. Takanashi, arXiv:1805.02827.

# 表面弾性波を用いたスピン起電力の生成実験

根上 脩<sup>A</sup>、能崎 幸雄<sup>A,B</sup>  
(慶大理工<sup>A</sup>、慶大スピン研<sup>B</sup>)

Experiment on Generation of Spin-Motive Force Using Surface Acoustic Waves

Shu Negami<sup>A</sup>, Yukio Nozaki<sup>A,B</sup>  
(Keio Univ.<sup>A</sup>, Keio Spintronics Center<sup>B</sup>)

## はじめに

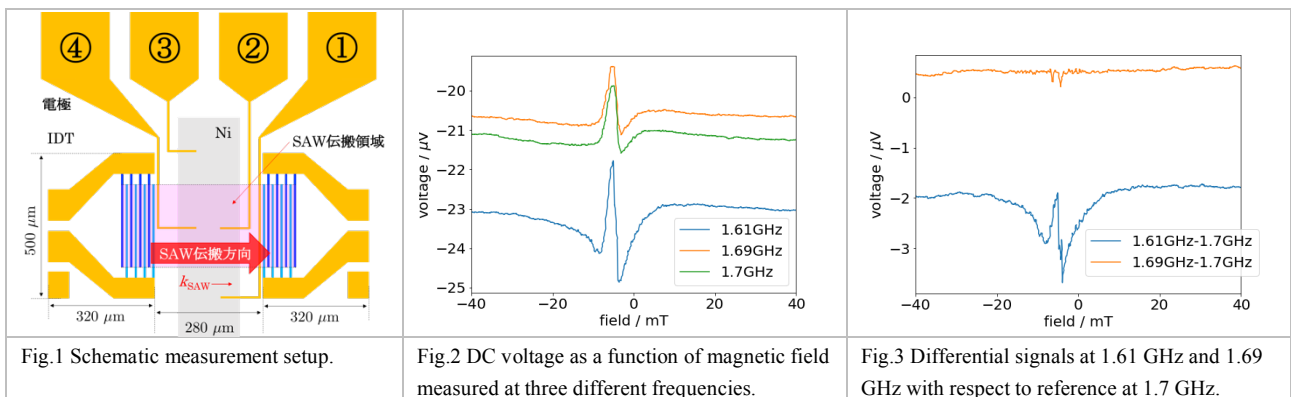
スピン起電力(Spin Motive Force, SMF)は、電荷に起因する従来の起電力とは異なり、電子の持つもう一つの自由度であるスピンに起因する起電力である。スピン起電力は、空間勾配を有する non-collinear 磁気構造の時間変化により発現する。先行研究では、磁気渦構造[1]や、形状磁気異方性を変調した楕円磁性体[2]を利用したスピン起電力生成が報告されている。本実験では、表面弾性波(SAW)を用いることにより、磁性材料の設計上の制約なしに磁気構造を空間・時間変化させ、スピン起電力の生成を行うことを目指した。

## 実験方法

スピン起電力実験に用いた素子の構造を Fig.1 に示す。LiNbO<sub>3</sub>基板上に超高真空蒸着器を用いて Au(30 nm)の Interdigital Transducer (IDT)を一对作製した。次に、IDT 間に磁性薄膜として 180×700 μm<sup>2</sup>の Ni(50 nm)をスパッタ成膜した。最後に IDT の電極部と起電力測定用の電極として Au(70 nm)を成膜した。測定手順は次の通りである。(1) IDT に周波数  $f$  のマイクロ波を印加して表面弾性波を励起し、Ni 薄膜に注入した。(2) SAW の波数ベクトル  $k_{SAW}$  と静磁場  $H_{dc}$  の角度を  $\theta$  とし、磁場強度を ±50 mT 間で 0.8 mT 刻みで掃引した。(3) 各磁場において Ni 薄膜に設けた任意の端子間の電位差をナノボルメーターで測定した。(1)~(3)を  $f=1.61, 1.69, 1.7$  GHz の 3 種類の周波数で、磁場印加角度  $\theta$  を 0°~90°まで 10°刻みに変化させた。

## 実験結果

Fig. 2 は、 $\theta=30^\circ$ での端子①と②の電位差( $V_{①}-V_{②}$ )である。本実験で用いた IDT は約 1.61 GHz のマイクロ波が印加されたときのみ、表面弾性波を励起できる設計である。そのため 1.61 GHz のマイクロ波印加時の信号は表面弾性波励起時の電位差であり、他の周波数は表面弾性波以外の寄与を反映した電位差と考えられる。したがって、1.7 GHz の測定結果を参照信号とし、差分をとった信号は電磁波等の影響を取り除いた電位差とみなすことができる。Fig. 3 に示すように、SAW に由来する磁気共鳴(SAW-FMR)[3]が誘引される磁場付近で電位差が検出された。これは Ni 薄膜内で非一様な磁化歳差運動が誘引され、歳差運動角が変化する領域、すなわち磁化が空間・時間変化する部分での信号であり、SMF の寄与を含むと考えられる。SMF の定量的考察については当日報告する。



## 参考文献

- [1]. K. Tanabe *et al.* Nature Communications 3, 845 (2012)
- [2]. Y. Yamame *et al.* Phys. Rev. Lett. 107, 236602 (2011)
- [3]. L. Dreher *et al.* Phys. Rev. B 86, 134415 (2012)

# 極薄超磁歪 SmFe<sub>2</sub> 膜の磁気異方性

小野澤 隼, 北川 涼太, 高村 陽太, 中川 茂樹  
(東京工業大学 工学院 電気電子系)

Magnetic anisotropy of negative giant magnetostrictive SmFe<sub>2</sub> ultrathin films

H. Onozawa, R. Kitagawa, Y. Takamura, S. Nakagawa

(Dept. of Electrical and Electronic Eng., Sch. of Eng., Tokyo Inst. of Tech.)

## はじめに

超磁歪材料で垂直磁化フリー層を構成した磁気トンネル接合(MTJ)と圧電体を組み合わせたピエゾエレクトロニック MTJ(PE-MTJ)<sup>1)</sup>は、不揮発性を保ったまま非常に低い磁化反転電流密度を達成できる。この素子のフリー層材料として、我々は負の巨大な磁歪効果を示す SmFe<sub>2</sub><sup>2)</sup>に注目した。これまでのところ、100 nm 厚の試料を用いて、異方的な近距離秩序に有すると考えられるアモルファス SmFe<sub>2</sub>相が垂直磁気異方性(PMA)を持つことを明らかにしてきた<sup>3)</sup>。これをフリー層に応用するためには、nm オーダーまで薄層化しても PMA や大きな磁歪を保っていることを示す必要がある。今回は、SmFe<sub>2</sub>膜の膜厚を減少させ、PMA と磁歪特性の膜厚依存性等について詳細な調査を行ったため報告する。

## 実験方法

すべての試料は、対向ターゲット式スパッタ法を用いて作製した。SmFe<sub>2</sub>薄膜は、W バッファ層を堆積したガラス基板上に成膜し、さらに W でキャップした。SmFe<sub>2</sub>の膜厚  $t$  は、10 から 100nm まで変化させた。SmFe<sub>2</sub>成膜時の Ar 分圧は 0.1Pa、基板温度は 200°C とした。また、積層構造を作製した後に、アニール処理を 500°C で 1 時間施した。試料の磁化特性は、振動試料型磁力計(VSM)で評価を行った。

## 実験結果と考察

Figs. 1(a)と 1(b)に 30nm 厚と 10nm 厚の SmFe<sub>2</sub>膜の磁化特性を示す。面直方向に対して、 $t = 30\text{nm}$  の試料は残留磁化を持つループが確認できたが、 $t = 10\text{nm}$  の試料では困難軸のような曲線を示した。Fig. 1(c)に飽和磁化  $M_s$  の  $t$  依存性を示す。 $M_s$  は、 $t \geq 30\text{nm}$  では約 520emu/cc の一定値を取ったが、 $t = 10\text{nm}$  では、約 450 emu/cc まで減少した。

磁化容易軸を定量的に評価するため、 $M-H$  曲線から垂直と面内それぞれの磁気異方性エネルギー密度  $K_{\perp}$ ,  $K_{\parallel}$  を求め、さらに反磁界を考慮したエネルギー密度の差分  $\Delta K = K_{\perp} - (K_{\parallel} + 2\pi M_s^2)$  を定義した。Fig. 1(d) に  $\Delta K$  と  $K_{\perp}$  の  $t$  依存性を示す。 $t \geq 30\text{nm}$  までは  $\Delta K$  は正だったが、それ以下では負となり、 $t$  が 10-30nm の間で磁化容易軸が面直から面内方向に変化することがわかった。これは、薄膜化に伴う  $M_s$  の減少による反磁界の減少分以上に  $K_{\perp}$  が低下したためである。これらの結果は、膜厚の減少に伴い近距離秩序の異方性アモルファス構造が変化したことを示唆する。

以上より、SmFe<sub>2</sub>薄膜は PMA を保ったまま 30nm まで薄層化できることがわかった。さらなる薄層化には、近距離秩序等の異方的な構造を詳細に調べながら成膜条件を調整する必要があると考えられる。

参考文献

- 1) Y. Takamura, et al.: *Solid State Electron.*, **128**, 194 (2017).
- 2) H. Samata, N. Fujiwara, Y. Nagata, T. Uchida, M. D. Lan: *J. Magn. Magn. Matter.*, **195**, 376 (1999).
- 3) 富田誠人, 石谷優剛, 高村陽太, 中川茂樹: 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 19pA-7, 福岡, 2017 年 9 月。

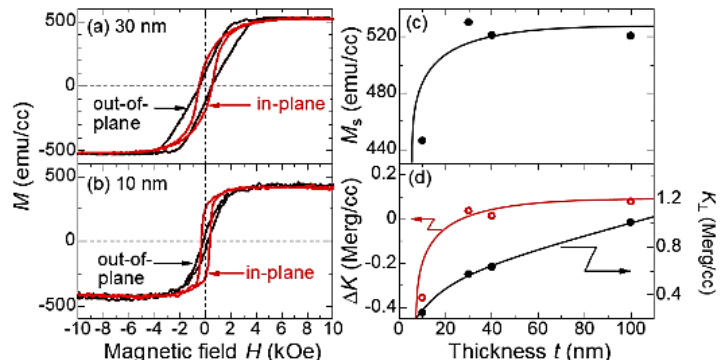


Fig. 1 Comparison of the  $M-H$  loops for SmFe<sub>2</sub> films with  $t =$  (a) 10 nm and (b) 30 nm.  $t$  dependence of (c)  $M_s$  and (d)  $\Delta K$  and  $K_{\perp}$ .

RuCoCr-oxide バッファ層による CoPt-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> グラニューラ媒体の粒間交換結合の低減

◦タム キム コング<sup>a)</sup>, 櫛引 了輔<sup>a)</sup>, 鎌田 知成<sup>a)</sup>, 斉藤 伸<sup>b)</sup>  
<sup>(a)</sup>田中貴金属工業株式会社, <sup>(b)</sup>東北大学

Intergranular exchange decoupling of CoPt-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> granular media by introducing RuCoCr-oxide buffer layer

◦Kim Kong Tham<sup>a)</sup>, Ryosuke Kushibiki<sup>a)</sup>, Tomonari Kamada<sup>a)</sup>, and Shin Saito<sup>b)</sup>  
<sup>(a)</sup>TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K., <sup>(b)</sup>Tohoku University

**はじめに** 現行の垂直磁気記録媒体では磁性層として CoPt 合金-酸化物薄膜 (グラニューラ媒体) が広く用いられている。グラニューラ媒体の記録密度をさらに伸ばすためには、コラム状結晶粒の一軸結晶磁気異方性エネルギー ( $K_u^{\text{grain}}$ ) を  $1.0 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$  以上に増大させると共に、結晶粒間の交換結合を低減させることが必須である<sup>1)</sup>。高  $K_u^{\text{grain}}$  を有するコラム状結晶粒を実現するためには CoPt 合金結晶相と酸化物アモルファス相との相分離を促進することが肝要であり、筆者らは低融点酸化物、例えば B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いることが分離析出に有効であることを報告してきた<sup>2)</sup>。残された課題は、Ru 中間層の直上における磁性層初期成長部での隣接結晶粒の接触に伴う粒間交換結合の抑制である<sup>3)</sup>。今回我々は、Ru 中間層と CoPt-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> グラニューラ磁性層との間に非磁性合金-oxide グラニューラバッファ層を挿入する層構成を採用し、粒間交換結合を抑制する媒体の作製指針を得たので報告する。

**実験結果** 媒体は室温で作製し、層構成を C (7 nm)/ Co<sub>80</sub>Pt<sub>20</sub>-30 vol% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (16 nm)/ BL (0-4 nm)/ Ru (20 nm)/ Ni<sub>90</sub>W<sub>10</sub> (6 nm)/ Ta (5 nm)/ glass sub. とした。ここで BL とは非磁性グラニューラ層からなるバッファ層であり、Ru<sub>50</sub>Co<sub>25</sub>Cr<sub>25</sub>-30 vol% TiO<sub>2</sub> とした。金属相には磁性結晶粒のヘテロエピタキシャル成長を促進させるために、下地膜の材料 (Ru) と磁性層材料の一部 (Co) を含む非磁性六方晶 Ru 合金を選定している。Fig. 1 には作製した媒体の保磁力 ( $H_c$ ) の BL 膜厚 ( $d_{\text{BL}}$ ) 依存性を示す。 $d_{\text{BL}}$  を 0 から 2 nm に厚くすると、 $H_c$  が 7.5 から 9.3 kOe へと 24% も増大する。さらに、 $d_{\text{BL}}$  を 4 nm まで厚くすると、 $H_c$  は 9.3 から 8.7 kOe に低下してしまう。 $H_c$  の  $d_{\text{BL}}$  依存性の要因を調べるために、異方性磁界 ( $H_k$ ), 熱安定性、粒間交換結合の度合いを評価した。ここで、熱安定性および粒間交換結合の度合いとしては  $v_{\text{act}}K_u^{\text{grain}}/kT$ ,  $GD_{\text{act}}$  および  $\alpha$  ( $4\pi|dM/dH|_{H_c}$ ) を測定した。 $K_u^{\text{grain}}$  は、グラニューラ磁性層の平均的な垂直磁気異方性エネルギー ( $K_u$ ) が磁性層体積の 70% を占める磁性結晶粒から発現していることを考慮して求めた ( $K_u = 0.7K_u^{\text{grain}}$ )。Fig. 2 には、(a)  $H_k$  と  $K_u$ , (b)  $GD_{\text{act}}$  と  $v_{\text{act}}K_u^{\text{grain}}/kT$  および (c)  $\alpha$  の  $d_{\text{BL}}$  依存性を示す。 $d_{\text{BL}}$  を 0 から 4 nm に厚くしても、 $H_k$  および  $K_u$  はほぼ一定の値 18.5 kOe および  $8.0 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$  を示した。また  $v_{\text{act}}K_u^{\text{grain}}/kT$  は 130 以上の値を示しており、検討した  $d_{\text{BL}}$  の範囲では熱擾乱の影響は無視できる。一方  $GD_{\text{act}}$  および  $\alpha$  は  $d_{\text{BL}}$  が 2 nm で極小の 6.2 nm および 1.2 の緩慢な極小を示した。このことは 2 nm の BL 挿入により粒間交換結合が低減されることを示している。

講演では種々の融点を有する酸化物非磁性グラニューラ層を BL として挿入したグラニューラ媒体の磁気特性を併せて紹介し、酸化物種が粒間交換結合へ及ぼす効果についても議論する。

**参考文献** 1) G. Choe, M. Zheng, E.N. Abarra, B.G. Demczyk, J.N. Zhou, B.R. Acharya, and K.E. Johnson, *J. Magn. Magn. Mater.*, **287**, 159 (2005). 2) K. K. Tham, R. Kushibiki, S. Hinata, and S. Saito, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **55**, 07MC06 (2016). 3) R. Kushibiki, K. K. Tham, S. Hinata, and S. Saito, *AIP Advances*, **7**, 056512 (2017).

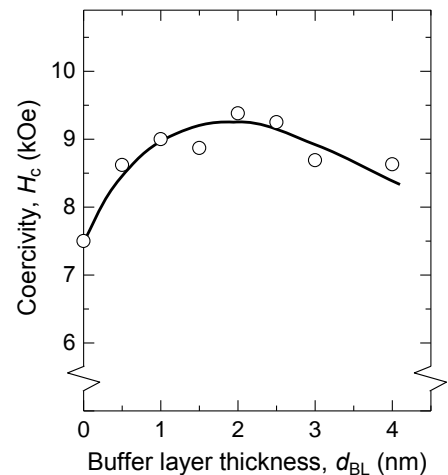


Fig. 1 Dependence of coercivity ( $H_c$ ) on the buffer layer thickness ( $d_{\text{BL}}$ ).

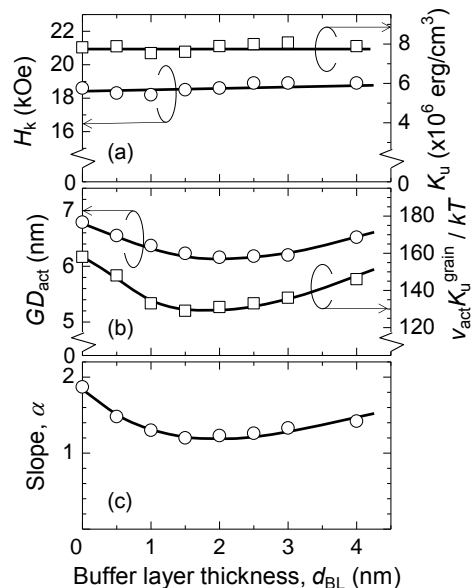


Fig. 2 Dependence of (a)  $H_k$  and  $K_u$ , (b)  $GD_{\text{act}}$  and  $v_{\text{act}}K_u^{\text{grain}}/kT$  and (c) Slope ( $\alpha$ ) on buffer layer thickness ( $d_{\text{BL}}$ ).

## L1<sub>0</sub>型 FePt 薄膜の添加元素による形態制御および磁気特性

石田響、土井正晶、嶋敏之  
(東北学院大学)

Morphological control and magnetic properties of L1<sub>0</sub> FePt thin films by added elements

K. Ishida, M. Doi and T. Shima  
(Tohoku Gakuin University)

### はじめに

現在、永久磁石はハードディスクドライブ(HDD)やセンサー、アクチュエータ、スピーカー、さらに風力発電のタービンやハイブリットカーのモーターに使用されるなど幅広い応用がなされている。また、磁気記録媒体は垂直磁気記録方式が採用されて以降、大容量の情報が記録できるようになり、現在その記録密度は 1 Tbit/ in<sup>2</sup> に到達しようとしている。今後も 4K 放送やクラウド技術の発達などによりデータの大容量化が進行することが予測されることから、更なる記録密度の増加が求められている。しかしながらこの高密度化に伴い、記録磁性粒子の微小化による熱揺らぎの問題が深刻化することから、高い結晶磁気異方性を有する材料が求められている。そこで注目を集めているのが L1<sub>0</sub>型 FePt 規則合金である。L1<sub>0</sub>型 FePt 規則合金は適度な飽和磁化(1150 emu/ cm<sup>3</sup>)、高い結晶磁気異方性(7.0×10<sup>-7</sup> erg/ cm<sup>3</sup>)に加え、耐腐食性および耐酸化性を有していることから、次世代の磁気記録媒体材料として期待されておりこれまでに数多くの研究が行われている<sup>1,2)</sup>。さらに、FePt 薄膜に Cu を添加元素として用いることで規則化温度が減少し、記録媒体への応用が期待されている。しかしながら、FePt 薄膜に Fe と非固溶である元素を添加することによる形態および磁化過程の変化については十分な解明がされていない。そこで本研究では Fe と非固溶である Cu および Ag を添加した FePt 薄膜の含有量による結晶構造、表面形態及び磁気特性にどのような影響を及ぼすか詳しく調査することを目的とした。

### 実験方法

全ての試料は超高真空多元スパッタリング装置を用いて FePt(Cu,Ag)薄膜を作製した。基板には MgO(100)単結晶基板を用いて基板加熱を 700 °C において 1 時間行い、FePt(Cu,Ag)薄膜を成膜した。それぞれの試料の膜厚は全て 10 nm とした。(FePt)<sub>100-x</sub>Cu<sub>x</sub> 薄膜について添加元素量 X は、X = 1, 5, 10, 20 および 30 (at.%)と、(FePt)<sub>100-x</sub>Ag<sub>x</sub> 薄膜の場合には X = 1, 5, 10, 22.1 および 29.3 (at.%)と変化させ実験を行なった。試料の評価には、結晶構造を X 線回折装置(XRD)、表面形態は原子間力顕微鏡(AFM)、磁気特性は超伝導量子干渉磁束計(SQUID)を用いて評価を行った。

### 実験結果

FePt(Cu,Ag)薄膜を作製し、それらの試料について評価を行った。その結果、Cu 添加の場合、結晶構造は添加量の増加に伴い FePt 規則相の回折ピーク強度が減少するとともにピーク位置が高角側にシフトしていくことが確認された。このことから Fe と非固溶である Cu は FePt 規則相中に侵入し、結晶構造に影響を及ぼしたと考えられる。しかしながら、Ag の場合では含有量による回折パターンのピークシフトは確認されず、ピーク強度の減少が確認された。表面形態観察の結果、Cu 添加の場合においては添加量を 0 ~ 30 (at.%)まで変化させると膜面内の粒径が 72 ~ 46 nm まで減少することが確認された。また、Ag 添加の場合では含有量を 0 ~ 29.3 (at.%)まで増加させると粒径分布は 72 ~ 33 nm まで減少することが確認された。これより、Cu よりも Ag の場合が粒子サイズに与える影響が大きいことが確認された。磁気特性は Ag 添加においては全ての試料で約 55 kOe と高い保磁力が確認されたが、Cu 添加では添加量の増加により保磁力が減少することが確認された。講演時には、Cu および Ag を添加した際の FePt 薄膜に与える影響について詳細に報告する。

### 参考文献

- 1) A. Perumal, Y. K. Takahashi, and K. Hono, *Appl. Phys. Express.* **1**, 101301 (2008).
- 2) S. Sun, C. B. Murray, D. Weller, L. Folks and A. Moser, *Science.* **287**, 1989 (2000).

## ECC 媒体のマイクロ波アシスト磁化反転特性

龍野 裕史<sup>A</sup>、鈴木 翔子<sup>A</sup>、葛西 伸哉<sup>B</sup>、能崎 幸雄<sup>A,C</sup>

(<sup>A</sup>慶大理工、<sup>B</sup>物質・材料研究機構、<sup>C</sup>慶大スピノン研)

Property of microwave-assisted magnetization switching in exchange-coupled composite films

Hirofumi Tatsuno<sup>A</sup>, Shoko Suzuki<sup>A</sup>, Shinya Kasai<sup>B</sup>, Yukio Nozaki<sup>A,C</sup>

(<sup>A</sup>Keio Univ., <sup>B</sup>National Institute of Material Science, <sup>C</sup>Keio Spintronics Center)

### はじめに

マイクロ波アシスト磁化反転(MAS)は、交流磁場を印加することによって磁化反転磁場が減少する現象であり、磁気記録密度を向上させる方法として最も有望視されている手法の一つである。また磁気異方性エネルギーの異なる材料を交換結合させた交換結合構造は、2 マクロスピンモデル(TMS)を用いた数値計算により、交換結合強度に依存して Hard 層の磁化反転磁場が減少することが報告されている[1]。以前我々は、交換結合構造の MAS 特性を調べるため、磁気異方性の異なる Co-Cr-Pt 基グラニューラー膜の間に非磁性 ECL(Exchanged Control Layer)を挟んだ ECC(Exchanged Coupled Composite)媒体を作製し、ECL 膜厚によって交換結合強度を制御しつつ幅 20 ns のマイクロ波インパルスを印加して MAS 実験を行った。その結果、最大のマイクロ波アシスト効果が出る周波数の ECL 厚依存性が TMS モデル[2]では説明できないことがわかった。TMS モデルでは、ECC 媒体における結晶粒間の磁氣的結合や、膜厚方向における磁化ねじれ構造が考慮されていない。そこで今回は膜厚方向に多数のマクロスピンを 1 次元的に交換結合させた、実際の媒体により近いモデルを用いて数値計算を行い、実験結果との比較・評価を行った。

### 計算手法

Fig. 1 に計算モデルの一例を示す。Soft 層 4 nm、Hard 層 12 nm の交換結合膜を  $x = y = 10 \mu\text{m}$ 、 $z = 1 \text{ nm}$  の計算要素で膜厚方向に 16 分割したモデルを考え、隣接する計算要素内のマクロスピンが互いに交換結合するようにしてマイクロマグネティクス計算を行った。このとき Soft 層と Hard 層内の交換スティフネス定数はそれぞれ  $1 \times 10^{-6} \text{ erg/cm}$  で固定し、層間交換スティフネス定数の値を  $1 \times 10^{-8} \sim 10^{-6} \text{ erg/cm}$  の範囲で変化させることで MAS 特性の交換結合強度依存性を調べた。

### 実験結果

Fig.2 に磁化反転磁場の交換結合強度依存性の計算結果を示す。Fig.2 中の赤点と青点はそれぞれ交流磁場 (575 Oe) を印加した場合としない場合の計算結果である。交流磁場を印加しなかった場合の計算結果は H.J.Richter の報告[1]と一致する結果であり、交換結合強度の小さい領域で Soft 層と Hard 層の結合が切れる Decoupling 領域が現れた。

(b) このとき MAS においても Decoupling 領域の直前で磁化反転磁場が最小となる結果が得られた。その他 MAS 周波数の交換結合強度依存性や Soft 層と Hard 層の割合を変えた場合の計算結果などについて発表し、実験結果との比較・議論を行う。

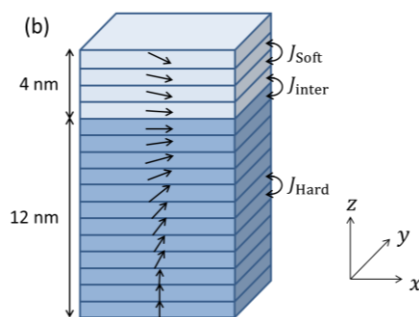


Fig.1 Numerical model for simulating MAS in ECC medium

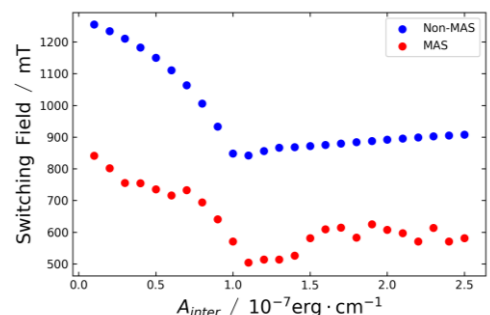


Fig.2 Numerical results of switching field as a function of interlayer exchange coupling

### 参考文献

- [1] H.J.Richter, A.Y.Dobin. J.Appl.Phys.99,08Q905 (2006)  
 [2] T.Yamaji, H.Imamura. Appl.Phys.Lett. 109,192403(2016)

# サブナノ秒パルス磁場を用いた非線形磁化ダイナミクスの時間分解測定

北島直人<sup>A</sup>, 岡野元基<sup>A</sup>, 能崎幸雄<sup>A,B</sup>  
(慶應理工<sup>A</sup>, 慶大スピン研<sup>B</sup>)

Time-resolved measurement on nonlinear magnetization dynamics  
using sub-nanosecond wide impulse field

N. Kitajima<sup>A</sup>, G. Okano<sup>A</sup> and Y. Nozaki<sup>A,B</sup>

(<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>Keio Spintronics Center)

## はじめに

近年、磁気記録媒体の急速な発展に伴いデジタルデータを記録する技術は精力的に研究され、そのひとつとしてマイクロ波アシスト磁化反転(MAMR)が挙げられる。従来の研究ではマイクロ波磁場強度を大きくし、磁化のポテンシャルエネルギーが十分励起された状態で行われてきたが、強度が小さく反転に至らない領域(不安定領域[1])を調べた報告は少ない。不安定領域を調べる手段として Cooperative Switching 法(CS 法[2])が挙げられる。CS 法の原理図を Fig.1 に示す。マイクロ波磁場強度が不十分な場合、反転を妨げるポテンシャル障壁  $\Delta E$  が存在する。そこにパルス磁場を重畳印加するとポテンシャルエネルギーの概形が変化し、磁化反転する。反転に至ったときのパルス磁場強度はポテンシャル障壁に対応していることからパルス磁場印加タイミングを変えることでポテンシャル障壁の時間発展を測定することができる。Okano ら[2]はこの手法を用いることで不安定領域において磁化の歳差運動角が不連続に増加する境界があることを示した。そこで我々はパルス磁場印加タイミングを変えて測定を行い、不安定領域における歳差運動角の時間発展を測定した。

## 実験方法

表面酸化 Si 基板に超高真空蒸着器及び EB 描画装置を用いて Ti(5 nm)/Au(60 nm) からなるコプレーナ線路(信号線幅 1  $\mu\text{m}$ ) を成膜した。その後同様の手法でコプレーナ線路上に細線状の  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(\text{Py})$  を 60 nm 成膜した。細線の長手方向に直流磁場を印加し磁化を飽和させた後、磁化と反平行に印加した状態で FMR 測定を行い、共鳴周波数を調べた。磁化反転が起きると共鳴周波数が不連続に変化することから直流磁場を変えて共鳴周波数を測定し、磁化反転磁場を測定した。磁化反転磁場がマイクロ波やマイクロ波とパルスを重畳した波形を印加した場合にどのように変化するか調べた。

## 実験結果

MAMR の周波数依存性及び強度依存性から不安定領域を特定した。さらにパルス磁場を重畳した波形を用いて測定を行った。Fig.2 は重畳波形の一例でオシロスコープの表示である。当日は重畳波形のパルス磁場印加タイミングを変えた測定結果を用いて不安定領域における歳差運動角の時間発展を論じる。

## 参考文献

- 1) G. Bertotti *et al.*, *J.Appl.Phys.* **105**,07B712(2009).
- 2) G. Okano *et al.*, *Phys. Rev. B* **97**,014435(2018)

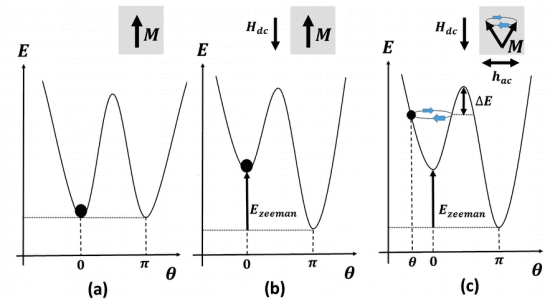


Fig. 1: Schematic view of the CS method. Theta denote the magnetization angle mesured from initial state and E denote the potential energy. When we applied no external field, 2satate is degenerate. When applied dc-field, degeneracy is resolved and microwave is applied, magnetization begin precession. But, magnetization switching is disturbed by the potential barrier( $\Delta E$ ), so applying pulse field, we can realize magnatization switching. Pulse amplitude correspond to  $\Delta E$ , so we can estimate precessional angle through pulse field.

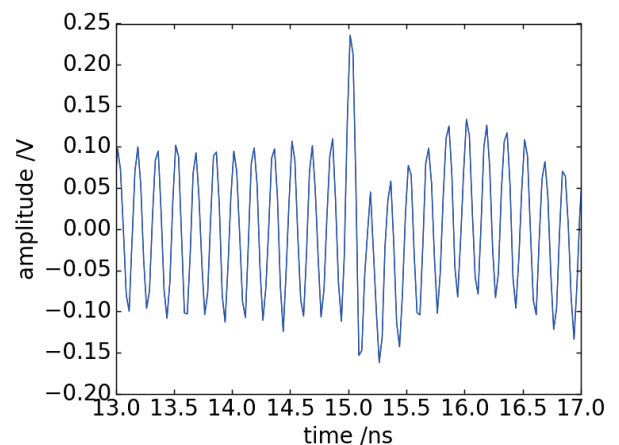


Fig. 2: Wave form of microwave combined with subnanosecond impulse field. Microwave frequency is 5 GHz and duration time is 15 ns. Pulse field is 100ps and the intensity ratio is 1:3.



## 積層反強磁性体におけるレーザー誘起スピン波伝播

上牧 瑛<sup>1,2</sup>, 飯浜 賢志<sup>1</sup>, 鈴木 和也<sup>1,3</sup>, 水上 成美<sup>1,3</sup>  
 (1 東北大学 WPI-AIMR, 2 東北大学院工, 3 東北大学 CSRN)

Laser-induced propagating spin wave in synthetic antiferromagnets

A. Kamimaki<sup>1,2</sup>, S. Iihama<sup>1</sup>, K. Z. Suzuki<sup>1,3</sup>, S. Mizukami<sup>1,3</sup>

(<sup>1</sup>WPI-AIMR, Tohoku Univ, <sup>2</sup>Dept. of Appl. Phys., Tohoku Univ, <sup>3</sup>CSRN, Tohoku Univ.)

### 背景

反強磁性体は隣接する磁気モーメントが互いに反平行に結合しており、強磁性体とは異なる磁化ダイナミクスを示すことから、新規デバイス応用が期待されている<sup>1)</sup>。一方、反強磁性体のダイナミクスはその高い共鳴周波数から測定が容易でなく、特に反強磁性金属薄膜におけるスピン波伝播の報告はない。そこで本研究では、パルスレーザーを用いた反強磁性積層膜 (SAF 構造) におけるスピン波の観測を試みた。

### 実験方法

SAF 構造として、Si/SiO<sub>2</sub>(sub.)/Ta(3)/CoFeB(3)/Ru(0.4)/CoFeB(3)/Ta(3) 薄膜 (膜厚: nm 単位) をスパッタ法により製膜した。磁気特性の評価には、極カー効果ならびに振動試料型磁力計を用いた。磁化ダイナミクス・スピン波伝播の評価には、光ポンプ・プローブ時間分解磁気光学カー効果、及び顕微光ポンプ・プローブ時間分解磁気光学カー効果 (STR-MOKE) をそれぞれ用いた<sup>2)</sup>。

### 実験結果

磁化測定の結果、試料は約 1.2 T の交換結合磁場を有することが分かった。図 1(a) に一斉歳差モードから評価した有効ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の外部磁場角度  $\theta_H$  依存性を示す。印加磁場の強さは 1.3 T とした。 $\theta_H \geq 40^\circ$  (ただし  $\theta_H$  は膜面直からの角度) において  $\alpha_{\text{eff}} = 0.012$  と比較的小さい値を示した。図 1(b) に STR-MOKE の測定結果を示す。 $\Delta t$ ,  $x$ ,  $\Delta\theta_k^{\text{sw}}$  はそれぞれ、ポンプ・プローブ遅延時間、スポット中心間距離、及び極カー回転角の変化である<sup>2)</sup>。 $\pm 5 \mu\text{m}$  程度の領域で明瞭なスピン波の伝播が観測された。測定の結果は強磁性薄膜におけるスピン波<sup>2)</sup>の波形とは大きく異なっており、SAF 構造における反強磁性磁化配列を反映しているものと考えられる。

謝辞 本研究は科研費(26103004), Core-to-Core プログラム, 東北大学 GP-Spin の支援を受けた。

### 参考文献

- 1) J. Lan *et al.*, Nat. Commun. **8**, 178 (2018).      2) A. Kamimaki *et al.*, Phys. Rev. B. **96**, 014438 (2017).

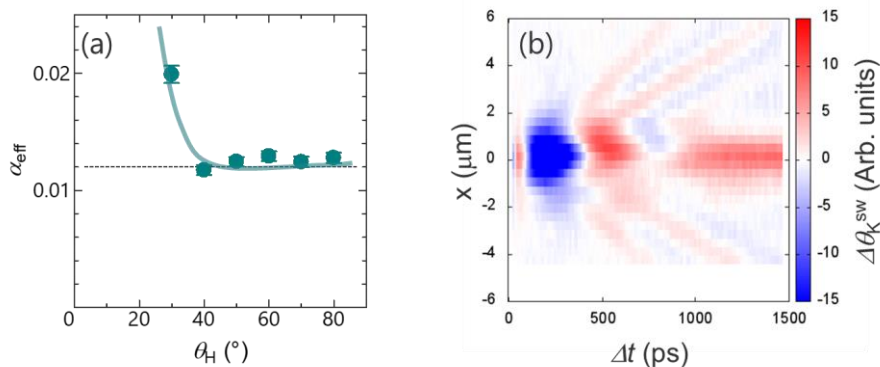


図 1 (a) SAF 構造における有効ダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の磁場角度  $\theta_H$  依存性. (b) SAF 構造におけるレーザー励起スピン波伝播の時空間マップ.  $\Delta t$ ,  $x$ ,  $\Delta\theta_k^{\text{sw}}$  はそれぞれ、ポンプ・プローブ遅延時間、スポット中心間距離、及び極カー回転角の変化である。ただし、バックグラウンドは取り除いている<sup>2)</sup>。

# [Co/Tb]磁性細線の電流磁区駆動における熱酸化 Si 層厚の影響

奥田 光伸、川那 真弓、石井 紀彦、宮本 泰敬  
(NHK 放送技術研究所)

Influence of Surface Oxidized Si Layer Thickness on Substrate  
for Current-driven Domain Wall Motion in [Co/Tb] Nanowire  
M. Okuda, M. Kawana, N. Ishii, Y. Miyamoto  
(NHK Science & Technology Research Labs.)

## はじめに

磁性細線における磁壁の電流駆動に関する研究<sup>1)</sup>に注目が集まり、レーストラックメモリ<sup>2)</sup>に代表される新原理のメモリが提案されている。我々は磁性細線を並列に複数配置し、それらの磁区をパルス電流印加によって同期駆動する高速磁気記録デバイスの実現を目指して、磁性細線中の磁区を電流駆動する基礎研究を進めている<sup>3)</sup>。電流駆動時の磁区形状の変化を検証するため、磁気光学顕微鏡により[Co/Tb]磁性細線の磁区駆動を観察した。駆動電流量の増大に伴い磁区駆動速度は上昇するが、ある臨界を超えると発生したジュール熱により磁区の磁化状態が不安定になり、磁区が多数に分裂することで多磁区化することを確認した。そこで基板表面の熱酸化 Si 層に蓄積され磁区駆動を阻害するジュール熱の影響を検証するため、各熱酸化 Si 層厚条件におけるパルス電流を印加した際の磁性細線への影響を、磁気光学顕微鏡により観察したので報告する。

## 実験方法

イオンビームスパッタ法および電子線リソグラフィにより、Pt(3 nm)/[Co(0.3nm)/Tb(0.6nm)]<sub>5</sub> 垂直磁化多層膜を表面熱酸化 Si 基板上に堆積して磁性細線を作製した。磁性細線の大きさは、幅 5 μm、長さ 20 μm とした。パルス電流を印加するため、細線の両端に一对の電極を形成している。電流駆動実験には基板表面の絶縁性が求められるため、表面熱酸化 Si 層厚を 20 ~ 400 nm の範囲で変化させたものを用意し、それぞれの基板上に磁性細線を形成した。次に、パルス電流を印加して駆動実験に必要な初期磁区を導入した。細線長さ方向に 500 ns のパルス電流を印加して磁区が移動の様子を磁気光学顕微鏡により観察し、熱酸化 Si 層厚の違いによって磁区駆動速度や多磁区化する印加電流密度の変化について調査した。

## 実験結果

Fig.1 は Si 基板の表面熱酸化 Si 層厚を 200 ~ 400 nm の範囲で変化させた場合の、磁区駆動速度の印加電流密度依存性を示したものである。各熱酸化 Si 層厚条件において、磁区駆動可能な速度以上の駆動電流を印加した場合、初期磁区として導入した磁区は形状を保持できず多磁区化する様子が観察された。熱酸化 Si 層厚の減少に伴い、細線に印加できる電流密度の上限値が  $3.0 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> から  $5.8 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> へ上昇した結果、磁区駆動速度も 8.5 m/s から 14.6 m/s まで 6.1 m/s 上昇した。このとき、印加パルスの電流密度上限が  $2.8 \times 10^7$  A/cm<sup>2</sup> 大きくなっているが、これは層厚の減少に対応して熱酸化 Si 層に蓄積可能な熱の総量が減少し、磁区駆動の阻害要因が減少したためと考えられる。熱酸化 Si 層厚 200 nm と 400 nm の場合で多磁区化する際の電流密度を比較すると、500 ns のパルスを印加している間に発生するジュール熱の差分は  $1.6 \times 10^{-7}$  J と見積もられ、この熱の一部が熱酸化 Si 層に蓄積されているものと推測される。さらに薄い熱酸化 Si 層厚における磁区駆動の詳細についても当日報告する。

## 参考文献

- 1) A. Yamaguchi *et al.*: *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 077205 (2004).
- 2) S. S. P. Parkin *et al.*: *Science*, **320**, 190 (2008).
- 3) M. Okuda *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **52**, 7, 3401204 (2016).

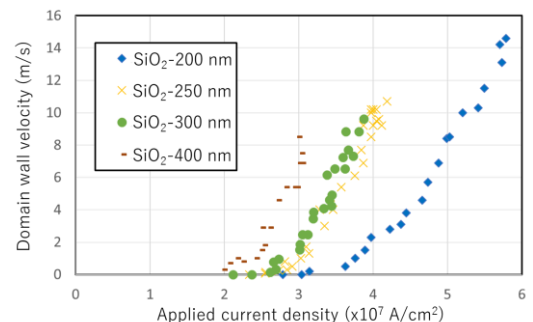


Fig.1 Applied current density dependences of domain wall velocity for [Co/Tb] nanowires deposited on various SiO<sub>2</sub> surface oxidized layer thickness.

## Large perpendicular magnetic anisotropy in sputter-deposited $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x/\text{MgAl}_2\text{O}_4$ heterostructures

T. Scheike, °H. Sukegawa, X.D. Xu, T. Ohkubo, K. Hono and S. Mitani  
(NIMS)

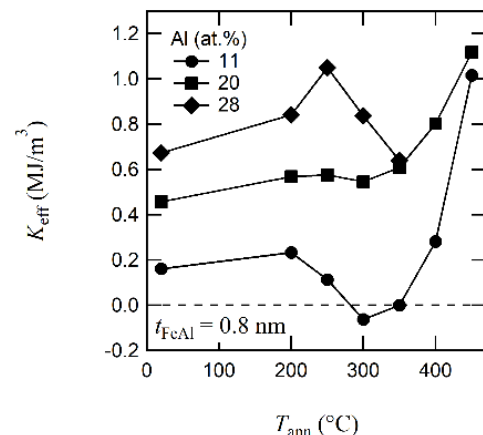
Large perpendicular magnetic anisotropy (PMA) at ferromagnet (FM)/oxide interfaces is of utmost importance for magnetic tunnel junctions (MTJ) based memory devices such as spin-transfer torque magnetoresistive random access memory (STT-MRAM) and magneto-electric RAM. In recent publications, Al diffusion from a  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  FM layer into an  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  layer was reported to induce large PMA energy  $K_{\text{eff}} = 0.4 \text{ MJ/m}^3$  in lattice-matched  $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{MgAl}_2\text{O}_4(001)$  epitaxial heterostructures.<sup>1,2)</sup> It was suggested that the element diffusion resulted in strong hybridization of Fe- with O-orbitals at their interface, assisting the PMA contribution.<sup>2)</sup> In order to improve  $K_{\text{eff}}$  further, we examined the bcc Fe-Al with Fe rich compositions as an FM layer. Here, we report larger PMA energy  $K_{\text{eff}}$  over  $1 \text{ MJ/m}^3$  using ultrathin  $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x/\text{MgAl}_2\text{O}_4$  heterostructures for various  $x$ .

The following stack structures were deposited on  $\text{MgO}(001)$  single crystal substrates using an ultrahigh vacuum magnetron sputtering system:  $\text{MgO}$  substrate/ $\text{Cr}(40)/\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x$  ( $t_{\text{FeAl}}$ )/ $\text{Mg}(0.2)/\text{Mg}_{40}\text{Al}_{60}(0.7)/\text{plasma oxidation}/\text{Ru}(2)$  (thickness in nm). The  $\text{MgO}$  substrate/ $\text{Cr}$  layer was annealed at  $750^\circ\text{C}$  for 1 h.  $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x$  was deposited by co-sputtering of Fe and Al. An  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  layer was formed by the plasma oxidation of the  $\text{Mg}/\text{Mg}_{40}\text{Al}_{60}$  bilayer. The stacks were post-annealed *ex-situ* at temperatures of  $T_{\text{ann}}$ . Magnetic properties including  $K_{\text{eff}}$  were evaluated using a vibrating sample magnetometer at room temperature.

As shown in Fig. 1, large  $K_{\text{eff}}$  above  $1 \text{ MJ/m}^3$  was obtained for  $x = 11, 20,$  and  $28$ , which was nearly the same value observed in  $\text{Fe}/\text{MgAl}_2\text{O}_4$  fabricated by electron-beam deposition.<sup>3)</sup> For  $T_{\text{ann}} < 300^\circ\text{C}$ ,  $K_{\text{eff}}$  increases with  $x$ .  $K_{\text{eff}}$  values show a strong  $T_{\text{ann}}$  dependence above  $300^\circ\text{C}$  ( $x \leq 20$ ), showing possible tunability of PMA properties with Al concentration and  $T_{\text{ann}}$ . Scanning transmission electron microscope analysis showed a lattice-matched interface with Al diffusion from the Fe-Al layer into the barrier. Above  $300^\circ\text{C}$ , diffusion of Cr was also confirmed; however, we observed no significant change in the saturation magnetization and negligible magnetic dead-layer. The results show very large interfacial PMA can be achieved by atomically-controlling element diffusion in sputter-deposited heterostructures. Therefore, the  $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x/\text{MgAl}_2\text{O}_4$  is a good candidate for future spintronic applications. This study was supported by the ImPACT Program, and JSPS KAKENHI Grant Nos. 16H06332 and 16H03852.

### Reference

- 1) H. Sukegawa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 112403 (2017).
- 2) J.P. Hadorn *et al.*, Acta Mater. **145**, 306 (2018).
- 3) Q. Xiang *et al.*, Appl. Phys. Express **11**, 063008 (2018).



**Fig. 1.**  $T_{\text{ann}}$  dependence of  $K_{\text{eff}}$  of various Al concentration ( $x$ ) in  $\text{Fe}_{100-x}\text{Al}_x$  ( $t_{\text{FeAl}} = 0.8 \text{ nm}$ )/ $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  heterostructures.

# 酸化物／強磁性金属へテロ接合膜における磁気抵抗効果と強磁性金属結晶配向性との相関

○磯上慎二<sup>1</sup>, 埋橋 淳<sup>1</sup>, 大久保忠勝<sup>1</sup>, 林 将光<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup> 物材機構, <sup>2</sup> 東京大)

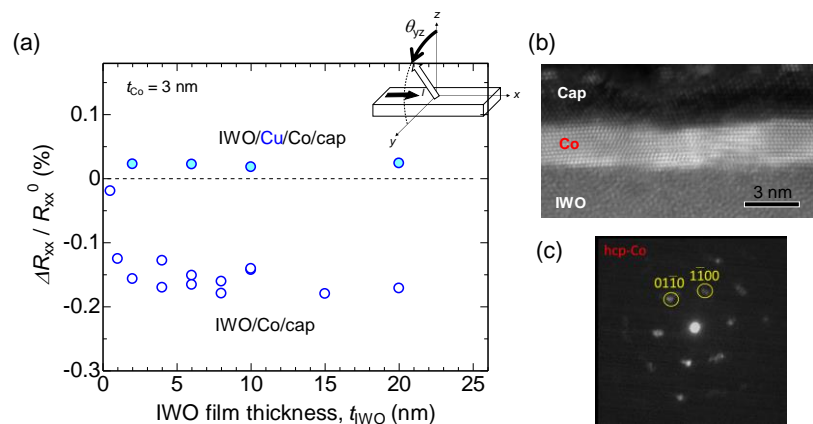
Relationship between magnetoresistance effect and crystal orientation of ferromagnetic-metal in oxide/ferromagnet heterostructure

Shinji Isogami<sup>1</sup>, Jun Uzuhashi<sup>1</sup>, Tadakatsu Ohkubo<sup>1</sup>, and Masamitsu Hayashi<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup> NIMS, <sup>2</sup> Univ. of Tokyo)

**1. はじめに** ヘテロ接合膜面内 ( $x$  方向) へ電流を流しながら, 直交する面内 ( $yz$  面) で磁場を回転すると, 電気抵抗変化が生じるスピンホール磁気抵抗 (SMR) 効果が報告されている<sup>1)</sup>. この測定配置は通常の面内異方性磁気抵抗 (in-plane-AMR) 効果と異なるが, 例えば MgO/Fe/MgO 接合中の Fe の結晶性や配向性によっては, 上述の SMR 測定配置において Transverse-AMR 効果が観測されている<sup>2)</sup>. 我々は, アモルファス相の In-W 酸化物 (IWO) / 強磁性金属へテロ接合に対し SMR 測定配置にて磁気抵抗 (MR) 測定したところ, IWO の膜厚によらず一定の MR 変化率が観測された. この起源としては界面における本質的な SMR 効果, 強磁性金属層内部の Tr-AMR 効果などの可能性が予測されるが未解明である. そこで本研究では, 観測された MR 変化率の起源の理解を深めるため, 界面微細構造の解析を目的とした. その結果, MR 効果を示すものと示さないものでは, 強磁性層の結晶配向性に違いが明らかとなったため, 詳細を報告する.

**2. 実験方法** 試料の膜構成は, 熱酸化膜付き Si 基板 / IWO / Cu / FM 層 / Cap 層とした. 成膜には RF マグネトロンスパッタリング装置を用いた. IWO 膜は酸素を 0.5 % 含んだアルゴン混合ガスによる反応性スパッタリング法にて室温で成膜した. FM 層には Co, Co<sub>20</sub>Fe<sub>60</sub>B<sub>20</sub>, Fe<sub>67</sub>Co<sub>33</sub> などを用いた. ホールバーはメタルマスクを用いて作製し, サイズは  $L = 1.2$  mm,  $W = 0.8$  mm とした. 抵抗 ( $R_{xx}$ ) の測定には直流四端子法を用い, 十分飽和する 4 T の磁場を  $yz$  面内で回転させながら行った (上述の SMR 測定配置). ここで電流方向を  $x$  方向と定義している. IWO / Co 界面の微細構造は, HAADF-STEM 像とナノビーム電子線回折パターンを用いて解析した.

**3. 実験結果** Fig. 1(a) は IWO 膜厚 ( $t_{IWO}$ ) に対する MR 変化率 ( $\Delta R_{xx}/R_{xx}^0$ ) を示す. Cu 膜厚がゼロ (IWO/Co/cap) の時, IWO 膜厚が数 nm を越える領域で -0.2% 一定値となったことが見て取れる. しかし Cu 挿入膜 (IWO/Cu/Co/cap) では MR 変化率がほぼゼロとなった. Fig. 1(b) は Cu を挿入していない IWO/Co/cap の STEM 像を示す. アモルファス IWO 上に高配向 Co の形成が見て取れる. Fig. 1(c) は Co 層におけるナノビーム電子線回折パターンを示す. 解析の結果, Co は  $c$  面が面内方向を向いた六方最密充填構造をとっていることが判った. 講演会では Cu を挿入した時の Co の結晶性を示し, 結晶構造と磁気抵抗の関連について議論する.



## 参考文献

- 1) H. Nakayama, et al., PRL. **110**, 206601 (2013).
- 2) L.K. Zou, et al., PRB **93**, 075309 (2016).

Fig.1(a) IWO thickness dependence of MR ratio with and without 1-nm-thick Cu layer insertion between IWO and Co layers. (b) Cross sectional HAADF-STEM image for IWO/Co/cap structure. (c) Nano-beam electron diffraction pattern of specific point in Co layer.